

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2018年5月3日(03.05.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/078874 A1

(51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2016/082328

(22) 国際出願日: 2016年10月31日(31.10.2016)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 向垣内 康平(MUKAIGAITO Kouhei); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 高橋宏明(TAKAHASHI Hiroaki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 古園 圭俊(FURUZONO Kazutoshi); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 石川 栄作(ISHIKAWA Eisaku); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A (明治安田生命ビル) 9階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

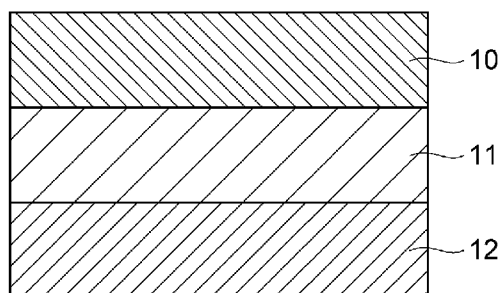
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,

(54) **Title:** RESIN COMPOSITION FOR INTERLAYER IN LAMINATE GLASS, FILM MATERIAL FOR INTER-LAYER, AND LAMINATE GLASS MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: 合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法

[図1]



(57) **Abstract:** The present invention relates to a resin composition for an interlayer in laminate glass, containing a copolymer of a monomer mixture that includes a (meth)acryloyl compound and a silicon compound having an ethylenically unsaturated group.

(57) 要約: 本発明は、(メタ)アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含む、合わせガラスの中間膜用の樹脂組成物に関する。

[続葉有]

WO 2018/078874 A1

SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：

合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 現在、自動車のような車輛の窓、サンルーフ、内装パネル等のガラスとしては、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、合わせガラスが広く用いられている。合わせガラスは、電車、航空機、建設機械、建築物等の窓にも用いられている。

[0003] 合わせガラスの一例として、少なくとも一对のガラス板間に、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させて得られるものが挙げられる（例えば、特許文献1～3参照）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開昭62－100463号公報

特許文献2：特開2005－206445号公報

特許文献3：国際公開第2012／091117号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 従来の合わせガラスの多くは、同等の厚みのガラスに比べて同等程度の防割性を有しているが、外部から加えられた衝撃に対して、より割れ難く、防割性の高い合わせガラスが求められている。

[0006] 本発明は、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製できる、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、（メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の合わせガラスの中間膜用樹脂組成物を提供する。

[0008] 上記（メタ）アクリロイル化合物は、アルキル（メタ）アクリレートと、水酸基を有する（メタ）アクリレートとを含有してもよい。

[0009] 上記モノマー混合物は、アルキル（メタ）アクリレート50～90質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート5～30質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物5～20質量部を含有してもよい。

[0010] 本発明に係る樹脂組成物は、熱架橋剤を更に含んでもよい。

[0011] 本発明はまた、基材と、基材上に設けられた樹脂層と、を有し、樹脂層が、対向する2枚のガラス板と前記2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの前記中間膜を形成するために用いられる、合わせガラスの中間膜用フィルム材であって、樹脂層が、上記中間膜用樹脂組成物から形成された層である、中間膜用フィルム材を提供する。

[0012] 上記樹脂層のヘーズは、5%以下であってもよい。

[0013] 本発明はさらに、対向する2枚のガラス板と、前記2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備える合わせガラスの製造方法であって、上記合わせガラスの中間膜用が備える樹脂層を介して、2枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、30～150℃及び0.3～1.5MPaの条件で、積層体を加熱加圧処理する工程とを含む、合わせガラスの製造方法を提供する。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製できる、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、フィルム材及

び合わせガラスの製造方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]合わせガラスの中間膜用フィルム材の一実施形態を示す模式断面図である。

[図2]合わせガラスの一実施形態を示す模式断面図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下、場合により図面を参照しつつ本発明の好適な実施形態について説明をするが、本発明は以下の実施形態に何ら限定されるものではない。

[0017] 本明細書において「(メタ)アクリレート」とは、「アクリレート」及びそれに対応する「メタアクリレート」の少なくとも一方を意味する。(メタ)アクリロイル等の他の類似表現についても同様である。

[0018] <合わせガラスの中間膜用樹脂組成物>

本実施形態の合わせガラスの中間膜用樹脂組成物(以下、単に「樹脂組成物」という場合がある。)は、(メタ)アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含んでいる。

[0019] 本実施形態に係る樹脂組成物は、特定の共重合体を含むことにより、ガラス等の被着体表面への密着性が向上し、作製される積層体の強靱性が向上することで、合わせガラスの高い防割性を発現することができる。

[0020] (共重合体)

本実施形態に係る共重合体は、(メタ)アクリロイル基を有する化合物(但し、構成原子としてケイ素を有しない。)に基づく構造単位と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物に基づく構造単位を含んでいる。

[0021] (メタ)アクリロイル基を1つ有する化合物としては、例えば、(メタ)アクリル酸、(メタ)アクリルアミド、(メタ)アクリルアミド誘導体、アルキル(メタ)アクリレート、アルキレングリコール鎖を有する(メタ)アクリレート、水酸基を有する(メタ)アクリレート、芳香環を有する(メタ)アクリレート、脂環式基を有する(メタ)アクリレート、(メタ)アクリ

ロイルモルホリン、テトラヒドロフルフルル（メタ）アクリレート及びイソシアネート基を有する（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0022] アルキル（メタ）アクリレートとしては、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、*tert*-ブチル（メタ）アクリレート、*n*-ペンチル（メタ）アクリレート、*n*-ヘキシル（メタ）アクリレート、*n*-オクチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート及びステアシル（メタ）アクリレート等の炭素数1～18のアルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。中でも、アルキル（メタ）アクリレートとしては、*n*-ブチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート及び*n*-オクチル（メタ）アクリレートが好ましく、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレートがより好ましい。また、アルキルメタクリレートよりもアルキルアクリレートの方が好ましい。アルキル（メタ）アクリレートは、単独で又は2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

