

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5049593号
(P5049593)

(45) 発行日 平成24年10月17日(2012.10.17)

(24) 登録日 平成24年7月27日(2012.7.27)

(51) Int.Cl.	F 1
C03C 27/12 (2006.01)	C03C 27/12 N
B32B 17/10 (2006.01)	C03C 27/12 L
	C03C 27/12 D
	B32B 17/10

請求項の数 3 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2006-531979 (P2006-531979)	(73) 特許権者	000002174
(86) (22) 出願日	平成17年9月1日(2005.9.1)		積水化学工業株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2005/015993		大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
(87) 国際公開番号	W02006/025484	(74) 代理人	110000914
(87) 国際公開日	平成18年3月9日(2006.3.9)		特許業務法人 安富国際特許事務所
審査請求日	平成20年5月8日(2008.5.8)	(74) 代理人	100086586
(31) 優先権主張番号	特願2004-255931 (P2004-255931)		弁理士 安富 康男
(32) 優先日	平成16年9月2日(2004.9.2)	(74) 代理人	100119529
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		弁理士 諸田 勝保
		(72) 発明者	丸本 忠
			日本国滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
		審査官	山崎 直也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

接着性樹脂からなる複数の層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層と、紫外線吸収樹脂層とが積層されていることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項2】

接着性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項3】

透明ガラス板の間に、請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜が接着されていることを特徴とする合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、熱線遮蔽性に優れるとともに無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

【背景技術】

【0002】

合わせガラスは、外部衝撃を受けた際に物体が貫通しにくく、また物体により破損しても

、ガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラスに広く使用されている。この種の合わせガラスとしては、透明ガラス板の間に、接着性樹脂、例えば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可塑化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接着させたものが汎用されている。

【0003】

しかし、上記従来の合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは、安全性には優れているものの熱線遮蔽性が劣る。光線のなかでも、可視光線より長い約780nm以上の波長を持つ赤外線は、紫外線と比較するとエネルギー量が約10%程度と小さいものの、熱的作用が大きく、いったん物質に吸収されると熱として放出され温度上昇をもたらすことから、一般に熱線と呼ばれている。

10

【0004】

それゆえ、例えば自動車のフロントガラスやサイドガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線（熱線）を遮断できるようにすれば、熱線遮蔽性が高まり、自動車内部の温度上昇を抑えることができる。近年の傾向として、自動車や建築物等において窓ガラスの開口部面積が増大しており、合わせガラスの熱線遮蔽性を高くし、これ等の窓ガラスの開口部に熱線遮蔽機能を付与する必要性が増大している。

【0005】

ところで、下記の特許文献1には、熱線遮蔽性能を有する錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の熱線遮蔽微粒子を、可塑化ポリビニルアセタール樹脂等の接着性樹脂中に分散させてなる合わせガラス用中間膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスが開示されている。このような合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、熱線遮蔽性に優れ且つ透明性にも優れており、自動車や建築物等の窓ガラスとして非常に有用である。

20

【0006】

しかし、このような熱線遮蔽性能を有する合わせガラス用中間膜及び合わせガラスは、中間膜中に分散された熱線遮蔽微粒子が、その性質として赤色領域の可視光線も遮断し、またその粒子径に応じて青色領域の可視光を散乱するため、結果として透過光は黄緑みがかかった色調を示し、得られる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスがわずかに黄緑みがかかった色を呈する。そのため、高度の熱線遮蔽性能を得るために熱線遮蔽微粒子の濃度を高くすると、黄緑みの程度が増大する。それゆえ、自然な色に見える無色透明が要求される用途にあっては、熱線遮蔽微粒子の濃度を高くできず、無色透明で高度の熱線遮蔽性能を得るには、まだ十分に満足のものではなく、この点で未だ改善すべき問題があった。

30

【特許文献1】国際公開第01/25162号パンフレット

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明は、上記の問題を解決するものであり、その目的とするところは、熱線遮蔽性能に優れるとともに、自然な色に見える無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することにある。

40

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記目的は、本発明によって達成することができる。

すなわち、本発明は、接着性樹脂からなる複数の層が積層された合わせガラス用中間膜であって、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層とが積層されている合わせガラス用中間膜である。ここで、上記接着性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。

