

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6676376号
(P6676376)

(45) 発行日 令和2年4月8日(2020.4.8)

(24) 登録日 令和2年3月16日(2020.3.16)

(51) Int.Cl. F I
C03C 27/12 (2006.01) C O 3 C 27/12 D
B32B 17/10 (2006.01) B 3 2 B 17/10

請求項の数 6 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2015-553984 (P2015-553984)	(73) 特許権者	000002174 積水化学工業株式会社 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
(86) (22) 出願日	平成27年9月30日(2015.9.30)	(74) 代理人	110000914 特許業務法人 安富国際特許事務所
(86) 国際出願番号	PCT/JP2015/077858	(72) 発明者	中山 和彦 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
(87) 国際公開番号	W02016/052668	(72) 発明者	太田 祐輔 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
(87) 国際公開日	平成28年4月7日(2016.4.7)	(72) 発明者	北野 紘史 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
審査請求日	平成30年9月12日(2018.9.12)		
(31) 優先権主張番号	特願2014-202340 (P2014-202340)		
(32) 優先日	平成26年9月30日(2014.9.30)		
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		
前置審査			

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】

第1の表面及び該第1の表面とは反対側の第2の表面に多数の凹部と多数の凸部とを有する合わせガラス用中間膜であって、

前記第1の表面及び第2の表面が有する凹部は、底部が連続した溝形状を有し、隣接する前記凹部が平行して規則的に並列しており、

前記第1の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部と前記第2の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部との交差角を θ としたときに下記式(1)を満たし、前記第1の表面及び第2の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部の間隔を、それぞれ S_{m1} (μm) 及び S_{m2} (μm) とし、前記凸部の回転半径を、それぞれ R_1 (μm) 及び R_2 (μm) としたときに、 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m 及び R_1 と R_2 との平均値 R が下記式(2)を満たす

ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【数1】

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

$$R/S_m \leq 0.11 \quad (2)$$

【請求項2】

前記第1の表面及び第2の表面が有する前記凸部の先端部の粗さを、それぞれ R_z1 (μm) 及び R_z2 (μm) としたときに、 R_z1 と R_z2 との平均値 R_z が

下記式(3)を満たす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。

【数2】

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

【請求項3】

前記交差角 θ と、前記 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m とが、下記式(4)を満たすことを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

【数3】

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

【請求項4】

前記交差角 θ が 90° 未満であることを特徴とする請求項1、2又は3記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項5】

前記 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m が $200 \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1、2、3又は4記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項6】

請求項1、2、3、4又は5記載の合わせガラス用中間膜が、一对のガラス板の間に積層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、積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能な合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスに関する。

【背景技術】

【0002】

2枚のガラス板の間に、可塑化ポリビニルブチラルを含有する合わせガラス用中間膜を挟み、互いに接着させて得られる合わせガラスは、特に車両用フロントガラスとして広く使用されている。

【0003】

合わせガラスの製造方法では、例えば、ロール状体から巻き出した合わせガラス用中間膜を適当な大きさに切断し、該合わせガラス用中間膜を少なくとも2枚のガラス板の間に挟持して得た積層体をゴムバック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予備圧着し、次いで、例えばオートクレーブ内で加熱加圧して本圧着を行う方法等が行われる。(例えば、特許文献1。)

【0004】

このような合わせガラスの製造方法では、製造の効率化のために、予め所定の形状に切断した合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室内に積層して保管しておくことが行われる。しかしながら、保管中に積層した合わせガラス用中間膜同士が接着(自着)してしまい、合わせガラス用中間膜を搬送する機械や人力では剥離できなくなってしまうことがあるという問題があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【特許文献1】特開平8-26789号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

本発明は、上記現状に鑑み、積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能な合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスを提供することを目的とする。

10

20

30

40

50

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明は、第1の表面及び該第1の表面とは反対側の第2の表面に多数の凹部と多数の凸部とを有する合わせガラス用中間膜であって、前記第1の表面及び第2の表面が有する凹部は、底部が連続した溝形状を有し、隣接する前記凹部が平行して規則的に並列しており、前記第1の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部と前記第2の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部との交差角を θ としたときに下記式(1)を満たし、前記第1の表面及び第2の表面が有する前記底部が連続した溝形状の凹部の間隔を、それぞれ S_{m1} (μm) 及び S_{m2} (μm) とし、前記凸部の回転半径を、それぞれ R_1 (μm) 及び R_2 (μm) としたときに、 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m 及び R_1 と R_2 との平均値 R が下記式(2)を満たす合わせガラス用中間膜である。

10

以下に本発明を詳述する。

【0008】

【数1】

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

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

【0009】

合わせガラスの製造工程においては、ガラスと合わせガラス用中間膜とを積層する際の脱気性が重要である。このため、合わせガラス用中間膜の少なくとも一方の表面には、合わせガラス製造時の脱気性を確保する目的で、微細な凹凸が形成されている。とりわけ、該凹凸における凹部を、底部が連続した溝形状(以下、「刻線状」ともいう。)を有し、隣接する該刻線状の凹部が平行して規則的に形成される構造とすることにより、極めて優れた脱気性を発揮することができる。

20

本発明の発明者らは、鋭意検討の結果、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管したときの合わせガラス用中間膜同士の接着力(自着力)が、合わせガラス用中間膜の表面の凹凸形状に大きく影響を受けることを見出した。そして更に鋭意検討した結果、上記式(1)及び上記式(2)を満たすように合わせガラス用中間膜の両面の凹凸形状を制御した場合には、積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能となることを見出し、本発明を完成した。

30

【0010】

本発明の合わせガラス用中間膜は、第1の表面及び該第1の表面とは反対側の第2の表面に、多数の凹部と多数の凸部とを有する。これにより、合わせガラスの製造時における脱気性を確保することができる。

上記凹凸の形状は、少なくとも溝形状を有すればよく、例えば、刻線状、格子状等の、一般的に合わせガラス用中間膜の表面に付与される凹凸の形状を用いることができる。上記凹凸の形状はエンボスロールが転写された形状であってもよい。

また、上記凸部も、図1に示したように頂上部が平面形状であってもよく、図2に示したように平面ではない形状であってもよい。なお、上記凸部の頂上部が平面形状である場合には、該頂上部の平面に更に微細な凹凸が施されていてもよい。

40

更に、各凹凸の凸部の高さは、同一の高さであってもよいし、異なる高さであってもよく、これらの凸部に対応する凹部の深さも、該凹部の底辺が連続していれば、同一の深さであってもよいし、異なる深さであってもよい。

【0011】

本発明の合わせガラス用中間膜においては、上記第1の表面及び第2の表面が有する凹部は、底部が連続した溝形状を有し、隣接する前記凹部が平行して規則的に並列している。一般に、2枚のガラス板の間に合わせガラス用中間膜が積層された積層体を圧着するときの空気の抜け易さは、上記凹部の底部の連通性及び平滑性と密接な関係がある。中間膜の両面の凹凸の形状を、底部が連続した溝形状の凹部が平行して規則的に並列した形状とすることにより、上記の底部の連通性はより優れ、著しく脱気性が向上する。

50

なお、「規則的に並列している」とは、隣接する上記溝形状の凹部が平行して等間隔に並列していてもよく、隣接する上記刻線状の凹部が平行して並列しているが、すべての隣接する上記刻線状の凹部の間隔が等間隔でなくともよいことを意味する。

図1及び図2に、溝形状の凹部が等間隔に平行して並列している合わせガラス用中間膜の一例を表す模式図を示した。

図3に、溝形状の凹部が等間隔ではないが平行して並列している合わせガラス用中間膜の一例を表す模式図を示した。図3において、凹部1と凹部2との間隔Aと、凹部1と凹部3との間隔Bとは異なる。