[0023] 水酸基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、1-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、1-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート及び1-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0024] アルキレングリコール鎖を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、ジエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ヘキサエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリエ

チレングリコールモノ（メタ）アクリレート；ジプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、オクタプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート；ジブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、トリブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート；メトキシトリエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシヘキサエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシオクタエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシノナエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシヘプタプロピレングリコール（メタ）アクリレート、エトキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、ブトキシエチレングリコール（メタ）アクリレート、ブトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート等のアルコキシポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートが挙げられる。また、これらのアルキレングリコール鎖含有（メタ）アクリレートは、単独で又は2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

- [0025] 芳香環を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、ベンジル（メタ）アクリレート及びフェノキシエチル（メタ）アクリレートが挙げられる。脂環式基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート及びジシクロペンタニル（メタ）アクリレートが挙げられる。（メタ）アクリルアミド誘導体としては、例えば、N，N－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N，N－ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド、N，N－ジメチル（メタ）アクリルアミド、N－イソプロピル（メタ）アクリルアミド、N，N－ジエチル（メタ）アクリルアミド及びN－ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。イソシアネート基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、2－（2－メタクリロイルオキシエチルオキシ）

エチルイソシアネート及び2-(メタ)アクリロイルオキシエチルイソシアネートが挙げられる。

[0026] 本実施形態に係る共重合体は、アルキル(メタ)アクリレートに基づく構造単位を含むことが好ましい。アルキル(メタ)アクリレートの共重合割合は、共重合体の全質量に対して、50～90質量%であることが好ましく、50～85質量%であることがより好ましい。アルキル(メタ)アクリレートの共重合割合がこのような範囲であると、樹脂層と被着体との密着性が向上することができる。このような共重合体は、アルキル(メタ)アクリレートを上記共重合割合と同じ含有割合で含有するモノマー混合物を共重合させることで得ることができる。また、重合率は、実質的に100質量%に近くようにすることがより好ましい。

[0027] 本実施形態に係る共重合体は、水酸基を有する(メタ)アクリレートに基づく構造単位を含むことが好ましい。水酸基を有する(メタ)アクリレートの共重合割合は、共重合体の全質量に対して、5～30質量%であることが好ましく、10～30質量%であることがより好ましい。水酸基を有する(メタ)アクリレートの共重合割合がこのような範囲であると、合わせガラスの信頼性試験(加熱加湿条件)において、ヘーズが5.0%以下の透明性を発現することができる。

[0028] ヘーズ(Haze)とは、濁度を表わす値(%)であり、ランプにより照射され、試料中を透過した光の全透過率 T_t と、試料中で拡散され散乱した光の透過率 T_d より、 $(T_d/T_t) \times 100$ として求められる。これらはJIS K 7136により規定されており、市販の濁度計、例えば、日本電色工業株式会社製NDH-5000により容易に測定可能である。

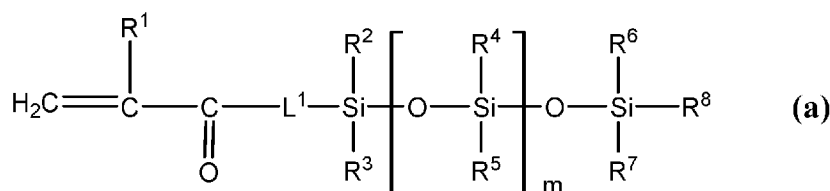
[0029] 本実施形態に係る(メタ)アクリロイル化合物は、アルキル(メタ)アクリレートと、水酸基を有する(メタ)アクリレートとを含有することが好ましい。

[0030] (メタ)アクリロイル化合物は、(メタ)アクリロイル基と、モルホリノ基、アミノ基、カルボキシル基、シアノ基、カルボニル基、ニトロ基、アル

キレングリコール由来の基等の極性基と、を有する化合物を更に含有してもよい。極性基を有する（メタ）アクリレートを含むことによって、樹脂層と被着体との密着性が向上し易くなる。

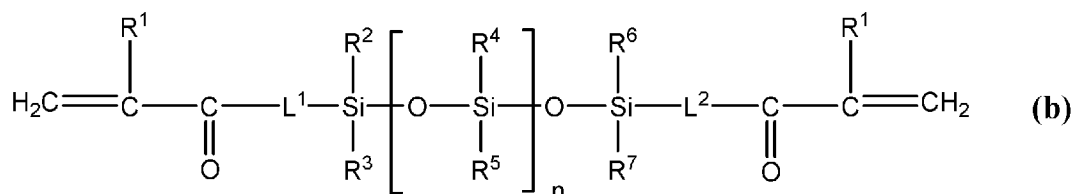
[0031] エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物としては、（メタ）アクリロイル基、スチリル基、ケイ皮酸エステル基、ビニル基、アリル基等の不飽和結合を有する基を有し、かつ、構成原子としてケイ素を有する化合物であれば、特に限定されない。本実施形態に係るケイ素化合物としては、シロキサン化合物又はシラン化合物であってもよく、例えば、下記式（a）、（b）又は（c）に表される化合物が挙げられる。ケイ素化合物は、式（a）、（b）又は（c）で表される化合物を単独で又は２種類以上を組み合わせ使用してもよい。

[0032] [化1]



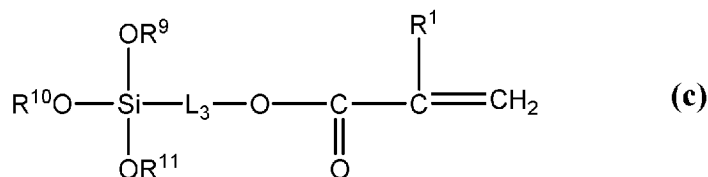
式中、 R^1 は水素原子又はメチル基を示し、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を示し、 R^8 は１価の炭化水素基を示し、 L^1 は酸素原子が介在してもよい２価の炭化水素基又は単結合を示し、 m は１～３００の整数を示す。

