



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 201700292 A

(43) 公開日：中華民國 106 (2017) 年 01 月 01 日

(21) 申請案號：105111160

(22) 申請日：中華民國 105 (2016) 年 04 月 08 日

(51) Int. Cl. : **B32B17/10 (2006.01)****B32B3/30 (2006.01)****C08J5/18 (2006.01)****B29C59/04 (2006.01)****C03C27/12 (2006.01)****B29L7/00 (2006.01)**

(30) 優先權：2015/04/10 日本

JP2015-081179

(71) 申請人：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：中山和彦 NAKAYAMA, KAZUHIKO (JP)；川手洋 KAWATE, HIROSHI (JP)；木

戶浩二 KIDO, KOJI (JP)；盛美智子 MORI, MICHIKO (JP)

(74) 代理人：閻啟泰；林景郁

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：14 項 圖式數：7 共 64 頁

(54) 名稱

層合玻璃用中間膜、層合玻璃、及層合玻璃用中間膜之製造方法

(57) 摘要

本發明之目的在於提供一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

本發明之層合玻璃用中間膜於至少一表面具有大量凹部，上述具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200nm 以上。

指定代表圖：

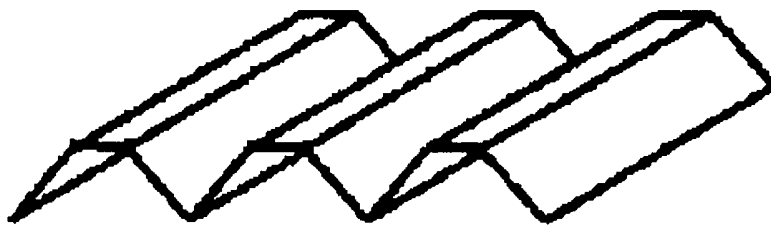


圖1

# 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、層合玻璃、及層合玻璃用中間膜之製造方法

## 【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

## 【先前技術】

【0002】 於兩片玻璃板之間夾持含有塑化聚乙烯醇縮丁醛之層合玻璃用中間膜，使之相互接著而獲得之層合玻璃特別被廣泛地用作車輛用擋風玻璃。

【0003】 於層合玻璃之製造步驟中，重要的是將玻璃與層合玻璃用中間膜進行積層時之脫氣性。因此，為了確保層合玻璃製造時之脫氣性，於層合玻璃用中間膜之至少一表面形成有大量凹部。尤其是藉由將該凹部設為具有底部連續之溝形、且鄰接之該刻線狀凹部係平行且規則地形成的構造，可發揮極優異之脫氣性。

【0004】 關於層合玻璃之製造方法，例如，進行有如下方法等：將自卷狀體捲出之層合玻璃用中間膜切斷成適當大小，將該層合玻璃用中間膜夾持於至少兩片玻璃板之間，將所獲得之積層體放入至橡膠袋內進行減壓抽吸，一面將殘存於玻璃板與中間膜間之空氣進行脫氣一面進行預壓接，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）。

【0005】 此種層合玻璃之製造方法中，為了製造之效率化，進行有將

預先切斷成特定形狀之層合玻璃用中間膜於恆溫恆濕室內進行積層並保管。然而，存在保管中積層之層合玻璃用中間膜彼此接著（自黏）而有無法利用搬送層合玻璃用中間膜之機械或人力剝離之情況的問題。

先前技術文獻

專利文獻

【0006】 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]

【0007】 本發明鑒於上述現狀，其目的在於提供一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

[解決課題之技術手段]

【0008】 本發明之層合玻璃用中間膜於至少一表面具有大量凹部，上述具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。

以下詳細說明本發明。

【0009】 本發明之層合玻璃用中間膜於至少一表面具有大量凹部。藉此，能夠確保層合玻璃製造時之脫氣性。

本發明之層合玻璃用中間膜可僅於一表面具有上述凹部，亦可於兩表面具有上述凹部。其中，就層合玻璃製造時之脫氣性優異之方面而言，較佳為於兩表面具有上述凹部。

【0010】 上述具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均

粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。

上述 Sa 係對使用三維白光干涉型顯微鏡所獲得之中間膜表面之圖像進行圖像處理，去除粗大之凹凸後所算出之表現面內之算術平均高度的三維形狀參數。即，Sa 係表現不包括較大凹凸在內之微細凹凸形狀之參數（以下，為了與後述較大之凹凸形狀加以區別，亦稱為「第 1 形狀」）。本發明之發明者等人經過努力研究，結果發現：將層合玻璃用中間膜於積層狀態下保管時，層合玻璃用中間膜彼此之接著力（自黏力）於較大程度上受到層合玻璃用中間膜之表面之上述 Sa 值之影響。進而，經過進一步之研究，結果發現：於以該 Sa 值成為 200 nm 以上之方式控制層合玻璃用中間膜之表面之凹凸形狀之情形時，即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離，從而完成本發明。

**【0011】** 藉由以使上述 Sa 值成為 200 nm 以上之方式控制層合玻璃用中間膜之表面之第 1 形狀，即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離。上述 Sa 值之較佳下限為 250 nm，更佳下限為 400 nm。

上述 Sa 值之上限無特別限定，為了於層合玻璃製造時將層合玻璃用中間膜夾持於至少兩片玻璃板之間進行壓接時能夠確實地將凹凸壓平，實質上限為 3000 nm 左右。

再者，於兩面具有上述凹部之情形時，只要任一面之 Sa 值為 200 nm 以上即可，但就進一步抑制於積層狀態下保管之情形時之自黏之方面而言，較佳為兩面之 Sa 值為 200 nm 以上。

**【0012】** 上述 Sa 值具體而言例如可藉由以下方法進行測定。

即，使用三維白光干涉型顯微鏡（例如 Bruker AXS 公司製造，Contour GT

—K)，於將物鏡之倍率設為 115 倍，將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍，將解析度設定設為全解析度（Full resolution）之條件下以於 1 mm 見方之視野對層合玻璃用中間膜表面進行測定而獲得圖像。此時，關於光量及閾值（Threshold），於測定時儘量不混入雜訊之適宜條件下進行。對所獲得之圖像實施平坦化處理及雜訊去除處理，使用高斯（Gaussian）濾波器去除粗大之凹凸後，藉由 ISO 25178 所規定之方法算出面算術平均粗糙度 Sa 值。圖像處理係使用作為裝置附帶之解析軟體之「Vision 64」。關於平坦化處理及雜訊去除處理條件，作為第 1 處理，於解析條件「僅傾斜（平面擬合）（Tilt only（Plane Fit）」下進行分析工具箱（Analysis Toolbox）上之「條件刪除（F—算子）（Terms Removal（F—Operator）」處理，作為第 2 處理，於解析條件「濾波器類型（Filter type）：Sigma」及「濾波器尺寸（Filter size）：5」下進行「統計濾波器（Statistic Filter）」處理，進而選擇解析條件「原有（Legacy）」，且選擇恢復邊緣（Restore Edge）條件，並將反覆（Iteration）條件設定為充分進行資料補全之值而進行「資料恢復（data Restore）」處理。為了去除粗大之凹凸，作為第 3 處理，於解析條件「短波通（Short wavelength pass）條件下，階數（order）：2，類型：常規（Type：Regular），長波長截止（Long wavelength cutoff）：0.025 mm」且進階設定（advance setup）為初始條件下進行「高斯迴歸濾波器（Gaussian Regression Filter）」處理。對經過第 1 至第 3 處理之圖像資料於解析條件「消除傾斜（Removal tilt）：正確（True）」下進行「S 參數高度（S parameters—height）」處理作為第 4 處理，將結果所獲得之「Sa」設為面算術平均粗糙度 Sa 值。對成為樣品之層合玻璃用中間膜之 10 cm 見方區域中以各測定點間相距 3 cm 以上之方式測定 9 點，將其

平均值作為 Sa 值。

【0013】 上述具有凹部之表面較佳為依據 JIS B 0601 (1994) 所測得之十點平均粗糙度 Rz 為 10  $\mu\text{m}$  以上。藉此，可進一步降低將層合玻璃用中間膜於積層狀態下保管時之層合玻璃用中間膜彼此之接著力（自黏力）。上述 Rz 值之更佳下限為 15  $\mu\text{m}$ ，進而較佳之下限為 20  $\mu\text{m}$ 。

上述 Rz 值之上限無特別限定，為了於將層合玻璃用中間膜夾持於至少兩片玻璃板之間進行壓接時能夠確實地將凹凸壓平，實質上限為 70  $\mu\text{m}$  左右，為了更容易地進行壓接，較佳為 50  $\mu\text{m}$  以下。

再者，上述 Rz 例如可藉由對使用表面粗糙度測定器（小阪研究所公司製造，SE1700  $\alpha$  等）所測得之數位信號進行資料處理而測定。

【0014】 賦予上述第 1 形狀之方法無特別限定，例如可列舉：壓紋輥法、研光輥法、異形擠出法、利用熔體破裂之擠出模唇壓紋法等。其中，藉由使用以下之製造例 1 或製造例 2，可容易地賦予滿足所需 Sa 值（及 Rz 值）之第 1 形狀。

【0015】 製造例 1 係於壓紋輥法中使用藉由特定製造方法所製造之壓紋輥之方法。即，其係使用藉由如下製造步驟所製作之壓紋輥對層合玻璃用中間膜之表面賦予第 1 形狀之方法，上述製造步驟包括：藉由使用研削材之噴擊處理而於金屬輥形成凹凸之步驟（壓紋輥製造步驟 1）、對形成有凹凸之金屬輥之凸部之一部分進行研磨而形成平滑面之步驟（壓紋輥製造步驟 2）、及藉由使用較壓紋輥製造步驟 1 中所使用之研削材微細之研削材進行噴擊處理而形成凹凸之步驟（壓紋輥製造步驟 3）。

【0016】 上述壓紋輥製造步驟 1 中所使用之金屬輥例如由鐵、碳鋼、

合金鋼、鎳鉻鋼、鉻鋼等金屬構成。其中，就耐久性優異之方面而言，較佳為由碳鋼或合金鋼所構成之金屬輥。

【0017】 上述壓紋輥製造步驟 1 中，使用氧化鋁或氧化矽等研削材對上述金屬輥之表面進行噴擊處理而於金屬輥表面形成凹凸。其中，作為研削材，較佳為氧化鋁。

關於上述壓紋輥製造步驟 1 中使用之研削材之粒度，較佳為 JIS R 6001 (1998) 中所規定之 F20~120，更佳為 F30~80。

上述壓紋輥製造步驟 1 中進行噴擊處理之情形時之噴出壓一般而言為  $40 \times 10^4 \sim 15 \times 10^5$  Pa，進行噴擊處理直至獲得所需之粗糙度。