【0012】

本発明の合わせガラス用中間膜では、第1の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部と第2の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部との交差角、第1の表面及び第2の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部の間隔を、それぞれ S_{m1} 及び S_{m2} とし、凸部の回転半径 R を、それぞれ R_1 及び R_2 としたときに、 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m 及び R_1 と R_2 との平均値 R が特定の条件となることを規定している。

図4に、交差角を説明する模式図を示した。図4において合わせガラス用中間膜10は、第1の表面に実線で表される底部が連続した溝形状の凹部11を、第2の表面に点線で表される底部が連続した溝形状の凹部12を有する。交差角は、この実線で表される底部が連続した溝形状の凹部11と点線で表される底部が連続した溝形状の凹部12との交差角を表す。

上記交差角は、例えば、合わせガラス用中間膜を目視または光学顕微鏡により観察し、第1の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部と、第2の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部との交差角を、目視の場合は両面ともに凹部に平行にインクにて直線を描き、分度器を用いて描かれた直線同士の鋭角を測定した。光学顕微鏡を用いる場合は拡大した表面を撮影し画像処理ソフト等を用いて鋭角の角度を測定することにより測定することができる。

【0013】

図5に凹部の間隔 S_m 及び凸部の回転半径 R を説明する模式図を示した。図5(a)において第1の表面又は第2の表面の凹凸20は、底部が連続した溝形状の凹部21と、凸部22とを有している。間隔 S_m は、該凹部21間の間隔を意味する。また、図5(b)において、凸部22の先端部に接する形で円を描いたときに、該円の半径が凸部の回転半径 R である。

【0014】

上記凹部の間隔 S_m は、例えば、以下の方法により測定することができる。即ち、光学顕微鏡(例えば、SONIC社製、BS-8000III)を用いて、合わせガラス用中間膜の表面(観察範囲20mm×20mm)を観察し、観察された隣接する凹部の最底部間の最短距離をすべて測定する。次いで、測定された最短距離の平均値を算出することにより、凹部の間隔が得られる。また、測定された最短距離の最大値を凹部の間隔としてもよい。凹部の間隔は最短距離の平均値であってもよく、最短距離の最大値であってもよく、最短距離の平均値であることが好ましい。また、測定時の環境は23及び30RH%下である。上記の手順に従って第1の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部の間隔 S_{m1} 、第2の表面が有する底部が連続した溝形状の凹部の間隔 S_{m2} 、及び、 S_{m1} と S_{m2} との平均値 S_m を測定する。

【0015】

上記凸部の回転半径 R は、例えば、片刃カミソリ(例えば、フェザー安全カミソリ社製、FAS-10)を用いて中間膜を刻線状の凹部の方向に対して垂直方向、かつ、膜厚み方向に平行に、切断面を変形させないように、カミソリを凹部と垂直方向に滑らせることなく、厚み方向に平行方向に押し出すことで切断し、その断面をマイクロスコープ(例えば、オリンパス社製「DSX-100」)を用いて観察し、測定倍率を277倍にて撮影し、更に撮影画像を50 μ m/20mmになるように拡大表示させた状態で、付属ソフト内の計測ソフトを用いて、凸形状の頂点に内接する円を描いたときの該円の半径を該凸部の

10

20

30

40

50

先端の回転半径とする方法により測定することができる。また、測定時の環境は23及び30RH%下である。上記の手順に従って第1の表面が有する凸部の回転半径R1、第2の表面が有する凸部の回転半径R2、及び、R1とR2との平均値Rを測定する。

【0016】

凸部の先端部の粗さRzは、JIS B 0601(1994)の十点平均粗さによって定義されるものであり、例えば、3次元粗さ測定器(例えば、KEYENCE社製「KS-1100」)を用いて測定されるデジタル信号をデータ処理することによって測定することができる。なお、上記凸部の先端部粗さは、3次元粗さ測定器(例えば、KEYENCE社製「KS-1100」、先端ヘッド型番「LT-9510VM」)を用いて、付属の測定ソフトであるKS-measureを用いて合わせガラス用中間膜の表面の粗さを2cm×2cmの視野範囲で測定し、得られたデータにおいて該凸部の頭頂部を頂部が連続している方向に平行した方向に2.5mmの長さの粗さを10点測定し、その平均値を凸部の先端部粗さとする方法により求めることができる。なお、上記の2.5mmの長さの粗さを10箇所選択する際には、それぞれの2.5mmの長さの線同士が50μm以上離れていることが好ましい。ここでいう粗さとは、付属の解析ソフトである「KS-Analyzer Ver.2.00」の線粗さ計測モードにて、長さ指定条件にて長さを「2500μm」に指定し、得られた3次元画像データの当該部を選択し、粗さプロファイルデータを得る。粗さプロファイルデータから得られる「Rz」のことを指す。また、粗さプロファイルデータを得る際の設定値は、カットオフ値として2.5mmを選択する。高さスムージング及び傾き補正は使用しない。視野範囲以外の測定条件はステージ送り条件は連続送りとし、走査方向は双方向、先行軸はX軸、ステージ移動速度は250.0μm/s、軸送り速度は10000.0μm/sに設定する。更に、X軸の測定ピッチを2.0μm、Y軸の測定ピッチを2.0μmに設定する。ここで、刻線の凹部の間隔が広く、測定距離が足りない場合には、測定視野の更に隣接した視野を同様に測定し、測定点を増やしてよい。なお、先端部粗さの測定における、上記凸部の頭頂部とは上記2cm×2cmの視野範囲に存在する隣接する2つの凹部の、最底部間同士を最短距離で結んだ直線を中心に凸部の最大が位置する場合は、最底部間同士を最短距離で結んだ直線を中心から、上記最底部間同士を最短距離で結んだ直線の長さの10%に相当する範囲を呼ぶ。また、最底部間同士を最短距離で結んだ直線を中心に凸部の最大が位置しない場合は、最底部間同士を最短距離で結んだ直線上に存在する凸部の最大から、上記最底部間同士を最短距離で結んだ直線の長さの10%に相当する範囲を呼ぶ。

また、測定時の環境は23及び30RH%下である。

上記の手順に従って、第1の表面が有する凸部の先端部の粗さRz1、第2の表面が有する凸部の先端部の粗さRz2、及び、Rz1とRz2との平均値Rzを測定する。

【0017】

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記交差角、上記Sm1とSm2との平均値Sm及び上記R1とR2との平均値Rが上記式(1)及び上記式(2)を満たす。これにより、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能となる。これは、刻線状のエンボスを賦与された中間膜では、積層した際に、刻線形状の凸部の先端同士が接触する点で自着が発生するため、R/Smが小さくなるほど、積層した状態での膜同士の単位面積当たりの接触面積を小さくすることができ、自着を防ぐことができるためと考えられる。また、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管しても更により一層自着せずに、容易に剥離可能とするためには、上記Sm1とSm2との平均Smの代わりにSm1又はSm2を、上記R1とR2との平均Rの変わりにR1又はR2を用いた場合にも、上記式(1)及び上記式(2)を満たすことが好ましい。

上記Sm1とSm2との平均Smの代わりにSm1を、上記R1とR2との平均Rの変わりにR1を用いた場合、及び、上記Sm1とSm2との平均Smの代わりにSm2を、上記R1とR2との平均Rの変わりにR2を用いた場合の両方で、上記式(1)及び上記式(2)を満たすことが好ましい。R/Smは、0.3未満であることが好ましく、0.2以下であることがより好ましく、0.11以下であることが更に好ましい。

10

20

30

40

50

【0018】

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記Rz1とRz2との平均値Rz(μm)が下記式(3)を満たすことが好ましい。凸部の先端部の粗さRzが一定値以上であることで、更に凸部の先端同士が接触する点での接触面積を小さくすることができ、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管したときに自着するのをより防止して、より容易に剥離可能となる。また、良好な脱気性を得ることができる。また、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管しても更により一層自着せずに、容易に剥離可能とするためには、上記Rz1とRz2との平均値Rzの代わりにRz1又はRz2を用いた場合にも、下記式(3)を満たすことがより好ましい。上記Rz1とRz2との平均値Rzの代わりに、Rz1及びRz2を用いた場合の両方で、下記式(3)を満たすことが更に好ましい。

