

(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
2011 年 5 月 12 日(12.05.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/055685 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) *B32B 17/10* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/069224
- (22) 国際出願日: 2010 年 10 月 28 日(28.10.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2009-253180 2009 年 11 月 4 日(04.11.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 旭硝子株式会社 (Asahi Glass Company, Limited.) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区有楽町一丁目 1 2 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 日野 有一 (HINO Yuichi) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区有楽町一丁目 1 2 番 1 号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 藤井 健輔 (FUJII Kensuke) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区有楽町一丁目 1 2 番 1 号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 小栗 昌平, 外(OGURI Shohei et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目 7 番 1 3 号
- 虎ノ門イーストビルディング 10 階 栄光特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラスの製造方法

(57) Abstract: Provided is a method for producing laminated glass, which comprises: a lamination step for the successive lamination of a first glass substrate, a first adhesive sheet, a heat ray-reflective film wherein a heat ray-reflective membrane is formed on a resin film, a second adhesive sheet, and a second glass substrate; a pre-pressing step for heating and pre-pressing the laminate; and a main pressing step for heating and pressing the pre-pressed laminate to produce the laminated glass. The pre-pressing step further comprises a holding step for holding the laminate at a temperature that is 50°C or greater but less than 70°C for 10 to 60 minutes.

(57) 要約: 本発明は、第 1 のガラス基板、第 1 の接着シート、樹脂フィルム上に熱線反射膜が形成されてなる熱線反射フィルム、第 2 の接着シート、および第 2 のガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする積層工程と、前記積層体を加熱して予備圧着する予備圧着工程と、前記予備圧着された積層体を加熱加圧して合わせガラスとする本圧着工程と、を有する合わせガラスの製造方法であって、前記予備圧着工程は、50°C 以上 70°C 未満の温度で 10 分以上 60 分以下保持する保持工程を有することを特徴とする合わせガラスの製造方法に関する。

WO 2011/055685 A1

明 細 書

発明の名称： 合わせガラスの製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は、合わせガラスの製造方法に係り、特に熱線反射フィルムにおけるクラックの発生を抑制し、良好な外観を有するものを得ることのできる合わせガラスの製造方法に関する。

背景技術

- [0002] 従来、車両等のフロントガラスに使用する合わせガラスとして、一对のガラス基板間に熱線反射フィルムを配置し、太陽光線中の熱線（赤外線）の透過を遮断し、室内の温度上昇や冷房負荷を低減するものが知られている。熱線反射フィルムは、例えば基材となる樹脂フィルム上に酸化物質層や金属層からなる熱線反射膜を形成したものであり、一对のガラス基板とはこれらの間に配置される一对の接着シートによって一体化されている（例えば、特許文献1参照）。
- [0003] このような合わせガラスは、例えば構成部材であるガラス基板、接着シート、熱線反射フィルム、接着シート、ガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする積層工程を行い、その後、主として各構成部材間の脱気を目的とする予備圧着工程を行い、さらにガラス基板と熱線反射フィルムとを接着シートにより十分に接着して最終的な合わせガラスとする本圧着工程を行うことにより製造されている（例えば、特許文献2参照）。
- [0004] 予備圧着工程は、例えば積層体をゴムバッグのような真空バッグに入れ、減圧吸引しながら70℃以上130℃以下の温度に加熱することにより行われる。また、本圧着工程は、例えば予備圧着された積層体をオートクレーブに入れ、120℃以上150℃以下の温度で加熱加圧することにより行われる。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：日本国特公昭62-61545号公報

特許文献2：日本国特開平5-238784号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記したように、合わせガラスは、一般にその構成部材を重ね合わせて積層体とする積層工程を行った後、各構成部材間の脱気を目的とする予備圧着工程を行い、さらにガラス基板と熱線反射フィルムとを接着シートにより十分に接着する本圧着工程を行うことにより製造されている。

