



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I678346 B

(45)公告日：中華民國 108 (2019) 年 12 月 01 日

(21)申請案號：105107712

(22)申請日：中華民國 105 (2016) 年 03 月 14 日

(51)Int. Cl. : C03B40/033 (2006.01)

C03B40/00 (2006.01)

(30)優先權：2015/09/30 世界智慧財產權組織 PCT/JP2015/077858

(71)申請人：日商積水化學工業股份有限公司(日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)
日本

(72)發明人：中山和彥 NAKAYAMA, KAZUHIKO (JP)；太田祐輔 OOTA, YUUSUKE (JP)；北野紘史 KITANO, HIROFUMI (JP)；乾浩彰 INUI, HIROAKI (JP)

(74)代理人：閻啟泰；林景郁

(56)參考文獻：

JP 9-295839A

審查人員：李南漳

申請專利範圍項數：6 項 圖式數：5 共 40 頁

(54)名稱

層合玻璃用中間膜及層合玻璃

(57)摘要

本發明之目的在於提供一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。

本發明之層合玻璃用中間膜於第 1 表面及與該第 1 表面為相反側之第 2 表面具有多個凹部與多個凸部，並且上述第 1 表面及第 2 表面所具有之凹部具有底部連續之溝形，鄰接之上述凹部平行且規則地並列，於將上述第 1 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與上述第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之交叉角設為 θ 時，滿足下述式(1)，於將上述第 1 表面及第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之間隔分別設為 $S_{m1}(\mu\text{m})$ 及 $S_{m2}(\mu\text{m})$ ，且將上述凸部之旋轉半徑分別設為 $R1(\mu\text{m})$ 及 $R2(\mu\text{m})$ 時， S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 及 $R1$ 與 $R2$ 之平均值 R 滿足下述式(2)。

$$\theta \geq 10^\circ \quad (1)$$

$$R/S_m \leq 0.3 \quad (2)$$

指定代表圖：

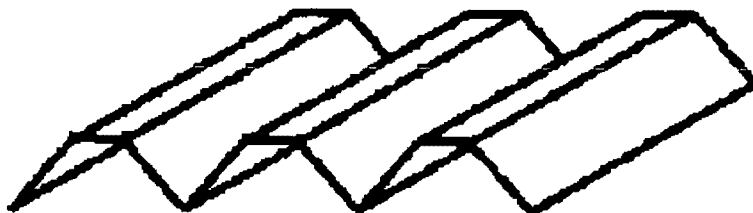


圖1

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

層合玻璃用中間膜及層合玻璃

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。

【先前技術】

【0002】 於兩片玻璃板之間夾入含有塑化聚乙烯丁醛之層合玻璃用中間膜使其互相接著而獲得之層合玻璃尤其被廣泛用作車輛用擋風玻璃。

【0003】 於層合玻璃之製造方法中，例如可進行如下方法等：將自捲狀態捲出之層合玻璃用中間膜切斷為適當之尺寸，將於至少兩片玻璃板之間夾入該層合玻璃用中間膜而獲得之積層體裝入橡膠袋中並進行減壓抽取，一面將殘留於玻璃板與中間膜之間之空氣除去一面進行預壓接，繼而，例如於高壓釜內加熱加壓而進行正式壓接（例如專利文獻1）。

【0004】 於此種層合玻璃之製造方法中，為了實現製造之效率化，而將預先切斷為特定形狀之層合玻璃用中間膜於恆溫恆濕室內積層保管。然而，存在如下問題：於保管中積層之層合玻璃用中間膜彼此接著（自黏），而存在無法藉由搬送層合玻璃用中間膜之機械或人力進行剝離之情況。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 [專利文獻 1]日本特開平 8-26789 號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】 本發明鑒於上述現狀，目的在於提供一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。

[解決課題之技術手段]

【0007】 本發明之層合玻璃用中間膜於第 1 表面及與該第 1 表面為相反側之第 2 表面具有多個凹部與多個凸部，且上述第 1 表面及第 2 表面所具有之凹部具有底部連續之溝形，鄰接之上述凹部平行且規則地並列，於將上述第 1 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與上述第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之交叉角設為 θ 時，滿足下述式 (1)，於將上述第 1 表面及第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之間隔分別設為 S_{m1} (μm) 及 S_{m2} (μm)，且將上述凸部之旋轉半徑分別設為 R_1 (μm) 及 R_2 (μm) 時， S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 及 R_1 與 R_2 之平均值 R 滿足下述式 (2)。

以下，對本發明進行詳細說明。

【0008】

$$\theta \geq 10^\circ \quad (1)$$

$$R/S_m \leq 0.3 \quad (2)$$

【0009】 於層合玻璃之製造步驟中，重要的是積層玻璃與層合玻璃用中間膜時之脫氣性。因此，為了確保製造層合玻璃時之脫氣性，而於層合玻璃用中間膜之至少一表面形成有微細之凹凸。尤其藉由將該凹凸中之凹部設為具有底部連續之溝形（以下亦稱為「刻線狀」），且鄰接之該刻線狀之凹部係平行且規則地形成之結構，可發揮極為優異之脫氣性。

本發明之發明者等人進行努力研究，結果發現以積層之狀態保管層合玻璃用中間膜時之層合玻璃用中間膜彼此之接著力（自黏力）會大幅受層合玻璃用中間膜之表面之凹凸形狀影響。然後進一步進行努力研究，結果發現於以滿足上述式（1）及上述式（2）之方式控制層合玻璃用中間膜之兩面之凹凸形狀之情形時，即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏，而變得可容易地剝離，從而完成本發明。

【0010】 本發明之層合玻璃用中間膜於第1表面及與該第1表面為相反側之第2表面具有多個凹部與多個凸部。藉此，可確保製造層合玻璃時之脫氣性。

上述凹凸之形狀至少具有溝形即可，例如，可使用刻線狀、格子狀等通常對層合玻璃用中間膜之表面賦予之凹凸之形狀。上述凹凸之形狀亦可為轉印壓紋輥而成之形狀。

又，上述凸部可如圖1所示般脊部為平面形狀，亦可如圖2所示般為非平面之形狀。再者，於上述凸部之脊部為平面形狀之情形時，可對該脊部之平面進一步施加微細之凹凸。

進而，各凹凸之凸部之高度可為相同之高度，亦可為不同之高度，與該等凸部相對應之凹部之深度只要該凹部之底邊連續，則可為相同之深

度，亦可為不同之深度。

【0011】 於本發明之層合玻璃用中間膜中，上述第 1 表面及第 2 表面所具有之凹部具有底部連續之溝形，鄰接之上述凹部平行且規則地並列。通常，壓接「於兩片玻璃板之間積層層合玻璃用中間膜而成之積層體」時之空氣之排除難易性與上述凹部之底部之連通性及平滑性有密切之關係。藉由將中間膜之兩面之凹凸之形狀設為「底部連續之溝形之凹部平行且規則地並列」之形狀，上述底部之連通性更優異，脫氣性顯著提高。

再者，所謂「規則地並列」意指鄰接之上述溝形之凹部可為平行且等間隔地並列，亦可為鄰接之上述刻線狀之凹部雖然平行並列，但並非全部鄰接之上述刻線狀之凹部之間隔為等間隔。

圖 1 及圖 2 中示出表示溝形之凹部等間隔地平行並列之層合玻璃用中間膜之一例之示意圖。

圖 3 中示出表示溝形之凹部非等間隔地平行並列之層合玻璃用中間膜之一例之示意圖。於圖 3 中，凹部 1 與凹部 2 之間隔 A 和凹部 1 與凹部 3 之間隔 B 不同。

【0012】 於本發明之層合玻璃用中間膜中，規定第 1 表面所具有之底部連續之溝形之凹部與第 2 表面所具有之底部連續之溝形之凹部之交叉角 θ 、以及於將第 1 表面及第 2 表面所具有之底部連續之溝形之凹部之間隔分別設為 S_{m1} 及 S_{m2} 、將凸部之旋轉半徑 R 分別設為 R_1 及 R_2 時， S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 及 R_1 與 R_2 之平均值 R 為特定之條件。

圖 4 表示說明交叉角 θ 之示意圖。於圖 4 中，層合玻璃用中間膜 10 於第 1 表面具有實線所表示之底部連續之溝形之凹部 11，且於第 2 表面具

有虛線所表示之底部連續之溝形之凹部 12。交叉角 θ 表示該實線所表示之底部連續之溝形之凹部 11 與虛線所表示之底部連續之溝形之凹部 12 之交叉角。

關於上述交叉角 θ ，例如藉由目視或光學顯微鏡觀察層合玻璃用中間膜，對於第 1 表面所具有之底部連續之溝形之凹部與第 2 表面所具有之底部連續之溝形之凹部之交叉角 θ ，於目視之情形時，對兩面均與凹部平行地以油墨描繪直線，使用分度器測定所描繪之直線彼此之銳角。於使用光學顯微鏡之情形時，對經放大之表面進行拍攝，使用圖像處理軟體等來測定銳角之角度，藉此進行測定。

【0013】 圖 5 表示說明凹部之間隔 S_m 及凸部之旋轉半徑 R 之示意圖。於圖 5 (a) 中，第 1 表面或第 2 表面之凹凸 20 具有底部連續之溝形之凹部 21 與凸部 22。間隔 S_m 意指該凹部 21 間之間隔。又，於圖 5 (b) 中，於以與凸部 22 之前端部相接之形式描繪圓時，該圓之半徑為凸部之旋轉半徑 R 。

