

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5264331号
(P5264331)

(45) 発行日 平成25年8月14日 (2013. 8. 14)

(24) 登録日 平成25年5月10日 (2013. 5. 10)

(51) Int. Cl.

F 1

B 3 2 B 27/18 (2006. 01)
B 3 2 B 7/02 (2006. 01)
C 0 3 C 27/12 (2006. 01)
G 0 9 F 9/00 (2006. 01)

B 3 2 B 27/18 A
B 3 2 B 7/02 1 0 3
C 0 3 C 27/12 L
G 0 9 F 9/00 3 0 7 Z

請求項の数 5 (全 21 頁)

(21) 出願番号 特願2008-177512 (P2008-177512)
(22) 出願日 平成20年7月8日 (2008. 7. 8)
(65) 公開番号 特開2010-17854 (P2010-17854A)
(43) 公開日 平成22年1月28日 (2010. 1. 28)
審査請求日 平成23年7月1日 (2011. 7. 1)

(73) 特許権者 000005278
株式会社ブリヂストン
東京都中央区京橋1丁目10番1号
(74) 代理人 100100354
弁理士 江藤 聡明
(72) 発明者 橋本 誠夫
神奈川県横浜市戸塚区柏尾町1番地 株式
会社ブリヂストン横浜工場内

審査官 河原 肇

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 機能性フィルム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱線遮蔽層を少なくとも含む機能性フィルムであって、
前記熱線遮蔽層が、熱線遮蔽剤としてタングステン化合物を含有し、
前記熱線遮蔽層とは別の層が、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含有し、
前記別の層が、接着樹脂層であり、

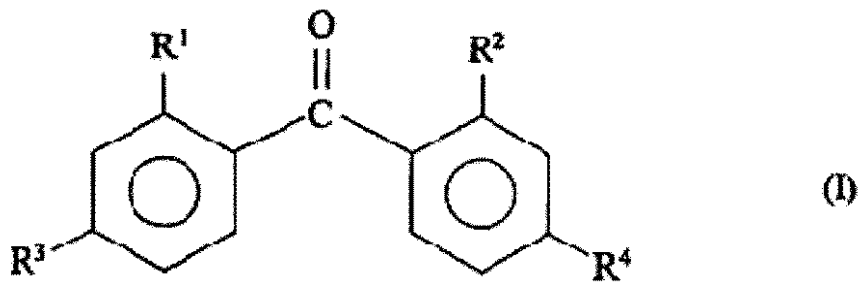
前記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤の含有量が、接着樹脂 1 0 0 質量部に対して、 0 .
5 ~ 3 質量部であり、

前記熱線遮蔽層が、熱線遮蔽剤及びバインダ樹脂を含む組成物をプラスチックフィルム
上に塗布し、硬化させることにより形成されたものであることを特徴とする機能性フィル
ム。

【請求項 2】

前記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤が、下記式 (I) :

【化 1】



10

[但し、 R^1 が、水素原子又はヒドロキシ基を表し、 R^2 が、水素原子又はヒドロキシ基を表し、 R^3 が、水素原子、ヒドロキシ基、炭素原子数1～14個のアルキル基又は炭素原子数1～14個のアルコキシ基を表し、そして R^4 が、水素原子、ヒドロキシ基、炭素原子数1～14個のアルキル基又は炭素原子数1～14個のアルコキシ基を表す]で示される化合物である請求項1に記載の機能性フィルム。

【請求項3】

前記タングステン化合物が、タングステン酸化物及び/又は複合タングステン酸化物からなることを特徴とする請求項1又は2に記載の機能性フィルム。

【請求項4】

20

2枚の透明基材の間に中間膜が挟持され、これらが接着一体化されてなる合わせガラスであって、

前記中間膜が、請求項1～3のいずれか1項に記載の機能性フィルムであることを特徴とする合わせガラス。

【請求項5】

請求項1～3のいずれか1項に記載の機能性フィルムを用いたことを特徴とするディスプレイ用光学フィルタ。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

30

本発明は、耐衝撃性、耐貫通性、防犯性等に優れた合わせガラスなどに好適使用される、熱線遮蔽層を少なくとも含む機能性フィルムに関する。

【背景技術】

【0002】

一般に自動車に用いるガラス、特にフロントガラスには、ガラス板の間に透明接着剤層(中間膜)を挟持させた構造の合わせガラスが使用されている。この透明接着剤層は、例えばPVB膜、EVA膜等から形成され、この透明接着剤層の存在により、合わせガラスの耐貫通性等が向上している。また外部からの衝撃に対し、破損したガラスの破片は透明接着剤層に貼着したままとなるので、その飛散を防止している。このため、例えば自動車の合わせガラスが、盗難や侵入等を目的として破壊されても窓の開放を自由に行うことができないため、防犯用ガラスとしても有用である。

40

【0003】

一方、例えば自動車のドアガラス及び嵌め込みガラスは、一般に事故で破壊されることが少なく、従って上記フロントガラス程の耐貫通性等は必要としないので、僅かに強化された強度の低い1枚のガラス板が使用されている。ところが、このような1枚のガラス板のみを使用した場合、以下のような欠点がある。即ち、(1)耐衝撃性、耐貫通性等の点で合わせガラスに劣る、(2)盗難や侵入等を目的として破壊されると、割れて多数の破片となり、窓の開放を自由に行うことができる、等である。このため、ドアガラス及び嵌め込みガラス等にも、合わせガラスのような特性のガラスを使用することも検討されている。このような用途に適したガラスとして、ガラス板とプラスチックフィルムとを、透明

50

接着剤層を介して接着したフィルム強化ガラスが、例えば特許文献 1 及び 2 に記載されている。

【0004】

このような合わせガラスの 2 枚のガラス板、或いはフィルム強化ガラスのガラス板とプラスチックフィルムとを接着する透明接着剤層は、上述のように、優れた接着性と、耐貫通性が求められている。

【0005】

上記の合わせガラスは、一般に、優れた接着性と耐貫通性を有しており、安全性には優れているが、熱線遮断性については考慮されていない。熱線遮断機能を有するガラスとしては、例えば、熱線カットガラスが市販されている。この熱線カットガラスは、直接太陽光の遮断を目的として、金属等の蒸着、スパッタリング加工によって、ガラス板の表面に金属 / 金属酸化物の多層コーティングが施されたものである。この多層コーティングは、外部からの擦傷に弱く、耐薬品性も劣る。このようなガラスは、例えば、EVA 等からなる中間膜を積層して合わせガラスとされるのが一般的である。

【0006】

また上記熱線カットガラスは、金属を使用しているので、透明性が低下したり、電磁波の透過を阻害し、携帯電話、カーナビ等の通信機能に悪影響をもたらすとの問題がある。さらに、上記熱線カットガラスは、多層コーティングを使用しているので高価となるとの問題もある。

【0007】

そこで、中間膜中に熱線遮蔽剤を分散させた合わせガラスが提案されている。例えば、特許文献 3 には、軟質樹脂に熱線遮蔽剤としてタングステン酸化物を分散させた中間膜を用いた合わせガラスが提案されている。

【0008】

【特許文献 1】特開 2002 - 046217 号公報

【特許文献 2】特開 2002 - 068785 号公報

【特許文献 3】WO 2005 / 087680

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

特許文献 3 に記載の中間膜を有する合わせガラスでは、タングステン酸化物を使用することにより、熱線カット機能と透明性の両立が確保される。しかしながら、このようなタングステン化合物からなる熱線遮蔽剤を含む合わせガラスは、長期間使用した場合に、青色などに変色する問題がある。

【0010】

そこで、本発明は、タングステン化合物からなる熱線遮蔽剤を含んでいても変色による劣化が抑制された機能性フィルムを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0011】