[0007] しかしながら、従来の製造方法においては、予備圧着工程で熱線反射フィルムに多数の筋状のクラックが発生したり、本圧着工程後もクラックがそのままの状態に残り、あるいは太くなるように成長して残ったり、結果として外観に優れない合わせガラスとなることがある。このため、製造途中、特に予備圧着工程におけるクラックの発生を抑制し、良好な外観を有する合わせガラスを製造することのできる製造方法が重要である。

[0008] 本発明は、上記課題を解決するためになされたものであって、予備圧着工程における熱線反射フィルムへのクラックの発生を抑制し、結果として良好な外観を有する合わせガラスを製造することのできる製造方法を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の合わせガラスの製造方法は、第1のガラス基板、第1の接着シート、樹脂フィルム上に熱線反射膜が形成されてなる熱線反射フィルム、第2の接着シート、および第2のガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする積層工程と、前記積層体を加熱して予備圧着する予備圧着工程と、前記予備圧着された積層体を加熱加圧して合わせガラスとする本圧着工程とを有するものであって、前記予備圧着工程は、50℃以上70℃未満の温度で10分以上60分以下保持する保持工程を有することを特徴とする。

[0010] 前記予備圧着工程は、前記保持工程後、さらに70℃以上130℃以下の温度で10分以上90分以下保持する高温加熱工程を有することが好ましい

。前記樹脂フィルムは、例えばポリエチレンテレフタレートからなることが好ましい。

発明の効果

- [0011] 本発明によれば、予備圧着工程において少なくとも50℃以上70℃未満の温度で10分以上60分以下保持する保持工程を行うものとする事で、予備圧着工程における熱線反射フィルムへのクラックの発生を抑制し、結果として良好な外観を有する合わせガラスを製造することができる。

発明を実施するための形態

- [0012] 以下、本発明の合わせガラスの製造方法について説明する。

本発明の合わせガラスの製造方法は、第1のガラス基板、第1の接着シート、樹脂フィルム上に熱線反射膜が形成されてなる熱線反射フィルム、第2の接着シート、および第2のガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする積層工程と、この積層体を加熱して予備圧着する予備圧着工程と、この予備圧着された積層体を加熱加圧して合わせガラスとする本圧着工程とを有するものである。そして、本発明の合わせガラスの製造方法では、予備圧着工程において、少なくとも50℃以上70℃未満の温度で10分以上60分以下保持する保持工程を行うことを特徴としている。

- [0013] 予備圧着工程中に所定の温度および時間で保持する保持工程を行うものとする事で、予備圧着工程における熱線反射フィルムへのクラックの発生を抑制し、結果として良好な外観を有する合わせガラスを製造することができる。

- [0014] すなわち、従来のように予備圧着工程において室温から速やかに予備圧着温度まで加熱した場合、熱線反射フィルム、特にこれを構成する樹脂フィルムが急激に熱収縮し、多数の筋状のクラックが発生することがある。このようなものに本圧着工程を行った場合、クラックがそのまま残り、あるいは太くなるように成長して残り、結果として外観に優れない合わせガラスとなる。

- [0015] 本発明では、予備圧着工程において、少なくとも所定の温度および時間で

保持する保持工程を行うものとする事で、樹脂フィルムの急激な熱収縮を緩和し、クラックの発生を抑制することができる。これにより、本圧着工程後の最終的な合わせガラスについても、クラックの発生が抑制され、結果として良好な外観を有するものとする事ができる。

[0016] 以下、各工程について具体的に説明する。

まず、積層工程では、第1のガラス基板、第1の接着シート、樹脂フィルム上に熱線反射膜が形成されてなる熱線反射フィルム、第2の接着シート、および第2のガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする。なお、積層体には、上記基板やシート以外の別の基板やシートを重ね合わせてもよい。

[0017] 熱線反射フィルムは、熱線を反射する膜であれば特に限定されず、例えば基材となる樹脂フィルム上に、酸化物層と金属層とを交互に $(2n+1)$ 層（但し、 n は1以上4以下の整数）積層することにより熱線反射膜を形成したものである。熱線反射膜の表面上、すなわち樹脂フィルムと接していない主面上には、例えば保護層などの別の機能を有する層が形成されていてもよい。