【0018】 上述壓紋輥製造步驟 2 中，對上述壓紋輥製造步驟 1 中形成有凹凸之金屬輥之凸部之一部分進行研磨（半研磨）而形成平滑面。即，藉由半研磨將金屬輥表面所形成之大量凸部之上部研磨成一致而變得平滑。藉此，可去除金屬輥表面之過大凸部。

作為上述壓紋輥製造步驟 2 中之半研磨所使用之磨石，一般而言可使用 JIS 規格之 F200~F220 或 #240~#2000 之氧化鋁或碳化矽，較佳為使用 #400~#1000。再者，亦可使用砂紙作為研磨石。

【0019】 上述壓紋輥製造步驟 3 中，藉由使用較上述壓紋輥製造步驟 1 中所使用之研削材微細之研削材進行噴擊處理而形成凹凸。上述壓紋輥製造步驟 3 中，使用氧化鋁或氧化矽等研削材進行噴擊處理。

上述壓紋輥製造步驟 3 中進行噴擊處理之情形時之噴出壓一般而言為  $40 \times 10^4 \sim 15 \times 10^5$  Pa。

【0020】 關於上述壓紋輥製造步驟 3 中使用之研削材之粒度，較佳為

JIS R 6001(1998)中所規定之 F150~F360 或#240~#700,更佳為 F220 或#240~#400。藉由使用上述粒度之研削材,可獲得所需之 Sa 值。

又,上述壓紋輥製造步驟 3 中使用之研削材之依據 JIS R 6001(1998)之累積高度 3%點之粒徑較佳為 150  $\mu\text{m}$  以下,更佳為 120  $\mu\text{m}$  以下,進而較佳為 103  $\mu\text{m}$  以下。若上述累積高度 3%點之粒徑為上述較佳範圍,則可使形成於輥研磨部之凹凸變得微細,可防止最終所獲得之層合玻璃用中間膜之 Sa 值過大。

又,上述壓紋輥製造步驟 3 中使用之研削材之依據 JIS R 6001(1998)之累積高度 94%點之粒徑較佳為 11  $\mu\text{m}$  以上,更佳為 20  $\mu\text{m}$  以上。若上述累積高度 94%點之粒徑為上述較佳範圍,則可使形成於輥研磨部之凹凸具有一定以上之大小,可獲得 Sa 值較大之層合玻璃中間膜。

又,上述壓紋輥製造步驟 3 中使用之研削材較佳為依據 JIS R 6001(1998)之累積高度 3%點之粒徑滿足上述較佳範圍、且依據 JIS R 6001(1998)之累積高度 94%點之粒徑滿足上述較佳範圍。

再者,關於上述粒度、累積高度 3%點之粒徑及累積高度 94%點之粒徑之測定方法,較理想為藉由電阻試驗方法進行測定。

**【0021】** 為了防銹而亦可對上述壓紋輥實施金屬鍍敷處理。其中,就獲得均勻之鍍敷厚度之方面而言,較佳為化學鍍敷。

**【0022】** 製造例 1 中,使用藉由上述製造方法所製造之壓紋輥,藉由壓紋輥法對層合玻璃用中間膜之表面賦予上述第 1 形狀。

作為上述壓紋輥法之條件,例如可列舉如下條件:將膜溫設定為 80°C,將壓紋輥溫設定為 145°C,將線速度設定為 10 m/min,將加壓線壓設定為

1~100 kN/m 之範圍。

【0023】 製造例 2 係於控制熔體破裂現象之壓紋賦予法中對自模具中以層合玻璃用中間膜之形態擠出用以形成層合玻璃用中間膜之樹脂組成物後之冷卻速度進行調整的方法。於控制熔體破裂現象之壓紋賦予法中，將自模具擠出之膜於冷卻水槽中加以冷卻，藉由調整此時之膜之冷卻速度，可控制所賦予之第 1 形狀之 Sa 值（及 Rz 值）。具體而言，例如藉由縮短自模具至冷卻水槽之距離而加快膜之冷卻速度，可增大 Sa 值（及 Rz 值）之值，賦予滿足所需 Sa 值（及 Rz 值）之第 1 形狀。上述自模具至冷卻水槽之距離較佳為 250 mm 以下，更佳為 200 mm 以下，進而較佳為 100 mm 以下，最佳為 50 mm 以下。

【0024】 上述製造例 2 中之除此以外之製膜條件之較佳範圍如下：模具單位寬度之擠出量為 100~700 kg/hr·m，剛自模具擠出後之膜表面溫度為 140°C~260°C，模具入口之樹脂壓力為 30~160 kgf/cm<sup>2</sup>，冷卻膜之水槽內之水溫為 20°C~30°C。控制各條件以獲得所需之擠出量、Rz 值。

【0025】 本發明之層合玻璃用中間膜較佳為進而具有與微細之上述第 1 形狀中之凹部相比更大之凹部（以下亦稱為「第 2 形狀」）。藉由具有此種第 2 形狀，可進一步提高層合玻璃製造時之脫氣性。又，積層保管時膜彼此之接觸面積減少，因此可進一步防止自黏。

【0026】 上述第 2 形狀之凹部只要具有至少底部連續之形狀（溝形）即可，例如可採用刻線狀、格子狀（塊狀、球狀）等通常對層合玻璃用中間膜之表面所賦予之凹部之形狀。

上述凹部之形狀亦可為經壓紋輥轉印之形狀。

上述第 2 形狀之凹部較佳為具有底部連續之溝形，且鄰接之上述凹部平行且規則地並列（以下亦稱為「刻線狀」）。一般而言，對兩片玻璃板間積層有層合玻璃用中間膜之積層體進行壓接時之空氣脫除難易度係與上述凹部之底部之連通性及平滑性密切相關。藉由將上述凹部之形狀設為刻線狀，該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平行且等間隔地並列，或者鄰接之上述刻線狀凹部平行地並列，但所有鄰接之上述刻線狀凹部之間隔可並非等間隔。又，只要鄰接之凹部平行且規則地並列，則槽之形狀可並非直線狀，例如可為波狀或鋸齒狀。

圖 1 及圖 2 中揭示表示溝形之凹部等間隔且平行地並列之層合玻璃用中間膜之一例的模式圖。又，圖 3 中揭示表示溝形之凹部非等間隔但平行地並列之層合玻璃用中間膜之一例的模式圖。圖 3 中，凹部 1 與凹部 2 之間隔 A 不同於凹部 1 與凹部 3 之間隔 B。

進而，圖 4 中揭示表示表面具有塊狀之形狀之層合玻璃用中間膜之一例的模式圖，圖 5 中揭示表示表面具有球狀之形狀之層合玻璃用中間膜之一例的模式圖。

**【0027】** 上述第 2 形狀之凹部之粗糙度 (Rz) 之較佳下限為  $10 \mu\text{m}$ ，較佳上限為  $75 \mu\text{m}$ 。藉由將上述粗糙度 (Rz) 設為  $10 \mu\text{m}$  以上，可發揮極優異之脫氣性，藉由設為  $75 \mu\text{m}$  以下，於夾持於兩片玻璃板之間進行壓接時，凹部容易被壓平，可降低壓接時之溫度。上述粗糙度 (Rz) 之更佳下限為  $15 \mu\text{m}$ ，更佳上限為  $50 \mu\text{m}$ ，進而較佳之下限為  $25 \mu\text{m}$ ，進而較佳之上限為  $40 \mu\text{m}$ 。

再者，本說明書中，所謂凹部之粗糙度 (Rz) 係 JIS B 0601 (1994)「表面粗糙度—定義及表示」所規定之藉由依據 JIS B 0601 (1994) 之方法而測定所獲得之中間膜之兩面之十點平均粗糙度 (Rz)。例如使用小阪研究所公司製造之「Surfcorder SE300」作為測定機，將測定時之觸針計條件設為臨界值=2.5 mm、基準長度=2.5 mm、評價長度=12.5 mm、觸針之前端半徑=2  $\mu\text{m}$ 、前端角度=60°、測定速度=0.5 mm/s 之條件而進行測定。測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。觸針之移動方向係設為與刻線形狀之槽方向垂直之方向。

【0028】 於上述第 2 形狀之凹部具有底部連續之溝形、且鄰接之上述凹部平行且規則地並列之情形時，上述刻線狀凹部之間隔  $S_m$  較佳為 400  $\mu\text{m}$  以下，更佳為 200  $\mu\text{m}$  以下，進而較佳為 150  $\mu\text{m}$  以下。較佳下限為 80  $\mu\text{m}$ 。

上述凹部之間隔  $S_m$  例如可藉由以下方法進行測定。

即，使用光學顯微鏡(例如 OLYMPUS 股份有限公司製造，DSX-100)，觀察層合玻璃用中間膜之表面(觀察範圍 4 mm×4 mm)，測定所觀察到之所有鄰接之凹部之最底部間之最短距離。繼而，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。

圖 6 (a) 中揭示說明凹部之間隔  $S_m$  之模式圖。圖 6 (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。

【0029】 於上述第 2 形狀之凹部具有底部連續之溝形、且鄰接之上述凹部平行且規則地並列、並且該第 2 形狀之凹部存在於層合玻璃用中間膜之兩面的情形時，一面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與另一面所具有之上述底部連續之溝形之凹部的交叉角  $\theta$  較佳為  $10^\circ$  以上。藉此，可進一步降低自黏力而易於剝離。上述交叉角  $\theta$  更佳為  $20^\circ$  以上，進而較佳為  $45^\circ$  以上，尤佳為  $90^\circ$ 。

圖 7 中揭示說明交叉角  $\theta$  之模式圖。圖 7 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，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  $\theta$  係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 的交叉角。

關於上述交叉角  $\theta$ ，例如藉由目視或光學顯微鏡觀察層合玻璃用中間膜，於目視之情形時，於兩面均使用油墨繪製平行於凹部之直線，使用分度器測定所繪製之直線彼此之銳角。於使用光學顯微鏡之情形時，拍攝經放大之表面之圖像，使用圖像處理軟體等測定銳角之角度，藉此可測得第 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的交叉角  $\theta$ 。

【0030】 關於對應於上述第 2 形狀之凹部所形成之凸部，其頂部可如圖 1 所示般為平面形狀，亦可如圖 2 所示般為非平面之形狀。再者，於上述凸部之頂部為平面形狀之情形時，亦可進而對該頂部之平面實施微細之凹凸。

進而，各凹凸之凸部之高度可為同一高度，亦可為不同高度，上述凹

部之深度亦只要該凹部之底邊連續，則可為同一深度，亦可為不同深度。

【0031】 上述凸部之旋轉半徑  $R$  較佳為  $200\ \mu\text{m}$  以下，更佳為  $100\ \mu\text{m}$  以下，進而較佳為  $40\ \mu\text{m}$  以下，尤佳為  $25\ \mu\text{m}$  以下。藉此，可進一步降低將層合玻璃用中間膜於積層狀態下保管時之層合玻璃用中間膜彼此之接著力（自黏力）。