タングステン化合物は、近赤外線の遮蔽効果には優れているが、これを用いたフィルムでは青変を伴う透過率変化が見られることがある。これは、フィルムが屋外で使用されるなどして、長時間太陽光に曝されることが原因と考えられる。すなわち、タングステン化合物は長時間に亘り太陽光、特に紫外線が照射されることにより劣化して 5 価タングステンを生成し、これにより青色に変色するのではないかと考えられる。

【0012】

そこで、本発明者が種々の検討を行った結果、紫外線吸収剤の中でもベンゾフェノン系紫外線吸収剤をタングステン化合物と併用することにより長期間に亘り変色を防止できることが分かった。

【0013】

すなわち、本発明は、

熱線遮蔽層を少なくとも含む機能性フィルムであって、
 前記熱線遮蔽層が、熱線遮蔽剤としてタングステン化合物を含有し、
 前記熱線遮蔽層とは別の層が、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含有し、
 前記別の層が、接着樹脂層であり、

前記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤の含有量が、接着樹脂 100 質量部に対して、0.5 ~ 3 質量部であり、

前記熱線遮蔽層が、熱線遮蔽剤及びバインダ樹脂を含む組成物をプラスチックフィルム上に塗布し、硬化させることにより形成されたものであることを特徴とする機能性フィルムにより上記課題を解決する。

【発明の効果】

10

【0014】

本発明の機能性フィルムは、近赤外線を効率よくカットするタングステン化合物を熱線遮蔽剤として含み、且つ前記熱線遮蔽剤の酸化劣化を抑制するためにベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含んでいる。ベンゾフェノン系紫外線吸収剤は、熱線遮蔽剤の酸化防止効果が特に高く、長期間に亘り機能性フィルムが青色に変色するのを防止できる。したがって、本発明の機能性フィルムは、熱線（赤外線）を効率よくカットし、且つ変色による劣化が高く抑制され、優れた透明性を長期に亘り維持することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

本発明の機能性フィルムは、熱線遮蔽剤としてタングステン化合物を含有する熱線遮蔽層を少なくとも含み、さらに前記熱線遮蔽層とは別の層が、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含有する。これにより、少量のベンゾフェノン系紫外線吸収剤であっても高い変色防止性を確保することができる。

20

【0016】

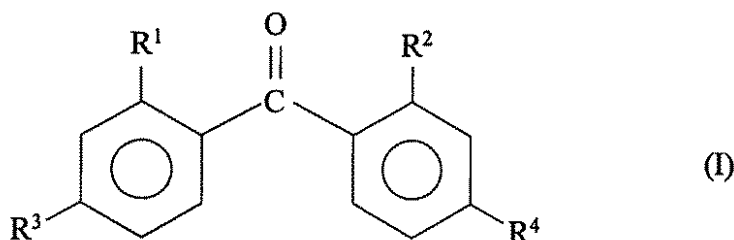
（紫外線吸収剤）

ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、下記式（I）：

【0017】

【化1】

30



40

【0018】

〔但し、 R^1 が、水素原子又はヒドロキシル基を表し、 R^2 が、水素原子又はヒドロキシル基を表し、 R^3 が、水素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数1~14個（特に1~8個）のアルキル基又は炭素原子数1~14個（特に5~8個）のアルコキシ基を表し、そして R^4 が、水素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数1~14個（特に1~8個）のアルキル基又は炭素原子数1~14（特に5~8個）のアルコキシ基を表す〕で示される化合物が好ましく用いられる。

【0019】

R^1 が、ヒドロキシル基を表し、 R^2 が、水素原子又はヒドロキシル基、特にヒドロキシル基を表し、 R^3 が、水素原子、ヒドロキシル基、又はアルコキシ基、特にメトキシ基又

50

はオクチルオキシ基を表し、そして R^4 が、水素原子、ヒドロキシル基、又はアルコキシ基、特にメトキシ基又はオクチルオキシ基を表すことが好ましい。特に R^1 と R^2 とが共にヒドロキシル基、 R^3 と R^4 とが共に炭素原子数5～8個のアルコキシ基、特にオクチルオキシ基であることが好ましい。

【0020】

上記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤の好ましい例としては、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-ドデシルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-オクチルベンゾフェノン、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノンを挙げることができ、特に2-ヒドロキシ-4-n-オクチルベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノンが好ましい。

10

【0021】

なお、上述したベンゾフェノン系紫外線吸収剤は、一種単独で使用することもでき、2種以上を使用することもできる。

【0023】

本発明の機能性フィルムは、熱線遮蔽層を少なくとも有するが、さらに別の層を有する。別の層は、バインダ樹脂などを含む何らかの機能を示す層などであればどのようなものでも良い。例えば、接着樹脂層、ハードコート層、反射防止層の他、プラスチックフィルムなどが挙げられる。ベンゾフェノン系紫外線吸収剤は上記した層のうち接着樹脂層に含まれる。これにより高い変色防止効果が得られる。

20

【0024】

(接着樹脂層)

接着樹脂層は、上述したベンゾフェノン系紫外線吸収剤の他、接着樹脂を含むのが好ましい。このような接着樹脂としては、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、オレフィン樹脂、アクリル樹脂、エチレン酢酸ビニル共重合体(EVA)、及びポリビニルブチラル樹脂(PVB)が好ましく、EVA及びPVBがより好ましく、EVAが特に好ましい。

【0025】

接着樹脂層におけるベンゾフェノン系紫外線吸収剤の含有量は、接着樹脂100質量部に対して、0.5～3質量部であり、特に0.5～1質量部であるのが好ましい。このように少量の紫外線吸収剤であっても、優れた変色防止効果を発揮することができる。

30

【0026】

EVAにおける酢酸ビニル含有率は、EVA100質量部に対して、23～38質量部であり、特に23～28質量部であることが好ましい。この酢酸ビニル含有率が、23質量部未満であると、高温で架橋硬化させる場合に得られる樹脂の透明度が充分でなく、逆に38質量部を超えると成形性が低下して紫外線吸収剤を高分散させることができなくなる恐れがある。またEVAのメルト・フロー・インデックス(MFR)が、4.0～30.0g/10分、特に8.0～18.0g/10分であることが好ましい。予備圧着が容易になる。

【0027】

EVA含有接着樹脂層は、上記EVAに、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤及び有機過酸化物を含んでおり、さらに必要に応じて架橋助剤、接着向上剤、可塑剤等の種々の添加剤を含有させることができる。

40

【0028】

有機過酸化物としては、100以上の温度で分解してラジカルを発生するものであれば、どのようなものでも併用することもできる。有機過酸化物は、一般に、成膜温度、組成物の調整条件、硬化(貼り合わせ)温度、被着体の耐熱性、貯蔵安定性を考慮して選択される。特に、半減期10時間の分解温度が70以上のものが好ましい。

【0029】

この有機過酸化物の例としては、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、t

50

- ブチルパーオキシ - 2 - エチルヘキシルカーボネート、2, 5 - ジメチルヘキサン - 2, 5 - ジハイドロパーオキサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ (t - ブチルパーオキシ) ヘキサン - 3 - ジ - t - ブチルパーオキサイド、t - ブチルクミルパーオキサイド、2, 5 - ジメチル - 2, 5 - ジ (t - ブチルパーオキシ) ヘキサン、ジクミルパーオキサイド、
 , ' - ビス (t - ブチルパーオキシイソプロピル) ベンゼン、n - ブチル - 4, 4 - ビス (t - ブチルパーオキシ) バレレート、1, 1 - ビス (t - ブチルパーオキシ) シクロヘキサン、1, 1 - ビス (t - ブチルパーオキシ) - 3, 3, 5 - トリメチルシクロヘキサン、t - ブチルパーオキシベンゾエート、ベンゾイルパーオキサイド、t - ブチルパーオキシアセテート、メチルエチルケトンパーオキサイド、2, 5 - ジメチルヘキシル - 2, 5 - ビスパーオキシベンゾエート、ブチルハイドロパーオキサイド、p - メンタンハイドロパーオキサイド、p - クロロベンゾイルパーオキサイド、ヒドロキシヘブチルパーオキサイド、クロロヘキサノンパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、デカノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、クミルパーオキシオクトエート、コハク酸パーオキサイド、アセチルパーオキサイド、m - トルオイルパーオキサイド、t - ブチルパーオキシイソブチレーオ及び 2, 4 - ジクロロベンゾイルパーオキサイドを挙げることができる。