[0018] 樹脂フィルムは、基本的に透明材料からなるものであれば特に限定されるものではなく、例えばポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート（PMMA）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリエチレンナフタレート、ポリイミド、ポリエーテルスルホン、ポリアリレート、ナイロン、シクロオレフィンポリマー等からなるものとする事ができる。

[0019] 比較的に高強度であり、合わせガラスの製造時の損傷を抑制する観点から、樹脂フィルムはポリエチレンテレフタレート（PET）からなることが好ましい。樹脂フィルムの厚さは、必ずしも限定されるものではないものの、一般に $5\mu\text{m}$ 以上 $200\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $20\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。

[0020] また、熱線反射膜を構成する酸化物層は、一般に屈折率（波長 550nm での屈折率、以下同様）が1.7以上2.6以下、特に1.8以上2.6以下であればよく、例えば酸化ビスマス、酸化スズ、酸化亜鉛、酸化タンタル

、酸化ニオブ、酸化タングステン、酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化インジウム等の金属酸化物、あるいはこれらの混合物、またはスズ、アルミニウム、クロム、チタン、シリコン、ホウ素、マグネシウム、インジウム、ガリウム等を含有する酸化亜鉛、あるいはスズを含有する酸化インジウムからなるものである。

[0021] これらの中でも、金属層を安定的に、かつ高い結晶性を有しながら形成できる点から、酸化亜鉛、またはスズ、アルミニウム、クロム、チタン、シリコン、ホウ素、マグネシウム、インジウム、ガリウム等から選ばれる少なくとも1種の元素を含有する酸化亜鉛からなるもの、特にアルミニウムおよび／またはチタンを含有する酸化亜鉛からなるものが好ましい。なお、各酸化物層は、単層であってもよいし、多層であってもよい。

[0022] 一方、金属層は、銀を主成分とするものであり、銀のみからなるもの、または銀を主成分とする合金からなるものである。金属層における銀以外の構成成分は、例えばパラジウム、金、銅等であり、これら銀以外の構成成分の含有量は合計で0.3原子%以上10原子%以下であることが好ましい。

[0023] 酸化物層や金属層の厚さは、全体の層数や各層の構成材料によっても異なるが、例えば各酸化物層は5 nm以上100 nm以下、各金属層は5 nm以上20 nm以下、全ての酸化物層と金属層とを合わせた全体の層厚は50 nm以上400 nm以下、より好ましくは150 nm以上300 nm以下である。

[0024] なお、熱線反射膜は、上記した酸化物層と金属層とからなるものの代わりに、高屈折率層と低屈折率層とからなるものであってもよい。通常、高屈折率層と低屈折率層とを合計した層数は3以上であり、高屈折率層の厚さが70 nm以上150 nm以下、低屈折率層の厚さが100 nm以上200 nm以下である。

[0025] 高屈折率層は、例えば屈折率が1.9以上、好ましくは1.9以上2.5以下のものであり、具体的には酸化タンタル、酸化チタン、酸化ジルコニウム、および酸化ハフニウム等の高屈折率材料の中から選ばれる少なくとも1

種からなるものである。

[0026] また、低屈折率層は、例えば屈折率が1.5以下、好ましくは1.2以上1.5以下のものであり、具体的には酸化シリコン、およびフッ化マグネシウム等の低屈折率材料の中から選ばれる少なくとも1種からなるものである。

[0027] 第1の接着シート、第2の接着シートは、第1のガラス基板または第2のガラス基板と熱線反射フィルムとを有効に接着することができ、また合わせガラスとしたときに十分な視認性を確保することができるものが好ましく、例えば熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂組成物をシート状に成形したものである。接着シートの厚みは、0.1mm以上1mm以下、特に0.2mm以上0.5mm以下程度であることが好ましい。

[0028] 熱可塑性樹脂は、例えば可塑化ポリビニルアセタール系樹脂、可塑化ポリ塩化ビニル系樹脂、飽和ポリエステル系樹脂、可塑化飽和ポリエステル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、可塑化ポリウレタン系樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体系樹脂、エチレン-エチルアクリレート共重合体系樹脂等の従来からこの種の用途に用いられている熱可塑性樹脂とすることができる。