[0033] [化2]



式中、 R^1 は水素原子又はメチル基を示し、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 及び R^7 はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を示し、 L^1 及び L^2 はそれぞれ独立に酸素原子が介在してもよい２価の炭化水素基又は単結合を示し、 n は１～３００の整数を示す。

[0034] [化3]



式中、 R^1 は水素原子又はメチル基を示し、 R^9 、 R^{10} 及び R^{11} はそれぞれ独立には水素原子又は1価の炭化水素基を示し、 L^3 は酸素原子が介在してもよい2価の炭化水素基又は単結合を示す。

[0035] 1価の炭化水素基としては、例えば、炭素数1～6のアルキル基又はフェニル基が挙げられる。2価の炭化水素基としては、例えば、炭素数1～20のアルキレン基が挙げられる。

[0036] 本実施形態に係る共重合体において、ケイ素化合物に基づくモノマー単位の共重合割合は、共重合体の全質量に対して、5～20質量%であることが好ましく、10～20質量%であることがより好ましい。ケイ素化合物の共重合割合がこのような範囲であると、樹脂層と被着体との密着性が向上し、積層体の強靱性が向上することで、合わせガラスの防割性がより一層向上する。

[0037] 合わせガラスの防割性及び中間膜の透明性を更に向上する観点から、モノマー混合物は、アルキル（メタ）アクリレート50～90質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート5～30質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物5～20質量部を含有してもよく、アルキル（メタ）アクリレート50～85質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート10～30質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物5～20質量部を含有してもよい。

[0038] モノマー混合物は、本発明の奏する効果を損なわない範囲であれば、（メタ）アクリロイル基を2以上有する化合物、（メタ）アクリロイル基以外の重合性基を有する化合物を含有してもよい。（メタ）アクリロイル基以外の重合性基を有する化合物としては、例えば、アクリロニトリル、スチレン、酢酸ビニル、エチレン、プロピレン及びジビニルベンゼンが挙げられる。

[0039] 共重合体の重量平均分子量 (M_w) は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 法により標準ポリスチレンの検量線を用いて換算した値が、80000～1000000であることが好ましく、100000～900000であることがより好ましく、200000～800000であることが更に好ましい。共重合体の M_w が80000以上であると、被着体に対して密着性を有する樹脂層を得易くなり、1000000以下であると、樹脂組成物の粘度が高くなり過ぎず、樹脂層を形成する際の加工性が良好になる。

[0040] 本実施形態に係る共重合体は、例えば、溶液重合、乳化重合、懸濁重合、塊状重合等の既知の重合方法を用いて合成することができる。

[0041] 共重合体を合成する際の重合開始剤として、熱によりラジカルを発生する化合物を用いることができる。重合開始剤としては、例えば、過酸化ベンゾイル、ラウロイルパーオキシド等の有機過酸化物；2, 2'-アゾビスイソブチロニトリル、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)等のアゾ系化合物が挙げられる。

[0042] (その他添加剤)

樹脂組成物には必要に応じて、上記共重合体と共に、各種添加剤を含有させてもよい。

[0043] 添加剤として、例えば、樹脂組成物の凝集力を高めるために、架橋剤を用いてもよい。架橋剤の具体例としては、光架橋剤及び熱架橋剤が挙げられる。

[0044] 光架橋剤としては、例えば、炭素数1～20のアルキレン基を有するアルキレンジオールジ(メタ)アクリレート；ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート等のアルキレングリコールジ(メタ)アクリレート；エトキシ化ビスフェノールAジ(メタ)アクリレート、エトキシ化ビスフェノールFジ(メタ)アクリレート、ビスフェノールA型エポキシ(メタ)アクリレート等のビスフェノール型ジ(メタ)アクリレート；及びウレタン結合を有するウレタンジ(メタ)

）アクリレートが挙げられる。

[0045] ウレタン結合を有するウレタンジ（メタ）アクリレートは、他の成分との相溶性が良好である観点から、ポリアルキレングリコール鎖を有していてもよく、透明性を確保する観点から、脂環式構造を有していてもよい。光架橋剤と、共重合体との相溶性が低い場合、樹脂組成物から形成される樹脂層が白濁する可能性がある。

[0046] 高温又は高温高湿下における気泡及び剥がれの発生をより抑制できる観点から、光架橋剤の重量平均分子量は、100000以下であることが好ましく、300～100000であることがより好ましく、500～80000であることが更に好ましい。

[0047] 光架橋剤を用いる場合の含有量は、共重合体の全質量に対して、15質量％以下であることが好ましく、10質量％以下であることがより好ましく、7質量％以下であることが更に好ましい。このような範囲であると、十分な密着性を有する樹脂層を得ることができる。光架橋剤の含有量の下限については特に制限はないが、フィルム形成性を良好にする観点から、0.1質量％以上であることが好ましく、2質量％以上であることがより好ましく、3質量％以上であることが更に好ましい。

[0048] 熱架橋剤としては、例えば、イソシアネート化合物、メラミン化合物、エポキシ化合物等の熱架橋剤を用いることができる。熱架橋剤としては、樹脂層中に緩やかに広がった網目状構造を形成するために、3官能、4官能といった多官能の熱架橋剤がより好ましい。

[0049] 反応性の観点から、熱架橋剤として、イソシアネート化合物が好ましく、ポリイソシアネート化合物がより好ましい。ポリイソシアネート化合物としては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネートの三量体、トチメチロールプロパン等のトリオール、ジオール又は単官能アルコールと、ヘキサメチレンジイソシアネートとの反応生成物である多官能性ヘキサメチレンジイソシアネート化合物が挙げられる。

[0050] 熱架橋剤を用いる場合の含有量は、共重合体の全質量に対して、5質量％

以下であることが好ましく、2質量%以下であることがより好ましく、1質量%以下であることが更に好ましい。このような範囲であると、十分な密着性を有する樹脂層を得ることができる。熱架橋剤の含有量の下限については特に制限はないが、フィルム形成性を良好にする観点から、0.01質量%以上であることが好ましい。