10

【 0 0 3 0 】

EVA 含有接着樹脂層における有機過酸化物の含有量は、EVA 100 質量部に対して、1 ~ 10 質量部、特に 1 ~ 5 質量部であるのが好ましい。

【 0 0 3 1 】

20

EVA 含有接着樹脂層は、膜の種々の物性 (機械的強度、接着性、透明性等の光学的特性、耐熱性、耐光性、架橋速度等) の改良あるいは調整、特に機械的強度の改良のため、アクリロキシ基含有化合物、メタクリロキシ基含有化合物及び / 又はエポキシ基含有化合物を含んでいることが好ましい。

【 0 0 3 2 】

使用するアクリロキシ基含有化合物及びメタクリロキシ基含有化合物としては、一般にアクリル酸あるいはメタクリル酸誘導体であり、例えばアクリル酸あるいはメタクリル酸のエステルやアミドを挙げることができる。エステル残基の例としては、メチル、エチル、ドデシル、ステアリル、ラウリル等の直鎖状のアルキル基、シクロヘキシル基、テトラヒドフルフリル基、アミノエチル基、2 - ヒドロキシエチル基、3 - ヒドロキシプロピル基、3 - クロロ - 2 - ヒドロキシブオピル基を挙げることができる。また、エチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリエチレングリコール、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール等の多価アルコールとアクリル酸あるいはメタクリル酸のエステルも挙げることができる。アミドの例としては、ジアセトンアクリルアミドを挙げることができる。

30

【 0 0 3 3 】

多官能化合物 (架橋助剤) としては、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール等に複数のアクリル酸あるいはメタクリル酸をエステル化したエステル、さらに前述のトリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレートを挙げることができる。

40

【 0 0 3 4 】

エポキシ含有化合物としては、トリグリシジルトリス (2 - ヒドロキシエチル) イソシアヌレート、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、1, 6 - ヘキサンジオールジグリシジルエーテル、アリルグリシジルエーテル、2 - エチルヘキシルグリシジルエーテル、フェニルグリシジルエーテル、フェノール (エチレンオキシ)₅ グリシジルエーテル、p - t - ブチルフェニルグリシジルエーテル、アジピン酸ジグリシジルエステル、フタル酸ジグリシジルエステル、グリシジルメタクリレート、ブチルグリシジルエーテルを挙げることができる。

【 0 0 3 5 】

EVA 含有接着樹脂層の接着力をさらに高めるために、接着向上剤として、シランカッ

50

プリング剤を添加することができる。

【 0 0 3 6 】

このシランカップリング剤の例として、 γ -クロロプロピルメトキシシラン、ビニルエトキシシラン、ビニルトリス(γ -メトキシエトキシ)シラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、ビニルトリクロロシラン、 γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-(γ -アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシランを挙げることができる。これらシランカップリング剤は、単独で使用しても、又は2種以上組み合わせて使用しても良い。

10

【 0 0 3 7 】

前記可塑剤としては、特に限定されるものではないが、一般に多塩基酸のエステル、多価アルコールのエステルが使用される。その例としては、ジオクチルフタレート、ジヘキシルアジペート、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、ブチルセバケート、テトラエチレングリコールジヘプタノエート、トリエチレングリコールジペラルゴネートを挙げることができる。可塑剤は一種用いてもよく、二種以上組み合わせて使用しても良い。可塑剤の含有量は、EVA100質量部に対して5質量部以下の範囲が好ましい。

20

【 0 0 3 8 】

EVA含有接着樹脂層は、例えば、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、EVA及び有機過酸化物等を含む組成物を、通常の押出成形、カレンダー成形(カレンダーリング)等により成形して層状物を得る方法により製造することができる。

【 0 0 3 9 】

組成物の混合は、40~90、特に60~80の温度で加熱混練することにより行うのが好ましい。また、製膜時の加熱温度は、架橋剤が反応しない或いはほとんど反応しない温度とすることが好ましい。例えば、40~90、特に50~80とするのが好ましい。

【 0 0 4 0 】

また、上記含む組成物を有機溶剤に溶解させ、この溶液を適当な塗布機(コーター)で適当な支持体上に塗布、乾燥して塗膜を形成することにより層状物を得ることもできる。

30

【 0 0 4 1 】

接着樹脂層の厚さは、好ましくは0.1~100 μ m、より好ましくは0.5~10 μ m、特に好ましくは0.5~5 μ mである。このように薄い層であっても高い変色防止効果を発揮することができる。

【 0 0 4 2 】

(熱線遮蔽層)

本発明の機能性フィルムは、タングステン化合物からなる熱線遮蔽剤を含有する熱線遮蔽層を有する。タングステン化合物としては、近赤外線を効率よくカットできることから、タングステン酸化物及び/又は複合タングステン酸化物が好ましい。

40

【 0 0 4 3 】

タングステン酸化物は、一般式 W_yO_z (但し、Wはタングステン、Oは酸素、 $2 \leq z/y \leq 2.999$)で表される酸化物である。また、複合タングステン酸化物は、上記タングステン酸化物に、元素M(但し、Mは、H、He、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類元素、Mg、Zr、Cr、Mn、Fe、Ru、Co、Rh、Ir、Ni、Pd、Pt、Cu、Ag、Au、Zn、Cd、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、Sb、B、F、P、S、Se、Br、Te、Ti、Nb、V、Mo、Ta、Re、Be、Hf、Os、Bi、Iのうちから選択される1種類以上の元素)を添加した組成を有するものである。これにより、 $z/y = 3.0$ の場合も含めて、 W_yO_z 中に自由電

50

子が生成され、近赤外線領域に自由電子由来の吸収特性が発現し、1000nm付近の近赤外線吸収材料として有効となる。本発明では、複合タングステン酸化物が好ましい。

【0044】

上述した一般式 $WyOz$ （但し、Wはタングステン、Oは酸素、 $2.2 \leq z/y \leq 2.999$ ）で表記されるタングステン酸化物において、タングステンと酸素との好ましい組成範囲は、タングステンに対する酸素の組成比が3よりも少なく、さらには、当該赤外線遮蔽材料を $WyOz$ と記載したとき、 $2.2 \leq z/y \leq 2.999$ である。この z/y の値が、2.2以上であれば、赤外線遮蔽材料中に目的以外である WO_2 の結晶相が現れるのを回避することが出来るとともに、材料としての化学的安定性を得ることが出来るので有効な赤外線遮蔽材料として適用できる。一方、この z/y の値が、2.999以下であれば必要とされる量の自由電子が生成され効率よい赤外線遮蔽材料となり得る。

10

【0045】

複合タングステン酸化物は、安定性の観点から、一般に、 $MxWyOz$ （但し、Mは、H、He、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類元素、Mg、Zr、Cr、Mn、Fe、Ru、Co、Rh、Ir、Ni、Pd、Pt、Cu、Ag、Au、Zn、Cd、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、Sb、B、F、P、S、Se、Br、Te、Ti、Nb、V、Mo、Ta、Re、Be、Hf、Os、Bi、Iのうちから選択される1種類以上の元素、Wはタングステン、Oは酸素、 $0.001 \leq x/y \leq 2.2 \leq z/y \leq 3$ ）で表される酸化物であることが好ましい。アルカリ金属は、水素を除く周期表第1族元素、アルカリ土類金属は周期表第2族元素、希土類元素は、Sc、Y及びランタノイド元素である。特に、赤外線遮蔽材料としての光学特性、耐候性を向上させる観点から、M元素がCs、Rb、K、Tl、In、Ba、Li、Ca、Sr、Fe、Snのうちの1種類以上であるものが好ましい。