【0014】 上述凹部之間隔 S_m 例如可藉由以下之方法測定。即，使用光學顯微鏡（例如，SONIC 公司製造，BS-8000III）觀察層合玻璃用中間膜之表面（觀察範圍 20 mm×20 mm），測定觀察到之全部鄰接之凹部之最底部間之最短距離。繼而，計算出所測得之最短距離之平均值，藉此獲得凹部之間隔。又，亦可將所測得之最短距離之最大值設為凹部之間隔。凹部之間隔可為最短距離之平均值，亦可為最短距離之最大值，較佳為最短距離之平均值。又，測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。依據上述之順序對第 1 表面所具有之底部連續之溝形之凹部之間隔 S_{m1} 、第 2 表面所具有之底部

連續之溝形之凹部之間隔 S_{m2} 、及 S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 進行測定。

【0015】 上述凸部之旋轉半徑 R 可藉由如下方法進行測定：例如，使用單刃剃刀（例如，FEATHER Safety Razor 公司製造，FAS-10），沿與刻線狀之凹部之方向垂直之方向、且與膜厚方向平行地，以避免切斷面變形之方式，將剃刀於在垂直於凹部之方向上不滑動之情況下沿平行於厚度方向之方向按下，藉此切斷中間膜，使用顯微鏡（例如，Olympus 公司製造之「DSX-100」）觀察其截面，以 277 倍之測定倍率進行拍攝，進而於以成為 $50 \mu\text{m}/20 \text{mm}$ 之方式放大顯示拍攝圖像之狀態下，使用隨附軟體內之計測軟體，將描繪與凸形狀之頂點內切之圓時之該圓之半徑設為該凸部之前端之旋轉半徑。又，測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。依據上述之順序對第 1 表面所具有之凸部之旋轉半徑 R_1 、第 2 表面所具有之凸部之旋轉半徑 R_2 、及 R_1 與 R_2 之平均值 R 進行測定。

【0016】 凸部之前端部之粗糙度 R_z 係由 JIS B 0601 (1994) 之十點平均粗糙度所定義，例如，可藉由對使用三維粗糙度測定器（例如，KEYENCE 公司製造之「KS-1100」）所測得之數位訊號進行資料處理而測定。再者，上述凸部之前端部粗糙度可藉由如下方法而求出：使用三維粗糙度測定器（例如，KEYENCE 公司製造之「KS-1100」，前端頭型號「LT-9510VM」），使用隨附之測定軟體即 KS-measure 於 $2 \text{cm} \times 2 \text{cm}$ 之視野範圍內測定層合玻璃用中間膜之表面之粗糙度，於所獲得之資料中，對於該凸部之頭頂部，在與頂部連續之方向平行之方向上取 10 點測定長度 2.5mm 之粗糙度，以其平均值作為凸部之前端部粗糙度。再者，於選擇 10 處上述長度 2.5mm 之粗糙度時，較佳為各長度 2.5mm 之線彼此相隔 $50 \mu\text{m}$ 以上。於隨附之解析軟

體即「KS-Analyzer Ver.2.00」之線粗糙度計測模式下，於長度指定條件中將長度指定為「2500 μm 」，選擇所獲得之三維圖像資料之相關部分，獲得粗糙度分佈資料。此處所謂之粗糙度係指由粗糙度分佈資料獲得之「Rz」。又，獲得粗糙度分佈資料時之設定值選擇 2.5 mm 作為臨界值。不使用高度平滑化及傾斜修正。關於視野範圍以外之測定條件，平台輸送條件係設為連續輸送，掃描方向設定為雙向，先行軸設定為 X 軸，平台移動速度設定為 250.0 $\mu\text{m}/\text{s}$ ，送軸速度設定為 10000.0 $\mu\text{m}/\text{s}$ 。進而，將 X 軸之測定間距設定為 2.0 μm ，將 Y 軸之測定間距設定為 2.0 μm 。此處，於刻線之凹部之間隔較大、測定距離不足之情形時，對測定視野之進一步鄰接之視野同樣地進行測定從而增加測定點即可。再者，前端部粗糙度之測定中之所謂上述凸部之頭頂部於凸部之最大值位於以最短距離連結存在於上述 2 cm \times 2 cm 之視野範圍之鄰接之兩個凹部之最底部間彼此而獲得之直線的中心之情形時，其係指自以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之中心起相當於上述以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之長度的 10% 之範圍。又，於凸部之最大值不位於以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之中心之情形時，其係指自存在於以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線上之凸部之最大值起相當於上述以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之長度之 10% 之範圍。

又，測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。

依據上述之順序，對第 1 表面所具有之凸部之前端部之粗糙度 Rz1、第 2 表面所具有之凸部之前端部之粗糙度 Rz2、及 Rz1 與 Rz2 之平均值 Rz 進行測定。

【0017】 本發明之層合玻璃用中間膜之上述交叉角 θ 、上述 Sm_1 與 Sm_2 之平均值 Sm 及上述 R_1 與 R_2 之平均值 R 滿足上述式(1)及上述式(2)。藉此，即便以積層之狀態保管層合玻璃用中間膜亦不會發生自黏，而可容易地剝離。認為其原因在於：於被賦予刻線狀之壓紋之中間膜中，於積層時，於刻線形狀之凸部之前端彼此接觸之點會發生自黏，因此 R/Sm 越小，越可減小積層之狀態下之膜彼此之每單位面積之接觸面積，而可防止自黏。又，為了即便於積層之狀態下保管層合玻璃用中間膜亦更加不會發生自黏而可容易地剝離，較佳為即便於使用 Sm_1 或 Sm_2 代替上述 Sm_1 與 Sm_2 之平均值 Sm 、使用 R_1 或 R_2 代替上述 R_1 與 R_2 之平均值 R 之情形時，亦滿足上述式(1)及上述式(2)。

較佳為於使用 Sm_1 代替上述 Sm_1 與 Sm_2 之平均值 Sm 、使用 R_1 代替上述 R_1 與 R_2 之平均值 R 之情形，及使用 Sm_2 代替上述 Sm_1 與 Sm_2 之平均值 Sm 、使用 R_2 代替上述 R_1 與 R_2 之平均值 R 之情形此兩種情形時均滿足上述式(1)及上述式(2)。 R/Sm 較佳為未達 0.3，更佳為 0.2 以下，進而較佳為 0.11 以下。

【0018】 本發明之層合玻璃用中間膜較佳為上述 Rz_1 與 Rz_2 之平均值 Rz (μm) 滿足下述式(3)。藉由凸部之前端部之粗糙度 Rz 為特定值以上，可進一步減小凸部之前端彼此接觸之點之接觸面積，進一步防止於以積層之狀態保管層合玻璃用中間膜時發生自黏之情況，而可更容易地剝離。又，可獲得良好之脫氣性。又，為了即便以積層之狀態保管層合玻璃用中間膜亦不會發生自黏而可更容易地剝離，更佳為即便於使用 Rz_1 或 Rz_2 代替上述 Rz_1 與 Rz_2 之平均值 Rz 之情形時亦滿足下述式(3)。進而較佳為於使用

Rz1 及 Rz2 代替上述 Rz1 與 Rz2 之平均值 Rz 此兩種情形時均滿足下述式(3)。

上述 Rz1、上述 Rz2、及上述 Rz1 與 Rz2 之平均值 Rz 更佳為超過 1，進而較佳為 5 以上，尤佳為 10 以上。又，凸部之前端部之粗糙度 Rz 較佳為 30 以下，更佳為 20 以下。

【0019】

$$Rz \geq 1 \quad (3)$$

【0020】 另一方面，認為其原因在於：越是減小上述 Sm1 與 Sm2 之平均值 Sm，且使交叉角 θ 越接近 90° ，則可在不增加每單位面積之面積之情況下增加膜彼此之接觸點數，而分散施加於每個接觸點之荷重，藉此可抑制自黏。進而，本發明之層合玻璃用中間膜較佳為滿足下述式(4)。藉由滿足下述式(4)，自黏力進一步降低，而可使剝離變得容易。又，為了即便以積層之狀態保管層合玻璃用中間膜亦不會發生自黏而可更容易地剝離，更佳為即便於使用 Sm1 或 Sm2 代替上述 Sm1 與 Sm2 之平均值 Sm 之情形時亦滿足下述式(4)。

下述式(4)實質上表示單位面積內之接觸點之密度。單位面積內之接觸點由於為兩個面之凸部之交叉點，因此為凸部之個數互相之乘積。假定 1 mm^2 內中間膜之凸部彼此接觸之個數，其中一面之 1 mm^2 內之凸部之個數為 $(1000/Sm)$ ，進而另一面之 1 mm^2 內之凸部之個數取決於交叉角，而與 $(1000/Sm) \times \sin \theta$ 相關。根據以上內容導出式(4)。

式(4)之右邊更佳為超過 2.2，進而較佳為 5 以上，尤佳為 9 以上，尤佳為 20 以上。

【0021】

$$(1000/S_m)^2 \times \sin \theta \geq 2.2 \quad (4)$$

【0022】 為了進一步降低自黏力而使剝離容易，上述交叉角 θ 較佳為 20° 以上，更佳為 45° 以上，最佳為 90° 。就可有效地防止於製造層合玻璃時之輸送帶上玻璃與層合玻璃用中間膜發生偏移之方面而言，上述交叉角較佳為未達 90° ，更佳為 85° 以下，進而較佳為 75° 以下。