上述凸部之旋轉半徑  $R$  可藉由如下方法進行測定，例如沿與刻線狀凹部之方向垂直且為膜厚方向的方向切斷中間膜，使用顯微鏡（例如 Olympus 公司製造之「DSX-100」）觀察該剖面，於測定倍率 277 倍下拍攝照片，進而，以成為  $50\ \mu / 20\ \text{mm}$  之方式將所拍攝圖像放大顯示，於該狀態下使用附帶軟體內之計測軟體，繪製與凸形狀之頂點內切之圓，此時，將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  $23^\circ\text{C}$  及 30RH% 下。

圖 6 (b) 中揭示說明凸部之旋轉半徑  $R$  之模式圖。圖 6 (b) 中，以與凸部 22 之前端部相切之狀態繪製圓，此時該圓之半徑為凸部之旋轉半徑  $R$ 。

【0032】 上述凸部之頂部之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度  $S_a$ （以下亦稱為「頂部  $S_a$ 」）較佳為  $200\ \text{nm}$  以上。

上述頂部  $S_a$  具體而言例如可藉由以下方法進行測定。

即，使用三維白光干涉型顯微鏡（例如 Bruker AXS 公司製造，Contour GT-K），於將物鏡之倍率設為 115 倍，將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍，將解析度設定設為全解析度（Full resolution）之條件下以  $1\ \text{mm}$  見方之視野對層合玻璃用中間膜表面進行測定而獲得圖像。此時，關於光量及閾值（Threshold），於測定時盡量不混入雜訊之適宜條件下進行。對所獲得之圖像實施平坦化處理及雜訊去除處理，進而，藉由遮罩資料（Maskdata）處理

提取僅凸部之高度資料。對所提取之資料區域使用高斯 (Gaussian) 濾波器去除粗大之凹凸後，藉由 ISO 25178 所規定之方法算出面算術平均粗糙度 Sa 值。圖像處理係使用作為裝置附帶之解析軟體之「Vision 64」。關於平坦化處理及雜訊去除處理條件，作為第 1 處理，於解析條件「僅傾斜 (平面擬合) (Tilt only (Plane Fit))」下進行分析工具箱 (Analysis Toolbox) 上之「條件刪除 (F-算子) (Terms Removal (F-Operator))」處理，作為第 2 處理，於解析條件「濾波器類型 (Filter type): Sigma」及「濾波器尺寸 (Filter size): 5」下進行「統計濾波器 (Statistic Filter)」處理，進而選擇解析條件「原有 (Legacy)」，且選擇恢復邊緣 (Restore Edge) 條件，並將反覆 (Iteration) 條件設定為充分進行資料補全之值而進行「資料恢復 (data Restore)」處理。關於提取僅凸部之圖像資料之第 3 步驟，作為解析條件，以於直方圖遮罩 (Histogram Mask) 條件下所顯示之直方圖之高度 (Height) 成為  $0.2 \sim -0.2 \mu\text{m}$  之間的方式決定閾值，於「遮罩: 左 (Mask: Left)」條件下提取閾值以上之高度區域資料而進行「遮罩資料 (Mask data)」處理。再者，關於是否成功將閾值設定於  $0.2 \sim -0.2 \mu\text{m}$  之間之確認，可根據提取後資料之直方圖顯示而確認。為了去除粗大之凹凸，作為第 4 處理，於解析條件「短波通 (Short wavelength pass) 條件下，階數 (order): 2，類型: 常規 (Type: Regular)，長波長截止 (Long wavelength cutoff): 0.025 mm」且進階設定 (advance setup) 為初始條件下進行「高斯迴歸濾波器 (Gaussian Regression Filter)」處理。對經過第 1 至第 4 處理之圖像資料於解析條件「消除傾斜 (Removal tilt): 正確 (True)」下進行「S 參數高度 (S parameters-height)」處理作為第 5 處理，將結果所獲得之「Sa」設為面算術平均粗糙度 Sa 值。

對成為樣品之層合玻璃用中間膜之 10 cm 見方區域中以各測定點間相距 3 cm 以上之方式測定 9 點，將其平均值作為 Sa 值。

【0033】 賦予上述第 2 形狀之方法無特別限定，例如可列舉：壓紋輥法、研光輥法、異形擠出法等。其中，就易於獲得鄰接之該刻線狀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。

【0034】 本發明之層合玻璃用中間膜可為僅由 1 層樹脂層構成之單層構造，亦可為積層有 2 層以上之樹脂層之多層構造。

於本發明之層合玻璃用中間膜為多層構造之情形時，藉由具有第 1 樹脂層與第 2 樹脂層作為 2 層以上之樹脂層，且第 1 樹脂層與第 2 樹脂層具有不同之性質，可提供具有僅由單層則難以實現之各種性能之層合玻璃用中間膜。

【0035】 上述樹脂層較佳為包含熱塑性樹脂。

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、聚乙烯醇縮醛、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醇縮醛或乙烯—乙酸乙烯酯共聚物，更佳為含有聚乙烯醇縮醛。

【0036】 上述聚乙烯醇縮醛例如可藉由利用醛使聚乙烯醇進行縮醛化而製造。上述聚乙烯醇例如可藉由使聚乙酸乙烯酯進行皂化而製造。上述聚乙烯醇之皂化度一般而言處於 70~99.8 莫耳%之範圍內。

【0037】 上述聚乙烯醇之平均聚合度較佳為 200 以上，更佳為 500 以

上，進而較佳為 1700 以上，尤佳為超過 1700，又，較佳為 5000 以下，更佳為 4000 以下，進而較佳為 3000 以下，尤佳為未達 3000。若上述平均聚合度為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性進一步變高。若上述平均聚合度為上述上限以下，則中間膜易於成形。

再者，上述聚乙烯醇之平均聚合度係藉由依據 JIS K 6726「聚乙烯醇試驗方法」之方法而求出。

**【0038】** 上述聚乙烯醇縮醛所含之縮醛基之碳數無特別限定。製造上述聚乙烯醇縮醛時所使用之醛無特別限定。上述聚乙烯醇縮醛中之縮醛基之碳數之較佳下限為 3，較佳上限為 6。若上述聚乙烯醇縮醛中之縮醛基之碳數為 3 以上，則中間膜之玻璃轉移溫度充分變低，又，可防止塑化劑滲出。藉由將醛之碳數設為 6 以下，容易合成聚乙烯醇縮醛，可確保生產性。作為上述碳數 3~6 之醛，可為直鏈狀醛，亦可為支鏈狀醛，例如可列舉正丁醛、正戊醛等。

**【0039】** 上述醛無特別限定。作為上述醛，一般而言較佳為使用碳數 1~10 之醛。作為上述碳數 1~10 之醛，例如可列舉：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、甲醛、乙醛及苯甲醛等。其中，較佳為丙醛、正丁醛、異丁醛、正己醛或正戊醛，更佳為丙醛、正丁醛或異丁醛，進而較佳為正丁醛。上述醛可僅使用 1 種，亦可將 2 種以上併用。

**【0040】** 上述聚乙烯醇縮醛之羥基之含有率（羥基量）較佳為 10 莫耳%以上，更佳為 15 莫耳%以上，進而較佳為 18 莫耳%以上，又，較佳為 40 莫耳%以下，更佳為 35 莫耳%以下。

若上述羥基之含有率為上述下限以上，則中間膜之接著力進一步變高。又，若上述羥基之含有率為上述上限以下，則中間膜之柔軟性變高，中間膜易於使用。

上述聚乙烯醇縮醛之羥基之含有率係以百分率表示鍵結有羥基之伸乙基量除以主鏈之伸乙基總量而求出之莫耳分率之值。上述鍵結有羥基之伸乙基量例如可藉由依據 JIS K 6726「聚乙烯醇試驗方法」或依據 ASTM D 1396-92 進行測定而求出。

**【0041】** 上述聚乙烯醇縮醛之乙醯化度（乙醯基量）較佳為 0.1 莫耳%以上，更佳為 0.3 莫耳%以上，進而較佳為 0.5 莫耳%以上，又，較佳為 30 莫耳%以下，更佳為 25 莫耳%以下，進而較佳為 20 莫耳%以下。若上述乙醯化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛與塑化劑之相容性變高。若上述乙醯化度為上述上限以下，則中間膜及層合玻璃之耐濕性變高。

上述乙醯化度係以百分率表示自主鏈之伸乙基總量減去鍵結有縮醛基之伸乙基量與鍵結有羥基之伸乙基量所得的值除以主鏈之伸乙基總量所求出的莫耳分率之值。上述鍵結有縮醛基之伸乙基量例如可依據 JIS K 6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」或依據 ASTM D1396-92 進行測定。

**【0042】** 上述聚乙烯醇縮醛之縮醛化度（於聚乙烯醇縮丁醛樹脂之情形時為縮丁醛化度）較佳為 50 莫耳%以上，更佳為 53 莫耳%以上，進而較佳為 60 莫耳%以上，尤佳為 63 莫耳%以上，較佳為 85 莫耳%以下，更佳為 75 莫耳%以下，進而較佳為 70 莫耳%以下。若上述縮醛化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛與塑化劑之相容性變高。若上述縮醛化度為上述上限以下，則用以製造聚乙烯醇縮醛所需之反應時間變短。

上述縮醛化度係以百分率表示鍵結有縮醛基之伸乙基量除以主鏈之伸乙基總量所求出的莫耳分率之值。

上述縮醛化度可藉由如下方式算出：藉由依據 JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法或依據 ASTM D1396-92 之方法測定乙醯化度與羥基之含有率，由所獲得之測定結果算出莫耳分率，繼而，自 100 莫耳%減去乙醯化度與羥基之含有率。

【0043】 再者，上述羥基之含有率（羥基量）、縮醛化度（縮丁醛化度）及乙醯化度較佳為根據藉由依據 JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法所測得之結果而算出。於聚乙烯醇縮醛為聚乙烯醇縮丁醛樹脂之情形時，上述羥基之含有率（羥基量）、縮醛化度（縮丁醛化度）及乙醯化度較佳為根據藉由依據 JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法所測得之結果而算出。

【0044】 上述樹脂層較佳為包含聚乙烯醇縮醛與塑化劑。

作為上述塑化劑，只要為層合玻璃用中間膜通常所使用之塑化劑，則並無特別限定，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，上述樹脂層較佳為包含三乙二醇-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

包含三乙二醇—二—2—乙基己酸酯。

【0045】 上述塑化劑之含量並無特別限定，相對於上述熱塑性樹脂 100 質量份，上述塑化劑之含量較佳為 25 質量份以上，更佳為 30 質量份以上，較佳為 80 質量份以下，更佳為 70 質量份以下。若上述塑化劑之含量為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性進一步變高。若上述塑化劑之含量為上述上限以下，則中間膜之透明性進一步變高。

【0046】 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，例如較佳為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。就製造層合玻璃時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包含鎂鹽作為接著力調整劑。

【0047】 上述樹脂層視需要亦可含有抗氧化劑、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、熱線反射劑、熱線吸收劑等添加劑。