【0009】

また、更に、紫外線吸収樹脂層が積層されていることが好ましい。

【0010】

50

透明ガラス板の間に、本発明の合わせガラス用中間膜が接着されている合わせガラスもまた、本発明の1つである。

【0011】

以下本発明を詳述する。

熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層及び紫外線吸収樹脂層を構成する樹脂としては、従来の合わせガラス用中間膜に用いられている接着性樹脂、例えば、可塑化ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル系共重合体樹脂、エチレン-(メタ)アクリル酸エステル系共重合体樹脂、ポリウレタンエラストマー系樹脂等が挙げられる。エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂は、その構成成分として酢酸ビニル成分を18~35重量%含有するものが好ましい。

10

これらの接着性樹脂からなる中間膜を用いた合わせガラスは、透明性がよい、耐候性がよい、接着性がよい、耐貫通性がよい、ガラス破片が飛散しにくい等の合わせガラスに必要な基本的性能を有している。なかでも、可塑化ポリビニルアセタール樹脂が性能バランスに優れ好ましい。

【0012】

本発明に用いるポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、従来より合わせガラス用中間膜用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えば、アセタール化度60~75モル%、平均重合度800~3000のもの等が好適に用いられる。平均重合度が800未満であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に平均重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強度が強くなりすぎて、得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。また、アセタール化度が60モル%未満であると、可塑剤との相溶性が低下して、耐貫通性の確保に必要な量の可塑剤を含有させることが難しくなることがあり、樹脂膜の吸湿性も高くなり、逆にアセタール化度が75モル%を超えると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。なかでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニルブチラール樹脂が好適である。

20

【0013】

なお、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の平均重合度及びアセタール化度は、例えばJIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)に基づいて測定することができる。

30

【0014】

上記ポリビニルアセタール樹脂を得るには、公知の方法が採用される。例えば、所定のポリビニルアルコールを使用し、これを温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0~95℃に保持して所要の酸触媒及びアルデヒドを加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させ、次いで反応温度を上げて熟成し反応を完結させ、その後、中和、水洗及び乾燥を行ってポリビニルアセタール樹脂の粉末を得ることができる。

【0015】

ここで、上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニルを鹸化することにより得られ、鹸化度80~99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。このポリビニルアルコールの平均重合度は200~3000であることが好ましい。平均重合度が200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、逆に3000を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が悪くなることがある。より好ましい平均重合度は500~2000である。

40

なお、ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度及び鹸化度は、例えばJIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

【0016】

また、上記アルデヒドとしては特に限定されず、一般に炭素数が1~10のアルデヒドが用いられ、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、

50

n - ノニルアルデヒド、n - デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n - ブチルアルデヒド、n - ヘキシルアルデヒド、n - バレルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアルデヒドである。

【0017】

上記可塑化ポリビニルアセタール樹脂は、上記のポリビニルアセタール樹脂に可塑剤を含有することにより得られる。上記可塑剤としては特に限定されず、この種の間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤；有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。

10

【0018】

上記一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2 - エチル酪酸、ヘプチル酸、n - オクチル酸、2 - エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸 (n - ノニル酸)、デシル酸等の一塩基性有機酸との反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコール - ジカプロン酸エステル、トリエチレングリコール - ジ - 2 - エチル酪酸エステル、トリエチレングリコール - ジ - n - オクチル酸エステル、トリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルヘキシル酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

20

【0019】

上記多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4 ~ 8の直鎖状または分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。

【0020】

上記有機リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

30

【0021】

これらの可塑剤の中でも特に、トリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルブチレート (3GH)、トリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルヘキサノエート (3GO)、テトラエチレングリコール - ジ - 2 - エチルヘキサノエート (4GO)、テトラエチレングリコール - ジ - 2 - ブチルセバケート等が好適に用いられる。

【0022】

これらの可塑剤の配合量は、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して20 ~ 60重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜や合わせガラスの衝撃吸収性が不十分となることがあり、逆に60重量部を超えると、可塑剤がブリードアウトして、得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性やガラス板と中間膜との接着性が損なわれたりすることがある。より好ましい可塑剤の配合量は30 ~ 50重量部である。