又，上述 S_{m1} 、上述 S_{m2} 、及上述 S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 較佳為 $400 \mu\text{m}$ 以下，更佳為 $200 \mu\text{m}$ 以下，進而較佳為 $100 \mu\text{m}$ 以下。又，上述 R_1 、上述 R_2 、及上述 R_1 與 R_2 之平均值 R 較佳為 $100 \mu\text{m}$ 以下，更佳為 $40 \mu\text{m}$ 以下，進而較佳為 $25 \mu\text{m}$ 以下。

【0023】 本發明之層合玻璃用中間膜就使脫氣性良好之觀點而言，較佳為至少一面之表面之粗糙度 R_z 為 $10 \sim 60 \mu\text{m}$ ，更佳為 $20 \sim 55 \mu\text{m}$ ，進而較佳為 $30 \sim 50 \mu\text{m}$ 。

上述表面之粗糙度 R_z 可藉由依據 JIS B-0601 (2001)，以相對於刻線方向之凹部連續之方向橫切之方式沿垂直方向進行測定而獲得。此處，作為測定機，例如可使用小阪研究所公司製造之「Surfcorder SE300」等，可藉由使用「測定時之臨界值為 2.5 mm 、基準長度為 2.5 mm 、將測定長度設為 12.5 mm 、將預備長度設為 2.5 mm 、觸針之進給速度為 0.5 mm/秒 、觸針形狀為前端半徑 $2 \mu\text{m}$ 、前端角 60° 」之條件進行測定。又，測定時之環境為 23°C 及 $30\text{RH}\%$ 下。又，欲測定之中間膜係於測定時之環境下靜置 3 小時以上後進行測定。

【0024】 於本發明中，作為於層合玻璃用中間膜之第 1 表面及第 2 表面形成多個凹部與多個凸部之方法，例如，可列舉壓紋輥法、壓光輥法、

異形擠出法、利用熔體破裂之唇模擠出壓紋法等。其中，就可容易地獲得鄰接之該溝形之凹部平行地形成之形狀及並列之形狀之方面而言，較佳為壓紋輥法。

【0025】 作為上述壓紋輥法所使用之壓紋輥，例如，可列舉如下壓紋輥，該壓紋輥係使用氧化鋁或氧化矽等研磨材對金屬輥表面進行噴砂處理，繼而為了減少表面之過大峰而利用垂直研磨等進行研磨，藉此於輥表面具有壓紋花紋（凹凸花紋）。除此以外，亦可列舉藉由使用雕刻磨機將壓紋花紋（凹凸花紋）轉印至金屬輥表面而於輥表面具有壓紋花紋（凹凸花紋）之壓紋輥。進而，可列舉藉由蝕刻（etching）而於輥表面具有壓紋花紋（凹凸花紋）之壓紋輥等。

【0026】 本發明之層合玻璃用中間膜可為僅由一層樹脂膜構成之單層結構，亦可為積層有兩層以上之樹脂層之多層結構。

於本發明之層合玻璃用中間膜為多層結構之情形時，藉由具有第一樹脂層與第二樹脂層作為兩層以上之樹脂層，且第一樹脂層與第二樹脂層具有不同之性質，可提供具有僅憑一層難以實現之各種性能之層合玻璃用中間膜。

【0027】 上述樹脂層較佳為含有熱塑性樹脂。

作為上述熱塑性樹脂，例如可列舉：聚偏二氟乙烯、聚四氟乙烯、偏二氟乙烯－六氟丙烯共聚物、聚三氟乙烯、丙烯腈－丁二烯－苯乙烯共聚物、聚酯、聚醚、聚醯胺、聚碳酸酯、聚丙烯酸酯、聚甲基丙烯酸酯、聚氯乙烯、聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、聚乙烯縮醛、乙烯－乙酸乙烯酯共聚物等。其中，上述樹脂層較佳為含有聚乙烯縮醛、或乙烯－乙酸乙烯酯

共聚物，更佳為含有聚乙烯縮醛。

【0028】 上述聚乙烯縮醛例如可藉由利用醛將聚乙烯醇（PVA）進行縮醛化而製造。上述聚乙烯縮醛較佳為聚乙烯醇之縮醛化物。PVA 之皂化度通常為 70~99.9 莫耳%之範圍內。

【0029】 用以獲得上述聚乙烯縮醛之聚乙烯醇 PVA 之聚合度較佳為 200 以上，更佳為 500 以上，進而較佳為 1700 以上，尤佳為 2000 以上，且較佳為 5000 以下，更佳為 4000 以下，進而較佳為 3000 以下，進而更佳為未達 3000，尤佳為 2800 以下。上述聚乙烯縮醛較佳為藉由將聚合度為上述下限以上及上述上限以下之 PVA 進行縮醛化而獲得之聚乙烯縮醛。若上述聚合度為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性變得更高。若上述聚合度為上述上限以下，則中間膜之成形變得容易。

【0030】 PVA 之聚合度表示平均聚合度。該平均聚合度可藉由依據 JIS K6726「聚乙烯醇試驗方法」之方法而求出。作為上述醛，通常可較佳地使用碳數為 1~10 之醛。作為上述碳數為 1~10 之醛，例如可列舉：甲醛、乙醛、丙醛、正丁醛、異丁醛、正戊醛、2-乙基丁醛、正己醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛及苯甲醛等。其中，較佳為正丁醛、正己醛或正戊醛，更佳為正丁醛。上述醛可僅使用一種，亦可併用兩種以上。

【0031】 中間膜所含之上述聚乙烯縮醛較佳為聚乙烯丁醛樹脂。藉由使用聚乙烯丁醛樹脂，中間膜對層合玻璃構件之耐候性等進一步提高。

【0032】 上述樹脂層較佳為含有聚乙烯縮醛與塑化劑。

作為上述塑化劑，只要為通常用於層合玻璃用中間膜之塑化劑，則無特別限定，例如可列舉：一元有機酸酯、多元有機酸酯等有機塑化劑；或

有機磷酸化合物、有機亞磷酸化合物等磷酸塑化劑等。

作為上述有機塑化劑，例如可列舉：三乙二醇二（2-乙基己酸酯）、三乙二醇二（2-乙基丁酸酯）、三乙二醇二（正庚酸酯）、四乙二醇二（2-乙基己酸酯）、四乙二醇二（2-乙基丁酸酯）、四乙二醇二（正庚酸酯）、二乙二醇二（2-乙基己酸酯）、二乙二醇二（2-乙基丁酸酯）、二乙二醇二（正庚酸酯）等。其中，上述樹脂層較佳為含有三乙二醇二（2-乙基己酸酯）、三乙二醇二（2-乙基丁酸酯）、或三乙二醇二（正庚酸酯），更佳為含有三乙二醇二（2-乙基己酸酯）。

【0033】 上述樹脂層較佳為含有接著力調整劑。尤其於製造層合玻璃時，與玻璃接觸之樹脂層較佳為含有上述接著力調整劑。

作為上述接著力調整劑，例如，可較佳地使用鹼金屬鹽或鹼土金屬鹽。作為上述接著力調整劑，例如，可列舉鉀、鈉、鎂等之鹽。

作為構成上述鹽之酸，例如可列舉：辛酸、己酸、2-乙基丁酸、丁酸、乙酸、甲酸等羧酸之有機酸；或鹽酸、硝酸等無機酸。於製造層合玻璃時，就可容易地調整玻璃與樹脂層之接著力之方面而言，與玻璃接觸之樹脂層較佳為含有鎂鹽作為接著力調整劑。

【0034】 上述樹脂層亦可視需要含有抗氧化劑、光穩定劑、作為接著力調整劑之改質聚矽氧油、難燃劑、抗靜電劑、耐濕劑、熱反射劑、吸熱劑等添加劑。

【0035】 於本發明之層合玻璃用中間膜中，較佳為至少具有第一樹脂層與第二樹脂層作為兩層以上之樹脂層，且上述第一樹脂層所含之聚乙烯縮醛（以下稱為聚乙烯縮醛 A）之羥基量與上述第二樹脂層所含之聚乙烯

縮醛（以下稱為聚乙烯縮醛 B）之羥基量不同。

由於聚乙烯縮醛 A 與聚乙烯縮醛 B 之性質不同，故而可提供具有僅憑一層難以實現之各種性能之層合玻璃用中間膜。例如，於在兩層之上述第二樹脂層之間積層有上述第一樹脂層，且聚乙烯縮醛 A 之羥基量低於聚乙烯縮醛 B 之羥基量之情形時，上述第一樹脂層有與上述第二樹脂層相比玻璃轉移溫度變低之傾向。結果上述第一樹脂層變得軟於上述第二樹脂層，層合玻璃用中間膜之隔音性變高。又，於在兩層之上述第二樹脂層之間積層有上述第一樹脂層，且聚乙烯縮醛 A 之羥基量高於聚乙烯縮醛 B 之羥基量之情形時，上述第一樹脂層有與上述第二樹脂層相比玻璃轉移溫度變高之傾向。結果上述第一樹脂層變得硬於上述第二樹脂層，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。

【0036】 進而，於上述第一樹脂層及上述第二樹脂層含有塑化劑之情形時，較佳為上述第一樹脂層中之塑化劑相對於聚乙烯縮醛 100 質量份之含量（以下稱為含量 A）與上述第二樹脂層中之塑化劑相對於聚乙烯縮醛 100 質量份之含量（以下稱為含量 B）不同。例如，於在兩層之上述第二樹脂層之間積層有上述第一樹脂層，且上述含量 A 多於上述含量 B 之情形時，上述第一樹脂層有與上述第二樹脂層相比玻璃轉移溫度變低之傾向。結果上述第一樹脂層變得軟於上述第二樹脂層，層合玻璃用中間膜之隔音性變高。又，於在兩層之上述第二樹脂層之間積層有上述第一樹脂層，且上述含量 A 少於上述含量 B 之情形時，上述第一樹脂層有與上述第二樹脂層相比玻璃轉移溫度變高之傾向。結果上述第一樹脂層變得硬於上述第二樹脂層，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。