【0048】 本發明之層合玻璃用中間膜之厚度並無特別限定。就實用方面之觀點、及充分提高隔熱性之觀點而言，中間膜之厚度較佳為 0.1 mm 以上，更佳為 0.25 mm 以上，較佳為 3 mm 以下，更佳為 1.5 mm 以下。若中間膜之厚度為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性變高。

【0049】 本發明之層合玻璃用中間膜之製造方法並無特別限定。作為

該中間膜之製造方法，可採用先前公知之方法。例如可列舉將熱塑性樹脂與上述成分 X 等視需要調配之其他成分進行混練後成形中間膜之製造方法等。擠出成形之製造方法由於適於連續生產，故而較佳。

**【0050】** 關於本發明之層合玻璃用中間膜，較佳為至少具有第 1 樹脂層與第 2 樹脂層作為 2 層以上之樹脂層，且上述第 1 樹脂層所含之聚乙烯醇縮醛（以下稱為聚乙烯醇縮醛 A）之羥基量不同於上述第 2 樹脂層所含之聚乙烯醇縮醛（以下稱為聚乙烯醇縮醛 B）之羥基量。

由於聚乙烯醇縮醛 A 與聚乙烯醇縮醛 B 之性質不同，故而可提供具有僅由單層則難以實現之各種性能之層合玻璃用中間膜。例如於兩層上述第 2 樹脂層之間積層有上述第 1 樹脂層、且聚乙烯醇縮醛 A 之羥基量低於聚乙烯醇縮醛 B 之羥基量的情形時，有上述第 1 樹脂層之玻璃轉移溫度低於上述第 2 樹脂層之傾向。結果，上述第 1 樹脂層變得軟於上述第 2 樹脂層，層合玻璃用中間膜之隔音性變高。又，於兩層上述第 2 樹脂層之間積層有上述第 1 樹脂層、且聚乙烯醇縮醛 A 之羥基量高於聚乙烯醇縮醛 B 之羥基量的情形時，有上述第 1 樹脂層之玻璃轉移溫度高於上述第 2 樹脂層之傾向。結果，上述第 1 樹脂層變得硬於上述第 2 樹脂層，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。

**【0051】** 進而，於上述第 1 樹脂層及上述第 2 樹脂層包含塑化劑之情形時，較佳為上述第 1 樹脂層中之塑化劑相對於聚乙烯醇縮醛 100 質量份之含量（以下稱為含量 A）不同於上述第 2 樹脂層中之塑化劑相對於聚乙烯醇縮醛 100 質量份之含量（以下稱為含量 B）。例如於兩層上述第 2 樹脂層之間積層有上述第 1 樹脂層、且上述含量 A 多於上述含量 B 之情形時，有

上述第 1 樹脂層之玻璃轉移溫度低於上述第 2 樹脂層之傾向。結果，上述第 1 樹脂層變得軟於上述第 2 樹脂層，層合玻璃用中間膜之隔音性變高。又，於兩層上述第 2 樹脂層之間積層有上述第 1 樹脂層、且上述含量 A 少於上述含量 B 之情形時，有上述第 1 樹脂層之玻璃轉移溫度高於上述第 2 樹脂層之傾向。結果，上述第 1 樹脂層變得硬於上述第 2 樹脂層，層合玻璃用中間膜之耐貫通性變高。

【0052】 作為構成本發明之層合玻璃用中間膜之 2 層以上之樹脂層之組合，例如為了提高層合玻璃之隔音性，可列舉上述第 1 樹脂層為隔音層與上述第 2 樹脂層為保護層之組合。就提高層合玻璃之隔音性之方面而言，較佳為上述隔音層包含聚乙烯醇縮醛 X 與塑化劑，上述保護層包含聚乙烯醇縮醛 Y 與塑化劑。進而，於兩層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）。以下更具體地說明隔音中間膜。

【0053】 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醇縮醛 X 與塑化劑。

上述聚乙烯醇縮醛 X 可藉由利用醛使聚乙烯醇進行縮醛化而製備。上述聚乙烯醇通常可藉由使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下限為 200，較佳上限為 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下限為 500，更佳上限為 4000。

再者，上述聚乙烯醇之平均聚合度係藉由依據 JIS K6726「聚乙烯醇試

驗方法」之方法而求出。

【0054】 用以使上述聚乙烯醇進行縮醛化之醛之碳數之較佳下限為 4，較佳上限為 6。藉由將醛之碳數設為 4 以上，可使隔音層穩定地含有充足量之塑化劑，可發揮優異之隔音性能。又，可防止塑化劑滲出。藉由將醛之碳數設為 6 以下，容易合成聚乙烯醇縮醛 X，可確保生產性。作為上述碳數 4~6 之醛，可為直鏈狀醛，亦可為支鏈狀醛，例如可列舉正丁醛、正戊醛等。

【0055】 上述聚乙烯醇縮醛 X 之羥基量之較佳上限為 30 莫耳%。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 X 之羥基量設為 30 莫耳%以下，可使隔音層含有用以發揮隔音性所需之量之塑化劑，可防止塑化劑滲出。上述聚乙烯醇縮醛 X 之羥基量之更佳上限為 28 莫耳%，進而較佳之上限為 26 莫耳%，尤佳上限為 24 莫耳%，又，較佳下限為 10 莫耳%，更佳下限為 15 莫耳%，進而較佳之下限為 20 莫耳%。上述聚乙烯醇縮醛 X 之羥基量係用鍵結有羥基之伸乙基量除以主鏈之伸乙基總量，將所求出之莫耳分率以百分率（莫耳%）表示之值。上述鍵結有羥基之伸乙基量例如可藉由利用依據 JIS K 6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法測定上述聚乙烯醇縮醛 X 之鍵結有羥基之伸乙基量而求出。

【0056】 上述聚乙烯醇縮醛 X 之縮醛基量之較佳下限為 60 莫耳%，較佳上限為 85 莫耳%。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 X 之縮醛基量設為 60 莫耳%以上，可提高隔音層之疏水性，可使隔音層含有用以發揮隔音性所需之量之塑化劑，可防止塑化劑滲出或白化。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 X 之縮醛基量設為 85 莫耳%以下，容易合成聚乙烯醇縮醛 X，可確保生產性。上述

聚乙烯醇縮醛 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 K 6728 「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法測定上述聚乙烯醇縮醛 X 之鍵結有縮醛基之伸乙基量而求出。

【0057】 上述聚乙烯醇縮醛 X 之乙醯基量之較佳下限為 0.1 莫耳%，較佳上限為 30 莫耳%。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 X 之乙醯基量設為 0.1 莫耳%以上，可使隔音層含有用以發揮隔音性所需之量之塑化劑，可防止滲出。又，藉由將上述聚乙烯醇縮醛 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下限為 1 莫耳%，進而較佳之下限為 5 莫耳%，尤佳下限為 8 莫耳%，又，更佳上限為 25 莫耳%，進而較佳之上限為 20 莫耳%。上述乙醯基量係用自主鏈之伸乙基總量減去鍵結有縮醛基之伸乙基量與鍵結有羥基之伸乙基量所得的值除以主鏈之伸乙基總量，將所求出之莫耳分率以百分率（莫耳%）表示之值。

【0058】 尤其就可容易地使上述隔音層含有用以發揮隔音性所需之量之塑化劑之方面而言，上述聚乙烯醇縮醛 X 較佳為上述乙醯基量為 8 莫耳%以上之聚乙烯醇縮醛、或上述乙醯基量未達 8 莫耳%且縮醛基量為 65 莫耳%以上之聚乙烯醇縮醛。又，上述聚乙烯醇縮醛 X 更佳為上述乙醯基量為 8 莫耳%以上之聚乙烯醇縮醛、或上述乙醯基量未達 8 莫耳%且縮醛基量為 68 莫耳%以上之聚乙烯醇縮醛。

【0059】 關於上述隔音層中之塑化劑之含量，相對於上述聚乙烯醇縮醛 X 100 質量份，較佳下限為 45 質量份，較佳上限為 80 質量份。藉由將上述塑化劑之含量設為 45 質量份以上，可發揮較高之隔音性，藉由設為 80

質量份以下，可防止塑化劑滲出，可防止層合玻璃用中間膜之透明性或接著性下降。上述塑化劑之含量之更佳下限為 50 質量份，進而較佳之下限為 55 質量份，又，更佳上限為 75 質量份，進而較佳之上限為 70 質量份。

【0060】 於上述隔音層之厚度方向之剖面形狀為矩形之情形時，厚度之較佳下限為 50  $\mu\text{m}$ 。藉由將上述隔音層之厚度設為 50  $\mu\text{m}$  以上，可發揮充分之隔音性。上述隔音層之厚度之更佳下限為 80  $\mu\text{m}$ 。再者，上限無特別限定，考慮到作為層合玻璃用中間膜之厚度，較佳上限為 300  $\mu\text{m}$ 。

【0061】 上述隔音層可具有包括一端與位於上述一端之相反側之另一端、且上述另一端之厚度大於上述一端之厚度的形狀。上述隔音層較佳為具有厚度方向之剖面形狀為楔形之部分。於該情形時，上述隔音層之最小厚度之較佳下限為 50  $\mu\text{m}$ 。藉由將上述隔音層之最小厚度設為 50  $\mu\text{m}$  以上，可發揮充分之隔音性。上述隔音層之最小厚度之更佳下限為 80  $\mu\text{m}$ ，進而較佳之下限為 100  $\mu\text{m}$ 。再者，上述隔音層之最大厚度之上限無特別限定，考慮到作為層合玻璃用中間膜之厚度，較佳上限為 300  $\mu\text{m}$ 。上述隔音層之最大厚度之更佳上限為 220  $\mu\text{m}$ 。

【0062】 上述保護層具有防止隔音層所含之大量塑化劑滲出、防止層合玻璃用中間膜與玻璃之接著性下降、並對層合玻璃用中間膜賦予耐貫通性的作用。

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

【0063】 上述聚乙烯醇縮醛 Y 可藉由利用醛使聚乙烯醇進行縮醛化而製備。上述聚乙烯醇通常藉由使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下限為 200，較佳上限為 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下限為 500，更佳上限為 4000。

【0064】 用以使上述聚乙烯醇進行縮醛化之醛之碳數之較佳下限為 3，較佳上限為 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，聚乙烯醇縮醛 Y 之生產性提高。

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

【0065】 上述聚乙烯醇縮醛 Y 之羥基量之較佳上限為 33 莫耳%，較佳下限為 28 莫耳%。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 Y 之羥基量設為 33 莫耳%以下，可防止層合玻璃用中間膜發生白化。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 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。

【0066】 上述聚乙烯醇縮醛 Y 之縮醛基量之較佳下限為 60 莫耳%，較佳上限為 80 莫耳%。藉由將上述縮醛基量設為 60 莫耳%以上，可使保護層含有用以發揮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下限為 65 莫耳%，更佳上限為 69 莫耳%。