40

【0023】

本発明に用いる熱線遮蔽微粒子としては特に限定されず、例えば、錫ドーブ酸化インジウム (ITO) 微粒子、アンチモンドーブ酸化錫 (ATO) 微粒子、アルミニウムドーブ酸化亜鉛 (AZO) 微粒子、インジウムドーブ酸化亜鉛 (IZO) 微粒子、錫ドーブ酸化亜鉛微粒子、珪素ドーブ酸化亜鉛微粒子、アンチモン酸亜鉛、6ホウ化ランタン微粒子及び6ホウ化セリウム微粒子からなる群より選択される少なくとも1種が好適である。これら

50

の熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層は、透過色がすべて淡黄緑色を帯びており、優れた赤外線（熱線）遮蔽機能を有する。

【0024】

上記熱線遮蔽微粒子の平均粒子径は80nm以下であることが好ましい。平均粒子径が80nmを超えると、熱線遮蔽微粒子による可視光線の散乱が顕著になり、得られる合わせガラス用中間膜の透明性が損なわれることがある。その結果、合わせガラスとしたときにヘイズが悪化して、例えば自動車のフロントガラスで要求されるような高度な透明性を満足することができなくなる。より好ましい平均粒子径は10~80nmである。なお、熱線遮蔽微粒子の粒子径及び平均粒子径は、光散乱測定装置（例えば、大塚電子社製「DLS-6000AL」）を使用して、Arレーザーを光源として動的散乱法により測定することができる。

10

【0025】

このような熱線遮蔽微粒子は、上記熱線遮蔽樹脂層中に均一に微分散されていることが好ましい。均一に微分散させることにより、熱線遮蔽性は全体にわたって高いものとなり、更に、ガラス板と中間膜との接着力が調節可能となり、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの耐貫通性も優れたものとなる。

【0026】

上記熱線遮蔽樹脂層においては、上記熱線遮蔽微粒子は、粒子径100nm以上の粒子が1個/ μm^2 以下に分散していることが好ましい。即ち、透過型電子顕微鏡で本発明の合わせガラス用中間膜を撮影、観察したときに、粒子径100nm以上の上記熱線遮蔽微粒子が観察されないか、または、観察された場合には1 μm^2 の枠の中心に粒子径100nm以上の熱線遮蔽微粒子を置くと、かかる1 μm^2 の枠内に粒子径100nm以上の熱線遮蔽微粒子が他に観察されない状態となるよう分散しているのが好ましい。これにより、合わせガラスにしたときに、低ヘイズで透明性に優れ、全体に渡って高い遮熱性が得られる。なお、透過型電子顕微鏡による観察は、透過型電子顕微鏡（例えば、日立製作所社製H-7100FA型透過型電子顕微鏡）を用いて、加速電圧100kVで撮影することにより行うことができる。

20

【0027】

これらの熱線遮蔽粒子の配合量としては、全接着性樹脂（例えばポリビニルアセタール樹脂）100重量部に対して0.1~3重量部が好ましい。配合量が0.1重量部未満であると、赤外線（熱線）遮蔽効果が十分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの熱線遮蔽性が十分に向上しないことがあり、逆に配合量が3重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

30

【0028】

一方、上記熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層は、接着性樹脂に上記熱線遮蔽微粒子を分散した樹脂層の有する黄緑色の色調に対して補色となる、即ち青色と赤色の色調の着色剤、又は、紫色の色調の着色剤を分散させることにより得られる。このための着色剤としては、特に限定されず、例えば、青色着色剤としては、フタロシアニン系青色着色剤、インダンスレン系青色着色剤、アンスラキノン系青色着色剤等が挙げられ、赤色着色剤としては、ペリレン系赤色着色剤、アンスラキノン系赤色着色剤等が挙げられ、紫色着色剤としては、ジオキサジン系紫色着色剤、アンスラキノン系紫色着色剤、ジクロロキナクリドン系紫色着色剤等が挙げられる。

40

【0029】

これらの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.0005~0.05重量部が好ましい。配合量が0.0005重量部未満であると、補色作用が十分に発揮されず、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの無色透明性が十分に向上しないことがあり、逆に配合量が0.05重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

50

【0030】

ここで、上記熱線遮蔽樹脂層に熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を添加しようとする、添加した着色剤と熱線遮蔽微粒子との間で酸化還元反応が起こって、熱線遮蔽樹脂層が黄色味に着色してしまい無色透明性が損なわれることが判明した。このため、熱線遮蔽微粒子とこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤とは、同一層中に併用できない。