10

上記Rz1、上記Rz2、及び、上記Rz1とRz2との平均値Rzは、1を超えることがより好ましく、5以上であることが更に好ましく、10以上であることが特に好ましい。また、凸部の先端部の粗さRzは、30以下であることが好ましく、20以下であることがより好ましい。

【0019】

【数2】

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

【0020】

一方、上記Sm1とSm2との平均値Smを小さく、また交差角θを90°に近づけるほど、単位面積当たりの面積を増やすことなく、膜同士の接触点数を増やすことができ、接触点1つあたりにかかる荷重を分散させることで、自着を抑制することができるためと考えられる。更に、本発明の合わせガラス用中間膜は、下記式(4)を満たすことが好ましい。下記式(4)を満たすことにより、より自着力が低下し、剥離を容易にすることができる。また、合わせガラス用中間膜を積層した状態で保管しても更により一層自着せずに、容易に剥離可能とするためには、上記Sm1とSm2との平均値Smの代わりにSm1又はSm2を用いた場合にも、下記式(4)を満たすことがより好ましい。

20

下記式(4)は実質的に単位面積内の接触点の密度を表す。単位面積内の接触点は、2つの面の凸部の交差点となるため、相後の凸部の個数の乗数となる。仮に1mm²内で中間膜の凸部同士が接触する個数を想定すると、一方の面の1mm²内の凸部の個数は(1000/Sm)であり、更にもう一方の面の1mm²内の凸部の個数は、交差角によって依存し、(1000/Sm)×sinθと関連する。以上のことから式(4)が導き出される。

30

式(4)の右辺は、2.2を超えることがより好ましく、5以上であることが更に好ましく、9以上であることが特に好ましく、20以上であることが特に好ましい。

【0021】

【数3】

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

【0022】

更に自着力を低下させ剥離を容易にするためには、上記交差角θは、20°以上であることが好ましく、45°以上であることがより好ましく、90°であることが最も好ましい。合わせガラスを製造する際のコンベア上で、ガラスと合わせガラス用中間膜とにずれが発生するのを効果的に防止することができることから、上記交差角は90°未満であることが好ましく、85°以下であることがより好ましく、75°以下であること更に好ましい。

40

また、上記Sm1、上記Sm2、及び、上記Sm1とSm2との平均値Smは、400μm以下であることが好ましく、200μm以下であることがより好ましく、100μm以下であることが更に好ましい。また、上記R1、上記R2、及び、上記R1とR2との平均値Rは、100μm以下であることが好ましく、40μm以下であることがより好ましく、25μm以下であることが更に好ましい。

【0023】

50

本発明の合わせガラス用中間膜は、脱気性を良好にする観点からは、少なくとも一方の面の表面の粗さRzが10～60μmであることが好ましく、20～55μmであることがより好ましく、30～50μmであることが更に好ましい。

上記表面の粗さRzは、JIS B-0601(2001)に準拠して、刻線方向の凹部が連続する方向に対して横断するように垂直方向に測定することで得られる。ここで、測定機としては例えば小坂研究所社製「Surfcorder SE300」等を用いることができ、測定時のカットオフ値は2.5mm、基準長さは2.5mm、測定長さを12.5mmとし、予備長さを2.5mmとし、触針の送り速度は0.5mm/秒、触針形状は先端半径2μm、先端角60°のものを用いる条件により測定することができる。また、測定時の環境は23及び30RH%下である。また測定する中間膜は測定時の環境下で3時間以上静置した後に測定する。

10

【0024】

本発明において合わせガラス用中間膜の第1の表面及び第2の表面に多数の凹部と多数の凸部とを形成する方法としては、例えば、エンボスロール法、カレンダーロール法、異形押出法、メルトフラクチャーを利用した押出リップエンボス法等が挙げられる。なかでも、隣接する該溝形状の凹部が平行して形成されている形状及び並列している形状が、容易に得られることから、エンボスロール法が好適である。

【0025】

上記エンボスロール法で用いられるエンボスロールとしては、例えば、金属ロール表面に酸化アルミニウムや酸化珪素等の研削材を用いてブラスト処理を行い、次いで表面の過大ピークを減少させるためにパーティカル研削などを用いてラッピングを行うことにより、ロール表面にエンボス模様(凹凸模様)を有するエンボスロールが挙げられる。他にも、彫刻ミルを用い、エンボス模様(凹凸模様)を金属ロール表面に転写することにより、ロール表面にエンボス模様(凹凸模様)を有するエンボスロールが挙げられる。更に、エッチング(蝕刻)によりロール表面にエンボス模様(凹凸模様)を有するエンボスロール等が挙げられる。

20

【0026】

本発明の合わせガラス用中間膜は、1層のみの樹脂膜からなる単層構造であってもよく、2層以上の樹脂層が積層されている多層構造であってもよい。

本発明の合わせガラス用中間膜が多層構造である場合には、2層以上の樹脂層として、第1の樹脂層と第2の樹脂層とを有し、かつ、第1の樹脂層と第2の樹脂層とが異なる性質を有することにより、1層だけでは実現が困難であった種々の性能を有する合わせガラス用中間膜を提供することができる。

30

【0027】

上記樹脂層は熱可塑性樹脂を含むことが好ましい。

上記熱可塑性樹脂として、例えば、ポリフッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン、フッ化ビニリデン-六フッ化プロピレン共重合体、ポリ三フッ化エチレン、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体、ポリエステル、ポリエーテル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリビニルアセタール、エチレン-酢酸ビニル共重合体等が挙げられる。なかでも、上記樹脂層はポリビニルアセタール、又は、エチレン-酢酸ビニル共重合体を含有することが好ましく、ポリビニルアセタールを含有することがより好ましい。

40

【0028】

上記ポリビニルアセタールは、例えば、ポリビニルアルコール(PVA)をアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。PVAのけん化度は、一般に、70～99.9モル%の範囲内である。

【0029】

上記ポリビニルアセタールを得るためのポリビニルアルコールPVAの重合度は、好まし

50

くは200以上、より好ましくは500以上、更に好ましくは1700以上、特に好ましくは2000以上、好ましくは5000以下、より好ましくは4000以下、より一層好ましくは3000以下、更に好ましくは3000未満、特に好ましくは2800以下である。上記ポリビニルアセタールは、重合度が上記下限以上及び上記上限以下であるPVAをアセタール化することにより得られるポリビニルアセタールであることが好ましい。上記重合度が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記重合度が上記上限以下であると、中間膜の成形が容易になる。

【0030】

PVAの重合度は平均重合度を示す。該平均重合度は、JIS K6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、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、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド及び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又はn-バレルアルデヒドが好ましく、n-ブチルアルデヒドがより好ましい。上記アルデヒドは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

10

【0031】

中間膜に含まれる上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。ポリビニルブチラール樹脂の使用により、合わせガラス部材に対する中間膜の耐候性等がより一層高くなる。

20

【0032】

上記樹脂層は、ポリビニルアセタールと可塑剤とを含むことが好ましい。

上記可塑剤としては、合わせガラス用中間膜に一般的に用いられる可塑剤であれば特に限定されず、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可塑剤や、有機リン化合物、有機亜リン化合物等のリン酸可塑剤等が挙げられる。

上記有機可塑剤として、例えば、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコール-ジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、テトラエチレングリコール-ジ-n-ヘプタノエート、ジエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート、ジエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコール-ジ-n-ヘプタノエート等が挙げられる。なかでも、上記樹脂層はトリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、又は、トリエチレングリコール-ジ-n-ヘプタノエートを含むことが好ましく、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエートを含むことがより好ましい。