[0051] 共重合体又は架橋剤のいずれかが活性エネルギー線による硬化系である場合、光重合開始剤が必要となる。光重合開始剤は、活性エネルギー線の照射により硬化反応を促進させるものである。活性エネルギー線とは、紫外線、電子線、 α 線、 β 線、 γ 線等をいう。

[0052] 光重合開始剤としては、特に限定されるものではなく、ベンゾフェノン化合物、アントラキノン化合物、ベンゾイル化合物、スルホニウム塩、ジアゾニウム塩、オニウム塩等の公知の材料を使用することが可能である。

[0053] 光重合開始剤として、例えば、ベンゾフェノン、N, N, N', N'-テトラメチルー4, 4'-ジアミノベンゾフェノン（ミヒラーケトン）、N, N, N', N'-テトラエチルー4, 4'-ジアミノベンゾフェノン、4-メトキシ-4'-ジメチルアミノベンゾフェノン、 α -ヒドロキシイソブチルフェノン、2-エチルアントラキノン、*t*-ブチルアントラキノン、1, 4-ジメチルアントラキノン、1-クロロアントラキノン、2, 3-ジクロロアントラキノン、3-クロロ-2-メチルアントラキノン、1, 2-ベンゾアントラキノン、2-フェニルアントラキノン、1, 4-ナフトキノン、9, 10-フェナントラキノン、チオキサントン、2-クロロチオキサントン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2, 2-ジメトキシ-1, 2-ジフェニルエタン-1-オン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、2, 2-ジエトキシアセトフェノン等の芳香族ケトン化合物；ベンゾイン、メチルベンゾイン、エチルベンゾイン等のベンゾイン化合物；ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンゾインフェニルエーテル等のベンゾインエーテル化合物；ベンジル、ベンジルジメチルケタール等のベンジル化

物； β - (アクリジン-9-イル) (メタ) アクリル酸等のエステル化合物；9-フェニルアクリジン、9-ピリジルアクリジン、1,7-ジアクリジノヘプタン等のアクリジン化合物；2-(*o*-クロロフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(*o*-クロロフェニル)-4,5-ジ(*m*-メトキシフェニル)イミダゾール二量体、2-(*o*-フルオロフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(*o*-メトキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(*p*-メトキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体、2,4-ジ(*p*-メトキシフェニル)5-フェニルイミダゾール二量体、2-(2,4-ジメトキシフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体、2-(*p*-メチルメルカプトフェニル)-4,5-ジフェニルイミダゾール二量体等の2,4,5-トリアリールイミダゾール二量体；2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モリホリノフェニル)-1-ブタノン；2-メチル-1-[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルホリノ-1-プロパン；ビス(2,4,6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキサイド；オリゴ(2-ヒドロキシ-2-メチル-1-(4-(1-メチルビニル)フェニル)プロパノン)が挙げられる。これらの化合物は複数を組み合わせて使用してもよい。

[0054] 樹脂組成物を着色させない光重合開始剤としては、例えば、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニル-プロパン-1-オン、1-[4-(2-ヒドロキシエトキシ)-フェニル]-2-ヒドロキシ-2-メチル-1-プロパン-1-オン等の α -ヒドロキシアルキルフェノン化合物；ビス(2,4,6-トリメチルベンゾイル)-フェニルホスフィンオキサイド、ビス(2,6-ジメトキシベンゾイル)-2,4,4-トリメチル-ペンチルホスフィンオキサイド、2,4,6-トリメチルベンゾイル-ジフェニルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィンオキサイド化合物；オリゴ(2-ヒドロキシ-2-メチル-1-(4-(1-メチルビニル)フェニル)プロパノン)が挙げられる。

- [0055] 特に厚い樹脂層を形成するためには、光重合開始剤は、例えば、ビス（2，4，6-トリメチルベンゾイル）-フェニルホスフィンオキシド、ビス（2，6-ジメトキシベンゾイル）-2，4，4-トリメチル-ペンチルホスフィンオキシド、2，4，6-トリメチルベンゾイル-ジフェニルホスフィンオキシド等のアシルホスフィンオキシド化合物を含んでもよい。
- [0056] 光重合開始剤の含有量は、樹脂組成物の全質量に対して、0.05～5質量%であることが好ましく、0.1～3質量%がより好ましく、0.1～0.5質量%が更に好ましい。含有量を5質量%以下とすることで、透過率が高く、また色相も黄味を帯びることがなく、透明性に優れる樹脂層を得ることができる。
- [0057] 樹脂組成物には、必要に応じて、架橋剤とは別の添加剤を含有させてもよい。添加剤としては、例えば、樹脂組成物の保存安定性を高める目的で添加するパラメトキシフェノール等の重合禁止剤、樹脂組成物を光硬化させて得られる中間膜の耐熱性を高める目的で添加するトリフェニルホスファイト等の酸化防止剤、紫外線等の光に対する樹脂組成物の耐性を高める目的で添加するHALS（Hindered Amine Light Stabilizer）等の光安定化剤、ガラスに対する樹脂組成物の密着性を高めるために添加するシランカップリング剤が挙げられる。
- [0058] ＜合わせガラスの中間膜用フィルム材＞
- 本実施形態に係る合わせガラスの中間膜用フィルム材は、基材と、基材上に設けられた樹脂層とを有し、樹脂層が、対向する2枚のガラス板と2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの中間膜を形成するために用いられる。当該樹脂層は、上述した中間膜用樹脂組成物から形成された層である。
- [0059] 図1に示されるように、本実施形態に係る中間膜用フィルム材は、樹脂層11と、樹脂層11を挟むように積層された一方の基材10及び他方の基材12と、を備えていてもよい。
- [0060] 基材10としては、基材12よりも軽剥離性の基材を用いることが好まし