[0029] これらの中でも、優れた透明性、耐候性、強度、接着力、耐貫通性、衝撃エネルギー吸収性、耐湿性、遮熱性および遮音性等の諸性能のバランスに優れるものを得られることから、可塑化ポリビニルアセタール系樹脂が好適に用いられる。これらの熱可塑性樹脂は、単独で用いてもよいし、2種類以上を併用してもよい。上記可塑化ポリビニルアセタール系樹脂における「可塑化」とは、可塑剤の添加により可塑化されていることを意味する。

その他の可塑化樹脂についても同様である。

[0030] 上記ポリビニルアセタール系樹脂としては、ポリビニルアルコール（以下、必要に応じて「PVA」と言うこともある）とホルムアルデヒドとを反応させて得られるポリビニルホルマール樹脂、PVAとアセトアルデヒドとを反応させて得られる狭義のポリビニルアセタール樹脂、PVAとn-ブチルアルデヒドとを反応させて得られるポリビニルブチラール樹脂（以下、必要

に応じて「PVB」と言うこともある）等が挙げられる。特に透明性、耐候性、強度、接着力、耐貫通性、衝撃エネルギー吸収性、耐湿性、遮熱性、および遮音性等の諸性能のバランスに優れるものが得られることから、PVBが好適に用いられる。なお、これらのポリビニルアセタール系樹脂は、単独で用いてもよいし、2種類以上を併用してもよい。

[0031] 上記ポリビニルアセタール系樹脂の合成に用いられるPVAは、平均重合度が200以上5000以下のものが好ましく、より好ましくは500以上3000以下のものである。上記ポリビニルアセタール系樹脂は、アセタール化度が40モル%以上85モル%以下であるものが好ましく、より好ましくは50モル%以上75モル%以下のものである。上記ポリビニルアセタール系樹脂は、残存アセチル基量が30モル%以下であるものが好ましく、より好ましくは0.5モル%以上24モル%以下のものである。

[0032] 上記熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂を可塑化するために用いられる可塑剤としては、一塩基性有機酸エステル系、多塩基性有機酸エステル系などの有機酸エステル系可塑剤や、有機リン酸系、有機亜リン酸系などのリン酸系可塑剤等が挙げられる。

[0033] 熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂に対する可塑剤の添加量は、熱可塑性樹脂の平均重合度や、ポリビニルアセタール系樹脂の平均重合度やアセタール化度および残存アセチル基量等によっても異なり、特に限定されるものではないが、熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂100重量部に対し、可塑剤10～80重量部であることが好ましい。熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂100重量部に対する可塑剤の添加量が10重量部未満であると、熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂の可塑化が不十分となって、成形が困難となることがあり、逆に熱可塑性樹脂、好ましくはポリビニルアセタール系樹脂100重量部に対する可塑剤の添加量が80重量部を超えると、得られる接着層の強度が不十分となることがある。

[0034] 熱可塑性樹脂組成物は、上記熱可塑性樹脂の他、例えば接着性調整剤、力

ップリング剤、界面活性剤、酸化防止剤、熱安定剤、光安定剤、紫外線吸収剤、赤外線吸収剤、蛍光剤、脱水剤、消泡剤、帯電防止剤、難燃剤等の各種添加剤の1種類もしくは2種類以上を含有していてもよい。

[0035] 第1のガラス基板、第2のガラス基板は、一般的な無機透明ガラス板の他、例えばポリカーボネート板やポリメチルメタクリレート板等の有機透明ガラス板とすることもできる。ガラス板の種類としては、車輛用等として使用されているものであれば必ずしも限定されるものではないが、フロート法で成形されたフロート板ガラスを用いることが好ましい。また、ガラス板の厚みは、適宜選択することができるが、通常は1～4 mm、特に1.8 mm以上2.5 mm以下であることが好ましい。さらに、ガラス板には、撥水機能、親水機能、防曇機能等を付与するコーティングが施されていてもよい。