【0031】

そこで、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層と、この熱線遮蔽微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層と別々に積層すると、意外にも、得られる合わせガラス用中間膜の色調を、自然な色に見えるように無色透明にすることができることがわかった。この場合、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とは隣接していることが、無色透明化が効果的に達成できる点で好ましい。

10

【0032】

また、上記紫外線吸収樹脂層は、接着性樹脂に紫外線吸収剤を含有させることにより得られる。紫外線吸収剤としては特に限定されず、例えば、マロン酸エステル系化合物、シュウ酸アニリド系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物等の紫外線吸収剤が挙げられる。なかでも、ベンゾトリアゾール系化合物、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌピンP」)、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-t-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌピン320」)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌピン326」)、2-(2'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール(チバガイギー社製の商品名「チヌピン328」)等が好ましい。また、ヒンダードアミン系化合物、例えばアデカアーガス社製の商品名「アデカスタブLA-57」等も好ましい。

20

【0033】

これらの紫外線吸収剤の配合量としては、全接着性樹脂100重量部に対して0.1~5重量部が好ましい。配合量が0.1重量部未満であると、紫外線吸収遮断作用が十分に発揮されず、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性や耐光性が十分に向上しないことがあり、逆に配合量が5重量部を超えると、得られる合わせガラス用中間膜や合わせガラスの可視光線透過性が低下したり、ヘイズ値が大きくなったりすることがある。

30

【0034】

なお、熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層には、接着性樹脂が可塑化ポリビニルアセタール樹脂の場合は、有機酸または無機酸のアルカリ金属塩或いはアルカリ土類金属塩、変成シリコンオイル等の接着力調整剤；t-ブチルヒドロキシトルエン(住友化学社製の商品名「スミライザーBHT」)、テトラキス-[メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン(チバガイギー社製の商品名「イルガノックス1010」)等の酸化防止剤を添加してもよく、更に光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の従来公知の添加剤が添加されていてもよい。

40

【0035】

特に、酸化防止剤は少なくとも熱線遮蔽樹脂層に含有されていることが好ましく、より好ましくは熱線遮蔽樹脂層、色調補正樹脂層、紫外線吸収樹脂層のいずれの樹脂層にも酸化防止剤が含有されることが好ましい。上記樹脂層に酸化防止剤を含有させておくことにより、着色を伴う酸化反応を抑えることができる。いずれの樹脂層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの樹脂層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため、酸化反応の抑制効果を維持しやすい。

【0036】

また、紫外線により熱線遮蔽微粒子が着色を伴う反応を引き起こすため、熱線遮蔽樹脂層

50

への紫外線の透過を抑制するために、上記のような紫外線吸収層を別に設けておくことが好ましい。

【0037】

上記紫外線吸収樹脂層には、酸化防止剤を含有させてもよいが、紫外線吸収剤とともに多量の酸化防止剤を含有させると、経時で透明性が悪化することがあるため、紫外線吸収剤や酸化防止剤はそれぞれの樹脂層に少量ずつ含有させておくことが好ましい。具体的には、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層に含まれる酸化防止剤の割合は、紫外線吸収樹脂層の濃度を1とした場合に、熱線遮蔽樹脂層が0.7~1、色調補正樹脂層が0.3~1であることが好ましい。なお、紫外線吸収剤としてベンゾトリアゾール系化合物とヒンダードアミン系化合物とを併用した場合は、酸化反応の抑制が特に必要とされることから、酸化防止剤の添加量を増やしておくことが好ましい。いずれの層にも酸化防止剤を含有させておくことで、たとえ酸化防止剤が消費されてもそれぞれの層間の酸化防止剤が移行して濃度が保たれるため酸化反応の抑制効果が維持しやすい。

10

【0038】

本発明の合わせガラス用中間膜の全体の膜厚は、合わせガラスとして最小限必要な耐貫通性や耐候性を考慮すると、実用的には通常の透明な合わせガラス用中間膜と同様に、一般に、0.3~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。特に、0.7~1.6mmの膜厚範囲が好ましい。

【0039】

特に、この合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して熱線遮蔽樹脂層の厚みが15~25%、色調補正樹脂層の厚みが5~25%、紫外線吸収樹脂層の厚みが50~80%となるように構成するのが好ましい。また、合わせガラス用中間膜を、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とで構成する場合は、中間膜の全体の膜厚に対して熱線遮蔽樹脂層の厚みが50~80%、色調補正樹脂層の厚みが20~50%となるように構成するのが好ましい。