【0037】 作為構成本發明之層合玻璃用中間膜之兩層以上之樹脂層之組合，例如，為了提高層合玻璃之隔音性，可列舉作為上述第一樹脂層之隔音層、與作為上述第二樹脂層之保護層之組合。就層合玻璃之隔音性提高之方面而言，較佳為上述隔音層含有聚乙烯縮醛 X 與塑化劑，上述保護層含有聚乙烯縮醛 Y 與塑化劑。進而，於在兩層之上述保護層之間積層有上述隔音層之情形時，可獲得具有優異之隔音性之層合玻璃用中間膜（以下亦稱為隔音中間膜）。以下，對隔音中間膜進行更具體之說明。

【0038】 於上述隔音中間膜中，上述隔音層具有賦予隔音性之作用。上述隔音層較佳為含有聚乙烯縮醛 X 與塑化劑。

上述聚乙烯縮醛 X 可藉由利用醛將聚乙烯醇進行縮醛化而製備。上述聚乙烯縮醛 X 較佳為聚乙烯醇之縮醛化物。上述聚乙烯醇通常可藉由將聚乙酸乙烯酯進行皂化而獲得。

上述聚乙烯醇之平均聚合度之較佳之下限為 200，較佳之上限為 5000。藉由將上述聚乙烯醇之平均聚合度設為 200 以上，可提高所獲得之隔音中間膜之耐貫通性，藉由設為 5000 以下，可確保隔音層之成形性。上述聚乙烯醇之平均聚合度之更佳之下限為 500，更佳之上限為 4000。

再者，上述聚乙烯醇之平均聚合度可藉由依據 JIS K6726「聚乙烯醇試驗方法」之方法而求出。

【0039】 用以將上述聚乙烯醇進行縮醛化之醛之碳數之較佳之下限為 4，較佳之上限為 6。藉由將醛之碳數設為 4 以上，可穩定含有充分之量之塑化劑，而可發揮出優異之隔音性能。又，可防止塑化劑之滲出。藉由將醛之碳數設為 6 以下，可使聚乙烯縮醛 X 之合成變得容易，而確保生產

性。作為上述碳數為 4~6 之醛，可為直鏈狀之醛，亦可為支鏈狀之醛，例如，可列舉正丁醛、正戊醛等。

【0040】 上述聚乙烯縮醛 X 之羥基量之較佳之上限為 30 莫耳%。藉由將上述聚乙烯縮醛 X 之羥基量設為 30 莫耳%以下，可含有發揮出隔音性所需之量之塑化劑，可防止塑化劑之滲出。上述聚乙烯縮醛 X 之羥基量之更佳之上限為 28 莫耳%，進而較佳之上限為 26 莫耳%，尤佳之上限為 24 莫耳%，且較佳之下限為 10 莫耳%，更佳之下限為 15 莫耳%，進而較佳之下限為 20 莫耳%。上述聚乙烯縮醛 X 之羥基量係將「羥基所鍵結之伸乙基量除以主鏈之伸乙基總量而求出之莫耳分率」以百分率(莫耳%)表示之值。上述羥基所鍵結之伸乙基量例如可藉由利用依據 JIS K6728「聚乙烯丁醛試驗方法」之方法測定上述聚乙烯縮醛 X 之羥基所鍵結之伸乙基量而求出。

【0041】 上述聚乙烯縮醛 X 之縮醛基量之較佳之下限為 60 莫耳%，較佳之上限為 85 莫耳%。藉由將上述聚乙烯縮醛 X 之縮醛基量設為 60 莫耳%以上，可提高隔音層之疏水性，含有發揮出隔音性所需之量之塑化劑，可防止塑化劑之滲出或白化。藉由將上述聚乙烯縮醛 X 之縮醛基量設為 85 莫耳%以下，可使聚乙烯縮醛 X 之合成變得容易，而確保生產性。上述聚乙烯縮醛 X 之縮醛基量之下限更佳為 65 莫耳%，進而較佳為 68 莫耳%以上。

上述縮醛基量可藉由利用依據 JIS K6728「聚乙烯丁醛試驗方法」之方法測定上述聚乙烯縮醛 X 之縮醛基所鍵結之伸乙基量而求出。

【0042】 上述聚乙烯縮醛 X 之乙醯基量之較佳之下限為 0.1 莫耳%，較佳之上限為 30 莫耳%。藉由將上述聚乙烯縮醛 X 之乙醯基量設為 0.1 莫耳%以上，可含有發揮出隔音性所需之量之塑化劑，可防止滲出。又，藉由

將上述聚乙烯縮醛 X 之乙醯基量設為 30 莫耳%以下，可提高隔音層之疏水性，防止白化。上述乙醯基量之更佳之下限為 1 莫耳%，進而較佳之下限為 5 莫耳%，尤佳之下限為 8 莫耳%，且更佳之上限為 25 莫耳%，進而較佳之上限為 20 莫耳%。上述乙醯基量係將「主鏈之伸乙基總量減去縮醛基所鍵結之伸乙基量與羥基所鍵結之伸乙基量而獲得之值」除以「主鏈之伸乙基總量」而求出之莫耳分率以百分率（莫耳%）表示之值。

【0043】 尤其就可使上述隔音層容易地含有發揮出隔音性所需之量之塑化劑之方面而言，上述聚乙烯縮醛 X 較佳為上述乙醯基量為 8 莫耳%以上之聚乙烯縮醛、或上述乙醯基量未達 8 莫耳%且縮醛基量為 65 莫耳%以上之聚乙烯縮醛。又，上述聚乙烯縮醛 X 更佳為上述乙醯基量為 8 莫耳%以上之聚乙烯縮醛、或上述乙醯基量未達 8 莫耳%且縮醛基量為 68 莫耳%以上之聚乙烯縮醛。

【0044】 上述隔音層中之塑化劑之含量相對於上述聚乙烯縮醛 X 100 質量份之較佳之下限為 45 質量份，較佳之上限為 80 質量份。藉由將上述塑化劑之含量設為 45 質量份以上，可發揮出較高之隔音性，藉由設為 80 質量份以下，可防止產生塑化劑之滲出而導致層合玻璃用中間膜之透明性或接著性降低之情況。上述塑化劑之含量之更佳之下限為 50 質量份，進而較佳之下限為 55 質量份，且更佳之上限為 75 質量份，進而較佳之上限為 70 質量份。再者，上述隔音層中之塑化劑之含量可為製作層合玻璃前之塑化劑含量，亦可為製作層合玻璃後之塑化劑含量。再者，製作層合玻璃後之塑化劑之含量可依據以下之順序進行測定。製作層合玻璃後，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下靜置 4 週。其後，利用液態氮冷卻層合玻璃，藉此將玻

璃與層合玻璃用中間膜剝離。沿厚度方向切斷所獲得之保護層及隔音層，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下靜置 2 小時後，於保護層與隔音層之間放入手指或機械，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下加以剝離，從而分別獲得 10 g 之長方形之保護層及隔音層之測定試樣。對於所獲得之測定試樣，使用索氏萃取器以二乙醚萃取塑化劑 12 小時後，對測定試樣中之塑化劑進行定量，求出保護層及中間層中之塑化劑之含量。

【0045】 上述隔音層之厚度之較佳之下限為 50 μm 。藉由將上述隔音層之厚度設為 50 μm 以上，可發揮出充分之隔音性。上述隔音層之厚度之更佳之下限為 80 μm 。再者，上限並無特別限定，若考慮作為層合玻璃用中間膜之厚度，則較佳之上限為 300 μm 。

【0046】 上述保護層具有防止隔音層所含之大量之塑化劑滲出，而導致層合玻璃用中間膜與玻璃之接著性降低之作用，又，具有對層合玻璃用中間膜賦予耐貫通性之作用。

上述保護層較佳為含有例如聚乙烯縮醛 Y 與塑化劑，更佳為含有羥基量大於聚乙烯縮醛 X 之聚乙烯縮醛 Y 與塑化劑。

【0047】 上述聚乙烯縮醛 Y 可藉由利用醛將聚乙烯醇進行縮醛化而製備。上述聚乙烯縮醛 Y 較佳為聚乙烯醇之縮醛化物。上述聚乙烯醇通常可藉由將聚乙酸乙烯酯進行皂化而獲得。

又，上述聚乙烯醇之平均聚合度之較佳之下限為 200，較佳之上限為 5000。藉由將上述聚乙烯醇之平均聚合度設為 200 以上，可提高層合玻璃用中間膜之耐貫通性，藉由設為 5000 以下，可確保保護層之成形性。上述聚乙烯醇之平均聚合度之更佳之下限為 500，更佳之上限為 4000。

【0048】 用以將上述聚乙烯醇進行縮醛化之醛之碳數之較佳之下限為 3，較佳之上限為 4。藉由將醛之碳數設為 3 以上，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。藉由將醛之碳數設為 4 以下，聚乙烯縮醛 Y 之生產性提高。

作為上述碳數為 3~4 之醛，可為直鏈狀之醛，亦可為支鏈狀之醛，例如，可列舉正丁醛等。

【0049】 上述聚乙烯縮醛 Y 之羥基量之較佳之上限為 33 莫耳%，較佳之下限為 28 莫耳%。藉由將上述聚乙烯縮醛 Y 之羥基量設為 33 莫耳%以下，可防止層合玻璃用中間膜之白化。藉由將上述聚乙烯縮醛 Y 之羥基量設為 28 莫耳%以上，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。