[0036] 第1のガラス基板、第1の接着シート、熱線反射フィルム、第2の接着シート、および第2のガラス基板は、単にこの順に重ね合わせるにより積層体としてもよいし、例えば熱線反射フィルムの両面に第1および第2のポリビニルブチラールフィルムを重ね合わせて加熱加圧することにより中間体とした後、この中間体を第1および第2のガラス基板で挟持するようにして積層体としてもよい。

[0037] 積層工程で得られた積層体には、主として各構成部材間の脱気を目的とする予備圧着工程を行う。予備圧着工程は、例えば積層工程で得られた積層体を、たとえばゴムバッグのような真空バッグに入れ、この真空バッグを排気系に接続し、真空バッグ内の圧力が約36～1 kPaとなるように脱気しながら加熱を行う。

[0038] この予備圧着工程では、少なくとも50℃以上70℃未満、特に65℃以下の温度で10分以上60分以下保持する保持工程を有する。保持工程は、樹脂フィルムの急激な熱収縮を緩和し、クラックの発生を抑制するために行われる。通常、真空バッグに入れた積層体を室温から加熱していく際、一時的に昇温を中断し、その温度で保持することにより保持工程を行うことができる。

- [0039] 保持工程の温度が50℃未満の場合、必ずしも樹脂フィルムが熱収縮していないことから、熱収縮を緩和する効果が小さく、その後の昇温により樹脂フィルムが急激に熱収縮してクラックが発生するおそれがある。一方、保持工程の温度が70℃以上の場合、既に樹脂フィルムが急激に熱収縮しており、クラックが発生しているおそれがある。
- [0040] 特に、樹脂フィルムがポリエチレンテレフタレートからなる場合、ポリエチレンテレフタレートのガラス転移点が70℃程度であり、この付近で急激に熱収縮することによりクラックが発生するおそれがある。上記温度で保持することにより、効果的に熱収縮を緩和し、クラックの発生を抑制することができる。保持工程の温度は、より効果的に樹脂フィルムの熱収縮を緩和し、クラックの発生を抑制する観点から、50℃以上65℃以下、特に55℃以上65℃以下とすることが好ましい。
- [0041] また、保持工程の時間が10分未満の場合、保持時間が短すぎるために、樹脂フィルムの熱収縮を十分に緩和することができないおそれがある。一方、保持工程の時間が60分を超える場合、生産性が低下するだけでなく、温度が適正範囲内にあったとしても、樹脂フィルムの熱収縮が過度に進行するおそれがある。いずれの場合についてもクラックが発生するおそれがあるために好ましくない。保持工程の時間は、樹脂フィルムの熱収縮を効果的に緩和することによりクラックの発生を抑制しつつ、過度な熱収縮によるクラックの発生も抑制する観点から、15分以上45分以下とすることが好ましい。
- [0042] なお、保持工程の温度については、必ずしも工程の開始から終了まで一定である必要はなく、上記温度範囲内において徐々に上昇あるいは上下等するものであってもよい。すなわち、保持工程は、10分以上60分以下、好ましくは15分以上45分以下、少なくとも上記温度範囲内となるものであればよい。
- [0043] 通常、保持工程後は、そのまま昇温して高温加熱工程を行う。高温加熱工程は、従来の予備圧着工程と実質的に同様のものであり、予備圧着を有効に

完結させるために行われる。高温加熱工程は、保持工程の終了後、すみやかに昇温して行うことが好ましい。保持工程から高温加熱工程までの時間が長くなると、樹脂フィルムの熱収縮が過度に進行し、クラックが発生するおそれがあり好ましくない。

[0044] 高温加熱工程は、例えば保持工程後の真空バッグに入った積層体をそのまま70℃以上130℃以下の温度で10分以上90分以下保持することにより行うことが好ましい。高温加熱工程の温度が70℃未満であると予備圧着が十分でなくなるおそれがあり、一方、高温加熱工程の温度が130℃を超えると樹脂フィルムの熱収縮が過度に進行し、クラックが発生するおそれがあり好ましくない。高温加熱工程の温度は、より効果的に予備圧着を行う観点から、より好ましくは90℃以上であり、さらに好ましくは110℃以上である。