20

【0046】

また、複合タングステン酸化物は、シランカップリング剤で処理されていることが好ましい。優れた分散性が得られ、優れた赤外線カット機能、透明性が得られる。

【0047】

元素Mの添加量を示す x/y の値が0.001より大きければ、十分な量の自由電子が生成され赤外線遮蔽効果を十分に得ることが出来る。元素Mの添加量が多いほど、自由電子の供給量が増加し、赤外線遮蔽効果も上昇するが、 x/y の値が1程度で飽和する。また、 x/y の値が1より小さければ、熱線遮蔽層中に不純物相が生成されるのを回避できるので好ましい。

30

【0048】

酸素量の制御を示す z/y の値については、 $MxWyOz$ で表記される複合タングステン酸化物においても、上述の $WyOz$ で表記される赤外線遮蔽材料と同様の機構が働くことに加え、 $z/y = 3.0$ においても、上述した元素Mの添加量による自由電子の供給があるため、 $2.2 \leq z/y \leq 3.0$ が好ましく、さらに好ましくは $2.45 \leq z/y \leq 3.0$ である。

【0049】

さらに、複合タングステン酸化物が六方晶の結晶構造を有する場合、当該酸化物の可視光領域の透過が向上し、近赤外領域の吸収が向上する。

40

【0050】

この六角形の空隙に元素Mの陽イオンが添加されて存在するとき、可視光領域の透過が向上し、近赤外領域の吸収が向上する。ここで、一般的には、イオン半径の大きな元素Mを添加したとき当該六方晶が形成され、具体的には、Cs、K、Rb、Tl、In、Ba、Sn、Li、Ca、Sr、Feを添加したとき六方晶が形成されやすい。勿論これら以外の元素でも、 WO_6 単位で形成される六角形の空隙に添加元素Mが存在すれば良く、上記元素に限定される訳ではない。

【0051】

六方晶の結晶構造を有する複合タングステン酸化物が均一な結晶構造を有するとき、添

50

加元素Mの添加量は、 x/y の値で0.2以上0.5以下が好ましく、更に好ましくは0.33である。 x/y の値が0.33となることで、添加元素Mが、六角形の空隙の全てに配置されると考えられる。

【0052】

また、六方晶以外では、正方晶、立方晶のタングステンブロンズも赤外線遮蔽効果がある。そして、これらの結晶構造によって、近赤外線領域の吸収位置が変化する傾向があり、立方晶<正方晶<六方晶の順に、吸収位置が長波長側に移動する傾向がある。また、それに付随して可視光線領域の吸収が少ないのは、六方晶<正方晶<立方晶の順である。このため、より可視光領域の光を透過して、より赤外線領域の光を遮蔽する用途には、六方晶のタングステンブロンズを用いることが好ましい。

10

【0053】

本発明で使用する熱線遮蔽剤の平均粒子径は、透明性を保持する観点から、10~800nm、特に10~400nmであるのが好ましい。これは、800nmよりも小さい粒子は、散乱により光を完全に遮蔽することが無く、可視光線領域の視認性を保持し、同時に効率良く透明性を保持することができるからである。特に可視光領域の透明性を重視する場合は、さらに粒子による散乱を考慮することが好ましい。この粒子による散乱の低減を重視するとき、平均粒子径は20~200nm、特に20~100nmが好ましい。なお、熱線遮蔽剤の平均粒子径は、熱線遮蔽層の断面を透過型電子顕微鏡により倍率100万倍程度で観測し、少なくとも100個の熱線遮蔽剤の面積円相当径を求めた数平均値とする。

20

【0054】

熱線遮蔽層における熱線遮蔽剤の含有量は、後記するバインダ樹脂100質量部に対して、10~500質量部、さらに20~500質量部、特に30~300質量部であるのが好ましい。

【0055】

また、本発明の複合タングステン酸化物の表面が、Si、Ti、Zr、Alの一種類以上を含有する酸化物で被覆されていることは、耐候性の向上の観点から好ましい。

【0056】

本発明の複合タングステン酸化物は、例えば下記のようにして製造される。

【0057】

上記一般式 W_yO_z で表記されるタングステン酸化物、及び/又は、 $M \times W_yO_z$ で表記される複合タングステン酸化物は、タングステン化合物出発原料を不活性ガス雰囲気もしくは還元性ガス雰囲気中で熱処理して得ることができる。

30

【0058】

タングステン化合物出発原料には、3酸化タングステン粉末、もしくは酸化タングステンの水和物、もしくは、6塩化タングステン粉末、もしくはタングステン酸アンモニウム粉末、もしくは、6塩化タングステンをアルコール中に溶解させた後乾燥して得られるタングステン酸化物の水和物粉末、もしくは、6塩化タングステンをアルコール中に溶解させたのち水を添加して沈殿させこれを乾燥して得られるタングステン酸化物の水和物粉末、もしくはタングステン酸アンモニウム水溶液を乾燥して得られるタングステン化合物粉末、金属タングステン粉末から選ばれたいずれか一種類以上であることが好ましい。

40

【0059】

ここで、タングステン酸化物を製造する場合には製造工程の容易さの観点より、タングステン酸化物の水和物粉末、もしくはタングステン酸アンモニウム水溶液を乾燥して得られるタングステン化合物粉末、を用いることがさらに好ましく、複合タングステン酸化物を製造する場合には、出発原料が溶液であると各元素を容易に均一混合可能となる観点より、タングステン酸アンモニウム水溶液や、6塩化タングステン溶液を用いることがさらに好ましい。これら原料を用い、これを不活性ガス雰囲気もしくは還元性ガス雰囲気中で熱処理して、上述した粒径のタングステン酸化物、または/及び、複合タングステン酸化物を得ることができる。

50

【0060】

また、上記元素Mを含む一般式 $M \times W y O z$ で表される複合タングステン酸化物は、上述した一般式 $W y O z$ で表されるタングステン酸化物のタングステン化合物出発原料と同様であり、さらに元素Mを、元素単体または化合物の形で含有するタングステン化合物を出発原料とする。ここで、各成分が分子レベルで均一混合した出発原料を製造するためには各原料を溶液で混合することが好ましく、元素Mを含むタングステン化合物出発原料が、水や有機溶媒等の溶媒に溶解可能なものであることが好ましい。例えば、元素Mを含有するタングステン酸塩、塩化物塩、硝酸塩、硫酸塩、シュウ酸塩、酸化物、等が挙げられるが、これらに限定されず、溶液状になるものであれば好ましい。

【0061】

10

ここで、不活性雰囲気中における熱処理条件としては、650 以上が好ましい。650 以上で熱処理された出発原料は、十分な着色力を有し熱線遮蔽剤として効率が良い。不活性ガスとしてはAr、N₂等の不活性ガスを用いることが良い。また、還元性雰囲気中の熱処理条件としては、まず出発原料を還元性ガス雰囲気中にて100～650 で熱処理し、次いで不活性ガス雰囲気中で650～1200 の温度で熱処理することが良い。この時の還元性ガスは、特に限定されないがH₂が好ましい。また還元性ガスとしてH₂を用いる場合は、還元雰囲気の組成として、H₂が体積比で0.1%以上が好ましく、さらに好ましくは2%以上が良い。0.1%以上であれば効率よく還元を進めることができる。

【0062】

20

水素で還元された原料粉末はマグネリ相を含み、良好な赤外線遮蔽特性を示し、この状態で熱線遮蔽剤として使用可能である。しかし、酸化タングステン中に含まれる水素が不安定であるため、耐候性の面で応用が限定される可能性がある。そこで、この水素を含む酸化タングステン化合物を、不活性雰囲気中、650 以上で熱処理することで、さらに安定な熱線遮蔽剤を得ることができる。この650 以上の熱処理時の雰囲気は特に限定されないが、工業的観点から、N₂、Arが好ましい。当該650 以上の熱処理により、熱線遮蔽剤中にマグネリ相が得られ耐候性が向上する。