【0067】 上述聚乙烯醇縮醛 Y 之乙醯基量之較佳上限為 7 莫耳%。藉由將上述聚乙烯醇縮醛 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上限為 2 莫耳%，較佳下限為 0.1 莫耳%。再者，聚乙烯醇縮醛 A、B 及 Y 之羥基量、縮醛基量、乙醯基量可

藉由與聚乙烯醇縮醛 X 相同之方法進行測定。

**【0068】** 關於上述保護層中之塑化劑之含量，相對於上述聚乙烯醇縮醛 Y 100 質量份，較佳下限為 20 質量份，較佳上限為 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，可防止塑化劑滲出，可防止層合玻璃用中間膜之透明性或接著性下降。上述塑化劑之含量之更佳下限為 30 質量份，進而較佳之下限為 35 質量份，又，更佳上限為 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，較佳為上述保護層中之塑化劑之含量少於上述隔音層中之塑化劑之含量。

**【0069】** 就層合玻璃之隔音性進一步提高之方面而言，聚乙烯醇縮醛 Y 之羥基量較佳為大於聚乙烯醇縮醛 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。藉由調整聚乙烯醇縮醛 X 及聚乙烯醇縮醛 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醇縮醛 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醇縮醛 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。

**【0070】** 關於上述保護層之厚度，只要調整為能夠發揮上述保護層之

作用之範圍，則無特別限定。其中，於上述保護層上具有凹凸之情形時，較佳為於可能之範圍內增加厚度以抑制凹凸向與直接接觸之上述隔音層之界面上轉印。具體而言，若上述保護層之剖面形狀為矩形，則上述保護層之厚度之較佳下限為 100  $\mu\text{m}$ ，更佳下限為 200  $\mu\text{m}$ ，進而較佳之下限為 300  $\mu\text{m}$ ，尤佳下限為 400  $\mu\text{m}$ ，最佳下限為 450  $\mu\text{m}$ 。上述保護層之厚度之上限無特別限定，為了確保可達成充分之隔音性之程度的隔音層之厚度，上限實質上為 500  $\mu\text{m}$  左右。

【0071】 上述保護層可具有包括一端與位於上述一端之相反側之另一端、且上述另一端之厚度大於上述一端之厚度的形狀。上述保護層較佳為具有厚度方向之剖面形狀為楔形之部分。關於上述保護層之厚度，只要調整為能夠發揮上述保護層之作用之範圍，則無特別限定。其中，於上述保護層上具有凹凸之情形時，較佳為於可能之範圍內增加厚度以抑制凹凸向與直接接觸之上述隔音層之界面上轉印。具體而言，上述保護層之最小厚度之較佳下限為 100  $\mu\text{m}$ ，更佳下限為 300  $\mu\text{m}$ ，進而較佳之下限為 400  $\mu\text{m}$ ，尤佳下限為 450  $\mu\text{m}$ 。上述保護層之最大厚度之上限無特別限定，為了確保可達成充分之隔音性之程度的隔音層之厚度，上限實質上為 1000  $\mu\text{m}$  左右，較佳為 800  $\mu\text{m}$ 。

【0072】 本發明之層合玻璃用中間膜可具有一端與位於上述一端之相反側之另一端。上述一端與上述另一端為中間膜中相對向之兩側之端部。本發明之層合玻璃用中間膜中，較佳為上述另一端之厚度大於上述一端之厚度。藉由具有此種一端與另一端之厚度不同之形狀，可將使用本發明之層合玻璃用中間膜之層合玻璃較佳地用作平視顯示器，此時，可有效

抑制產生二重像。本發明之層合玻璃用中間膜之剖面形狀可為楔形。若層合玻璃用中間膜之剖面形狀為楔形，則藉由根據層合玻璃之安裝角度而調整楔形之楔角  $\theta$ ，可防止平視顯示器於圖像顯示時出現二重像。就進一步抑制二重像之觀點而言，上述楔角  $\theta$  之較佳下限為 0.1 mrad，更佳下限為 0.2 mrad，進而較佳之下限為 0.3 mrad，又，較佳上限為 1 mrad，更佳上限為 0.9 mrad。再者，於例如藉由使用擠出機擠出樹脂組成物而成形之方法來製造剖面形狀為楔形之層合玻璃用中間膜之情形時，有時成為如下形狀：於較薄側之與其一端部隔開少許距離之內側之區域（具體而言，於將一端與另一端之間之距離設為  $X$  時，自較薄側之一端向內側移動  $0X \sim 0.2X$  之距離之區域）具有最小厚度，於較厚側之與其一端部隔開少許距離之內側之區域（具體而言，於將一端與另一端之間之距離設為  $X$  時，自較厚側之一端向內側移動  $0X \sim 0.2X$  之距離之區域）具有最大厚度。本說明書中，楔形亦包括此種形狀。

【0073】 作為製造上述隔音中間膜之方法，無特別限定，例如可列舉藉由擠出法、壓延法、按壓法等通常之製膜法製造片狀之上述隔音層與保護層後進行積層之方法等。

【0074】 於一對玻璃板之間積層有本發明之層合玻璃用中間膜之層合玻璃亦為本發明之一。

上述玻璃板可使用通常所用之透明板玻璃。例如可列舉：浮法平板玻璃、磨光板玻璃、模鑄板玻璃、嵌網玻璃、嵌線板玻璃、著色板玻璃、熱線吸收玻璃、熱線反射玻璃、綠色玻璃等無機玻璃。又，亦可使用於玻璃之表面具有紫外線遮蔽塗層之紫外線遮蔽玻璃。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，亦可使用 2 種以上之玻璃板。例如可列舉於透明浮法平板玻璃與如綠色玻璃之著色玻璃板之間積層有本發明之層合玻璃用中間膜之層合玻璃。又，作為上述玻璃板，亦可使用 2 種以上之厚度不同之玻璃板。

#### [發明之效果]

【0075】 根據本發明，可提供一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

#### 【圖式簡單說明】

【0076】 圖 1 係表示表面所具有之底部連續之溝形之凹部為等間隔、且鄰接之凹部平行地並列的層合玻璃用中間膜之一例之模式圖。

圖 2 係表示表面所具有之底部連續之溝形之凹部為等間隔、且鄰接之凹部平行地並列的層合玻璃用中間膜之一例之模式圖。

圖 3 係表示表面所具有之底部連續之溝形之凹部非等間隔、但鄰接之凹部平行地並列的層合玻璃用中間膜之一例之模式圖。

圖 4 係表示表面具有塊狀之形狀之層合玻璃用中間膜之一例之模式圖。

圖 5 係表示表面具有球狀之形狀之層合玻璃用中間膜之一例之模式圖。

圖 6 係說明凹部之間隔  $S_m$  及凸部之旋轉半徑  $R$  之模式圖。

圖 7 係說明交叉角  $\theta$  之模式圖。

#### 【實施方式】

【0077】 以下，列舉實施例而更詳細地說明本發明之態樣，但本發明

並不僅限於該等實施例。

**【0078】** (實施例 1)

(1) 樹脂組成物之製備

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲得之聚乙烯醇縮丁醛(乙醯基量 1 莫耳%，縮丁醛基量 69.1 莫耳%，羥基量 30 莫耳%) 100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇-二-2-乙基己酸酯(3GO) 40 質量份，利用混合輥充分混練而獲得樹脂組成物。

**【0079】** (2) 層合玻璃用中間膜之製作

使用擠出機擠出所獲得之樹脂組成物，藉此獲得均勻厚度之層合玻璃用中間膜。

**【0080】** (3) 第 1 形狀之賦予

依據上述製造例 1，對層合玻璃用中間膜之兩面(第 1 表面及第 2 表面)賦予第 1 形狀。

**【0081】** 此處，使用藉由以下方法所製造之壓紋輥。

首先，作為壓紋輥製造步驟 1，使用由氧化鋁所構成之#36 之研削材，對金屬輥表面以噴出壓力  $50 \times 10^4$  Pa 進行噴擊處理。依據 JIS B 0601 (1994) 對壓紋輥製造步驟 1 後之輥表面測定十點平均粗糙度  $R_z$ ，結果為  $65 \mu\text{m}$ 。

繼而，作為壓紋輥製造步驟 2，使用#400~1000 之研磨石進行半研磨。依據 JIS B 0601 (1994) 對壓紋輥製造步驟 2 後之輥表面測定十點平均粗糙度  $R_z$ ，結果為  $40 \mu\text{m}$ 。

繼而，作為壓紋輥製造步驟 3，使用由氧化鋁所構成之#320 之研削材，以噴出壓力  $50 \times 10^4$  Pa 進行噴擊處理。

【0082】 使用由所獲得之壓紋輥所配成之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賦予第 1 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℃，將上述輥之溫度設為 145℃，將線速度設為 10 m/min，將線寬設為 1.5 m，於 1~100 kN/m 之間調整加壓線壓以獲得所需粗糙度。所獲得之層合玻璃中間膜之厚度為 760  $\mu\text{m}$ 。

【0083】 (4) 第 1 表面及第 2 表面之凹凸之測定

(4-1) Sa 值之測定

使用三維白光干涉型顯微鏡 (Bruker AXS 公司製造, Contour GT-K)，於將物鏡之倍率設為 115 倍，將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍，將解析度設定設為全解析度 (Full resolution) 之條件下，以 1 mm 見方之視野對層合玻璃用中間膜表面進行測定而獲得圖像。對所獲得之圖像實施平坦化處理及雜訊去除處理，進而，藉由遮罩資料 (Maskdata) 處理提取僅凸部之高度資料。使用高斯 (Gaussian) 濾波器對所提取之資料區域去除粗大之凹凸後，藉由 ISO 25178 所規定之方法算出面算術平均粗糙度 Sa 值。圖像處理係使用作為裝置附帶之解析軟體之「Vision 64」。關於平坦化處理及雜訊去除處理條件，作為第 1 處理，於解析條件「僅傾斜 (平面擬合) (Tilt only (Plane Fit))」下進行分析工具箱 (Analysis Toolbox) 上之「條件刪除 (F-算子) (Terms Removal (F-Operator))」處理，作為第 2 處理，於解析條件「濾波器類型 (Filter type): Sigma」及「濾波器尺寸 (Filter size): 5」下進行「統計濾波器 (Statistic Filter)」處理，進而選擇解析條件「原有 (Legacy)」，且選擇恢復邊緣 (RestoreEdge) 條件，並將反覆 (Iteration) 條件設定為充分進行資