[0045] また、高温加熱工程の時間が10分未満であると、予備圧着が十分でなくなるおそれがあり、一方、高温加熱工程の時間が90分を超えると、生産性が低下するだけでなく、樹脂フィルムの熱収縮が過度に進行し、熱線反射フィルムにクラックが発生するおそれがあり好ましくない。高温加熱工程の時間は、より効果的かつ効率的に予備圧着を行う観点から、より好ましくは20分以上60分以下である。

[0046] 予備圧着工程後の積層体（予備圧着体）には、従来と同様に第1および第2のガラス基板と熱線反射フィルムとを接着シートにより十分に接着するために加熱加圧する本圧着工程を行うことにより最終的な合わせガラスとすることができる。本圧着工程は、例えば予備圧着工程後の積層体をオートクレーブに入れ、温度を120℃以上150℃以下、圧力を0.98MPa以上1.47MPa以下として加熱加圧することにより行うことができる。

[0047] 本圧着工程では、予備圧着工程におけるクラックの発生が抑制された積層体に対して加熱加圧を行うことで、クラックの発生が抑制され、結果として良好な外観を有する合わせガラスを得ることができる。

[0048] このような合わせガラスは、自動車、鉄道、船舶等の車輛に好適に用いる

ことができ、特に自動車に好適に用いることができる。本発明の製造方法によって製造された合わせガラスは、特に熱線反射フィルムにおけるクラックの発生が抑制され、良好な外観を有することから、これらの用途に好適に用いることができる。

実施例

[0049] 以下、本発明について、実施例を参照してより詳細に説明する。

[0050] (実施例 1～6、比較例 1～7)

樹脂フィルムとしての PET フィルム（東洋紡績株式会社製、商品名：A4100、厚さ $50\mu\text{m}$ 、ガラス転移点 70°C ）を $100\text{mm} \times 100\text{mm}$ の大きさに切り出し、この PET フィルム上に、以下に示すようにしてマグネトロンスパッタリング法により酸化物層と金属層とを交互に 7 層（酸化物層：4 層、金属層：3 層）積層して熱線反射膜を形成し、さらに保護膜を形成して熱線反射フィルムとした。

[0051] まず、PET フィルム上に、酸化チタンを 10 質量% 添加した酸化亜鉛ターゲットを用いてアルゴンガスに 5 体積% の酸素ガスを混合した混合ガスを導入しつつ、 0.1Pa の圧力で周波数 20kHz 、電力密度 $3.8\text{W}/\text{cm}^2$ 、反転パルス幅 $5\mu\text{sec}$ のパルススパッタを行い、亜鉛およびチタンの酸化物からなる厚さ 35nm の第 1 の酸化物層を形成した。

[0052] 第 1 の酸化物層上に、金を 0.25 質量% 添加した銀を主成分とする銀合金ターゲットを用いてアルゴンガスを導入しながら、 0.1Pa の圧力で周波数 20kHz 、電力密度 $2.5\text{W}/\text{cm}^2$ 、反転パルス幅 $5\mu\text{sec}$ のパルススパッタを行い、銀および金からなる厚さ 10nm の第 1 の金属層を形成した。

[0053] 第 1 の金属層上に、酸化チタンを 10 質量% 添加した酸化亜鉛ターゲットを用いてアルゴンガスに 5 体積% の酸素ガスを混合した混合ガスを導入しつつ、 0.1Pa の圧力で周波数 20kHz 、電力密度 $3.8\text{W}/\text{cm}^2$ 、反転パルス幅 $5\mu\text{sec}$ のパルススパッタを行い、亜鉛およびチタンの酸化物からなる厚さ 70nm の第 2 の酸化物層を形成した。