【0063】

本発明の複合タングステン酸化物は、シランカップリング剤、チタネート系カップリング剤、アルミニウム系カップリング剤等のカップリング剤で表面処理されていることが好ましい。シランカップリング剤が好ましい。これによりバインダ樹脂との親和性が良好となり、透明性、熱線カット性の他、各種物性が向上する。

30

【0064】

シランカップリング剤の例として、
 - クロロプロピルメトキシシラン、ビニルエトキシシラン、ビニルトリス(-メトキシエトキシ)シラン、
 - メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、
 - グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 - グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 - (3,4-エポキシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、ビニルトリクロロシラン、
 - メルカプトプロピルトリメトキシシラン、
 - アミノプロピルトリエトキシシラン、N-
 - (アミノエチル)-
 - アミノプロピルトリメトキシシラン、トリメトキシアクリルシランを挙げることができる。ビニルトリス(-メトキシエトキシ)シラン、
 - メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、トリメトキシアクリルシランが好ましい。これらシランカップリング剤は、単独で使用しても、又は2種以上組み合わせて使用しても良い。また上記化合物の含有量は、複合タングステン酸化物100質量部に対して5～20質量部で使用する事が好ましい。

40

【0065】

熱線遮蔽層に用いられるバインダ樹脂としては、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、オレフィン樹脂、ポリエステル樹脂、及びアクリル樹脂等を挙げることができ、フッ素樹脂、シリコーン樹脂、アクリル樹脂が好ましい。

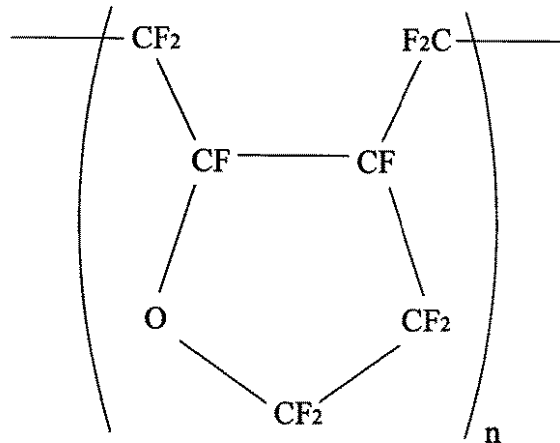
【0066】

50

フッ素樹脂の例としては、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、テトラフルオロエチレン・ヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）、テトラフルオロエチレン・パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（PFA）、ポリビニリデンフルオライド（PVDF）、ポリクロロトリフルオロエチレン（PCTFE）、テトラフルオロエチレン・エチレン共重合体（ETFE）、フルオロエチレンビニルエーテル（FEVE）及びエチレンクロロトリフルオロエチレン共重合体（ECTFE）、下記構造：

【0067】

【化2】



（ $n = 10 \sim 1000$ ）

を有する重合体Aを挙げることができる。これらの中で、上記重合体A、フルオロエチレンビニルエーテル（FEVE）が好ましい。これらの（共）重合体は、さらに官能基（例、アルコキシシリル基、ヒドロキシ基、アミノ基、イミノ基、（メタ）アクリロイロキシ基、エポキシ基、カルボキシ基、スルホニル基、アクリレート型イソシアヌレート基、硫酸塩基）を有していても良い。市販されているフッ素樹脂の好ましい例としては、サイトップ（旭硝子（株）製）、ゼッフル（ダイキン化学（株）製）、オブツール（ダイキン化学（株）製）を挙げることができる。

【0068】

シリコーン樹脂の例としては、ストレートシリコーンワニス及び変性シリコーンワニスを挙げることができる。ストレートシリコーンワニスは、通常、フェニルトリクロロシラン、ジフェニルジクロロシラン、メチルトリクロロシラン、ジメチルジクロロシランの加水分解重合により製造される（使用時は、一般に塗布後、100以上で硬化される）。変性シリコーンワニスは、シリコーンワニスにアルキド、ポリエステル、アクリル、エポキシ等の樹脂を反応させたものである。市販されているシリコーン樹脂の好ましい例としては、シリコーンワニスKRシリーズ（信越化学（株）製）を挙げることができる。

【0069】

オレフィン樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、塩素化ポリエチレン等を挙げることができる。

【0070】

アクリル樹脂のモノマーとしては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、*t*-ブチル（メタ）アクリレート、ペンチル（メタ）アクリレート、アミル（メタ）アクリレート、イソアミル（メタ）アクリレート、ヘキシル（メタ）アクリレート、ヘプチル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、エチルヘキシル（メタ）

) アクリレート、ノニル(メタ)アクリレート、デシル(メタ)アクリレート、イソデシル(メタ)アクリレート、ウンデシル(メタ)アクリレート、ドデシル(メタ)アクリレート、ラウリル(メタ)アクリレート、ステアリル(メタ)アクリレート、イソステアリル(メタ)アクリレート等のアルキル(メタ)アクリレート；ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、3-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、3-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート等のヒドロキシアルキル(メタ)アクリレート、；フェノキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピル(メタ)アクリレート等のフェノキシアルキル(メタ)アクリレート；2-メトキシエチル(メタ)アクリレート、2-エトキシエチル(メタ)アクリレート、2-プロポキシエチル(メタ)アクリレート、2-ブトキシエチル(メタ)アクリレート、2-メトキシブチル(メタ)アクリレート等のアルコキシアルキル(メタ)アクリレート；ポリエチレングリコールモノ(メタ)アクリレート、エトキシジエチレングリコール(メタ)アクリレート、メトキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート、ノニルフェノキシポリエチレングリコール(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールモノ(メタ)アクリレート、メトキシポリプロピレングリコール(メタ)アクリレート、エトキシポリプロピレングリコール(メタ)アクリレート、ノニルフェノキシポリプロピレングリコール(メタ)アクリレート等のポリアルキレングリコール(メタ)アクリレート；ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールペンタ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート、グリセリンジ(メタ)アクリレート等を挙げることができる。アクリル樹脂は、これらのモノマーの単独重合体又は2種以上の共重合体、前記モノマーと他の共重合性単量体との共重合体を挙げることができる。

10

20

【0071】

(メタ)アクリレートモノマーとの共重合に使用される他の共重合性単量体としては、上記(メタ)アクリレート化合物と共重合可能な化合物であれば特に制限はなく、例えば(メタ)アクリル酸、ビニル安息香酸、マレイン酸、ビニルフタル酸等の不飽和カルボン酸類；ビニルベンジルメチルエーテル、ビニルグリシジルエーテル、スチレン、-メチルスチレン、ブタジエン、イソブレン等のビニル基含有ラジカル重合性化合物を挙げることができる。特にアクリル酸が接着性が良好であり、好ましい。上記(メタ)アクリレートモノマー由来の共重合成分は、一般に70質量%以上、さらに90質量%以上であることが好ましい。

30

【0072】

熱線遮蔽層に用いられる上述したバインダ樹脂は、熱可塑性、熱硬化型、又は光(一般に紫外線)硬化型の樹脂である。硬化させる際は、重合開始剤を使用することが好ましい。例えば、熱硬化させる場合には熱重合開始剤を使用し、紫外線硬化させる場合は、光重合開始剤、重合性モノマー、重合性オリゴマー等を使用することが好ましい。

【0073】

熱重合開始剤としては、t-ブチルヒドロパーオキシド、ジ-t-ブチルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、ベンゾイルパーオキシド、ジミリスチルパーオキシジカーボネート、t-ブチルパーオキシアセテート、t-ブチルパーオキシ(2-エチルヘキサノエート)、クミルパーオキシオクトエートなどの有機過酸化物、アゾビスイソブチロニトリル、アゾビスシクロヘキサニトリルなどのアゾ化合物などを挙げられる。