料補全之值而進行「資料恢復 (data Restore)」處理。關於提取僅凸部之圖像資料之第 3 步驟，作為解析條件，以於直方圖遮罩 (Histogram Mask) 條件下所顯示之直方圖之高度 (Height) 成為  $0.2 \sim -0.2 \mu\text{m}$  之間之方式決定閾值，於「遮罩：左 (Mask：Left)」條件下提取閾值以上之高度區域資料而進行「遮罩資料 (Mask data)」處理。為了去除粗大之凹凸，作為第 4 處理，於解析條件「短波通 (Short wavelength pass) 條件下，階數 (order): 2，類型：常規 (Type: Regular)，長波長截止 (Long wavelength cutoff):  $0.025 \text{ mm}$ 」且進階設定 (advance setup) 為初始條件下進行「高斯迴歸濾波器 (Gaussian Regression Filter)」處理。對經過第 1 至第 4 處理之圖像資料於解析條件「消除傾斜 (Removal tilt): 正確 (True)」下進行「S 參數高度 (S parameters—height)」處理作為第 5 處理，將結果所獲得之「Sa」設為面算術平均粗糙度 Sa 值。

對層合玻璃用中間膜之  $10 \text{ cm}$  見方區域中以各測定點間相距  $3 \text{ cm}$  以上之方式測定 9 點，將其平均值作為 Sa 值。

#### 【0084】 (4-2) Rz 值之測定

藉由依據 JIS B 0601 (1994) 之方法，測定所獲得之中間膜之兩面之十點平均粗糙度 (Rz)。使用小阪研究所公司製造之「Surfcorder SE300」作為測定機，將測定時之觸針計條件設為臨界值 =  $2.5 \text{ mm}$ 、基準長度 =  $2.5 \text{ mm}$ 、評價長度 =  $12.5 \text{ mm}$ 、觸針之前端半徑 =  $2 \mu\text{m}$ 、前端角度 =  $60^\circ$ 、測定速度 =  $0.5 \text{ mm/s}$  之條件而進行測定。測定時之環境為  $23^\circ\text{C}$  及 30RH% 下。觸針之移動方向係設為與片材之行進方向平行之方向。

#### 【0085】 (實施例 2、3、比較例 1、2)

以獲得所需 Rz 值之方式調整賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之噴擊劑之種類、或凹凸形狀轉印時之加壓壓力，除此以外，藉由與實施例 1 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0086】** (實施例 4)

(1) 樹脂組成物之製備

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲得之聚乙烯醇縮丁醛（乙醯基量 1 莫耳%，縮丁醛基量 69.1 莫耳%，羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇－二－2－乙基己酸酯（3GO）40 質量份，利用混合輥充分混練而獲得樹脂組成物。

**【0087】** (2) 層合玻璃用中間膜之製作

使用擠出機擠出所獲得之樹脂組成物，藉此獲得均勻厚度之層合玻璃用中間膜。

**【0088】** (3) 第 1 形狀之賦予

藉由與實施例 3 相同之方法對層合玻璃用中間膜之表面賦予第 1 形狀。

**【0089】** (4) 第 2 形狀之賦予

藉由下述程序於已賦予有第 1 形狀之層合玻璃用中間膜之表面賦予底部連續之槽狀凹凸。採用由使用三角形斜線型研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的一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使已賦予有第 1 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有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 70°C，將輥溫度設為 140°C，將線速度設為 10 m/min，將加壓線壓於 1~100 kN/m 之間進行調整。繼而，亦對層合玻璃用中間膜之第 2 表面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槽狀（刻線狀）凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之槽狀（刻線狀）凹部的交叉角度成為 20°。所獲得之層合玻璃中間膜之厚度為 760 μm。

**【0090】** (5) 第 2 形狀之賦予後之第 1 表面及第 2 表面之凹凸之測定

(5-1) Sa 值之測定

使用三維白光干涉型顯微鏡 (Bruker AXS 公司製造, Contour GT-K)，於將物鏡之倍率設為 115 倍，將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍，將解析度設定設為全解析度 (Full resolution) 之條件下以 1 mm 見方之視野對層合玻璃用中間膜表面進行測定而獲得圖像。使用三維白光干涉型顯微鏡 (Bruker AXS 公司製造, Contour GT-K)，於將物鏡之倍率設為 115 倍，將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍，將解析度設定設為全解析度 (Full resolution) 之條件下以 1 mm 見方之視野對層合玻璃用中間膜表面進行測定而獲得圖像。對所獲得之圖像實施平坦化處理及雜訊去除處理，進而，藉由遮罩資料 (Maskdata) 處理提取僅凸部之高度資料。使用高斯 (Gaussian) 濾波器對所提取之資料區域去除粗大之凹凸後，藉由 ISO 25178 所規定之方法算出面算術平均粗糙度 Sa 值。圖像處理係使用作為裝置附帶之解析軟體之「Vision 64」。關於平坦化處理及雜訊去除處理條件，作為第 1 處理，於解析條件「僅傾斜 (平面擬合) (Tilt only (Plane Fit))」下進行分析工具箱 (Analysis Toolbox) 上之

「條件刪除 (F-算子) (Terms Removal (F-Operator))」處理，作為第 2 處理，於解析條件「濾波器類型 (Filter type): Sigma」及「濾波器尺寸 (Filter size): 5」下進行「統計濾波器 (Statistic Filter)」處理，進而選擇解析條件「原有 (Legacy)」，且選擇恢復邊緣 (RestoreEdge) 條件，並將反覆 (Iteration) 條件設定為充分進行資料補全之值而進行「資料恢復 (data Restore)」處理。關於提取僅凸部之圖像資料之第 3 步驟，作為解析條件，以於直方圖遮罩 (Histogram Mask) 條件下所顯示之直方圖之高度 (Height) 成為  $0.2 \sim -0.2 \mu\text{m}$  之間之方式決定閾值，於「遮罩: 左 (Mask: Left)」條件下提取閾值以上之高度區域資料而進行「遮罩資料 (Mask data)」處理。為了去除粗大之凹凸，作為第 4 處理，於解析條件「短波通 (Short wavelength pass) 條件下，階數 (order): 2, 類型: 常規 (Type: Regular), 長波長截止 (Long wavelength cutoff): 0.025 mm」且進階設定 (advance setup) 為初始條件下進行「高斯迴歸濾波器 (Gaussian Regression Filter)」處理。對經過第 1 至第 4 處理之圖像資料於解析條件「消除傾斜 (Removal tilt): 正確 (True)」下進行「S 參數高度 (S parameters-height)」處理作為第 5 處理，將結果所獲得之「Sa」設為面算術平均粗糙度 Sa 值。

對層合玻璃用中間膜之 10 cm 見方中以各測定點相距 3 cm 以上之方式測定 9 點，將其平均值作為 Sa 值。

#### 【0091】 (5-2) 頂部 Sa 值之測定

使用三維白光干涉型顯微鏡 (Bruker AXS 公司製造, Contour GT-K), 於將物鏡之倍率設為 115 倍, 將內部透鏡之倍率設為 0.5 倍, 將解析度設定設為全解析度 (Full resolution) 條件下以 1 mm 見方之視野對層合玻璃用中

間膜表面進行測定而獲得圖像。圖像處理係使用作為裝置附帶之解析軟體之「Vision 64」。關於平坦化處理及雜訊去除處理條件，作為第 1 處理，於解析條件「僅傾斜（平面擬合）（Tilt only（Plane Fit）」下進行分析工具箱（Analysis Toolbox）上之「條件刪除（F－算子）（Terms Removal（F－Operator）」處理，作為第 2 處理，於解析條件「濾波器類型（Filter type）：Sigma」及「濾波器尺寸（Filter size）：5」下進行「統計濾波器（Statistic Filter）」處理，進而選擇解析條件「原有（Legacy）」，且選擇恢復邊緣（Restore Edge）條件，並將反覆（Iteration）條件設定為充分進行資料補全之值而進行「資料恢復（data Restore）」處理。關於提取僅凸部之圖像資料之第 3 步驟，作為解析條件，以於直方圖遮罩（Histogram Mask）條件下所顯示之直方圖之高度（Height）成為  $0.2 \sim -0.2 \mu\text{m}$  之間之方式決定閾值，於「遮罩：左（Mask：Left）」條件下提取閾值以上之高度區域資料而進行「遮罩資料（Mask data）」處理。為了去除粗大之凹凸，作為第 4 處理，於解析條件「短波通（Short wavelength pass）條件下，階數（order）：2，類型：常規（Type：Regular），長波長截止（Long wavelength cutoff）：0.025 mm」且進階設定（advance setup）為初始條件下進行「高斯迴歸濾波器（Gaussian Regression Filter）」處理。對經過第 1 至第 4 處理之圖像資料於解析條件「消除傾斜（Removal tilt）：正確（True）」下進行「S 參數高度（S parameters－height）」處理作為第 5 處理，將結果所獲得之「Sa」設為面算術平均粗糙度 Sa 值。對層合玻璃用中間膜之 10 cm 見方中以各測定點相距 3 cm 以上之方式測定 9 點，將其平均值作為 Sa 值。

#### 【0092】 (5-3) Rz 值之測定

藉由依據 JIS B 0601 (1994) 之方法，測定所獲得之中間膜之兩面之十點平均粗糙度 (Rz)。使用小阪研究所公司製造之「Surfcorder SE300」作為測定機，將測定時之觸針計條件設為臨界值 = 2.5 mm、基準長度 = 2.5 mm、評價長度 = 12.5 mm、觸針之前端半徑 = 2  $\mu$ m、前端角度 = 60°、測定速度 = 0.5 mm/s 之條件而進行測定。測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。觸針之移動方向係設為與刻線形狀之槽方向垂直之方向。

**【0093】 (5-4) Sm 之測定**

使用光學顯微鏡 (OLYMPUS 公司製造，DSX-100)，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 4 mm×4 mm)，測定鄰接之凹部之間隔後，算出鄰接之凹部之最底部間之最短距離之平均值，藉此測定凹部之間隔 Sm。

**【0094】 (5-5) 凸部之旋轉半徑 R 之測定**

沿與刻線狀凹部之方向垂直且為膜厚方向的方向切斷中間膜，使用顯微鏡 (例如 Olympus 公司製造之「DSX-100」) 觀察該剖面，於測定倍率 277 倍下拍攝圖像，進而，以成為 50  $\mu$ /20 mm 之方式將所拍攝圖像放大顯示，於該狀態下使用附帶軟體內之計測軟體，繪製與凸形狀之頂點內切之圓，此時，將該圓之半徑設為該凸部之前端之旋轉半徑，藉由上述方法測定凸部之旋轉半徑 R。測定時之環境為 23°C 及 30RH% 下。

**【0095】 (實施例 5~8)**

如表 1 所示般變更賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之微細噴擊劑之種類，如表 1 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦予時之加壓線壓於 1~100

kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 4 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0096】** （評價）

對實施例 1~8 及比較例 1、2 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由以下方法進行自黏力之評價。將結果示於表 1。