【0050】 關於上述聚乙烯縮醛 Y，縮醛基量之較佳之下限為 60 莫耳%，較佳之上限為 80 莫耳%。藉由將上述縮醛基量設為 60 莫耳%以上，可含有發揮出充分之耐貫通性所需之量之塑化劑。藉由將上述縮醛基量設為 80 莫耳%以下，可確保上述保護層與玻璃之接著力。上述縮醛基量之更佳之下限為 65 莫耳%，更佳之上限為 69 莫耳%。

【0051】 上述聚乙烯縮醛 Y 之乙醯基量之較佳之上限為 7 莫耳%。藉由將上述聚乙烯縮醛 Y 之乙醯基量設為 7 莫耳%以下，可提高保護層之疏水性，防止白化。上述乙醯基量之更佳之上限為 2 莫耳%，較佳之下限為 0.1 莫耳%。再者，聚乙烯縮醛 A、B、及 Y 之羥基量、縮醛基量、及乙醯基量可藉由與聚乙烯縮醛 X 相同之方法進行測定。

【0052】 上述保護層中之塑化劑之含量相對於上述聚乙烯縮醛 Y 100 質量份之較佳之下限為 20 質量份，較佳之上限為 45 質量份。藉由將上述塑化劑之含量設為 20 質量份以上，可確保耐貫通性，藉由設為 45 質量份以下，

可防止塑化劑之滲出，防止層合玻璃用中間膜之透明性或接著性降低。上述塑化劑之含量之更佳之下限為 30 質量份，進而較佳之下限為 35 質量份，更佳之上限為 43 質量份，進而較佳之上限為 41 質量份。就層合玻璃之隔音性進一步提高之方面而言，上述保護層中之塑化劑之含量較佳為少於上述隔音層中之塑化劑之含量。再者，上述保護層中之塑化劑之含量可為製作層合玻璃前之塑化劑含量，亦可為製作層合玻璃後之塑化劑含量。再者，製作層合玻璃後之塑化劑之含量可藉由與上述隔音層相同之順序進行測定。

【0053】 就層合玻璃之隔音性進一步提高之方面而言，聚乙烯縮醛 Y 之羥基量較佳為大於聚乙烯縮醛 X 之羥基量，更佳為大 1 莫耳%以上，進而較佳為大 5 莫耳%以上，尤佳為大 8 莫耳%以上。藉由調整聚乙烯縮醛 X 及聚乙烯縮醛 Y 之羥基量，可控制上述隔音層及上述保護層中之塑化劑之含量，上述隔音層之玻璃轉移溫度變低。結果層合玻璃之隔音性進一步提高。

又，就層合玻璃之隔音性進一步提高之方面而言，上述隔音層中之塑化劑相對於聚乙烯縮醛 X 100 質量份之含量（以下亦稱為含量 X）較佳為多於上述保護層中之塑化劑相對於聚乙烯縮醛 Y 100 質量份之含量（以下亦稱為含量 Y），更佳為多 5 質量份以上，進而較佳為多 15 質量份以上，尤佳為多 20 質量份以上。藉由調整含量 X 及含量 Y，上述隔音層之玻璃轉移溫度變低。結果層合玻璃之隔音性進一步提高。

【0054】 上述保護層之厚度只要調整為可發揮出上述保護層之作用之範圍即可，並無特別限定。其中，於上述保護層上具有凹凸之情形時，

較佳為以「可抑制凹凸轉印至與直接相接之上述隔音層之界面」之方式盡可能地加厚。具體而言，上述保護層之厚度之較佳之下限為 100 μm ，更佳之下限為 300 μm ，進而較佳之下限為 400 μm ，尤佳之下限為 450 μm 。上述保護層之厚度之上限並無特別限定，為了以可達成充分之隔音性之程度確保隔音層之厚度，實質上上限為 500 μm 左右。

【0055】 作為製造上述隔音中間膜之方法，並無特別限定，例如，可列舉藉由擠出法、壓光法、壓製法等通常之製膜法將上述隔音層與保護層製膜為片狀後進行積層之方法等。

【0056】 又，本發明之層合玻璃用中間膜被積層於一對玻璃板之間之層合玻璃亦為本發明之一。

上述玻璃板可使用通常使用之透明板玻璃。例如，可列舉浮法平板玻璃、拋光板玻璃、壓花玻璃、鋼絲網玻璃、線板玻璃、經著色之板玻璃、吸熱玻璃、熱反射玻璃、綠玻璃等無機玻璃。又，亦可使用玻璃之表面具有紫外線屏蔽塗層之防紫外線玻璃。進而，亦可使用聚對苯二甲酸乙二酯、聚碳酸酯、聚丙烯酸酯等有機塑膠板。

作為上述玻璃板，可使用兩種以上之玻璃板。例如，可列舉於透明浮法平板玻璃與如綠玻璃之經著色之玻璃板之間積層本發明之層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。又，作為上述玻璃板，亦可使用厚度不同之兩種以上之玻璃板。

[發明之效果]

【0057】 根據本發明，可提供一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而

成之層合玻璃。

【圖式簡單說明】

【0058】 圖 1 係表示作為底部連續之溝形之凹部等間隔、且鄰接之凹部平行地並列於表面之層合玻璃用中間膜之一例之示意圖。

圖 2 係表示作為底部連續之溝形之凹部等間隔、且鄰接之凹部平行地並列於表面之層合玻璃用中間膜之一例之示意圖。

圖 3 係表示作為底部連續之溝形之凹部並不等間隔、但鄰接之凹部平行地並列於表面之層合玻璃用中間膜之一例之示意圖。

圖 4 係對交叉角 θ 進行說明之示意圖。

圖 5 係對凹部之間隔 S_m 及凸部之旋轉半徑 R 進行說明之示意圖。

【實施方式】

【0059】 以下，列舉實施例進一步對本發明之態樣進行詳細說明，但本發明並不僅限定於該等實施例。

【0060】 (實施例 1)

(1) 樹脂組成物之製備

相對於藉由以正丁醛將平均聚合度為 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化而獲得之聚乙烯丁醛（乙醯基量 0.9 莫耳%、丁醛基量 69 莫耳%、羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加三乙二醇二（2-乙基己酸酯）（3GO）40 質量份作為塑化劑，利用混合輥充分地進行混練，而獲得樹脂組成物。

【0061】 (2) 層合玻璃用中間膜之製作

藉由使用擠出機將所獲得之樹脂組成物擠出，而獲得厚度 $760 \mu\text{m}$ 之層合玻璃用中間膜。

【0062】 (3) 凹凸之賦予

作為第 1 步驟，藉由下述之順序對層合玻璃用中間膜之兩面轉印無規之凹凸形狀。首先，使用噴砂劑對鐵輥表面施加無規之凹凸後，對該鐵輥進行垂直研磨，進而使用更微細之噴砂劑對研磨後之平坦部施加微細之凹凸，藉此獲得具有粗大之主壓紋與微細之副壓紋之形狀相同之一對輥。

使用該一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，對所獲得之層合玻璃用中間膜之兩面轉印無規之凹凸形狀。作為此時之轉印條件，將層合玻璃用中間膜之溫度設為 80°C ，將上述輥之溫度設為 145°C ，將線速度設為 $10 \text{ m}/\text{min}$ ，將壓製線壓設為 $0\sim 200 \text{ kN}/\text{m}$ 。

【0063】 作為第 2 步驟，藉由下述之順序對層合玻璃用中間膜之表面賦予底部連續之溝形之凹凸。使用由使用三角形斜線型磨機對表面實施有研磨加工之金屬輥與具有 $45\sim 75$ 之 JIS 硬度之橡膠輥所構成之一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使藉由第 1 步驟轉印有無規之凹凸形狀之層合玻璃用中間膜通過該凹凸形狀轉印裝置，而對層合玻璃用中間膜之第 1 表面賦予平行且等間隔地形成作為底部連續之溝形之凹部之凹凸。作為此時之轉印條件，將層合玻璃用中間膜之溫度設為 80°C ，將輥溫度設為 140°C ，將線速度設為 $10 \text{ m}/\text{min}$ ，壓製線壓係設為 $5\sim 100 \text{ kN}/\text{m}$ 。

繼而，對層合玻璃用中間膜之第 2 表面亦實施相同之操作，而賦予底部連續之溝形之凹部。此時，使對第 1 表面賦予之底部連續之溝形（刻線狀）之凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之溝形（刻線狀）之凹部之交叉

角度成為 20°。

【0064】 (4) 第 1 表面及第 2 表面之凹凸之測定

使用光學顯微鏡 (SONIC 公司製造, BS-8000III), 觀察所獲得之層合玻璃用中間膜之第 1 表面及第 2 表面 (觀察範圍 20 mm×20 mm), 測定鄰接之凹部之間隔, 並且計算出鄰接之凹部之最底部間之最短距離之平均值, 藉此測定第 1 表面之凹部之間隔 S_{m1} 及第 2 表面之凹部之間隔 S_{m2} , 結果為 390 μm 。