30

【0033】

上記樹脂層は、接着剤調整剤を含有することが好ましい。特に、合わせガラスを製造するときに、ガラスと接触する樹脂層は、上記接着剤調整剤を含有することが好ましい。

40

上記接着剤調整剤としては、例えば、アルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩が好適に用いられる。上記接着剤調整剤として、例えば、カリウム、ナトリウム、マグネシウム等の塩が挙げられる。

上記塩を構成する酸としては、例えば、オクチル酸、ヘキシル酸、2-エチル酪酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸の有機酸、又は、塩酸、硝酸等の無機酸が挙げられる。合わせガラスを製造するときに、ガラスと樹脂層との接着力を容易に調製できることから、ガラスと接触する樹脂層は、接着剤調整剤として、マグネシウム塩を含むことが好ましい。

【0034】

上記樹脂層は、必要に応じて、酸化防止剤、光安定剤、接着剤調整剤として変成シリコンオイル、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の添加剤を含有して

50

もよい。

【0035】

本発明の合わせガラス用中間膜では、2層以上の樹脂層として、少なくとも第1の樹脂層と第2の樹脂層とを有し、上記第1の樹脂層に含まれるポリビニルアセタール（以下、ポリビニルアセタールAという。）の水酸基量が、上記第2の樹脂層に含まれるポリビニルアセタール（以下、ポリビニルアセタールBという。）の水酸基量と異なることが好ましい。

ポリビニルアセタールAとポリビニルアセタールBとの性質が異なるため、1層だけでは実現が困難であった種々の性能を有する合わせガラス用中間膜を提供することができる。例えば、2層の上記第2の樹脂層の間に、上記第1の樹脂層が積層されており、かつ、ポリビニルアセタールAの水酸基量がポリビニルアセタールBの水酸基量より低い場合、上記第1の樹脂層は上記第2の樹脂層と比較してガラス転移温度が低くなる傾向にある。結果として、上記第1の樹脂層が上記第2の樹脂層より軟らかくなり、合わせガラス用中間膜の遮音性が高くなる。また、2層の上記第2の樹脂層の間に、上記第1の樹脂層が積層されており、かつ、ポリビニルアセタールAの水酸基量がポリビニルアセタールBの水酸基量より高い場合、上記第1の樹脂層は上記第2の樹脂層と比較してガラス転移温度が高くなる傾向にある。結果として、上記第1の樹脂層が上記第2の樹脂層より硬くなり、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。

10

【0036】

更に、上記第1の樹脂層及び上記第2の樹脂層が可塑剤を含む場合、上記第1の樹脂層におけるポリビニルアセタール100質量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Aという。）が、上記第2の樹脂層におけるポリビニルアセタール100質量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Bという。）と異なることが好ましい。例えば、2層の上記第2の樹脂層の間に、上記第1の樹脂層が積層されており、かつ、上記含有量Aが上記含有量Bより多い場合、上記第1の樹脂層は上記第2の樹脂層と比較してガラス転移温度が低くなる傾向にある。結果として、上記第1の樹脂層が上記第2の樹脂層より軟らかくなり、合わせガラス用中間膜の遮音性が高くなる。また、2層の上記第2の樹脂層の間に、上記第1の樹脂層が積層されており、かつ、上記含有量Aが上記含有量Bより少ない場合、上記第1の樹脂層は上記第2の樹脂層と比較してガラス転移温度が高くなる傾向にある。結果として、上記第1の樹脂層が上記第2の樹脂層より硬くなり、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。

20

30

【0037】

本発明の合わせガラス用中間膜を構成する2層以上の樹脂層の組み合わせとしては、例えば、合わせガラスの遮音性を向上させるために、上記第1の樹脂層として遮音層と、上記第2の樹脂層として保護層との組み合わせが挙げられる。合わせガラスの遮音性が向上することから、上記遮音層はポリビニルアセタールXと可塑剤とを含み、上記保護層はポリビニルアセタールYと可塑剤とを含むことが好ましい。更に、2層の上記保護層の間に、上記遮音層が積層されている場合、優れた遮音性を有する合わせガラス用中間膜（以下、遮音中間膜ともいう。）を得ることができる。以下、遮音中間膜について、より具体的に説明する。

40

【0038】

上記遮音中間膜において、上記遮音層は遮音性を付与する役割を有する。上記遮音層は、ポリビニルアセタールXと可塑剤とを含有することが好ましい。

上記ポリビニルアセタールXは、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより調製することができる。上記ポリビニルアセタールXは、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。

上記ポリビニルアルコールの平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、得られる遮音中間膜の耐貫通性を向上させることができ、5000以下とすることにより、遮音

50

層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。

なお、上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。

【0039】

上記ポリビニルアルコールをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は4、好ましい上限は6である。アルデヒドの炭素数を4以上とすることにより、充分な量の可塑剤を安定して含有させることができ、優れた遮音性を発揮することができる。また、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。アルデヒドの炭素数を6以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保できる。上記炭素数が4～6のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド、n-バレルアルデヒド等が挙げられる。

10

【0040】

上記ポリビニルアセタールXの水酸基量の好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量を30モル%以下とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量のより好ましい上限は28モル%、更に好ましい上限は26モル%、特に好ましい上限は24モル%、好ましい下限は10モル%、より好ましい下限は15モル%、更に好ましい下限は20モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量は、水酸基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率(モル%)で表した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により、上記ポリビニルアセタールXの水酸基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

20

【0041】

上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の好ましい下限は60モル%、好ましい上限は85モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を60モル%以上とすることにより、遮音層の疎水性を高くして、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトや白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を85モル%以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の下限は65モル%がより好ましく、68モル%以上が更に好ましい。

30

上記アセタール基量は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により、上記ポリビニルアセタールXのアセタール基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

【0042】

上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量の好ましい下限は0.1モル%、好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量を0.1モル%以上とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、ブリードアウトを防止することができる。また、上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量を30モル%以下とすることにより、遮音層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい下限は1モル%、更に好ましい下限は5モル%、特に好ましい下限は8モル%、より好ましい上限は25モル%、更に好ましい上限は20モル%である。上記アセチル基量は、主鎖の全エチレン基量から、アセタール基が結合しているエチレン基量と、水酸基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率(モル%)で表した値である。

40

【0043】

特に、上記遮音層に遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を容易に含有させることがで

50

きることから、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が65モル%以上のポリビニルアセタールであることが好ましい。また、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が68モル%以上のポリビニルアセタールであることが、より好ましい。

【0044】

上記遮音層における可塑剤の含有量は、上記ポリビニルアセタールX100質量部に対する好ましい下限が45質量部、好ましい上限が80質量部である。上記可塑剤の含有量を45質量部以上とすることにより、高い遮音性を発揮することができ、80質量部以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトが生じて、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。上記可塑剤の含有量のより好ましい下限は50質量部、更に好ましい下限は55質量部、より好ましい上限は75質量部、更に好ましい上限は70質量部である。なお、上記遮音層における可塑剤の含有量は、合わせガラス作製前の可塑剤含有量であってもよく、合わせガラス作製後の可塑剤含有量であっても良い。なお、合わせガラス作製後の可塑剤の含有量は、以下の手順に従って測定できる。合わせガラスを液体窒素により冷却することでガラスと合わせガラス用中間膜を引き剥がす。得られた保護層及び遮音層を、厚さ方向に切断し、温度25℃、湿度30%の環境下に2時間静置した後、保護層と遮音層との間に指又は機械を入れ、温度25℃、湿度30%の環境下で剥離し、保護層および遮音層それぞれについて10gの長形状の測定試料を得る。得られた測定試料について、ソックスレー抽出器を用いて12時間、ジエチルエーテルで可塑剤を抽出した後、測定試料中の可塑剤の定量を行い、保護層及び中間層中の可塑剤の含有量を求める。