40

【0074】

光重合開始剤としては、樹脂の性質に適した任意の化合物を使用することができる。例えば、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-メチル-1-(4-(メチルチオ)フェニル)-2-モルホリノプロパン-1などのアセトフェノン系、ベンジルジメチルケタールなどのベンゾイン系、ベンゾフェノン、4-フェニルベンゾフェノン、ヒドロキシベンゾフェノン

50

などのベンゾフェノン系、イソプロピルチオキサントン、2-4-ジエチルチオキサントンなどのチオキサントン系、その他特殊なものとしては、メチルフェニルグリオキシレートなどが使用できる。特に好ましくは、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、2-メチル-1-(4-(メチルチオ)フェニル)-2-モルホリノプロパン-1、ベンゾフェノン等が挙げられる。これら光重合開始剤は、必要に応じて、4-ジメチルアミノ安息香酸のごとき安息香酸系又は、第3級アミン系などの公知慣用の光重合促進剤の1種または2種以上を任意の割合で混合して使用することができる。また、光重合開始剤は、1種単独でまたは2種以上の混合で使用することができる。特に1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(チバ・スペシャリティケミカルズ社製、イルガキュア184)が好ましい。

10

【0075】

光重合開始剤の量は、光硬化性樹脂組成物に対して一般に0.1~10質量%、好ましくは0.1~5質量%である。

【0076】

重合性モノマー、オリゴマーとしては、例えば、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシルポリエトキシ(メタ)アクリレート、ベンジル(メタ)アクリレート、イソボルニル(メタ)アクリレート、フェニルオキシエチル(メタ)アクリレート、トリシクロデカンモノ(メタ)アクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチル(メタ)アクリレート、テトラヒドロフルフリル(メタ)アクリレート、アクリロイルモルホリン、N-ビニルカプロラクタム、2-ヒドロキシ-3-フェニルオキシプロピル(メタ)アクリレート、o-フェニルフェニルオキシエチル(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジプロポキシジ(メタ)アクリレート、ヒドロキシピバリン酸ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、トリシクロデカンジメチロールジ(メタ)アクリレート、1,6-ヘキサンジオールジ(メタ)アクリレート、ノナンジオールジ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート、トリス[(メタ)アクリロキシエチル]イソシアヌレート、ジトリメチロールプロパントテトラ(メタ)アクリレート等の(メタ)アクリレートモノマー類；ポリオール化合物(例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,6-ヘキサンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、1,9-ノナンジオール、2-エチル-2-ブチル-1,3-プロパンジオール、トリメチロールプロパン、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、1,4-ジメチロールシクロヘキサン、ビスフェノールAポリエトキシジオール、ポリテトラメチレングリコール等のポリオール類、前記ポリオール類とコハク酸、マレイン酸、イタコン酸、アジピン酸、水添ダイマー酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸等の多塩基酸又はこれらの酸無水物類との反応物であるポリエステルポリオール類、前記ポリオール類とε-カプロラクトンとの反応物であるポリカプロラクトンポリオール類、前記ポリオール類と前記、多塩基酸又はこれらの酸無水物類のε-カプロラクトンとの反応物、ポリカーボネートポリオール、ポリマーポリオール等)と有機ポリイソシアネート(例えば、トリレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアネート、ジシクロペンタニルジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、2,4,4'-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、2,2'-4-トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート等)と水酸基含有(メタ)アクリレート(例えば、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェニルオキシプロピル(メタ)アクリレート、シクロヘキサン-1,4-ジメチロールモノ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールペンタ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート、グリセリン

20

30

40

50

ジ(メタ)アクリレート等)の反応物であるポリウレタン(メタ)アクリレート、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂と(メタ)アクリル酸の反応物であるビスフェノール型エポキシ(メタ)アクリレート等の(メタ)アクリレートオリゴマー類等を挙げることができる。これら化合物は1種又は2種以上、混合して使用することができる。

【0077】

なかでも、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールペンタ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート等の硬質の多官能モノマーを主に使用することが好ましい。

【0078】

上述した熱線遮蔽層を作製するには、熱線遮蔽剤、バインダ樹脂、並びに必要な応じて重合開始剤(熱重合開始剤又は光重合開始剤)、重合性モノマー及びオリゴマーを、有機溶剤に分散させた組成物をプラスチックフィルムや接着樹脂層など別の層の上に塗布し硬化させる方法が用いられる。硬化は、加熱、又は紫外線、X線、 γ 線、電子線などの照射により行えばよい。

【0079】

熱線遮蔽層は、プラスチックフィルム上に形成されたものを用いる。熱線遮蔽層は、熱線遮蔽剤及びバインダ樹脂を少なくとも含む組成物をプラスチックフィルム上に塗布し硬化させることにより形成される。このようにして形成された熱線遮蔽層は、熱線カット性に優れ、タングステン化合物からなる熱線遮蔽剤を含んでいても変色による劣化を高く抑制できる。

【0080】

プラスチックフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム、ポリエチレンアフタレート(PEN)フィルム、ポリエチレンブチレートフィルムを挙げることができ、PETフィルムが好ましい。プラスチックフィルムの厚さは、10~400 μ m、特に20~200 μ mであるのが好ましい。

【0081】

また、プラスチックフィルム表面には、接着性を向上させるために、予めコロナ処理、プラズマ処理、火炎処理、プライマー層コート処理などの易接着処理を施してもよい。

【0082】

組成物に用いられる有機溶剤としては、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル類、イソプロピルアルコール等のアルコール類を挙げることができる。

【0083】

熱線遮蔽層に用いられるバインダ樹脂としては、上述したものの他にも、エチレン酢酸ビニル共重合体(EVA)、及びポリビニルブチラル(PVB)が用いられ、EVAが好ましく用いられる。EVAを含有する熱線遮蔽層は、有機過酸化物を含有しており、さらに必要な応じて架橋助剤、接着向上剤、可塑剤等の種々の添加剤を含有させることができる。熱線遮蔽層に用いられるEVAの酢酸ビニル含有率及びメルト・フロー・インデックス(MFR)、さらにその他の添加剤については、上述した接着樹脂層と同様である。

【0084】

熱線遮蔽層の厚さは、0.1~5000 μ m、特に1~10 μ mであるのが好ましい。

【0085】

本発明の機能性フィルムは、少なくとも熱線遮蔽層を有し、必要な応じて接着樹脂層、ハードコート層、反射防止層、プラスチックフィルムなどの別の層をさらに有していてもよい。別の層の少なくとも1層、特に接着樹脂層がベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含有するのが好ましい。これらの層の積層順序及び積層数は、機能性フィルムの用途に合わせて決定すればよい。例えば、下記の構成(A)~(E)が好ましく挙げられる。

【0086】

熱線遮蔽層、及び接着樹脂層がこの順で積層された構成(A)

接着樹脂層、熱線遮蔽層、及び接着樹脂層がこの順で積層された構成（Ｂ）

接着樹脂層、プラスチックフィルム、及び熱線遮蔽層がこの順で積層された構成（Ｃ）

接着樹脂層、プラスチックフィルム、熱線遮蔽層、及び接着樹脂層がこの順で積層された構成（Ｄ）

接着樹脂層、熱線遮蔽層、及びハードコート層がこの順で積層された構成（Ｅ）

接着樹脂層、熱線遮蔽層、プラスチックフィルム、及びハードコート層がこの順で積層された構成（Ｆ）

ハードコート層は、耐傷付き防止性を付与するための層であり、従来公知のものを使用することができる。なお、本発明において、ハードコート層とは、ＪＩＳ５６００－５－４（１９９９）で規定される鉛筆硬度試験でＨ以上の硬度を有するものをいう。具体的には、アクリル樹脂層、エポキシ樹脂層、ウレタン樹脂層、シリコン樹脂層等の合成樹脂を主成分とする層である。通常その厚さは１～５０μｍ、好ましくは１～１０μｍである。合成樹脂は、一般に熱硬化性樹脂、紫外線硬化性樹脂であり、紫外線硬化性樹脂が好ましい。紫外線硬化性樹脂は、短時間で硬化させることができ、生産性に優れているので好ましい。