又, 藉由如下方法測定第 1 表面之凸部之旋轉半徑 R_1 及第 2 表面之凸部之旋轉半徑 R_2 , 結果為 37 μm , 該方法係使用單刃剃刀 (FEATHER Safety Razor 公司製造之 FAS-10), 沿與刻線狀之凹部之方向垂直之方向、且與膜厚方向平行地, 以避免切斷面變形之方式, 將剃刀於在垂直於凹部之方向上滑動之情況下沿平行於厚度方向之方向按下, 藉此切斷中間膜, 使用顯微鏡 (Olympus 公司製造之「DSX-100」) 觀察其截面, 以 277 倍之測定倍率進行拍攝, 進而於以成為 50 $\mu\text{m}/20\text{mm}$ 之方式放大顯示拍攝圖像之狀態下, 使用隨附軟體內之計測軟體, 將描繪與凸形狀之頂點內切之圓時之該圓之半徑設為該凸部之前端之旋轉半徑。此時, 測定時之環境為 23 °C 及 30RH% 下。

又, 依據 JIS B-0601 (2001), 以相對於刻線方向之凹部連續之方向橫切之方式沿垂直方向進行測定, 藉此獲得上述第 1 表面及上述第 2 表面之粗糙度 R_z 。此處, 作為測定機, 使用小阪研究所公司製造之「Surfcorder SE300」等, 將條件設為使用「測定時之臨界值為 2.5 mm、基準長度為 2.5 mm、將測定長度設為 12.5 mm、將預備長度設為 2.5 mm、觸針之進給速度

為 0.5 mm/秒、觸針形狀為前端半徑 2 μm 、前端角 60°」者。又，測定時之環境設為 23°C 及 30RH% 下。又，將測定之中間膜於測定時之環境下靜置 3 小時以上後進行測定。

【0065】 (5) 凸部之前端部之粗糙度 R_z 之測定

使用三維粗糙度測定器（例如，KEYENCE 公司製造之「KS-1100」，前端頭型號「LT-9510VM」）及隨附之測定軟體即 KS-measure，將所獲得之層合玻璃用中間膜之第 1 表面之凸部之前端部之粗糙度 R_{z1} 及第 2 表面之凸部之前端部之粗糙度 R_{z2} 作為依據 JIS B 0601 (1994) 之十點平均粗糙度，藉由以下之順序進行測定。

藉由如下方法而求出：於 2 cm \times 2 cm 之視野範圍內測定層合玻璃用中間膜之表面之粗糙度，於所獲得之資料中，對於該凸部之頭頂部，在與頂部連續之方向平行之方向上取 10 點測定長度 2.5 mm 之粗糙度，以其平均值作為凸部之前端部粗糙度。再者，於選擇 10 處上述長度 2.5 mm 之粗糙度時，各長度 2.5 mm 之線彼此相隔 50 μm 以上而進行測定。此處所謂之長度 2.5 mm 之粗糙度係指於隨附之解析軟體即「KS-Analyzer Ver.2.00」之線粗糙度計測模式下，於長度指定條件中將長度指定為「2500 μm 」，選擇所獲得之三維圖像資料之相關部分，由粗糙度分佈資料獲得之「 R_z 」。獲得粗糙度分佈資料時之設定值選擇 2.5 mm 作為臨界值。不使用高度平滑化及傾斜修正。關於視野範圍以外之測定條件，平台輸送條件係設為連續輸送，掃描方向設定為雙向，先行軸設定為 X 軸，平台移動速度設定為 250.0 $\mu\text{m}/\text{s}$ ，送軸速度設定為 10000.0 $\mu\text{m}/\text{s}$ 。進而，將 X 軸之測定間距設定為 2.0 μm ，將 Y 軸之測定間距設定為 2.0 μm 。

前端部粗糙度之測定中之所謂上述凸部之頭頂部於凸部之最大值位於以最短距離連結存在於上述 2 cm×2 cm 之視野範圍之鄰接之兩個凹部之最底部間彼此而獲得之直線的中心之情形時，設為自以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之中心起相當於上述以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之長度的 10%之範圍。又，於凸部之最大值不位於以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之中心之情形時，設為自存在於以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線上之凸部之最大值起相當於上述以最短距離連結最底部間彼此而獲得之直線之長度之 10%之範圍。又，測定時之環境設為 23°C 及 30RH% 下。

【0066】 （實施例 2~25、比較例 1~10）

以表 1、表 2 及表 3 所示之方式變更所使用之聚乙烯丁醛之乙醯基量、丁醛基量及羥基量、塑化劑之含量，將第 1 表面及第 2 表面之凹部之間隔 S_{m1} 及 S_{m2} 、凸部之旋轉半徑 R_1 及 R_2 、凸部前端部之粗糙度 R_{z1} 及 R_{z2} 、表面之粗糙度 R_z 設為如表 1、表 2 及表 3 所示，除此以外，藉由與實施例 1 相同之方法製作層合玻璃用中間膜。

【0067】 （實施例 26）

（保護層用樹脂組成物之製備）

相對於藉由以正丁醛將平均聚合度為 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化而獲得之聚乙烯丁醛（乙醯基量 1 莫耳%、丁醛基量 69 莫耳%、羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加三乙二醇二（2-乙基己酸酯）（3GO）36 質量份作為塑化劑，利用混合軋充分地進行混練，而獲得保護層用樹脂組成物。

【0068】 （隔音層用樹脂組成物之製備）

相對於藉由以正丁醛將平均聚合度為 2300 之聚乙烯醇進行縮醛化而獲得之聚乙烯丁醛（乙醯基量 12.5 莫耳%、丁醛基量 64 莫耳%、羥基量 23.5 莫耳%）100 質量份，添加三乙二醇二（2-乙基己酸酯）（3GO）76.5 質量份作為塑化劑，利用混合輥充分地進行混練，而獲得隔音層用樹脂組成物。

【0069】 （層合玻璃用中間膜之製作）

藉由將隔音層用樹脂組成物及保護層用樹脂組成物共擠出，而獲得寬度為 100 cm 且沿厚度方向依序積層有保護層（厚度 350 μm ）、隔音層（厚度 100 μm ）、保護層（厚度 350 μm ）此三層結構之層合玻璃用中間膜。

【0070】 （凹凸之賦予）

作為第 1 步驟，藉由下述之順序對層合玻璃用中間膜之兩面轉印無規之凹凸形狀。首先，使用噴砂劑對鐵輥表面施加無規之凹凸後，對該鐵輥進行垂直研磨，進而使用更微細之噴砂劑對研磨後之平坦部施加微細之凹凸，藉此獲得具有粗大之主壓紋與微細之副壓紋之形狀相同之一對輥。

使用該一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，對所獲得之層合玻璃用中間膜之兩面轉印無規之凹凸形狀。作為此時之轉印條件，將層合玻璃用中間膜之溫度設為 80°C，將上述輥之溫度設為 145°C，將線速度設為 10 m/min，將壓製線壓設為 0~200 kN/m。

【0071】 作為第 2 步驟，藉由下述之順序對層合玻璃用中間膜之表面賦予底部連續之溝形之凹凸。使用由使用三角形斜線型磨機對表面實施有研磨加工之金屬輥與具有 45~75 之 JIS 硬度之橡膠輥所構成之一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使藉由第 1 步驟轉印有無規之凹凸形狀之層合玻璃用中間膜通過該凹凸形狀轉印裝置，而對層合玻璃用中間膜之第 1 表面賦予

平行且等間隔地形成作為底部連續之溝形之凹部之凹凸。作為此時之轉印條件，將層合玻璃用中間膜之溫度設為 80°C，將輥溫度設為 140°C，將線速度設為 10 m/min，壓製線壓係設為 5~100 kN/m。

繼而，對層合玻璃用中間膜之第 2 表面亦實施相同之操作，而賦予底部連續之溝形之凹部。此時，使對第 1 表面賦予之底部連續之溝形（刻線狀）之凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之溝形（刻線狀）之凹部之交叉角度成為 20°。

【0072】 藉由與實施例 1 相同之方法，對第 1 表面及第 2 表面之凹部之間隔 S_{m1} 及 S_{m2} 、凸部之旋轉半徑 R_1 及 R_2 、凸部前端部之粗糙度 R_{z1} 及 R_{z2} 、表面之粗糙度 R_z 進行測定。

【0073】 （塑化劑之含量之測定）

製作層合玻璃後，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下靜置 4 週。其後，利用液態氮冷卻層合玻璃，藉此將玻璃與層合玻璃用中間膜剝離。沿厚度方向切斷所獲得之保護層及隔音層，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下靜置 2 小時後，於保護層與隔音層之間放入手指或機械，於溫度 25°C、濕度 30%之環境下加以剝離，從而分別獲得 10 g 之長方形之保護層及隔音層之測定試樣。對於所獲得之測定試樣，使用索氏萃取器以二乙醚萃取塑化劑 12 小時後，對測定試樣中之塑化劑進行定量，求出保護層及中間層中之塑化劑之含量。

【0074】 （實施例 27~34、比較例 11、12）

以表 4 所示之方式變更所使用之聚乙烯丁醛之乙醯基量、丁醛基量及羥基量，將第 1 表面及第 2 表面之凹部之間隔 S_{m1} 及 S_{m2} 、凸部之旋轉半

徑 R1 及 R2、凸部前端部之粗糙度 Rz1 及 Rz2、表面之粗糙度 Rz 設為如表 4 所示，除此以外，藉由與實施例 26 相同之方法製作層合玻璃用中間膜。

【0075】 (評價)