【0045】

上記遮音層の厚さの好ましい下限は50μmである。上記遮音層の厚さを50μm以上とすることにより、十分な遮音性を発揮することができる。上記遮音層の厚さのより好ましい下限は80μmである。なお、上限は特に限定されないが、合わせガラス用中間膜としての厚さを考慮すると、好ましい上限は300μmである。

【0046】

上記保護層は、遮音層に含まれる大量の可塑剤がブリードアウトして、合わせガラス用中間膜とガラスとの接着性が低下するのを防止し、また、合わせガラス用中間膜に耐貫通性を付与する役割を有する。

上記保護層は、例えば、ポリビニルアセタールYと可塑剤とを含有することが好ましく、ポリビニルアセタールXより水酸基量が大きいポリビニルアセタールYと可塑剤とを含有することがより好ましい。

【0047】

上記ポリビニルアセタールYは、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより調製することができる。上記ポリビニルアセタールYは、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。

また、上記ポリビニルアルコールの平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を向上させることができ、5000以下とすることにより、保護層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。

【0048】

上記ポリビニルアルコールをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は3、好ましい上限は4である。アルデヒドの炭素数を3以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。アルデヒドの炭素数を4以下とすることにより、

10

20

30

40

50

ポリビニルアセタールYの生産性が向上する。

上記炭素数が3～4のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド等が挙げられる。

【0049】

上記ポリビニルアセタールYの水酸基量の好ましい上限は33モル%、好ましい下限は28モル%である。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を33モル%以下とすることにより、合わせガラス用中間膜の白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を28モル%以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。

【0050】

上記ポリビニルアセタールYは、アセタール基量の好ましい下限が60モル%、好ましい上限が80モル%である。上記アセタール基量を60モル%以上とすることにより、十分な耐貫通性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができる。上記アセタール基量を80モル%以下とすることにより、上記保護層とガラスとの接着力を確保することができる。上記アセタール基量のより好ましい下限は65モル%、より好ましい上限は69モル%である。

【0051】

上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量の好ましい上限は7モル%である。上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量を7モル%以下とすることにより、保護層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい上限は2モル%であり、好ましい下限は0.1モル%である。なお、ポリビニルアセタールA、B、及び、Yの水酸基量、アセタール基量、及び、アセチル基量は、ポリビニルアセタールXと同様の方法で測定できる。

【0052】

上記保護層における可塑剤の含有量は、上記ポリビニルアセタールY100質量部に対する好ましい下限が20質量部、好ましい上限が45質量部である。上記可塑剤の含有量を20質量部以上とすることにより、耐貫通性を確保することができ、45質量部以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトを防止して、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。上記可塑剤の含有量のより好ましい下限は30質量部、更に好ましい下限は35質量部、より好ましい上限は43質量部、更に好ましい上限は41質量部である。合わせガラスの遮音性がよりいっそう向上することから、上記保護層における可塑剤の含有量は、上記遮音層における可塑剤の含有量よりも少ないことが好ましい。なお、上記保護層における可塑剤の含有量は、合わせガラス作製前の可塑剤含有量であってもよく、合わせガラス作製後の可塑剤含有量であっても良い。なお、合わせガラス作製後の可塑剤の含有量は、上記遮音層と同様の手順によって測定することができる。

【0053】

合わせガラスの遮音性がより一層向上することから、ポリビニルアセタールYの水酸基量はポリビニルアセタールXの水酸基量より大きいことが好ましく、1モル%以上大きいことがより好ましく、5モル%以上大きいことが更に好ましく、8モル%以上大きいことが特に好ましい。ポリビニルアセタールX及びポリビニルアセタールYの水酸基量を調整することにより、上記遮音層及び上記保護層における可塑剤の含有量を制御することができ、上記遮音層のガラス転移温度が低くなる。結果として、合わせガラスの遮音性がより一層向上する。

また、合わせガラスの遮音性がより一層向上することから、上記遮音層におけるポリビニルアセタールX100質量部に対する、可塑剤の含有量(以下、含有量Xともいう。)は、上記保護層におけるポリビニルアセタールY100質量部に対する、可塑剤の含有量(以下、含有量Yともいう。)より多いことが好ましく、5質量部以上多いことがより好ましく、15質量部以上多いことが更に好ましく、20質量部以上多いことが特に好ましい。含有量X及び含有量Yを調整することにより、上記遮音層のガラス転移温度が低くなる

10

20

30

40

50

。結果として、合わせガラスの遮音性がより一層向上する。

【0054】

上記保護層の厚さは、上記保護層の役割を果たし得る範囲に調整すればよく、特に限定されない。ただし、上記保護層上に凹凸を有する場合には、直接接する上記遮音層との界面への凹凸の転写を抑えられるように、可能な範囲で厚くすることが好ましい。具体的には、上記保護層の厚さの好ましい下限は100 μ m、より好ましい下限は300 μ m、更に好ましい下限は400 μ m、特に好ましい下限は450 μ mである。上記保護層の厚さの上限については特に限定されないが、十分な遮音性を達成できる程度に遮音層の厚さを確保するためには、実質的には500 μ m程度が上限である。

【0055】

上記遮音中間膜を製造する方法としては特に限定されず、例えば、上記遮音層と保護層とを、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した後、積層する方法等が挙げられる。

【0056】

本発明の合わせガラス用中間膜が、一对のガラス板の間に積層されている合わせガラスもまた、本発明の1つである。

上記ガラス板は、一般に使用されている透明板ガラスを使用することができる。例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入りガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガラス、グリーンガラス等の無機ガラスが挙げられる。また、ガラスの表面に紫外線遮蔽コート層を有する紫外線遮蔽ガラスも用いることができる。更に、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアクリレート等の有機プラスチック板を用いることもできる。

上記ガラス板として、2種類以上のガラス板を用いてもよい。例えば、透明フロート板ガラスと、グリーンガラスのような着色されたガラス板との間に、本発明の合わせガラス用中間膜を積層した合わせガラスが挙げられる。また、上記ガラス板として、2種以上の厚さの異なるガラス板を用いてもよい。

【発明の効果】

【0057】

本発明によれば、積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能な合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【0058】

【図1】表面に底部が連続した溝形状である凹部が等間隔、かつ、隣接する凹部が平行して並列している合わせガラス用中間膜の一例を表す模式図である。

【図2】表面に底部が連続した溝形状である凹部が等間隔、かつ、隣接する凹部が平行して並列している合わせガラス用中間膜の一例を表す模式図である。

【図3】表面に底部が連続した溝形状である凹部が等間隔ではないが、隣接する凹部が平行して並列している合わせガラス用中間膜の一例を表す模式図である。

【図4】交差角 θ を説明する模式図である。

【図5】凹部の間隔 S m 及び凸部の回転半径 R を説明する模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0059】

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。

【0060】

(実施例1)

(1) 樹脂組成物の調製

平均重合度が1700のポリビニルアルコールをn-ブチルアルデヒドでアセタール化することにより得られたポリビニルブチラール(アセチル基量0.9モル%、ブチラール基

10

20

30

40

50

量 69 モル%、水酸基量 30 モル%) 100 質量部に対して、可塑剤としてトリエチレングリコール - ジ - 2 - エチルヘキサノエート (3GO) 40 質量部を添加し、ミキシングロールで充分に混練し、樹脂組成物を得た。

【0061】

(2) 合わせガラス用中間膜の作製

得られた樹脂組成物を、押出機を用いて押出すことにより、厚さ 760 μm の合わせガラス用中間膜を得た。

【0062】

(3) 凹凸の付与

第1の工程として、下記の手順により合わせガラス用中間膜の両面にランダムな凹凸形状を転写した。まず、鉄ロール表面に、プラスト剤を用いてランダムな凹凸を施した後、該鉄ロールをパーティカル研削し、更に、より微細なプラスト剤を用いて研削後の平坦部に微細な凹凸を施すことにより、粗大なメインエンボスと微細なサブエンボスをもつ同形状の1対のロールを得た。