い。基材10としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の重合体フィルムが挙げられ、中でも、ポリエチレンテレフタレートフィルム（以下、「PETフィルム」という場合もある）が好ましい。基材10の厚みは、作業性の観点から、25～150 μm であることが好ましく、30～100 μm であることがより好ましく、40～80 μm であることが更に好ましい。

[0061] 基材10の平面形状は、樹脂層11の平面形状よりも大きく、基材10の外縁は樹脂層11の外縁よりも外側に張り出していることが好ましい。基材10の外縁が樹脂層11の外縁よりも張り出す幅は、取り扱い易さ、剥がし易さ、埃等の付着をより低減できる観点から、2～20mmであることが好ましく、4～10mmであることがより好ましい。樹脂層11及び基材10の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合には、基材10の外縁が樹脂層11の外縁よりも張り出す幅は、少なくとも1つの辺において2～20mmであることが好ましく、少なくとも1つの辺において4～10mmであることがより好ましく、全ての辺において2～20mmであることが更に好ましく、全ての辺において4～10mmであることが特に好ましい。

[0062] 基材12としては、基材10よりも重剥離性の基材を用いることが好ましい。基材12としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の重合体フィルムが挙げられ、中でも、PETフィルムが好ましい。基材12の厚みは、作業性の観点から、50～200 μm であることが好ましく、60～150 μm であることがより好ましく、70～130 μm であることが更に好ましい。

[0063] 基材12の平面形状は、樹脂層11の平面形状よりも大きく、基材12の外縁は樹脂層11の外縁よりも外側に張り出していることが好ましい。基材12の外縁が樹脂層11の外縁よりも張り出す幅は、取り扱い易さ、剥がし易さ、埃等の付着をより低減できる観点から、2～20mmであることが好ましく、4～10mmであることがより好ましい。樹脂層11及び基材12の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合には、基材12の外縁が樹脂

層 1 1 の外縁よりも張り出す幅は、少なくとも 1 つの辺において 2 ～ 2 0 m m であることが好ましく、少なくとも 1 つの辺において 4 ～ 1 0 m m であることがより好ましく、全ての辺において 2 ～ 2 0 m m であることが更に好ましく、全ての辺において 4 ～ 1 0 m m であることが特に好ましい。

[0064] 基材 1 0 と樹脂層 1 1 との間の剥離強度は、基材 1 2 と樹脂層 1 1 との間の剥離強度よりも低いことが好ましい。これにより、基材 1 2 は基材 1 0 よりも樹脂層 1 1 から剥離し難くなる。剥離強度は、例えば、基材 1 2 及び基材 1 0 の表面処理を施すことによって調整することができる。表面処理方法としては、例えば、シリコン系化合物又はフッ素系化合物で、基材を離型処理することが挙げられる。

[0065] 樹脂層 1 1 を形成する方法としては、公知の技術を使用することができる。例えば、まず、本実施形態に係る樹脂組成物を、2-ブタノン、シクロヘキサノン、メチルエチルケトン、酢酸エチル、トルエン等の揮発性溶剤で希釈して塗液を調製する。次いで、上記塗液を、基材 1 2 上に塗布し、溶剤を乾燥することにより除去して、任意の厚みを有する樹脂層を形成することができる。上記塗液の調製に際しては、各成分を配合した後に溶剤で希釈してもよく、各成分の配合前に予め溶剤で希釈しておいてもよい。塗布方法としては、例えば、フローコート法、ロールコート法、グラビアコート法、ワイヤーバーコート法、リップダイコート法等の公知の方法を用いることができる。

[0066] 基材 1 2 上に樹脂層 1 1 を形成した後、樹脂層 1 1 上に基材 1 0 を積層することで、本実施形態に係る中間膜用フィルム材が作製される。樹脂層 1 1 は基材 1 0 及び基材 1 2 で挟まれる構成となる。樹脂層 1 1 と、基材 1 0 及び基材 1 2 との剥離性を制御するために、樹脂組成物に、ポリジメチルシロキサン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤等の界面活性剤を含有させてもよい。

[0067] 樹脂層 1 1 の厚みは、使用用途及び方法により適宜調整されるため特に限定されないが、1 0 ～ 5 0 0 0 μ m、2 5 ～ 2 0 0 μ m、2 5 ～ 1 8 0 μ m

、又は、 $25 \sim 150 \mu\text{m}$ であってもよい。この範囲で使用了した場合、外部から加えられた衝撃に対して、防割性により一層優れる合わせガラス用中間膜が得られる。

[0068] 樹脂層 11 の可視光領域（波長： $380 \text{ nm} \sim 780 \text{ nm}$ ）の光線に対する光透過率は、 80% 以上であることが好ましく、 90% 以上であることがより好ましく、 95% 以上であることが更に好ましい。

[0069] 樹脂層 11 のヘーズは、 5% 以下であることが好ましく、 3% 以下であることがより好ましく、 1% 以下であることが更に好ましい。

[0070] 本実施形態に係る中間膜用フィルム材によれば、樹脂層 11 を傷つけることなく、保管及び運搬を容易にすることができる。

[0071] 樹脂層 11 は、中間膜として、例えば、ガラス同士、ガラスと樹脂製の透明基板（又は透明フィルム）、又は、樹脂製の透明基板（又は透明フィルム）同士を貼り合わせることが可能である。

[0072] <合わせガラス>

本実施形態に係る合わせガラス用中間膜（以下、単に「中間膜」という場合がある）は、各種合わせガラスに適用することができる。合わせガラスは、対向する 2 枚のガラス板と、2 枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備えている。本実施形態に係る合わせガラスの製造方法は、上述した合わせガラスの中間膜用フィルム材が備える樹脂層を介して、2 枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、 $30 \sim 150^\circ\text{C}$ 及び $0.3 \sim 1.5 \text{ MPa}$ の条件で、上記積層体を加熱加圧処理する工程とを含む。