關於實施例及比較例中獲得之層合玻璃用中間膜，藉由以下之方法對自黏力進行評價。將結果示於表 1、表 2、表 3 及表 4。

【0076】 將實施例及比較例中獲得之層合玻璃用中間膜切斷為縱 150 mm、橫 150 mm 之尺寸而獲得試片。重疊 2 片所獲得之試片，介隔作為脫模處理之對基材之紙實施聚矽氧塗佈而獲得之脫模紙而於其上載置玻璃板（重量 5.8 kg）。於該狀態下，在調整為溫度 30°C、濕度 30%之恆溫恆濕層中放置 48 小時。其後，將兩片試片之端部剝離 2 cm，分別藉由 15 cm 寬之夾具固定兩片試片之端部。將剝離速度設為 50 cm/分鐘，於溫度 23°C、濕度 30%之環境下測定兩片試片間之 180°剝離強度，計算出剝離距離自 50 mm 至 200 mm 為止之剝離強度之平均值（N/15 cm）。除此以外之條件依據 JIS K-6854-3（1994）。以其作為層合玻璃用中間膜之自黏力。

再者，為了實現利用搬送層合玻璃用中間膜之機械或人力所進行之剝離，自黏力較佳為 25 N/15 cm 以下，更佳為 20 N/15 cm 以下，進而較佳為 13 N/15 cm 以下，尤佳為 8 N/15 cm 以下。

【0077】 [表 1]

	實施例 1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
組成	Bu 化度 (mol%)	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69
	OH 化度 (mol%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	Ac 化度 (mol%)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
	塑化劑份數 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
第 1 表面之凹 凸	Sm1 (μm)	390	190	190	195	290	395	270	195	198	185	290	290
	R1 (μm)	37	22	55	30	32	31	36	32	55	28	30	30
	凸部前端部之粗糙度 Rz1 (μm)	1.8	1	1.1	1.2	2	16	14	2	1	1.5	1.4	1.2
	R1/Sm1	0.09	0.12	0.29	0.15	0.11	0.11	0.09	0.12	0.28	0.14	0.15	0.10
第 2 表面之凹 凸	第 1 表面之粗糙度 Rz (μm)	45	40	48	45	46	55	44	38	48	34	38	37
	Sm2 (μm)	390	190	195	195	290	285	385	270	195	185	285	294
	R2 (μm)	37	21	50	30	32	35	40	32	52	24	29	27
	凸部前端部之粗糙度 Rz2 (μm)	1.8	1	1.3	1.2	2	15	15	2	1.5	1.5	1.5	1.1
交叉角 θ	R2/Sm2	0.09	0.11	0.26	0.15	0.11	0.12	0.10	0.12	0.27	0.13	0.10	0.09
	第 2 表面之粗糙度 Rz (μm)	46	43	48	48	46	56	43	39	48	36	42	38
	R/Sm	20	10	20	90	20	20	20	10	75	20	30	60
	($1000/\text{Sm}$) ² × Sin θ	0.09	0.11	0.27	0.15	0.11	0.11	0.10	0.12	0.27	0.14	0.10	0.10
自黏力 (N/15 cm)		2.25	4.81	9.23	26.30	4.07	4.14	2.25	2.38	25.40	9.99	6.05	10.16
		19.8	15.1	18.0	3.2	15.4	7.2	11.5	23.0	5.8	13.8	13.9	8.2

【0078】 [表 2]

	實施例 14	實施例 15	實施例 16	實施例 17	實施例 18	實施例 19	實施例 20	實施例 21	實施例 22	實施例 23	實施例 24	實施例 25	
組成	Bu 化度 (mol%)	69	69	69	69	69	69	69	69	69	70	68	
	OH 化度 (mol%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	29	31	
	Ac 化度 (mol%)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	1.1	0.8	
	塑化劑份數 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	41	39	
第 1 表面之凹 凸	Sml (μm)	220	218	398	210	200	280	310	310	198	195	190	
	R1 (μm)	20	18	38	55	55	32	30	33	18	56	53	
	凸部前部之粗糙度 Rz1 (μm)	1.1	1.5	2	1.5	10	13	21	23	23	19	1.3	1
	R1/Sml	0.09	0.08	0.10	0.26	0.28	0.28	0.11	0.10	0.11	0.09	0.29	0.28
第 2 表面之凹 凸	第 1 表面之粗糙度 Rz (μm)	39	48	56	38	45	38	37	44	50	45	54	
	Sml (μm)	202	203	385	198	198	270	285	285	203	195	195	
	R2 (μm)	20	18	38	54	58	33	27	33	18	48	53	
	凸部前部之粗糙度 Rz2 (μm)	1.1	1.2	1.6	1.5	8	13.5	20.5	28	28	18	1.5	1.5
交叉角 θ	R2/Sml	0.10	0.09	0.10	0.27	0.29	0.12	0.09	0.12	0.09	0.25	0.27	
	第 2 表面之粗糙度 Rz (μm)	36	52	52	38	45	39	38	43	52	52	50	
	R/Sml	90	90	20	90	90	10	60	75	90	20	20	
	(1000/Sml) ² xSinθ	0.09	0.09	0.10	0.27	0.28	0.12	0.10	0.11	0.11	0.09	0.27	0.28
自黏力 (N/15 cm)		22.46	22.57	2.23	24.03	25.25	2.30	9.78	10.91	24.88	8.99	9.23	
		5.1	4.2	22.1	12.8	10.1	7.5	6.8	5.8	3.8	20.0	16.2	

【0079】 [表 3]

	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10
Bu 化度 (mol%)	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1
OH 化度 (mol%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
Ac 化度 (mol%)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
塑化劑份數 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
Sm1 (μm)	200	390	290	400	300	295	230	230	400	301
R1 (μm)	114	40	90	40	30	73	73	80	180	180
第 1 表面之凹凸凸部前端部之粗糙度 Rz1 (μm)	1.1	1.5	0.5	2	1.5	1.8	1.5	1.5	13	13
R1/Sm1	0.57	0.10	0.31	0.10	0.10	0.25	0.32	0.35	0.45	0.60
第 1 表面之粗糙度 Rz (μm)	30	42	38	45	37	33	37	35	45	45
Sm2 (μm)	200	390	295	395	398	284	218	218	395	298
R2 (μm)	110	40	93	38	36	78	73	75	147	147
第 2 表面之凹凸凸部前端部之粗糙度 Rz2 (μm)	1.1	1.5	0.4	1.8	1.5	1.5	1.4	1.4	22	22
R2/Sm2	0.55	0.10	0.32	0.10	0.09	0.27	0.33	0.34	0.37	0.49
第 2 表面之粗糙度 Rz (μm)	32	44	36	39	34	33	38	37	39	39
交叉角 θ	20	8	10	5	5	5	10	20	20	45
R/Sm	0.56	0.10	0.31	0.10	0.10	0.26	0.33	0.35	0.41	0.55
$(1000/\text{Sm})^3 \times \text{Sin } \theta$	8.55	0.91	2.03	0.55	0.72	1.04	3.46	6.82	2.16	7.88
自黏力 (N/15 cm)	49.1	60.0	48.0	78.0	44.1	65.0	37.5	28.3	33.7	30.0

【0080】 [表 4]

	實施例 26	實施例 27	實施例 28	實施例 29	實施例 30	實施例 31	實施例 32	實施例 33	實施例 34	比較例 11	比較例 12
第一樹 脂層	Bu 化度 (mol%)	69	69	69	68.5	69.9	69	69	69	69	69
	OH 化度 (mol%)	30	30	30	31	29	30	30	30	30	30
	Ac 化度 (mol%)	1	1	1	0.5	1.1	1	1	1	1	1
第二樹 脂層	塑化劑份數 (phr)	36	36	36	36	39	36	36	36	36	36
	Bu 化度 (mol%)	64	64	64	64	77.8	64	64	64	64	64
	OH 化度 (mol%)	23.5	23.5	23.5	23.5	20.7	23.5	23.5	23.5	23.5	23.5
	Ac 化度 (mol%)	12.5	12.5	12.5	12.5	1.5	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5
第 1 表面 之凹凸	塑化劑份數 (phr)	76.5	76.5	76.5	76.5	79.3	76.5	76.5	76.5	76.5	76.5
	Sm1 (μm)	390	195	197	195	285	292	294	392	202	392
	R1 (μm)	35	55	53	32	33	32	33	37	106	41
	凸部前部之粗糙度 Rz1(μm)	1.2	2.2	2.1	1.9	15.2	2.3	15	15.8	1.6	2
第 2 表面 之凹凸	R1/Sm1	0.09	0.29	0.28	0.15	0.12	0.11	0.11	0.09	0.52	0.10
	第 1 表面之粗糙度 Rz (μm)	45	48	51	45	55	45	55	44	30	44
	Sm2 (μm)	392	195	189	193	275	286	291	382	198	382
	R2 (μm)	35	52	50	33	33	33	33	36	104	40
第 2 表面 之凹凸	凸部前部之粗糙度 Rz2(μm)	1.6	2.5	2.4	2.2	15.4	2.9	16.2	15.3	1.1	2.3
	R2/Sm2	0.09	0.26	0.27	0.15	0.12	0.12	0.11	0.09	0.53	0.10
	第 2 表面之粗糙度 Rz (μm)	46	46	51	46	56	46	52	43	35	42
	交叉角 θ	20	20	75	90	20	20	20	20	20	8
	R/Sm	0.09	0.27	0.27	0.15	0.12	0.11	0.11	0.09	0.53	0.10
	(1000/Sm) ² ×Sin θ	2.24	8.99	25.93	26.57	4.36	4.09	4.00	2.28	8.55	0.93
	自黏力 (N/15 cm)	19.0	17.0	5.6	4.5	7.0	13.4	6.3	10.9	45.0	56.0

[產業上之可利用性]