該1対のロールを凹凸形状転写装置として用い、得られた合わせガラス用中間膜の両面にランダムな凹凸形状を転写した。この時の転写条件として、合わせガラス用中間膜の温度を 80、上記ロールの温度を 145、線速を 10 m/min、プレス線圧を 0 ~ 200 kN/m とした。

【0063】

第2の工程として、下記の手順により合わせガラス用中間膜の表面に底部が連続した溝形状の凹凸を付与した。三角形斜線型ミルを用いて表面にミル加工を施した金属ロールと 45 ~ 75 の JIS 硬度を有するゴムロールとからなる1対のロールを凹凸形状転写装置として用い、第1の工程でランダムな凹凸形状を転写した合わせガラス用中間膜をこの凹凸形状転写装置に通し、合わせガラス用中間膜の第1の表面に底部が連続した溝形状である凹部が平行して等間隔に形成された凹凸を付与した。このときの転写条件として、合わせガラス用中間膜の温度を 80、ロール温度を 140、線速を 10 m/min、プレス線圧は 5 ~ 100 kN/m とした。

次いで、合わせガラス用中間膜の第2の表面にも同様の操作を施し、底部が連続した溝形状の凹部を付与した。その際、第1の表面に付与した底部が連続した溝形状(刻線状)の凹部と、第2の表面に付与した底部が連続した溝形状(刻線状)の凹部との交差角度が 20° となるようにした。

【0064】

(4) 第1の表面及び第2の表面の凹凸の測定

光学顕微鏡 (SONIC社製、BS-8000III) を用いて、得られた合わせガラス用中間膜の第1の表面及び第2の表面(観察範囲 20 mm x 20 mm) を観察し、隣接する凹部の間隔を測定したうえで、隣接する凹部の最底部間の最短距離の平均値を算出することにより、第1の表面の凹部の間隔 S_m1 及び第2の表面の凹部の間隔 S_m2 を測定したところ 390 μm であった。

また、片刃カミソリ (フェザー安全カミソリ社製 FAS-10) を用いて中間膜を刻線状の凹部の方向に対して垂直方向、かつ、膜厚み方向に平行に、切断面を変形させないように、カミソリを凹部と垂直方向に滑らせることなく、厚み方向に平行方向に押し出すことで切断し、その断面をマイクロスコープ (オリンパス社製「DSX-100」) を用いて観察し、測定倍率を 277 倍にて撮影し、更に撮影画像を 50 μm / 20 mm になるように拡大表示させた状態で、付属ソフト内の計測ソフトを用いて、凸形状の頂点に内接する円を描いたときの該円の半径を該凸部の先端の回転半径とする方法により、第1の表面の凸部の回転半径 R_1 及び第2の表面の凸部の回転半径 R_2 を測定したところ 37 μm であった。この際、測定時の環境は 23 及び 30 RH% 下であった。

また、JIS B-0601 (2001) に準拠して、刻線方向の凹部が連続する方向に対して横断するように垂直方向に測定することで、上記第1の表面及び上記第2の表面の粗さ R_z を得た。ここで、測定機としては小坂研究所社製「Surfcorder SE

10

20

30

40

50

300」等を用い、測定時のカットオフ値は2.5mm、基準長さは2.5mm、測定長さを12.5mmとし、予備長さを2.5mmとし、触診針の送り速度は0.5mm/秒。触針形状は先端半径2μm、先端角60°のものを用いる条件とした。また、測定時の環境は23及び30RH%下とした。また測定する中間膜を測定時の環境下で3時間以上静置した後に測定した。

【0065】

(5) 凸部の先端部の粗さRzの測定

得られた合わせガラス用中間膜の第1の表面の凸部の先端部の粗さRz1及び第2の表面の凸部の先端部の粗さRz2を、3次元粗さ測定器(例えば、KEYENCE社製「KS-1100」、先端ヘッド型番「LT-9510VM」)及び付属の測定ソフトであるKS-measureを用いて、JIS B 0601(1994)に準拠した十点平均粗さとして、以下の手順によって測定した。

合わせガラス用中間膜の表面の粗さを2cm×2cmの視野範囲で測定し、得られたデータにおいて該凸部の頭頂部を頂部が連続している方向に平行した方向に2.5mmの長さの粗さを10点測定し、その平均値を凸部の先端部粗さとする方法により求めた。なお、上記の2.5mmの長さの粗さを10箇所選択する際には、それぞれの2.5mmの長さの線同士が50μm以上離して測定した。ここでいう2.5mmの長さの粗さとは、付属の解析ソフトである「KS-Analyzer Ver.2.00」の線粗さ計測モードにて、長さ指定条件にて長さを「2500μm」に指定し、得られた3次元画像データの当該部を選択し、粗さプロファイルデータから得られる「Rz」のことを指す。粗さプロファイルデータを得る際の設定値は、カットオフ値として2.5mmを選択した。高さスムージング及び傾き補正は使用しなかった。視野範囲以外の測定条件はステージ送り条件は連続送りとし、走査方向は双方向、先行軸はX軸、ステージ移動速度は250.0μm/s、軸送り速度は10000.0μm/sに設定した。更に、X軸の測定ピッチを2.0μm、Y軸の測定ピッチを2.0μmに設定した。

先端部粗さの測定における、上記凸部の頭頂部とは、上記2cm×2cmの視野範囲に存在する隣接する2つの凹部の、最底部間同士を最短距離で結んだ直線の中心に凸部の最大が位置する場合は、最底部間同士を最短距離で結んだ直線の中心から、上記最底部間同士を最短距離で結んだ直線の長さの10%に相当する範囲とした。また、最底部間同士を最短距離で結んだ直線の中心に凸部の最大が位置しない場合は、最底部間同士を最短距離で結んだ直線上に存在する凸部の最大から、上記最底部間同士を最短距離で結んだ直線の長さの10%に相当する範囲とした。また、測定時の環境は23及び30RH%下とした。

【0066】

(実施例2、5、7、12~16、21~23、比較例1~10、13~25)

用いるポリビニルブチラルのアセチル基量、ブチラル基量及び水酸基量、可塑剤の含有量を表1、表2及び表3に示すように変更し、第1の表面及び第2の表面の凹部の間隔Sm1及びSm2、凸部の回転半径R1及びR2、凸部先端部の粗さRz1及びRz2、表面の粗さRzを表1、表2及び表3に示したようにした以外は、実施例1と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製した。

【0067】

(実施例26)

(保護層用樹脂組成物の調製)

平均重合度が1700のポリビニルアルコールをn-ブチルアルデヒドでアセタール化することにより得られたポリビニルブチラル(アセチル基量1モル%、ブチラル基量69モル%、水酸基量30モル%)100質量部に対して、可塑剤としてトリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)36質量部を添加し、ミキシングロールで十分に混練し、保護層用樹脂組成物を得た。

【0068】

(遮音層用樹脂組成物の調製)

10

20

30

40

50

平均重合度が2300のポリビニルアルコールをn-ブチルアルデヒドでアセタール化することにより得られたポリビニルブチラール(アセチル基量12.5モル%、ブチラール基量64モル%、水酸基量23.5モル%)100質量部に対して、可塑剤としてトリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)76.5質量部を添加し、ミキシングロールで十分に混練し、遮音層用樹脂組成物を得た。

【0069】

(合わせガラス用中間膜の作製)

遮音層用樹脂組成物及び保護層用樹脂組成物を共押出することにより、幅が100cmで厚さ方向に保護層(厚さ350 μ m)、遮音層(厚さ100 μ m)、保護層(厚さ350 μ m)の順に積層された三層構造の合わせガラス用中間膜を得た。