- [0054] 第2の酸化物層上に、金を0.25質量%添加した銀を主成分とする銀合金ターゲットを用いてアルゴンガスを導入しながら、0.1Paの圧力で周波数20kHz、電力密度2.5W/cm²、反転パルス幅5μsecのパルススパッタを行い、銀および金からなる厚さ12nmの第2の金属層を形成した。
- [0055] 第2の金属層上に、酸化チタンを10質量%添加した酸化亜鉛ターゲットを用いてアルゴンガスに5体積%の酸素ガスを混合した混合ガスを導入しつつ、0.1Paの圧力で周波数20kHz、電力密度3.8W/cm²、反転パルス幅5μsecのパルススパッタを行い、亜鉛およびチタンの酸化物からなる厚さ70nmの第3の酸化物層を形成した。
- [0056] 第3の酸化物層上に、金を0.25質量%添加した銀を主成分とする銀合金ターゲットを用いてアルゴンガスを導入しながら、0.1Paの圧力で周波数20kHz、電力密度2.5W/cm²、反転パルス幅5μsecのパルススパッタを行い、銀および金からなる厚さ10nmの第3の金属層を形成した。
- [0057] 第3の金属層上に、酸化チタンを10質量%添加した酸化亜鉛ターゲットを用いてアルゴンガスに5体積%の酸素ガスを混合した混合ガスを導入しつつ、0.1Paの圧力で周波数20kHz、電力密度3.8W/cm²、反転パルス幅5μsecのパルススパッタを行い、亜鉛およびチタンの酸化物からなる厚さ35nmの第4の酸化物層を形成した。
- [0058] さらに、第4の酸化物層上に、ガリウム、インジウム、およびスズの酸化物ターゲット（AGCセラミックス株式会社製、商品名：GITターゲット）を用いてアルゴンガスに5体積%の酸素ガスを混合した混合ガスを導入しながら、0.1Paの圧力で周波数20kHz、電力密度2.5W/cm²、反転パルス幅5μsecのパルススパッタを行い、厚さ5nmの保護層を形成して熱線反射フィルムを得た。
- [0059] 次に、第1のガラス基板、第1の接着シートとしてのPVBシート、上記熱線反射フィルム、第2の接着シートとしてのPVBシート、第2のガラス

基板を、この順に重ね合わせて端部を仮止めして積層体とした（積層工程）。

[0060] 次に、得られた積層体を真空バッグに入れ、圧力が100kPa以下となるように脱気しつつ、加熱を行って予備圧着を行った（予備圧着工程）。ここで、比較例1を除くものについては、室温から昇温する途中、表1に示すような温度、時間で一旦保持した後（保持工程）、120℃まで速やかに昇温し、この温度で40分間保持して予備圧着体とした（高温加熱工程）。また、比較例1については、室温から速やかに120℃まで昇温し、この温度で40分間保持して予備圧着体とした（高温加熱工程）。

[0061] さらに、得られた予備圧着体をオートクレーブに入れ、温度を135℃、圧力を1.3MPaとして60分間の加熱加圧を行うことにより合わせガラスとした（本圧着工程）。

[0062] このようにして得られた実施例および比較例の合わせガラスについて、光学顕微鏡（株式会社キーエンス製、商品名：VH-S30）を用いて任意の2mm×2mmの範囲を観察し、熱線反射フィルムに発生したクラックの本数、太さを測定した。結果を表1に示す。

[0063] [表1]

	保持工程		高温加熱工程		クラック	
	温度[℃]	時間[分]	温度[℃]	時間[分]	太さ[μm]	本数[本]
実施例1	50	15	120	40	—	無し
実施例2	50	30	120	40	—	無し
実施例3	50	45	120	40	—	無し
実施例4	60	15	120	40	—	無し
実施例5	60	30	120	40	—	無し
実施例6	60	45	120	40	—	無し
比較例1	—	—	120	40	4	20
比較例2	35	30	120	40	2	16
比較例3	45	30	120	40	0.5	3
比較例4	60	5	120	40	2	17
比較例5	60	90	120	40	2	10
比較例6	75	30	120	40	3	15
比較例7	100	30	120	40	4	19