20

【0040】

すなわち、色調補正樹脂層が厚くなりすぎると透明性が低下する。したがって、無色透明性を確保できる熱線遮蔽樹脂層の厚みの上限も制限される。また、色調補正樹脂層の厚みが薄すぎると、十分な色調補正が難しくなる。また、熱線遮蔽樹脂層が薄すぎると、黄緑みの程度は低減されてわずかになるが、熱線遮蔽性能を十分に確保することが難しくなる。

30

【0041】

なお、上記熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層と紫外線吸収樹脂層とを積層してなる合わせガラス用中間膜及び上記熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とを積層してなる合わせガラス用中間膜には、更に、熱線遮蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を含有しない通常の透明な合わせガラス用中間膜と同様な組成の透明樹脂層を積層して中間膜としてもよい。

【0042】

上記熱線遮蔽樹脂層は、上記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂、熱線遮蔽微粒子、可塑剤及び必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。また、熱線遮蔽微粒子を可塑剤にマイクロビーズミル等により分散しておき、その後ポリビニルアセタール樹脂と熱線遮蔽微粒子分散可塑剤とをミキシングロール等で混練し、シート状に製膜することにより熱線遮蔽樹脂層を得ることができる。

40

【0043】

また、上記色調補正樹脂層は、上記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂、上記熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤、可塑剤及び必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法により

50

シート状に製膜する方法により得ることができる。

【0044】

更に、上記紫外線吸収樹脂層は、上記接着性樹脂、例えばポリビニルアセタール樹脂、紫外線吸収剤、可塑剤及び必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法により得ることができる。

【0045】

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記のように別々に製膜された熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層、更に必要に応じて紫外線吸収樹脂層とを重ね合わせ、これを加熱加圧することにより一体化する方法により製造することができる。また、熱線遮蔽樹脂層の製膜用配合物と色調補正樹脂層の製膜用配合物、更に必要に応じて紫外線吸収樹脂層の製膜用配合物とを、多層押し出し法により一体に製膜する方法により製造することができる。また、別の方法として、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層、更に必要に応じて紫外線吸収樹脂層とを、二枚のガラス板の間に重ね合わせ、これを加熱加圧することにより一体化して、合わせガラスの製造と同時に製膜する方法により製造することができる。

10

【0046】

この場合、熱線遮蔽微粒子やこの熱線遮蔽微粒子の色調に対して補色となる着色剤を含有しない通常の透明樹脂層を併用してもよい。この通常の透明樹脂層や上記紫外線吸収樹脂層を併用する際には、得られる合わせガラス用中間膜の色調の無色透明化を効果的に達成するために、熱線遮蔽樹脂層と色調補正樹脂層とが隣接するように積層するのが好ましい。

20

【0047】

本発明の合わせガラスは、通常の合わせガラスの製法と同様な方法により製造することができる。例えば、少なくとも二枚の透明ガラス板の間に、上述の合わせガラス用中間膜を挟み、これを押圧ロールに通して扱くか或いはゴムバッグに入れて減圧吸引し、ガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気しながら約70～110で予備接着して積層体とし、次いでこの脱気された積層体をオートクレーブに入れるか或いはプレスを行い、約120～150で、約0.98～1.47MPaの圧力で本接着を行うことにより製造される。

30

【0048】

なお、透明ガラス板としては特に限定されず、一般に使用されている透明ガラス板を使用することができる。このような透明ガラス板としては、例えば、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス等の各種無機ガラス板：ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板等の有機ガラス板が挙げられる。これらのガラス板は、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。なかでも、熱線吸収板ガラスを用いることが好ましい。なお、これ等のガラス板の厚みは、用途によって適宜選択されればよく、特に限定されるものではない。