[0073] ガラスとしては、例えば、フロートガラス、風冷強化ガラス、化学強化ガラス及び複層ガラスが挙げられる。

[0074] ガラスの厚みは、例えば、 $0.1 \sim 50 \text{ mm}$ 、 $0.5 \sim 30 \text{ mm}$ 、 $1 \sim 20 \text{ mm}$ 、又は $2 \sim 10 \text{ mm}$ であってもよい。

[0075] 図 2 は、合わせガラスの一実施形態を模式的に示す側面断面図である。図 2 に示す合わせガラスは、フロートガラス 20、中間膜 21、フロートガラス 22 がこの順で積層されている。図 2 に示す合わせガラスは、例えば、下

記の方法により製造することができる。

[0076] まず、中間膜用フィルム材における基材10を樹脂層11から剥離して樹脂層11の表面を露出させる。次いで、中間膜21となる樹脂層11の表面を第1の被着体であるフロートガラス20に貼り付け、ローラー等で押し付けた後、基材12を樹脂層11から剥離して表面を露出させる。続いて、樹脂層11の表面を第2の被着体であるフロートガラス22に貼り付け、加熱加圧処理（オートクレーブ処理）して、中間膜21（樹脂層11）を介してフロートガラス20及び22を貼り合わせた合わせガラスが作製される。

[0077] 樹脂層11を用いることにより、シワがなく容易に被着体同士を貼り合わせることができる。また、加熱加圧処理する工程を、低温短時間で行うこともできる。樹脂層11を用いることにより、中間膜21が白化することなく、合わせガラスの安定した透明性を維持することができる。

[0078] 加熱加圧処理の条件は、温度が30～150℃であり、圧力が0.3～1.5MPaであるが、巻き込み気泡をより除去できる観点から、50～70℃で、0.3～0.5MPaであってもよい。また、処理時間は、5～60分間が好ましく、10～30分間であることがより好ましい。

[0079] なお、上記では、第2の被着体としてガラスを用いているが、第2の被着体は、樹脂製の透明基板であってもよい。透明基板としては、例えば、アクリル樹脂基板、ポリカーボネート基板、シクロオレフィンポリマー基板、ポリエステル基板等の透明プラスチック基板が挙げられる。

[0080] 本実施形態に係る中間膜は、合わせガラスの反射防止層、防汚層、色素層、ハードコート層等の機能性を有する機能層を組み合わせて貼り合わせるために使用してもよい。

[0081] 反射防止層は、可視光反射率が5%以下となる反射防止性を有している層であればよい。反射防止層としては、透明なプラスチックフィルム等の透明基材に既知の反射防止方法で処理された層を用いることができる。

[0082] 防汚層は、表面に汚れがつきにくくするためのものである。防汚層としては、表面張力を下げるためにフッ素系樹脂又はシリコン系樹脂等で構成さ

れる既知の層を用いることができる。

[0083] 色素層は、色純度を高めるために使用されるものであり、合わせガラスで透過する不要な波長の光を低減するために使用される。色素層は、不要な波長の光を吸収する色素を樹脂に溶解させ、ポリエチレンフィルム、ポリエステルフィルム等の基材フィルムに製膜又は積層して得ることができる。

[0084] ハードコート層は、表面硬度を高くするために使用される。ハードコート層としては、例えば、ウレタンアクリレート、エポキシアクリレート等のアクリル樹脂；エポキシ樹脂などをポリエチレンフィルム等の基材フィルムに製膜又は積層したものを使用することができる。同様に表面硬度を高めるために、ガラス、アクリル樹脂、ポリカーボネート等の透明保護板に製膜又は積層したハードコート層を使用することもできる。

[0085] このような積層体とする場合、樹脂層 11 は、ロールラミネート、真空貼合機又は枚葉貼合機を用いて積層することができる。

[0086] 本実施形態に係る合わせガラスの製造方法により、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製することができる。

実施例

[0087] 以下、実施例により本発明の説明をする。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0088] 製造例で作製する共重合体の重量平均分子量（ M_w ）は、GPC法に従って標準ポリスチレンによる検量線を使用し、下記のGPC測定装置及び測定条件を用いて測定した。

RI 検出器：L-3350（株式会社日立製作所、製品名）

溶離液：THF

カラム：Gelpac GL-R420+R430+R440（日立化成株式会社、製品名）

カラム温度：40℃

流量：2.0 mL/分

[0089] 製造例 1

冷却管、温度計、攪拌装置、滴下漏斗及び窒素導入管の付いた反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート85.0g、2-ヒドロキシエチルアクリレート10.0g、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（信越化学工業株式会社、製品名「X-22-2426」、エチレン性不飽和基当量：12000g/mol）5.0g及び酢酸エチル145.0gを加え、100mL/分の風量で窒素置換しながら、15分間で常温（25℃）から65℃まで加熱した。次いで、65℃に保ちながら、酢酸エチル5.0gにラウロイルパーオキシド0.1gを溶解した溶液を投入し、8時間反応させて、固形分濃度40%の共重合体A-1（Mw700000）の溶液を得た。

[0090] 製造例2

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート80.0g、2-ヒドロキシエチルアクリレート10.0g、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：12000g/mol）10.0g及び酢酸エチル145.0gを加えた以外は製造例1と同様に操作して、固形分濃度40%の共重合体A-2（Mw700000）の溶液を得た。

[0091] 製造例3

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート70.0g、2-ヒドロキシエチルアクリレート10.0g、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：12000g/mol）20.0g及び酢酸エチル145.0gを加えた以外は製造例1と同様に操作して、固形分濃度40%の共重合樹脂（Mw700000）（共重合体A-3）の溶液を得た。

[0092] 製造例4

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート55.0g、2-ヒドロキシエチルアクリレート25.0g、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：12000g/mol）20.0g及び酢酸エチル145.0gを加えた以外は製造例1と同様に操作して、固形