[0064] 表 1 から明らかなように、室温から速やかに 120℃へと昇温して予備圧着工程を行った比較例 1 の合わせガラスについては、多数の太いクラックが発生することが認められた。また、予備圧着工程において昇温途中で一旦保持する保持工程を行ったものの、温度または時間が本発明の範囲外となる比較例 2～7 の合わせガラスについては、クラックの本数や太さは若干減少するものの、依然としてクラックが発生することが認められる。

[0065] これに対して、予備圧着工程において所定の温度および時間で保持する保持工程を行った実施例 1～6 の合わせガラスについては、予備圧着工程におけるクラックの発生が十分に抑制され、最終的に合わせガラスとしたときにもクラックの発生が十分に抑制されることが認められる。

[0066] 本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは、当業者にとって明らかである。

本出願は、2009 年 11 月 4 日出願の日本特許出願 2009-253180 に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0067] 本発明によれば、予備圧着工程において少なくとも 50℃以上 70℃未満の温度で 10 分以上 60 分以下保持する保持工程を行うものとするすることで、予備圧着工程における熱線反射フィルムへのクラックの発生を抑制し、結果として良好な外観を有する合わせガラスを製造することができる。

請求の範囲

- [請求項1] 第1のガラス基板、第1の接着シート、樹脂フィルム上に熱線反射膜が形成されてなる熱線反射フィルム、第2の接着シート、および第2のガラス基板をこの順に重ね合わせて積層体とする積層工程と、
前記積層体を加熱して予備圧着する予備圧着工程と、
前記予備圧着された積層体を加熱加圧して合わせガラスとする本圧着工程と、を有する合わせガラスの製造方法であって、
前記予備圧着工程は、50℃以上70℃未満の温度で10分以上60分以下保持する保持工程を有することを特徴とする合わせガラスの製造方法。
- [請求項2] 前記予備圧着工程は、前記保持工程後、さらに70℃以上130℃以下の温度で10分以上90分以下保持する高温加熱工程を有することを特徴とする請求項1記載の合わせガラスの製造方法。
- [請求項3] 前記樹脂フィルムはポリエチレンテレフタレートからなることを特徴とする請求項1または2記載の合わせガラスの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/069224

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01) i, B32B17/10(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, B32B17/10

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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 Y	WO 2008/134594 A1 (SOLUTIA INC.), 06 November 2008 (06.11.2008), page 13, line 24 to page 14, line 3; page 15, line 23 to page 17, line 2; page 28, lines 6 to 13 & JP 2010-524843 A & US 2008/268204 A1 & EP 2150406 A	1-3 2
X Y	JP 2001-130931 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 15 May 2001 (15.05.2001), paragraph [0025]; table 1 (Family: none)	1, 3 2
A	JP 2005-1953 A (Bridgestone Corp.), 06 January 2005 (06.01.2005), paragraphs [0039] to [0042] (Family: none)	1-3

☐ 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
14 December, 2010 (14.12.10)

Date of mailing of the international search report
28 December, 2010 (28.12.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））
Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(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（I P C））

Int.Cl. C03C27/12, B32B17/10

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 0 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 0 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 0 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 Y	WO 2008/134594 A1 (SOLUTIA INCORPORATED) 2008.11.06, 第13頁 24行-第14頁3行、第15頁23行-第17頁2行、第28頁 6行-13行 & JP 2010-524843 A & US 2008/268204 A1 & EP 2150406 A	1-3 2
X Y	JP 2001-130931 A (積水化学工業株式会社) 2001.05.15, 【002 5】、表1（ファミリーなし）	1,3 2
A	JP 2005-1953 A (株式会社ブリヂストン) 2005.01.06, 【0039】	1-3

☒ 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

1 4 . 1 2 . 2 0 1 0

国際調査報告の発送日

2 8 . 1 2 . 2 0 1 0

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / 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）

藤代 佳

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

4 T

3 8 3 7

C (続き) . 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
	－ 【 0 0 4 2 】 (ファミリーなし)	