10

【００８７】

反射防止層としては、屈折率の低い低屈折率層及び／又は屈折率の高い高屈折率層が挙げられる。反射防止層として、ハードコート層上に、（１）ハードコート層より屈折率の低い低屈折率層のみが形成されてもよく、（２）ハードコート層より屈折率の高い高屈折率層と、高屈折率層より屈折率の低い低屈折率層とがこの順で積層されて形成されてもよい。

20

【００８８】

（合わせガラス）

本発明の機能性フィルムは、高い熱線遮蔽性を有するとともに、変色による劣化が高く抑制され、優れた透明性を長期に亘り維持することができることから、合わせガラスとして用いるのが好ましい。

【００８９】

本発明の機能性フィルムを用いた合わせガラスは、２枚の透明基材の間に中間膜が挟持され、これらが接着一体化されてなる合わせガラスであって、前記中間膜として上述した本発明の機能性フィルムを用いたものが挙げられる。

30

【００９０】

このような合わせガラスにおいて、上記構成（Ｂ）又は（Ｄ）、特に上記構成（Ｄ）を有する機能性フィルムが好ましく用いられる。例えば、上記構成（Ｄ）の機能性フィルムを用いた合わせガラスは、図１に示すように、接着樹脂層１２０Ａ、プラスチックフィルム１３０、熱線遮蔽層１４０、及び接着樹脂層１２０Ｂがこの順で積層された機能性フィルム（中間膜）が、二枚の透明基材１１０Ａ及び１１０Ｂの間に挟持され、これらが接着一体化された構成を有する。

【００９１】

本発明の合わせガラスを航空機、自動車のフロントガラスやサイドガラス、又は建築物などの窓ガラスとして使用する場合、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤を含む別の層（好ましくは接着樹脂層）を室外側に配置し、熱線遮蔽層を室内側に配置するようにして、合わせガラスを使用するのが好ましい。これにより、高い変色防止効果を発揮することができる。

40

【００９２】

本発明の機能性フィルムを用いた合わせガラスを作製するには、機能性フィルムに用いられる各層を作製し、これらを積層することにより得られた機能性フィルムを２枚の透明基板の間に挟持して積層体を得た後、この積層体を加熱圧着する手段などが用いられる。加熱圧着することにより、機能性フィルムと透明基板とを接着一体化することができる。

【００９３】

加熱圧着は、例えば８０～１２０の温度で予備圧着し、１００～１５０（特に１３

50

0 付近)で10分～1時間加熱処理することにより行われる。また、加熱処理は加圧下で行ってもよい。

【0094】

なお、本発明において、合わせガラスにおける「ガラス」とは透明基板全般を意味するものであり、したがって「合わせガラス」とは透明基板に中間膜を挟持してなるものを意味する。

【0095】

本発明の合わせガラスに用いられる透明基材は、特に限定されないが、例えば珪酸塩ガラス、無機ガラス板、無着色透明ガラス板などのガラス板の他、プラスチックフィルムを用いてもよい。前記プラスチックフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム、ポリエチレンアフタレート(PEN)フィルム、ポリエチレンブチレートフィルムを挙げることができ、PETフィルムが好ましい。透明基板の厚さは、1～20mm程度が一般的である。

10

【0096】

合わせガラスにおいて中間膜の両側に配置されるそれぞれの透明基板は、同一の透明基板を用いてもよく、異なる透明基板を組み合わせて用いてもよい。透明基板の強度と合わせガラスの用途とを考慮して、透明基板の組み合わせを決定するのが好ましい。

【0097】

本発明の合わせガラスにおける透明基板が、一方がガラス板で、他方がプラスチックフィルムである場合、耐衝撃性、耐貫通性、透明性等において適度な性能を有するように設計することもできる。このため、例えば各種車体、ビル等に装備される窓ガラス等のガラス、又はショーケース、ショーウィンド等のガラスに使用することができる。

20

【0098】

また、透明基板が共にガラス板の場合は、特に優れた耐衝撃性、向上した耐貫通性を示すように設計することができ、合わせガラスを含む種々な用途に使用することができる。

【0099】

一方がプラスチックフィルムの合わせガラス、例えば自動車のサイドガラス及び嵌め込みガラスの場合、フロントガラス程の厚さは必要としないため、プラスチックフィルムの厚さは、0.02～2mmの範囲が一般的であり、0.02～1.2mmの範囲が好ましい。中間膜及びプラスチックフィルムの厚さは、当該ガラスを使用する場所等に応じて変えることができる。

30

【0100】

本発明で使用されるガラス板は、通常珪酸塩ガラスである。ガラス板厚は、フィルム強化ガラスの場合、それを設置する場所等により異なる。例えば、自動車のサイドガラス及び嵌め込みガラスに使用する場合、フロントガラスのように厚くする必要はなく、0.1～10mmが一般的であり、0.3～5mmが好ましい。前記1枚のガラス板1は、化学的に、或いは熱的に強化させたものである。

【0101】

自動車のフロントガラス等に適当な両方がガラス板である合わせガラスの場合は、ガラス板の厚さは、0.5～10mmが一般的であり、1～8mmが好ましい。

40

【0102】

(ディスプレイ用光学フィルタ)

本発明の機能性フィルムは、高い熱線遮蔽性を有するとともに、変色による劣化が高く抑制され、優れた透明性を長期に亘り維持することができることから、ディスプレイ用光学フィルタにも好適に用いられる。

【0103】

本発明の機能性フィルムを用いたディスプレイ用光学フィルタとしては、透明基材上に、本発明の機能性フィルムが積層された構成などが好ましく挙げられる。前記透明基材上には、所定のパターン状、好ましくはメッシュ状の電磁波シールド層が形成されているのが好ましい。

50

【0104】

このようなディスプレイ用光学フィルタにおいて、上記構成(A)、(C)、(E)及び(F)を有する機能性フィルムが好ましく用いられる。この時、接着樹脂層が透明基材側となるようにして機能性フィルムが配置されるのが好ましい。

【0105】

透明基材上に形成される電磁波シールド層は、金属を含み導電性を有する層である。例えば、(1)銅などの金属からなるもの、(2)バインダ樹脂中に導電性粒子を分散させたもの、等を挙げることができる。電磁波シールド層におけるメッシュパターンの形状には特に制限はなく、例えば四角形の開口部が形成された格子状や、円形、六角形、三角形又は楕円形の開口部が形成されたパンチングメタル状などが挙げられる。また、開口部は規則的に並んだものに限らず、ランダムパターンとしても良い。

10

【0106】

ディスプレイ用光学フィルタに用いられる透明基材としては、透明度及び可とう性を備え、その後の処理に耐えるものであれば特に制限はない。透明基材の材質としては、例えば、ガラス、ポリエステル(例、ポリエチレンテレフタレート、(PET)、ポリブチレンテレフタレート)、アクリル樹脂(例、ポリメチルメタクリレート(PMMA))、ポリカーボネート(PC)、ポリスチレン、セルローストリアセテート、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリビニルブチラル、金属イオン架橋エチレン-メタクリル酸共重合体、ポリウレタン、セロファン等を挙げることができる、これらの中で、加工処理(加熱、溶剤、折り曲げ)による劣化が少なく、透明性の高い材料であるPET、PC、PMMAが好ましい。なかでも、安価であり優れた耐久性を有することから、PETであるのが好ましい。透明基材は、これらの材質からなるシート、フィルム、または板として用いられる。前記透明基材の厚さは、特に制限されないが、6~250 μ m、特に6~150 μ m程度であるのが好ましい。