分濃度 40% の共重合体 A-4 ($M_w 700000$) の溶液を得た。

[0093] 製造例 5

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート 80.0 g、2-ヒドロキシエチルアクリレート 10.0 g、両末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（信越化学工業株式会社、製品名「X-22-164E」、エチレン性不飽和基当量：7800 g/mol）10.0 g 及び酢酸エチル 145.0 g を加えた以外は製造例 1 と同様に操作して、固形分濃度 40% の共重合体 A-5 ($M_w 700000$) の溶液を得た。

[0094] 製造例 6

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート 80.0 g、2-ヒドロキシエチルアクリレート 10.0 g、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン 10.0 g 及び酢酸エチル 145.0 g を加えた以外は製造例 1 と同様に操作して、固形分濃度 40% の共重合体 A-6 ($M_w 700000$) の溶液を得た。

[0095] 製造例 7

反応容器に、2-エチルヘキシルアクリレート 80.0 g、4-ヒドロキシブチルアクリレート 10.0 g、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：7800 g/mol）10.0 g 及び酢酸エチル 145.0 g を加えた以外は製造例 1 と同様に操作して、固形分濃度 40% の共重合体 A-7 ($M_w 700000$) の溶液を得た。

[0096] 製造例 8

2-エチルヘキシルアクリレート 90.0 g、2-ヒドロキシエチルアクリレート 10.0 g 及び酢酸エチル 145.0 g を加えた以外は製造例 1 と同様に操作して、固形分濃度 40% の共重合体 A-8 ($M_w 700000$) の溶液を得た。

[0097] <中間膜用樹脂組成物の調製及び中間膜用フィルム材の作製>

実施例 1

製造例 1 で得られた共重合体 A-1 溶液の共重合体 100 質量部に対して

、熱架橋剤としてポリイソシアネート化合物（東ソー株式会社、製品名「コロネートHL」）0.2質量部を混合して、樹脂組成物の塗液を調製した。

次いで、表面に離型処理した厚み75 μ mのPETフィルム（基材12）に、上記樹脂組成物の塗液を乾燥後の厚みが100 μ mとなるようにバーコーターを用いて塗布し、100℃で10分間加熱乾燥して、樹脂層を形成した。その後、樹脂層上に、離型処理した厚み75 μ mのPETフィルム（基材10）を被せ、1.0kgfのハンドローラーにて貼り付け、中間膜用フィルム材を作製した。

[0098] 実施例2

製造例2で得られた共重合体A-2の溶液を用いた以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0099] 実施例3

製造例3で得られた共重合体A-3の溶液を用いた以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0100] 実施例4

製造例4で得られた共重合体A-4の溶液を用いた以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0101] 実施例5

製造例5で得られた共重合体A-5の溶液を用いた以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0102] 実施例6

製造例6で得られた共重合体ポリマA-6としたこと以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0103] 実施例7

製造例7で得られた共重合体A-7の溶液を用いた以外は、実施例1と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0104] 比較例1

製造例8で得られた共重合体A-8の溶液を用いた以外は、実施例1と同

様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0105] 比較例 2

赤外吸収スペクトルを測定したときに得られる水酸基に対応するピークの半値幅が 245 cm^{-1} であるポリビニルブチラル樹脂（アセタール化度 68.0 モル%、ビニルアセテート成分の割合 0.6 モル%）100 質量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールビス（2-エチルヘキサノエート）38 質量部とを混合し、ミキシングロールで十分に溶融混練した後、プレス成形機で 150°C 、30 分間プレス成形して、厚み $380\text{ }\mu\text{m}$ の樹脂膜を得、これを合わせガラス用中間膜とした。

[0106] <評価>

各実施例及び比較例で得られた中間膜用フィルム材又は樹脂膜について、以下の方法により評価を行った。結果を表 1 に示す。

[0107] 1. ヘーズの測定

実施例及び比較例 1 の中間膜用フィルム材を $50\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ のサイズに切り出し、 85°C 、85%RH の条件下で 24 時間放置した後、取り出して、基材 10 を剥離して樹脂層の表面を露出させた後、樹脂層の表面を縦 50 mm 、横 50 mm 、厚み 2.7 mm のフロートガラスに貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、基材 12 を樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、真空積層機を用いて、真空状態で樹脂層の表面を、縦 50 mm 、横 50 mm 、厚み 2.7 mm のフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、温度 50°C 、圧力 0.5 MPa 、30 分間保持の条件で加熱加圧処理（オートクレーブ処理）し、合わせガラスを得た。また、比較例 2 では、樹脂膜を $50\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ のサイズに切り出し、 85°C 、85%RH の条件下で 24 時間放置した後、取り出して、上記フロートガラスで挟み込み、温度 135°C 、圧力 $118\text{ N/cm}^2\text{ MPa}$ 、20 分間の条件でオートクレーブ処理し、合わせガラスを得た。

得られた合わせガラスを、濁度計（日本電色工業株式会社製、NDH-5000）を用いてヘーズを測定した。

[0108] 2. 合わせガラスの作製

実施例及び比較例 1 では、作製した中間膜用フィルム材から基材 10 を剥離して樹脂層の表面を露出させた後、樹脂層の表面を縦 110 mm、横 110 mm、厚み 2.7 mm のフロートガラスに貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、基材 12 を樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、真空積層機を用いて、真空状態で樹脂層の表面を縦 110 mm、横 110 mm、厚み 2.7 mm のフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、温度 50℃、圧力 0.5 MPa、30 分間保持の条件で加熱加圧処理（オートクレーブ処理）し、合わせガラスを得た。

また、比較例 2 では、樹脂膜をフロートガラスで挟み込み、温度 135℃、圧力 118 N/cm² MPa、20 分間保持の条件でオートクレーブ処理し、合わせガラスを得た。

[0109] 3. 耐衝撃試験

作製した縦 110 mm、横 110 mm 角の合わせガラス（周辺支持）の中心点から 25 mm 以内の位置に質量約 1040 g、直径 63.5 mm の鋼球を 5 cm～100 cm で 5 cm 刻みの高さから順次落下させ、ガラスが割れたときの高さを記録した。それぞれの中間膜からなる合わせガラスを 6 枚試験し、その平均高さを算出し、値が大きいほど防割性の高い合わせガラスとした。