【発明の効果】

【0049】

本発明によれば、熱線遮蔽微粒子を含有する熱線遮蔽樹脂層により、合わせガラスから入射してくる光線のうち、熱的作用の大きな赤外線（熱線）が吸収ないしは反射されることにより遮断され、車内或いは室内の温度上昇が抑えられ、人体や物体の熱的障害を防止することができる。しかも、遮熱微粒子の存在により熱線遮蔽樹脂層は透過色が黄緑みがあった色調を呈するが、上記遮熱微粒子の色調と補色に調色された色調補正樹脂層により、熱線遮蔽微粒子に由来する熱線遮蔽樹脂層の黄緑みがあった色調が無彩色化され、かつ熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が別の層に含まれているので、熱線遮蔽微粒子と色調補正用着色剤等が層内で接触することがなく、両者の反応による着色を生じない。その結果として中間膜及び合わせガラスが無色透明の自然な色に見える状態が持続する。更に、紫外線吸収樹脂層を有するものは、紫外線による熱線遮蔽樹脂層の変色が防止される上、

40

50

紫外線カット性能が付与され、内装や備品の褪色、変色を防止することができる。

【 0 0 5 0 】

したがって、本発明の合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの用途は、特に限定されないが、例えば、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス；航空機や電車等の乗り物のガラス部位、建築物の窓ガラス等のうち、特に熱線遮蔽と無色透明性が要求される場合に好適に使用される。

【発明を実施するための最良の形態】

【 0 0 5 1 】

以下に実施例を挙げて本発明の態様を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例にのみ限定されるものではない。

【 0 0 5 2 】

(実施例 1)

(1) ポリビニルブチラール樹脂の合成

純水 2 8 9 0 重量部に、平均重合度 1 7 0 0、酸化度 9 9 . 2 モル%のポリビニルアルコール 2 7 5 重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を 1 5 に温度調節し、3 5 重量%の塩酸触媒 2 0 1 重量部と n - ブチルアルデヒド 1 5 7 重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を 6 0 で 3 時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応の n - ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で 2 時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は 6 8 . 5 モル%であった。

【 0 0 5 3 】

(2) 熱線遮蔽微粒子分散可塑剤の調製

トリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルブチレート (3 G O) 4 0 重量部と、錫ドープ酸化インジウム (I T O) 微粒子 1 重量部を仕込み、これに分散剤として長鎖アルキルリン酸エステル 0 . 1 重量部を添加して、水平型のマイクロビ - ズミルにて上記可塑剤中に I T O 微粒子を分散させて、熱線遮蔽微粒子分散可塑剤を調製した。この熱線遮蔽微粒子分散可塑剤中の I T O 微粒子の平均粒径は 3 5 n m であった。

【 0 0 5 4 】

(3) 熱線遮蔽樹脂層となる中間膜の作製

上記 (1) で得られたポリビニルブチラール樹脂 1 0 0 重量部に、上記 (2) で得られた熱線遮蔽微粒子分散可塑剤 4 0 重量部を加え、更に接着剤調整剤として全系に対して M g 含有量が 6 0 p p m となるように 2 - エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで十分に熔融混練した後、プレス成形機を用いて 1 5 0 で 3 0 分間プレス成形し、平均膜厚 0 . 7 6 m m の熱線遮蔽樹脂層となる中間膜を作製した。この膜中の I T O 微粒子の平均粒径は 5 6 n m であり、粒径が 1 0 0 n m 以上の粒子は観察されなかった。

【 0 0 5 5 】

(4) 色調補正樹脂層となる中間膜の作製

上記 (1) で得られたポリビニルブチラール樹脂 1 0 0 重量部に、上記 I T O 微粒子の黄緑みがかった色と補色となる色調に調整した、青色の顔料トナー (住化カラー社製の商品名「 S G - 5 A 1 0 8 3 N 」) 0 . 1 5 重量部と赤色の顔料トナー (住化カラー社製の商品名「 S G - 1 0 0 N 」) 0 . 0 4 重量部を加え、更に接着剤調整剤として全系に対して M g 含有量が 6 0 p p m となるように 2 - エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで十分に熔融混練した後、プレス成形機を用いて 1 5 0 で 3 0 分間プレス成形し、平均膜厚 0 . 3 8 m m の色調補正樹脂層となる中間膜を作製した。

【 0 0 5 6 】

(5) 紫外線吸収樹脂層となる中間膜の作製

上記 (1) で得られたポリビニルブチラール樹脂 1 0 0 重量部に、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤 (チバガイギー社製の商品名「 チヌビン P 」) とヒンダードアミン系紫外線吸収剤 (アデカアーガス社製の商品名「 アデカスタプル A - 5 7 」) の混合物 (重量比 7 : 3) 2 重量部を加え、更に接着剤調整剤として全系に対して M g 含有量が 6 0 p p m