20

【0107】

ディスプレイ用フィルタは、特に制限されないが、ディスプレイの画像表示ガラス板の表面に透明粘着層を介して貼合する等の手段を用いて、ディスプレイに適用できる。このようなディスプレイとしては、表面電界型ディスプレイ(SED)を含む電界放出型ディスプレイ(FED)、液晶ディスプレイ(LCD)、プラズマディスプレイパネル(PDP)、ELディスプレイ等のフラットパネルディスプレイ(FPD)、及びCRTディスプレイなどが挙げられる。

30

【実施例】

【0108】

以下、本発明を実施例により説明する。本発明は、以下の実施例により制限されるものではない。

【0109】

(実施例1)

1. 熱線遮蔽層の作製

下記の配合を原料として含む熱線遮蔽層形成用塗布液を調製し、ポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム(厚さ100mm)上にバーコータにより塗布し、80℃で1分間乾燥させた後、照射線量500mJ/m²で1秒間紫外線を照射することにより熱線遮蔽層(厚さ3 μ m)を作製した。

40

【0110】

配合；

ペンタエリスリトールトリアクリレート100質量部

光重合開始剤(イルガキュア184)4質量部

セシウムタングステン酸化物(Cs_{0.33}WO₃)30質量部

メチルイソブチルケトン100質量部

【0111】

50

2. 接着樹脂層の作製

下記の配合を原料としてカレンダー成形法により接着樹脂層（厚さ1.0 mm）を製膜した。なお、配合物の混練は80 で15分行い、またカレンダーロールの温度は80 、加工速度は5 m / 分であった。

【0112】

配合；

EVA（EVA100質量部に対する酢酸ビニルの含有量25質量部、東ソー株式会社製 ウルトラセン635）100質量部、

架橋剤（tert - ブチルパ - オキシ2 - エチルヘキシルカーボネート；化薬アクゾ株式会社製 トリゴノックス117）2.5質量部、

架橋助剤（トリアリルイソシアヌレート；日本化成株式会社 TAIC（登録商標））2質量部、

シランカップリング剤（ - メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン；信越化学株式会社製、KBM503）0.5質量部

紫外線吸収剤A（2, 2' - ジヒドロキシ - 4, 4' - ジメトキシベンゾフェノン；BAS F社製 ユビナール3049）0.5質量部

【0113】

3. 合わせガラスの作製

上記で作製した接着樹脂層及び熱線遮蔽層を用いて、これらを接着樹脂層 / PETフィルム / 熱線遮蔽層 / 接着樹脂層の順で積層した。これにより得られた機能性フィルムをさらに二枚のガラス基材（厚さ3 mm）で挟持し、100 で30分間加熱することにより仮圧着を行った後、オートクレーブ中で圧力 1.3×10^5 Pa、温度140 の条件で30分間加熱した。これにより、接着樹脂層を硬化させて、透明基材と各層間が接着一体化された合わせガラスを得た。

【0114】

（実施例2～4、及び比較例1～6）

下記の紫外線吸収剤B、C及びDをさらに用い、配合を表1に示す通りに変更して接着樹脂層の作製を行った以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。

【0115】

紫外線吸収剤B（2 - ヒドロキシ - 4 - n - オクチルオキシベンゾフェノン；住友化学製 スミソープ130）

紫外線吸収剤C（2 - （3' - tert - ブチル - 5' - メチル - 2' - ヒドロキシフェニル） - 5 - クロロベンゾトリアゾール；チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製 チヌビン326）

紫外線吸収剤D（2 - （3 - ドデシル - 5 - メチル - 2 - ヒドロキシフェニル）ベンゾトリアゾール；チバ・スペシャリティケミカルズ社製 チヌビン571）

（評価）

1. 紫外線カット性の変化（促進耐候性試験）

上記で作製した各合わせガラスに、促進耐候性試験機（スーパーUVテスターSUV - F11、岩崎電気（株）製）を用いて、温度63 の雰囲気下、波長295～450 nmの紫外線を100 mW / cm²の強度で200時間照射した。紫外線照射前後の合わせガラスの紫外線（波長400 nm）の透過率を、分光光度計（株式会社日立製作所製 U - 4000）を用いて測定した。結果を表1に示す。

【0116】

2. 色調の変化（促進耐候性試験）

上記で作製した各合わせガラスに、促進耐候性試験機（スーパーUVテスターSUV - F11、岩崎電気（株）製）を用いて、温度63 の雰囲気下、波長295～450 nmの紫外線を100 mW / cm²の強度で200時間照射した。紫外線照射前後の合わせガラスの変色の有無を蛍光灯下で目視により評価した。結果を表1に示す。

【0117】

【表 1】

粘着剤層	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
EVA	100	100	100	100	100	100
架橋剤	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
架橋助剤	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
シランカップリング剤	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
紫外線吸収剤 A* ¹	0.5	0.75	1.0	0	0	0
紫外線吸収剤 B* ²	0	0	0	3.0	0	0
紫外線吸収剤 C* ³	0	0	0	0	0.8	0
紫外線吸収剤 D* ⁴	0	0	0	0	0	3.0
UV200時間照射前 波長400nmの紫外線の透過率 [%]	0.5	0.2	0.1	0.9	0.3	2.5
UV200時間照射後 波長400nmの紫外線の透過率 [%]	0.5	0.2	0.1	0.9	1.5	1.2
UV200時間照射前後 変色の有無	無し	無し	無し	無し	有り (青変)	有り (黄変)

* 1 : 紫外線吸収剤 A (2, 2' -ジヒドロキシ-4, 4' -ジメトキシベンゾフェノン)

* 2 : 紫外線吸収剤 B (2-ヒドロキシ-4-n-オクチルオキシベンゾフェノン)

* 3 : 紫外線吸収剤 C (2- (3-t-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール)

* 4 : 紫外線吸収剤 D (2- (3-ドデシル-5-メチル-2-ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール)

【0118】

このように本発明の機能性フィルムを用いた合わせガラスでは、長時間に亘る紫外線照射後であっても変色の発生が高く防止されていることがわかる。このような効果は、長時

10

20

30

40

50

間に亘り紫外線の透過を高くカットすることができ、タングステン化合物の酸化劣化を抑制できることにより得られると考えられる。

【図面の簡単な説明】

【 0 1 1 9 】

【図 1】本発明の機能性フィルムを用いた合わせガラスの断面図を示す。

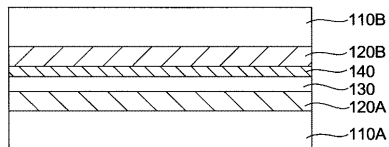
【符号の説明】

【 0 1 2 0 】

- 1 1 0 A、1 1 0 B 透明基材、
- 1 2 0 A、1 2 0 B 接着樹脂層、
- 1 3 0 プラスチックフィルム、
- 1 4 0 熱線遮蔽層。

10

【図 1】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開平 1 1 - 2 4 2 2 4 7 (J P , A)
特開 2 0 0 8 - 0 7 4 0 9 7 (J P , A)
特開 2 0 0 7 - 3 1 4 3 7 3 (J P , A)
特開 2 0 0 7 - 0 2 1 9 9 8 (J P , A)
特開 2 0 0 9 - 0 6 2 4 1 1 (J P , A)
特開昭 5 6 - 0 3 2 3 5 2 (J P , A)
特開 2 0 0 8 - 2 0 0 9 2 4 (J P , A)
特開 2 0 0 8 - 1 0 1 1 1 1 (J P , A)
国際公開第 2 0 0 8 / 0 7 8 8 3 3 (W O , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0
C 0 3 C 2 7 / 0 0 - 2 9 / 0 0
C 0 9 D 1 / 0 0 - 1 0 / 0 0
 1 0 1 / 0 0 - 2 0 1 / 1 0
C 0 9 J 1 / 0 0 - 5 / 1 0
 9 / 0 0 - 2 0 1 / 1 0
G 0 2 B 5 / 2 0 - 5 / 2 8
G 0 9 F 9 / 0 0