10

【0070】

(凹凸の付与)

第1の工程として、下記の手順により合わせガラス用中間膜の両面にランダムな凹凸形状を転写した。まず、鉄ロール表面に、プラスト剤を用いてランダムな凹凸を施した後、該鉄ロールをバーチカル研削し、更に、より微細なプラスト剤を用いて研削後の平坦部に微細な凹凸を施すことにより、粗大なメインエンボスと微細なサブエンボスをもつ同形状の1対のロールを得た。

該1対のロールを凹凸形状転写装置として用い、得られた合わせガラス用中間膜の両面にランダムな凹凸形状を転写した。この時の転写条件として、合わせガラス用中間膜の温度を80、上記ロールの温度を145、線速を10m/min、プレス線圧を0~200kN/mとした。

20

【0071】

第2の工程として、下記の手順により合わせガラス用中間膜の表面に底部が連続した溝形状の凹凸を付与した。三角形斜線型ミルを用いて表面にミル加工を施した金属ロールと45~75のJIS硬度を有するゴムロールとからなる一対のロールを凹凸形状転写装置として用い、第1の工程でランダムな凹凸形状を転写した合わせガラス用中間膜をこの凹凸形状転写装置に通し、合わせガラス用中間膜の第1の表面に底部が連続した溝形状である凹部が平行して等間隔に形成された凹凸を付与した。このときの転写条件として、合わせガラス用中間膜の温度を80、ロール温度を140、線速を10m/min、プレス線圧は5~100kN/mとした。

30

次いで、合わせガラス用中間膜の第2の表面にも同様の操作を施し、底部が連続した溝形状の凹部を付与した。その際、第1の表面に付与した底部が連続した溝形状(刻線状)の凹部と、第2の表面に付与した底部が連続した溝形状(刻線状)の凹部との交差角度が20 $^{\circ}$ となるようにした。

【0072】

実施例1と同様の方法により、第1の表面及び第2の表面の凹部の間隔 S_{m1} 及び S_{m2} 、凸部の回転半径 R_1 及び R_2 、凸部先端部の粗さ R_{z1} 及び R_{z2} 、表面の粗さ R_z を測定した。

【0073】

(可塑剤の含有量の測定)

合わせガラスを作製した後、温度25、湿度30%の環境下で4週間静置した。その後、合わせガラスを液体窒素により冷却することでガラスと合わせガラス用中間膜を引き剥がした。得られた保護層及び遮音層を、厚さ方向に切断し、温度25、湿度30%の環境下に2時間静置した後、保護層と遮音層との間に指又は機械を入れ、温度25、湿度30%の環境下で剥離し、保護層および遮音層それぞれについて10gの長方形の測定試料を得た。得られた測定試料について、ソックスレー抽出器を用いて12時間、ジエチルエーテルで可塑剤を抽出した後、測定試料中の可塑剤の定量を行い、保護層及び中間層中の可塑剤の含有量を求めた。

40

【0074】

(実施例30、32~34、比較例11、12、26~29)

50

用いるポリビニルブチラールのアセチル基量、ブチラール基量及び水酸基量を表4に示すように変更し、第1の表面及び第2の表面の凹部の間隔 $S m 1$ 及び $S m 2$ 、凸部の回転半径 $R 1$ 及び $R 2$ 、凸部先端部の粗さ $R z 1$ 及び $R z 2$ 、表面の粗さ $R z$ を表4に示したようにした以外は、実施例26と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製した。

【0075】

(評価)

実施例及び比較例で得られた合わせガラス用中間膜について、以下の方法により自着力の評価を行った。結果を表1、表2、表3及び表4に示した。

【0076】

実施例及び比較例で得られた合わせガラス用中間膜を縦150mm、横150mmの大きさに切断して試験片を得た。得られた試験片2枚を重ね、その上に離型処理として基材の紙にシリコンコーティングを施した離形紙を介してガラス板(重さ5.8kg)を載せた。この状態で、温度30℃、湿度30%に調整した恒温恒湿層中に48時間放置した。その後、試験片2枚の端部2cmを剥離させ、2枚の試験片端部をそれぞれ15cm巾のつかみ具にて固定した。剥離速度を50cm/分とし、温度23℃、湿度30%の環境下で2枚の試験片間の180°剥離強度を測定し、剥離距離が50mmから200mmまでの剥離強度の平均値(N/15cm)を算出した。これ以外の条件はJIS K-6854-3(1994)に準拠した。これを合わせガラス用中間膜の自着力とした。

なお、合わせガラス用中間膜を搬送する機械や人力での剥離のためには、自着力は25N/15cm以下であることが好ましく、20N/15cm以下であることがより好ましく、13N/15cm以下であることが更に好ましく、8N/15cm以下であることが特に好ましい。

【0077】

10

20

【 表 1 】

	実施例 1	実施例 2	比較例 13	比較例 14	実施例 5	比較例 15	実施例 7	比較例 16	比較例 17	比較例 18	比較例 19	実施例 12	実施例 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
第1の表面 の凹凸	可塑性部数 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	Sm1 (μm)	390	190	190	195	290	395	270	195	198	185	290	290
	R1 (μm)	37	22	55	30	32	36	32	55	28	28	30	30
	凸部先端部の粗さ Rz1 (μm)	1.8	1	1.1	1.2	2	14	2	1	1.5	1.3	1.4	1.2
第2の表面 の凹凸	R1/Sm1	0.09	0.12	0.29	0.15	0.11	0.09	0.12	0.28	0.14	0.15	0.10	0.10
	第1の表面の 粗さRz (μm)	45	40	48	45	46	44	38	48	39	34	38	37
	Sm2 (μm)	390	190	195	195	290	385	270	195	198	185	285	294
	R2 (μm)	37	21	50	30	32	40	32	52	26	24	29	27
第2の表面 の凹凸	凸部先端部の粗さ Rz2 (μm)	1.8	1	1.3	1.2	2	15	2	1.5	1.5	1.3	1.5	1.1
	R2/Sm2	0.09	0.11	0.26	0.15	0.11	0.10	0.12	0.27	0.13	0.13	0.10	0.09
	第2の表面の 粗さRz (μm)	46	43	48	48	46	43	39	48	37	36	42	38
交差角 θ	20	10	20	90	20	20	10	75	30	30	20	30	60
R/Sm	0.09	0.11	0.27	0.15	0.11	0.11	0.10	0.12	0.27	0.14	0.14	0.10	0.10
$(1000/\text{Sm})^2 \times \text{Sin } \theta$	2.25	4.81	9.23	26.30	4.07	4.14	2.25	2.38	25.40	12.75	9.99	6.05	10.16
自着力 (N/15cm)	19.8	15.1	18.0	3.2	15.4	7.2	11.5	23.0	5.8	11.3	13.8	13.9	8.2

【 0 0 7 8 】

10

20

30

40

【 表 2 】

	実施例14	実施例15	実施例16	比較例20	比較例21	比較例22	比較例23	実施例21	実施例22	実施例23	比較例24	比較例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
第1の表面の凹凸	可塑性部数 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	41	39
	Sm1 (μm)	220	218	398	210	200	198	310	310	198	195	190
	R1 (μm)	20	18	38	55	55	55	30	33	18	56	53
第2の表面の凹凸	凸部先端部の粗さ Rz1 (μm)	1.1	1.5	2	1.5	10	13	23	23	19	1.3	1
	R1/Sm1	0.09	0.08	0.10	0.26	0.28	0.28	0.10	0.11	0.09	0.29	0.28
	第1の表面の粗さRz (μm)	39	48	56	38	45	45	37	44	50	45	54
第2の表面の凹凸	Sm2 (μm)	202	203	385	198	198	185	285	285	203	195	195
	R2 (μm)	20	18	38	54	58	52	27	33	18	48	53
	凸部先端部の粗さ Rz2 (μm)	1.1	1.2	1.6	1.5	8	13.5	20.5	28	28	1.5	1.5
交差角 θ	R2/Sm2	0.10	0.09	0.10	0.27	0.29	0.28	0.09	0.12	0.09	0.25	0.27
	第2の表面の粗さRz (μm)	36	52	52	38	45	48	38	43	52	52	50
		90	90	20	90	90	20	10	60	75	20	20
(1000/Sm) ² × Sin θ	R/Sin	0.09	0.09	0.10	0.27	0.28	0.28	0.10	0.11	0.09	0.27	0.28
		22.46	22.57	2.23	24.03	25.25	9.33	9.78	10.91	24.88	8.99	9.23
	自着力 (N/15cm)	5.1	4.2	22.1	12.8	10.1	7.5	6.5	5.8	3.8	20.0	16.2