【0081】 根據本發明，可提供一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。

【符號說明】

【0082】

- 1：任意選擇之一凹部
- 2：與任意選擇之一凹部鄰接之凹部
- 3：與任意選擇之一凹部鄰接之凹部
- A：凹部 1 與凹部 2 之間隔
- B：凹部 1 與凹部 3 之間隔
- 10：層合玻璃用中間膜
- 11：第 1 表面之底部連續之溝形之凹部
- 12：第 2 表面之底部連續之溝形之凹部
- 20：第 1 表面或第 2 表面之凹凸
- 21：底部連續之溝形之凹部
- 22：凸部

I678346

發明摘要

※ 申請案號：

※ 申請日：

※IPC 分類：

【發明名稱】(中文/英文)

層合玻璃用中間膜及層合玻璃

【中文】

本發明之目的在於提供一種即便以積層之狀態保管亦不會發生自黏而可容易地剝離之層合玻璃用中間膜、及使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃。

本發明之層合玻璃用中間膜於第 1 表面及與該第 1 表面為相反側之第 2 表面具有多個凹部與多個凸部，並且上述第 1 表面及第 2 表面所具有之凹部具有底部連續之溝形，鄰接之上述凹部平行且規則地並列，於將上述第 1 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與上述第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之交叉角設為 θ 時，滿足下述式 (1)，於將上述第 1 表面及第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之間隔分別設為 S_{m1} (μm) 及 S_{m2} (μm)，且將上述凸部之旋轉半徑分別設為 R_1 (μm) 及 R_2 (μm) 時， S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 及 R_1 與 R_2 之平均值 R 滿足下述式 (2)。

$$\theta \geq 10^\circ \quad (1)$$

$$R/S_m \leq 0.3 \quad (2)$$

【英文】

無

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（ 1 ）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

圖式

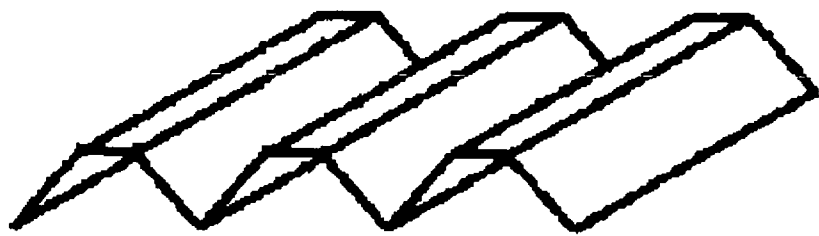


圖1

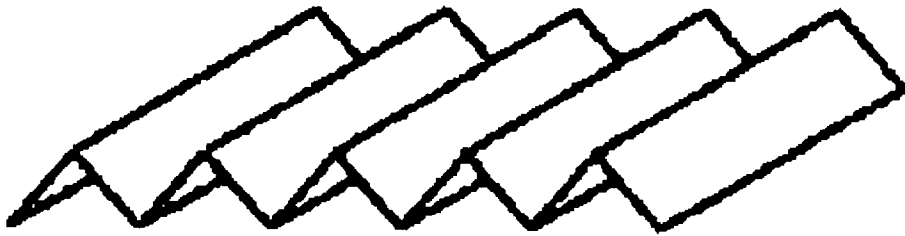


圖2

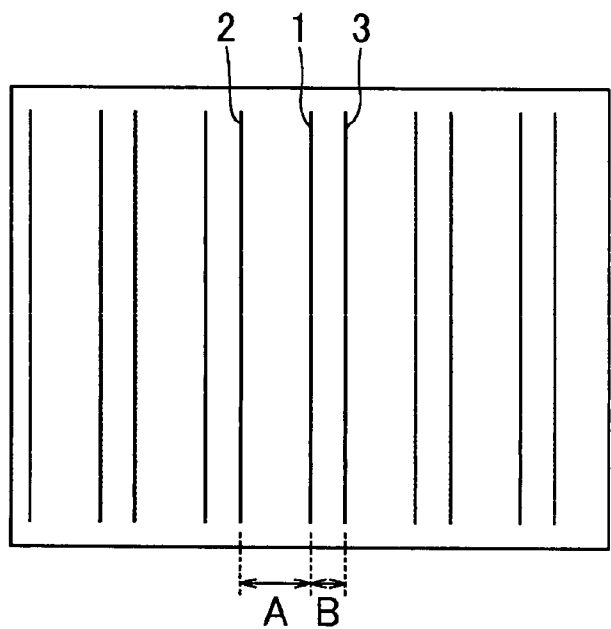


圖3

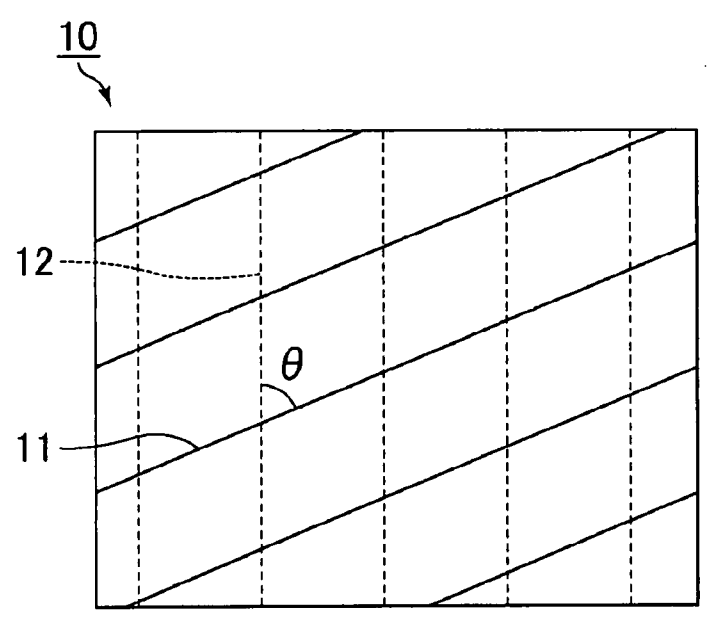
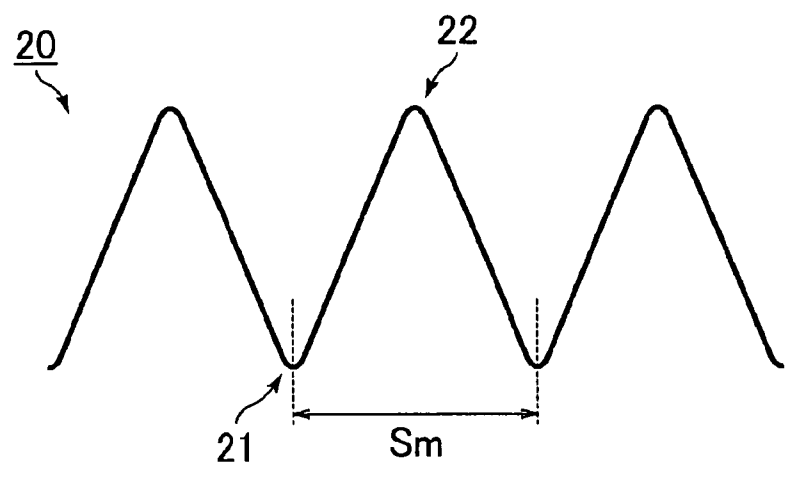


圖4

(a)



(b)

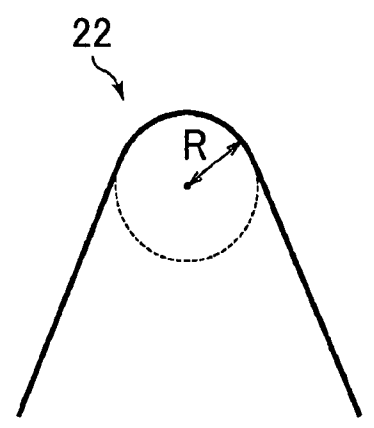


圖5

申請專利範圍

1. 一種層合玻璃用中間膜，於第 1 表面及與該第 1 表面為相反側之第 2 表面具有多個凹部與多個凸部，其特徵在於：

上述第 1 表面及第 2 表面所具有之凹部具有底部連續之溝形，鄰接之上述凹部平行且規則地並列，

於將上述第 1 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與上述第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部的交叉角設為 θ 時，滿足下述式 (1)，於將上述第 1 表面及第 2 表面所具有之上述底部連續之溝形之凹部之間隔分別設為 S_{m1} (μm) 及 S_{m2} (μm)，且將上述凸部之旋轉半徑分別設為 R_1 (μm) 及 R_2 (μm) 時， S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 及 R_1 與 R_2 之平均值 R 滿足下述式 (2)，

$$\theta \geq 10^\circ \quad (1)$$

$$R/S_m \leq 0.3 \quad (2)。$$

2. 如申請專利範圍第 1 項之層合玻璃用中間膜，其中，將上述第 1 表面及第 2 表面所具有之上述凸部之前端部之粗糙度分別設為 R_{z1} (μm) 及 R_{z2} (μm) 時， R_{z1} 與 R_{z2} 之平均值 R_z 滿足下述式 (3)，

$$R_z \geq 1 \quad (3)。$$

3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之層合玻璃用中間膜，其中，上述交叉角 θ 及上述 S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 滿足下述式 (4)，

$$(1000/S_m)^2 \times \sin \theta \geq 2.2 \quad (4)。$$

4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之層合玻璃用中間膜，其中，上述交叉角 θ 未達 90° 。

108年8月23日 替換頁

5. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之層合玻璃用中間膜，其中，上述 S_{m1} 與 S_{m2} 之平均值 S_m 為 $200 \mu\text{m}$ 以下。
6. 一種層合玻璃，其中，申請專利範圍第 1、2、3、4 或 5 項之層合玻璃用中間膜被積層於一對玻璃板之間。