[0110]

[表1]

	実施例							比較例	
	1	2	3	4	5	6	7	1	2
共重合体A-1	100	—	—	—	—	—	—	—	—
共重合体A-2	—	100	—	—	—	—	—	—	—
共重合体A-3	—	—	100	—	—	—	—	—	—
共重合体A-4	—	—	—	100	—	—	—	—	—
共重合体A-5	—	—	—	—	100	—	—	—	—
共重合体A-6	—	—	—	—	—	100	—	—	—
共重合体A-7	—	—	—	—	—	—	100	—	—
共重合体A-8	—	—	—	—	—	—	—	100	—
ポリビニルブチ ラール樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	100
熱架橋剤	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	—
可塑剤	—	—	—	—	—	—	—	—	38
厚み (μm)	100	100	100	100	100	100	100	100	380
ヘイズ (%)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.7	0.5
ガラスが割れた 高さ (cm)	100<	100<	100<	100<	100<	100<	100<	45	30

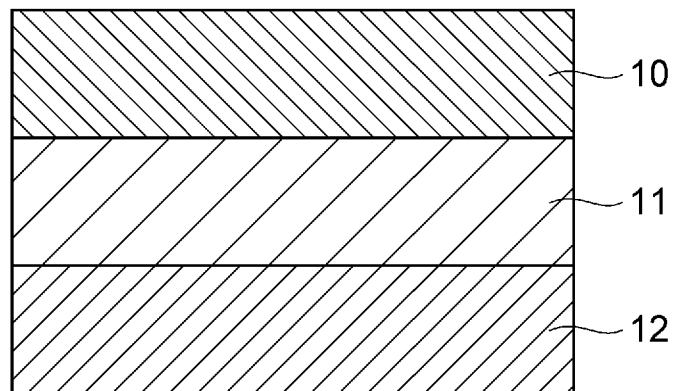
符号の説明

[0111] 10, 12…基材、11…樹脂層、20, 22…フロートガラス、21…中間膜。

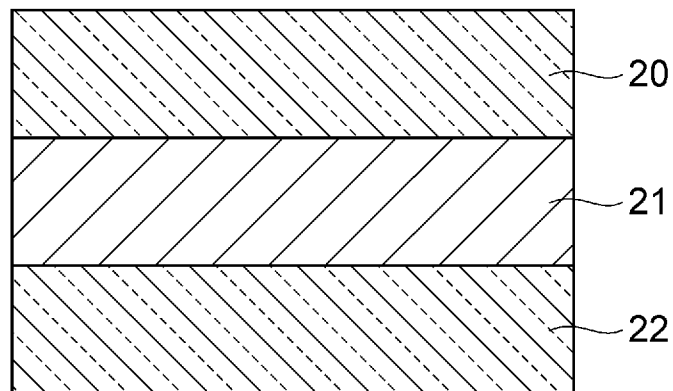
請求の範囲

- [請求項1] (メタ) アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含む、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物。
- [請求項2] 前記(メタ) アクリロイル化合物が、アルキル(メタ) アクリレートと、水酸基を有する(メタ) アクリレートとを含有する、請求項1に記載の中間膜用樹脂組成物。
- [請求項3] 前記モノマー混合物が、前記アルキル(メタ) アクリレート50～90質量部、前記水酸基を有する(メタ) アクリレート5～30質量部及び前記エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物5～20質量部を含有する、請求項2に記載の中間膜用樹脂組成物。
- [請求項4] 熱架橋剤を更に含む、請求項1～3のいずれか一項に記載の中間膜用樹脂組成物。
- [請求項5] 基材と、前記基材上に設けられた樹脂層と、を有し、前記樹脂層が、対向する2枚のガラス板と前記2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの前記中間膜を形成するために用いられる、合わせガラスの中間膜用フィルム材であって、
前記樹脂層が、請求項1～4のいずれか一項に記載の中間膜用樹脂組成物から形成された層である、中間膜用フィルム材。
- [請求項6] 前記樹脂層のヘーズが5%以下である、請求項5に記載の中間膜用フィルム材。
- [請求項7] 対向する2枚のガラス板と、前記2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備える合わせガラスの製造方法であって、
請求項5又は6に記載の中間膜用フィルム材が備える前記樹脂層を介して、前記2枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、
30～150℃及び0.3～1.5MPaの条件で、前記積層体を加熱加圧処理する工程と、
を含む、合わせガラスの製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/082328

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C03C27/12, B32B17/06-17/10, B32B27/00, C08K5/54-5/5435, C08L55/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2011-73943 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 14 April 2011 (14.04.2011), paragraphs [0002] to [0004], [0007], [0010], [0013] to [0023], [0031] to [0039], [0043]; fig. 1 (Family: none)	1, 4, 5, 7 2, 3, 6
A	JP 2016-169299 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 23 September 2016 (23.09.2016), paragraphs [0001], [0017] to [0045], [0074]; table 1 (Family: none)	1-7

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 January 2017 (19.01.17)

Date of mailing of the international search report
31 January 2017 (31.01.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C03C27/12, B32B17/06 - 17/10, B32B27/00, C08K5/54-5/5435, C08L55/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2011-73943 A（大日本印刷株式会社）2011.04.14, [0002] - [0004], [0007], [0010], [0013] - [0023],	1, 4, 5, 7
A	[0031] - [0039], [0043], [図1]（ファミリーなし）	2, 3, 6
A	JP 2016-169299 A（昭和電工株式会社）2016.09.23, [0001], [0017] - [0045], [0074], [表1]（ファミリーなし）	1 - 7

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.01.2017

国際調査報告の発送日

31.01.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

吉川 潤

4 T

9651

電話番号 03-3581-1101 内線 3465