10

20

30

40

50

となるように2 - エチル酪酸マグネシウムを添加し、ミキシングロールで十分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150 で30分間プレス成形し、平均膜厚0.38mmの紫外線吸収樹脂層となる中間膜を作製した。

【0057】

(6) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

上記色調補正樹脂層となる中間膜、熱線遮蔽樹脂層となる中間膜、紫外線吸収樹脂層となる中間膜の順に重ね、プレスによりいったん三層構成の合わせガラス用中間膜を製造した。この三層構成の合わせガラス用中間膜を、二枚の無色透明なフロートガラス板(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープンに移し、更に90 で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスを、エアークレープ中で135、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図1に示す。図1において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10cは紫外線吸収樹脂層、10d及び10eは透明なフロートガラス板である。

10

【0058】

(比較例2)

紫外線吸収用中間膜を用いなかったこと以外は、実施例1と同様の方法により二層構成の合わせガラス用中間膜を製造し、この二層構成の合わせガラス用中間膜を用いて、実施例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。この合わせガラスの断面図を図2に示す。図2において、10は合わせガラス、10aは熱線遮蔽樹脂層、10bは色調補正樹脂層、10d及び10eは透明なフロートガラス板である。

20

【0059】

(比較例1)

熱線遮蔽樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-5A1083N」)0.075重量部と赤色の顔料トナー(住化カラー社製の商品名「SG-100N」)0.02重量部を加え、色調補正樹脂層となる中間膜に青色の顔料トナー0.15重量部と赤色の顔料トナー0.04重量部を加えなかった以外は実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜を製造し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて、実施例1と同様の方法により合わせガラスを製造した。

30

【0060】

(評価)

上記実施例1及び比較例1、2で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、下記の方法により可視光透過率及び日射透過率の測定を行い、熱線遮蔽性能及び無色透明性の評価を行った。なお、図1の合わせガラス10では、紫外線吸収樹脂層10dを外側(屋外)と想定し、図2の合わせガラス10では、熱線遮蔽樹脂層10dを外側(屋外)と想定して測定を行った。その結果を表1に示す。

【0061】

(1) 可視光透過率及び日射透過率の測定

直記分光光度計(島津製作所社製「UV3100」)を使用して、得られた合わせガラスの300~2500nmの透過率を測定し、JIS Z 8722及びJIS R 3106に従って、380~780nmの可視光透過率及び300~2500nmの日射透過率を求めた。

40

【0062】

(2) 合わせガラスの外観の評価

合わせガラス全体の色調について、目視により評価を行った。

【0063】

【表 1】

	実施例1	比較例2	比較例1
可視構成透過率(%)	84	84	84
日射透過率(%)	54	54	54
合わせガラスの外観	無色透明	無色透明	黄味みあり

【産業上の利用可能性】

【0064】

本発明によれば、熱線遮蔽性に優れるとともに無色透明性にも優れた合わせガラス用中間膜及びこの合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することができる。 10

【図面の簡単な説明】

【0065】

【図 1】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す断面図である。

【図 2】本発明の合わせガラスの他の実施態様を示す断面図である。

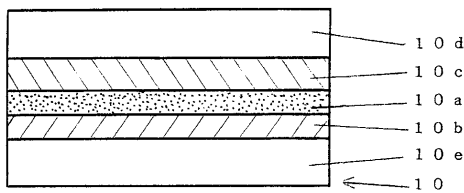
【符号の説明】

【0066】

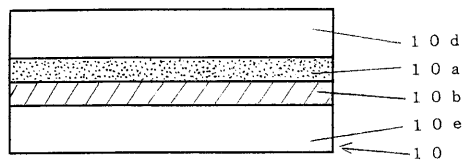
- 10 合わせガラス
- 10a 熱線遮蔽樹脂層
- 10b 色調補正樹脂層
- 10c 紫外線吸収樹脂層
- 10d 透明なフロートガラス板
- 10e 透明なフロートガラス板

20

【図 1】



【図 2】



フロントページの続き

(56)参考文献 国際公開第2001/025162(WO, A1)
特開2001-316504(JP, A)
特開平08-052840(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C03C 27/00-29/00