【 0 0 7 9 】

10

20

30

40

【 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
組成	Bu化度 (mol%)	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
	Ac化度 (mol%)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
第1の表面 の凹凸	可塑剤部数 (phr)	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	Sm1 (μm)	200	390	290	400	300	230	230	400	301
	R1 (μm)	114	40	90	40	30	73	80	180	180
第2の表面 の凹凸	凸部先端部の粗さ Rz1 (μm)	1.1	1.5	0.5	2	1.5	1.5	1.5	13	13
	R1/Sm1	0.57	0.10	0.31	0.10	0.10	0.25	0.32	0.45	0.60
	第1の表面の 粗さRz (μm)	30	42	38	45	37	33	37	45	45
第2の表面 の凹凸	Sm2 (μm)	200	390	295	395	398	284	218	395	298
	R2 (μm)	110	40	93	38	36	78	73	147	147
	凸部先端部の粗さ Rz2 (μm)	1.1	1.5	0.4	1.8	1.5	1.5	1.4	22	22
交差角 θ	R2/Sm2	0.55	0.10	0.32	0.10	0.09	0.27	0.33	0.37	0.49
	第2の表面の 粗さRz (μm)	32	44	36	39	34	33	38	39	39
	R/Sin θ	20	8	10	5	5	5	10	20	45
自着力 (N/15cm)	$(1000/\text{Sm})^2 \times \text{Sin } \theta$	0.56	0.10	0.31	0.10	0.10	0.26	0.33	0.41	0.55
		8.55	0.91	2.03	0.55	0.72	1.04	3.46	2.16	7.88
		49.1	60.0	48.0	78.0	44.1	65.0	37.5	33.7	30.0

【 0 0 8 0 】

10

20

30

40

【表 4】

	実施例26	比較例26	比較例27	比較例28	実施例28	実施例30	比較例29	実施例32	実施例33	実施例34	比較例11	比較例12
第1の樹脂層	Bu化度 (mol%)	69	69	69	69	68.5	69.9	69	69	69	69	69
	OH化度 (mol%)	30	30	30	30	31	29	30	30	30	30	30
	Ac化度 (mol%)	1	1	1	1	0.5	1.1	1	1	1	1	1
第2の樹脂層	可塑性部数 (phr)	36	36	36	36	36	39	36	36	36	36	36
	Bu化度 (mol%)	64	64	64	64	67	77.8	64	64	64	64	64
	OH化度 (mol%)	23.5	23.5	23.5	23.5	25	20.7	23.5	23.5	23.5	23.5	23.5
	Ac化度 (mol%)	12.5	12.5	12.5	12.5	8	1.5	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5
	可塑性部数 (phr)	76.5	76.5	76.5	76.5	75	79.3	76.5	76.5	76.5	76.5	76.5
第1の表面の凹凸	Sm1 (μm)	390	195	197	195	295	285	292	294	392	202	392
	R1 (μm)	35	55	53	32	33	33	32	33	37	106	41
	凸部先端部の粗さ Rz1 (μm)	1.2	2.2	2.1	1.9	2	15.2	2.3	2.3	15	1.6	2
	R1/Sm1	0.09	0.29	0.28	0.15	0.11	0.12	0.11	0.11	0.11	0.52	0.10
	第1の表面の粗さ Rz (μm)	45	48	51	45	46	46	55	45	55	44	44
第2の表面の凹凸	Sm2 (μm)	392	195	189	193	285	275	286	291	382	198	382
	R2 (μm)	35	52	50	33	31	33	33	33	36	104	40
	凸部先端部の粗さ Rz2 (μm)	1.6	2.5	2.4	2.2	2.5	15.4	2.9	2.9	16.2	1.1	2.3
	R2/Sm2	0.09	0.26	0.27	0.15	0.11	0.12	0.12	0.12	0.11	0.53	0.10
	第2の表面の粗さ Rz (μm)	46	46	51	46	46	46	56	46	52	43	42
交差角 θ	20	20	75	90	20	20	20	20	20	20	20	8
R/Sm	0.09	0.27	0.27	0.15	0.11	0.11	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	4.07	4.36	4.09	4.09	4.00	2.28	8.55	0.93
自着力 (N/15cm)	19.0	17.0	5.6	4.5	14.3	7.0	13.4	6.3	10.9	45.0	56.0	

【産業上の利用可能性】

【0081】

本発明によれば、積層した状態で保管しても自着せずに、容易に剥離可能な合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスを提供することができる。

10

20

30

40

50

【符号の説明】

【0082】

- 1 任意に選択した一の凹部
- 2 任意に選択した一の凹部に隣接する凹部
- 3 任意に選択した一の凹部に隣接する凹部
- A 凹部1と凹部2との間隔
- B 凹部1と凹部3との間隔
- 10 合わせガラス用中間膜
- 11 第1の表面の底部が連続した溝形状の凹部
- 12 第2の表面の底部が連続した溝形状の凹部
- 20 第1の表面又は第2の表面の凹凸
- 21 底部が連続した溝形状の凹部
- 22 凸部

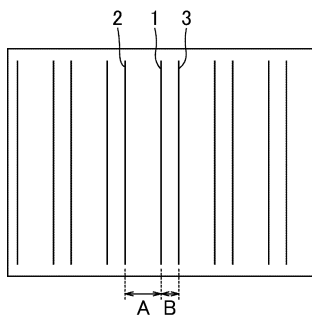
【図1】



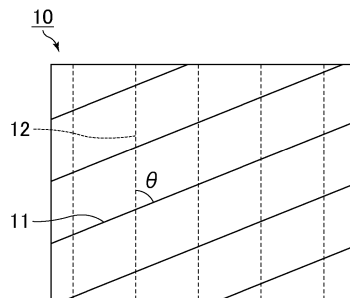
【図2】



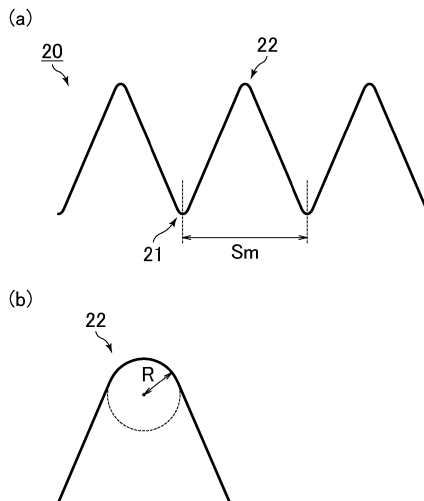
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(72)発明者 乾 浩彰

オランダ王国 6045JB メタールヴェフ 5, ルールモント セキスイ エス-レック
ベ-フェ-内

審査官 山本 一郎

(56)参考文献 特開平09-295839(JP,A)
特開昭60-208241(JP,A)
特開2001-130931(JP,A)
特開2003-128442(JP,A)
特開2003-212614(JP,A)
国際公開第2014/021459(WO,A1)
特表平09-508078(JP,A)
米国特許第6093471(US,A)
特開2001-163641(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C03C 27/12
B32B 17/10