將實施例及比較例中所獲得之層合玻璃用中間膜切斷成長 150 mm、寬 150 mm 之大小而獲得試驗片。使兩片所獲得之試驗片重合，於其上隔著對基材之紙實施聚矽氧塗佈作為脫模處理所得之脫模紙載置玻璃板（重量 5.8 kg）。於該狀態下，於調整於溫度 30°C、濕度 30%之恆溫恆濕室中放置 48 小時。其後，將兩片試驗片之端部剝離 2 cm，將兩片試驗片之端部分別固定於寬度 15 cm 之夾具。依據 JIS K-6854-3(1999)，將剝離速度設為 50 cm/min，於溫度 23°C、濕度 30%之環境下測定兩片試驗片間之 180°剝離強度，算出剝離距離為 50 mm 至 200 mm 之間之剝離強度之平均值（N/15 cm）。此以外之條件依據 JIS K-6854-3（1994）。將所求出之剝離強度設為層合玻璃用中間膜之自黏力。

再者，為了利用搬送層合玻璃用中間膜之機械或人力進行剝離，自黏力較佳為 20 N/15 cm 以下，更佳為 13 N/15 cm 以下，進而較佳為 10 N/15 cm 以下。

【0097】 [表 1]

		實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6	實施例 7	實施例 8	比較例 1	比較例 2	
中間膜 之組成	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
	縮丁醛化度 (mol%)	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	
	乙醯化度 (mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
	羥基之含有率 (mol%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	
	含量 (質量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含量 (質量份)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	賦予方法 (製造例 1)	#320	#320	#320	#320	#320	#320	#320	#320	#320	#320	#800
	第 1 表面之凹凸形狀	490	467	284	284	284	284	284	284	284	170	172
	第 2 表面之凹凸形狀	24	21	15	15	15	15	15	15	15	9	22
第 1 形狀	Sa (nm)	520	460	286	286	286	286	286	286	168	181	
	Rz ( $\mu\text{m}$ )	23	21	16	16	16	16	16	16	10	18	
	壓紋類型 (形狀)	-	-	-	刻線	刻線	刻線	刻線	刻線	刻線	-	-
	Sa (nm)	-	-	-	223	220	240	211	202	-	-	
	頂部 Sa (nm)	-	-	-	265	266	265	265	266	-	-	
	Rz ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	40	33	35	33	33	-	-	
	Sm ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	300	180	184	183	190	-	-	
	旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	60	55	55	54	57	-	-	
	Sa (nm)	-	-	-	221	208	251	216	240	-	-	
	頂部 Sa (nm)	-	-	-	255	269	274	269	260	-	-	
第 2 形狀	Rz ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	40	33	34	33	30	-	-	
	Sm ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	300	175	180	181	177	-	-	
	旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	-	-	-	60	55	58	58	55	-	-	
	刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )	-	-	-	20	20	10	45	90	-	-	
	自黏力 (N/15 cm)	5.8	7.6	17.0	14.5	12.8	15.2	9.8	8.0	52.0	28.0	
	評價											

**【0098】** （實施例 9）

## （1）樹脂組成物之製備

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲得之聚乙烯醇縮丁醛（乙醯基量 1 莫耳%，縮丁醛基量 69.1 莫耳%，羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇—二—2—乙基己酸酯（3GO）40 質量份，利用混合輥充分混練而獲得樹脂組成物。

**【0099】** （2）層合玻璃用中間膜之製作及第 1 形狀之賦予

依據上述製造例 2，於成膜層合玻璃用中間膜之同時賦予第 1 形狀。

即，於控制熔體破裂現象之壓紋賦予法中，將模具單位寬度之擠出量設為 440 kg/hr·m，將剛自模具擠出後之膜表面溫度設為 200°C，將模具入口之樹脂壓力設為 80 kgf/cm<sup>2</sup>，將冷卻膜之水槽內之水溫設為 20°C～30°C，於該條件下成膜層合玻璃用中間膜，與此同時對其兩面賦予第 1 形狀。此時，將自模具至冷卻水槽之表面之距離設為 50 mm。

所獲得之層合玻璃用中間膜之厚度為 760 μm。又，藉由與實施例 1 相同之方法測定 Sa 值及 Rz 值。

**【0100】** （實施例 10、11、比較例 3）

如表 2 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，除此以外，藉由與實施例 9 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0101】** （實施例 12）

## （1）樹脂組成物之製備

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲

得之聚乙烯醇縮丁醛（乙醯基量 1 莫耳%，縮丁醛基量 69.1 莫耳%，羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇—二—2—乙基己酸酯（3GO）40 質量份，利用混合輥充分混練而獲得樹脂組成物。

**【0102】** （2）層合玻璃用中間膜之製作及第 1 形狀之賦予

依據上述製造例 2，於成膜層合玻璃用中間膜之同時賦予第 1 形狀。

如表 2 所示般變更自模具至冷卻水槽之表面之距離，除此以外，藉由與實施例 9 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，對其兩面賦予第 1 形狀。

所獲得之層合玻璃用中間膜之厚度為 760  $\mu\text{m}$ 。又，藉由與實施例 1 相同之方法測定 Sa 值及 Rz 值。

**【0103】** （3）第 2 形狀之賦予

於已賦予有第 1 形狀之層合玻璃用中間膜之表面藉由下述程序而賦予底部連續之槽狀凹凸。採用由使用三角形斜線型研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的一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使已賦予有第 1 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有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 70°C，將輥溫度設為 140°C，將線速度設為 10 m/min，將加壓線壓於 1~100 kN/m 之間進行調整。繼而，亦對層合玻璃用中間膜之第 2 表面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槽狀（刻線狀）凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之槽狀（刻線狀）凹部的交叉角度成為 20°。

第 2 形狀賦予後，藉由與實施例 4 相同之方法測定第 1 表面及第 2 表面

之凹凸。

**【0104】** （實施例 13~16、比較例 4~6）

如表 2 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，如表 2 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦予時之加壓線壓於 1~100 kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 12 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0105】** （評價）

對實施例 9~16 及比較例 3~6 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 2。

【0106】 [表 2]

		實施例 9	實施例 10	實施例 11	實施例 12	實施例 13	實施例 14	實施例 15	實施例 16	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	
中間膜 之組成	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
	縮丁醛醇縮 乙醯化度 (mol%)	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	69	
	乙醯化度 (mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	
	羥基之含有率 (mol%)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	
	含量 (質量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
	塑化劑 種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含量 (質量份)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	賦予方法 (製造例 2)	50	100	200	100	200	50	200	200	50	300	300	300	300
	第 1 表面之 凹凸形狀	553	350	267	350	553	553	260	260	543	145	145	145	145
	第 2 表面之 凹凸形狀	30	22	23	22	30	30	17	17	17	20	20	20	20
第 1 形狀	賦予方法	440	382	277	382	553	259	259	560	136	136	136	136	
	壓紋類型 (形狀)	29	20	20	20	30	18	18	21	20	20	20	20	
	Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Rz (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	頂部 Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Rz (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Sm (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	前端 R (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	頂部 Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
第 2 形狀	Rz (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Sm (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	前端 R (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	頂部 Sa (nm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Rz (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	Sm (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	前端 R (μm)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	刻線交叉角 (°)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	自黏力 (N/15 cm)	7.8	11.0	16.0	8.5	5.7	6.0	6.7	4.0	30.0	23.3	24.1	23.7	
評價														

**【0107】** （實施例 17、18）

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 3 所示之組成，以獲得所需 Rz 值之方式調整賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之噴擊劑之種類、或凹凸形狀轉印時之加壓壓力，除此以外，藉由與實施例 1 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0108】** （實施例 19~21）

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 3 所示之組成，如表 3 所示般變更賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之微細噴擊劑之種類，如表 3 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦予時之加壓線壓於 1~100 kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 4 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0109】** （評價）

對實施例 17~21 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 3。

【0110】 [表 3]

		實施例 17	實施例 18	實施例 19	實施例 20	實施例 21	
中間膜之組成	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69.9	68.4	68.4	69.9	68.4
		乙醯化度 (mol%)	1.2	0.7	0.7	1.2	0.7
		羥基之含有率 (mol%)	29	30.9	30.9	29	30.9
		含量 (質量份)	100	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	40	40	40	40	40
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 1)	微細噴砂尺寸 (目數)	#320	#320	#320	#320	#320
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	490	501	501	290	285
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	24	25	25	16	16
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	520	519	519	294	288
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	23	22	22	16	16
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	—	—	刻線	刻線	刻線
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	450	243	245
		頂部 Sa (nm)	—	—	500	270	266
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	35	39	38
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	195	200	198
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	50	60	55
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	440	221	240
		頂部 Sa (nm)	—	—	503	255	261
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	35	40	38
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	180	199	198
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	50	60	50
	刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )		—	—	20	90	90
	評價	自黏力 (N/15 cm)	5.8	5.9	5.0	7.5	7.3

## 【0111】 (實施例 22、23)

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 4 所示之組成，如表 4 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，除此以外，藉由與實施例 9 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

## 【0112】 (實施例 24)

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 4 所示之組成，如表 4 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，如表 4 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦

予時之加壓線壓於 1~100 kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 12 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

### 【0113】 (評價)

對實施例 22~24 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 4。

【0114】 [表 4]

			實施例 22	實施例 23	實施例 24
中間膜之組成	聚乙烯醇 縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69.9	68.4	69.9
		乙醯化度 (mol%)	1.2	0.7	1.2
		羥基之含有率 (mol%)	29	30.9	29
		含量 (質量份)	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	40	40	40
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 2)	模具~水面間 距離 (mm)	50	50	200
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	553	588	260
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	37	40	17
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	483	570	259
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	38	42	18
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	—	—	刻線
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	208
		頂部 Sa (nm)	—	—	244
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	40
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	200
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	70
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	200
		頂部 Sa (nm)	—	—	244
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	44
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	200
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	68
	刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )		—	—	90
評價	自黏力 (N/15 cm)		7.5	7.0	6.0

### 【0115】 (實施例 25)

(保護層用樹脂組成物之製備)

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 1700 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲得之聚乙烯醇縮丁醛（乙醯基量 1 莫耳%，縮丁醛基量 69 莫耳%，羥基量 30 莫耳%）100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇—二—2—乙基己酸酯（3GO）36 質量份，利用混合輥充分混練而獲得保護層用樹脂組成物。

**【0116】** （中間層用樹脂組成物之製備）

相對於藉由利用正丁醛使平均聚合度 3000 之聚乙烯醇進行縮醛化所獲得之聚乙烯醇縮丁醛（乙醯基量 12.5 莫耳%，縮丁醛基量 64.2 莫耳%，羥基量 23.3 莫耳%）100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇—二—2—乙基己酸酯（3GO）76.5 質量份，利用混合輥充分混練而獲得中間層用樹脂組成物。

**【0117】** （層合玻璃用中間膜之製作）

藉由使用共擠出機將所獲得之中間層用樹脂組成物與保護層用樹脂組成物共擠出，而獲得依序積層有由保護層用樹脂組成物所構成之第 1 保護層、由中間層用樹脂組成物所構成之中間層及由保護層用樹脂組成物所構成之第 2 保護層的 3 層構造之層合玻璃用中間膜。再者，以於凹凸賦予後所獲得之層合玻璃用中間膜中，第 1 保護層及第 2 保護層之厚度分別成為 350  $\mu\text{m}$ 、中間層之厚度成為 100  $\mu\text{m}$  的方式設定擠出條件。

其後，以獲得所需 Rz 值之方式調整賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之噴擊劑之種類、或凹凸形狀轉印時之加壓壓力，除此以外，藉由與實施例 1 相同之方式對層合玻璃用中間膜賦予凹凸，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0118】** （實施例 26、比較例 7~8）

以獲得所需 Rz 值之方式調整賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓

紋輥製造步驟 3 中所使用之噴擊劑之種類、或凹凸形狀轉印時之加壓壓力，除此以外，藉由與實施例 25 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0119】** （實施例 27）

以獲得所需 Rz 值之方式調整賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟 3 中所使用之噴擊劑之種類、或凹凸形狀轉印時之加壓壓力，除此以外，藉由與實施例 25 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，賦予第 1 形狀。

**【0120】** 對已賦予有第 1 形狀之層合玻璃用中間膜之表面藉由下述程序而賦予底部連續之槽狀凹凸。採用由使用三角形斜線型研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的一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使已賦予有第 1 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有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 70°C，將輥溫度設為 140°C，將線速度設為 10 m/min，將加壓線壓於 1~100 kN/m 之間進行調整。繼而，亦對層合玻璃用中間膜之第 2 表面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槽狀（刻線狀）凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之槽狀（刻線狀）凹部的交叉角度成為 20°。

**【0121】** （實施例 28~33、比較例 9）

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 6、表 7 所示之組成，如表 6、表 7 所示般變更賦予第 1 形狀之壓紋輥之製造所使用的壓紋輥製造步驟

3 中所使用之微細噴擊劑之種類，如表 6、表 7 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦予時之加壓線壓於 1~100 kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 27 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0122】** （評價）

對實施例 25~33、比較例 7~9 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 5~表 7。

【0123】 [表 5]

			實施例 25	實施例 26	實施例 27	實施例 28
第 1·第 2 保護層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69	69	69	69
		乙醯化度 (mol%)	1	1	1	1
		羥基之含有率 (mol%)	30	30	30	30
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	36	36	36	36
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	350	350	350	350	
中間層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	3000	3000	3000	3000
		縮丁醛化度 (mol%)	64.2	64.2	64.2	64.2
		乙醯化度 (mol%)	12.5	12.5	12.5	12.5
		羥基之含有率 (mol%)	23.3	23.3	23.3	23.3
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	76.5	76.5	76.5	76.5
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	100	100	100	100	
中間膜整體	構造	構成	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層
		厚度 ( $\mu\text{m}$ )	800	800	800	800
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 1)	微細噴砂尺寸 (目數)	#320	#320	#320	#320
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	480	450	290	290
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	23	20	16	16
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	511	455	280	280
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	23	20	16	16
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	—	—	刻線	刻線
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	222	219
		頂部 Sa (nm)	—	—	270	270
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	41	34
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	299	182
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	70	54
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	220	210
		頂部 Sa (nm)	—	—	260	270
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	40	34
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	299	178
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	70	56
刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )			—	—	20	20
評價	自黏力 (N/15 cm)		5.7	7.4	14.3	12.9

【0124】 [表 6]

			實施例 29	實施例 30	實施例 31	實施例 32
第 1 第 2 保護層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69	69	69	69.9
		乙醯化度 (mol%)	1	1	1	1.1
		羥基之含有率 (mol%)	30	30	30	29
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	36	36	36	39
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	350	350	350	350	
中間層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	3000	2300	1700	2300
		縮丁醛化度 (mol%)	64.2	64.2	64.2	77.8
		乙醯化度 (mol%)	12.5	12.5	12.5	1.5
		羥基之含有率 (mol%)	23.3	23.3	23.3	20.7
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	76.5	76.5	76.5	79
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	100	100	100	100	
中間膜整體	構造	構成	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層
		厚度 ( $\mu\text{m}$ )	800	800	800	800
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 1)	微細噴砂尺寸 (目數)	#320	#320	#320	#320
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	290	289	300	280
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	16	15	16	16
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	280	300	310	285
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	16	17	17	16
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	刻線	刻線	刻線	刻線
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	205	210	212	210
		頂部 Sa (nm)	283	290	303	290
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	34	34	35	34
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	190	195	198	191
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	53	55	57	55
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	220	231	225	215
		頂部 Sa (nm)	278	301	299	280
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	33	35	32	35
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	175	174	173	175
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	55	60	60	60
		刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )	90	90	90	90
	評價	自黏力 (N/15 cm)	7.8	7.9	7.8	7.7

【0125】 [表 7]

		實施例 33	比較例 7	比較例 8	比較例 9	
第 1 第 2 保護層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	68.5	69	69	69
		乙醯化度 (mol%)	0.5	1	1	1
		羥基之含有率 (mol%)	31	30	30	30
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	36	36	36	36
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	350	350	350	350	
中間層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	3000	3000	3000
		縮丁醛化度 (mol%)	67	64.2	64.2	64.2
		乙醯化度 (mol%)	8	12.5	12.5	12.5
		羥基之含有率 (mol%)	25	23.3	23.3	23.3
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	75	76.5	76.5	76.5
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	100	100	100	100	
中間膜整體	構造	構成	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層
		厚度 ( $\mu\text{m}$ )	800	800	800	800
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 1)	微細噴砂尺寸 (目數)	#320	#320	#800	#800
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	282	160	150	175
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	16	9	22	23
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	290	155	187	150
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	16	10	19	16
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	刻線	—	—	刻線
	第 1 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	205	—	—	130
		頂部 Sa (nm)	288	—	—	155
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	35	—	—	31
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	188	—	—	183
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	52	—	—	55
	第 2 表面之凹凸形狀	Sa (nm)	208	—	—	134
		頂部 Sa (nm)	270	—	—	151
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	36	—	—	32
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	173	—	—	174
		旋轉半徑 R ( $\mu\text{m}$ )	52	—	—	60
	刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )	90	—	—	20	
評價	自黏力 (N/15 cm)	7.5	53.1	29.0	25.0	

【0126】 (實施例 34)

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 8 所示之組成，除此以外，藉由與實施例 25 相同之方式獲得中間層用樹脂組成物及保護層用樹脂組成

物。

藉由使用共擠出機將所獲得之中間層用樹脂組成物與保護層用樹脂組成物共擠出，而獲得依序積層有由保護層用樹脂組成物所構成之第 1 保護層、由中間層用樹脂組成物所構成之中間層及由保護層用樹脂組成物所構成之第 2 保護層的 3 層構造之層合玻璃用中間膜。此時，依據上述製造例 2，於成膜層合玻璃用中間膜之同時賦予第 1 形狀。

即，於控制熔體破裂現象之壓紋賦予法中，將模具單位寬度之擠出量設為  $440 \text{ kg/hr} \cdot \text{m}$ ，將剛自模具擠出後之膜表面溫度設為  $200^\circ\text{C}$ ，將模具入口之樹脂壓力設為  $80 \text{ kgf/cm}^2$ ，將冷卻膜之水槽內之水溫設為  $20^\circ\text{C} \sim 30^\circ\text{C}$ ，於該條件下成膜層合玻璃用中間膜，與此同時對其兩面賦予第 1 形狀。此時，將自模具至冷卻水槽之表面之距離設為  $100 \text{ mm}$ 。

所獲得之層合玻璃用中間膜之第 1 保護層及第 2 保護層之厚度分別為  $350 \mu\text{m}$ ，中間層之厚度為  $100 \mu\text{m}$ 。又，藉由與實施例 1 相同之方法測定 Sa 值及 Rz 值。

**【0127】** （實施例 35、36、比較例 10）

如表 8 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，除此以外，藉由與實施例 34 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0128】** （評價）

對實施例 34~36、比較例 10 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 8。

【0129】 [表 8]

			實施例 34	實施例 35	實施例 36	比較例 10
第 1 第 2 保護層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69.9	68.5	68.5	69.9
		乙醯化度 (mol%)	1.1	0.5	0.5	1.1
		羥基之含有率 (mol%)	29	31	31	29
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	39	36	36	39
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	350	350	350	350	
中間層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	2300	2300	3000	2300
		縮丁醛化度 (mol%)	77.8	67	67	77.8
		乙醯化度 (mol%)	1.5	8	8	1.5
		羥基之含有率 (mol%)	20.7	25	25	20.7
		含量 (質量份)	100	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	79	75	75	79
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	100	100	100	100	
中間膜整體	構造	構成	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層	第 1 保護層 / 中間層 / 第 2 保護層
		厚度 ( $\mu\text{m}$ )	800	800	800	800
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 2)	模具~水面間距離 (mm)	100	200	200	300
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	388	278	295	140
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	25	23	23	18
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	374	290	278	137
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	22	22	23	18
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	—	—	—	—
	第 1 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	—	—
		頂部 Sa (nm)	—	—	—	—
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
	第 2 表面之 凹凸形狀	Sa (nm)	—	—	—	—
		頂部 Sa (nm)	—	—	—	—
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	—	—	—	—
刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )		—	—	—	—	
評價	自黏力 (N/15 cm)	10.2	16.0	15.8	39.0	

## 【0130】 (實施例 37)

(層合玻璃用中間膜之製作及第 1 形狀之賦予)

藉由與實施例 34 相同之方式於成膜層合玻璃用中間膜之同時賦予第 1

形狀。

**【0131】** （第 2 形狀之賦予）

對已賦予有第 1 形狀之層合玻璃用中間膜之表面藉由下述程序而賦予底部連續之槽狀凹凸。採用由使用三角形斜線型研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的一對輥作為凹凸形狀轉印裝置，使已賦予有第 1 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有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 70°C，將輥溫度設為 140°C，將線速度設為 10 m/min，將加壓線壓於 1~100 kN/m 之間進行調整。繼而，亦對層合玻璃用中間膜之第 2 表面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槽狀（刻線狀）凹部與對第 2 表面賦予之底部連續之槽狀（刻線狀）凹部的交叉角度成為 20°。第 2 形狀賦予後，藉由與實施例 4 相同之方法測定第 1 表面及第 2 表面之凹凸。

**【0132】** （實施例 38、比較例 11）

將所使用之聚乙烯醇縮丁醛之組成變更為表 9 所示之組成，如表 9 所示般變更第 1 形狀之賦予時自模具至冷卻水槽之表面之距離，如表 9 所示般變更第 2 形狀之賦予時之壓紋形狀及間距寬度，進而，將第 2 形狀之賦予時之加壓線壓於 1~100 kN/m 之範圍內進行調節以獲得所需粗糙度，除此以外，藉由與實施例 37 相同之方式製造層合玻璃用中間膜，並對其兩面之凹凸進行測定。

**【0133】** （評價）

對實施例 37、38、比較例 11 中所獲得之層合玻璃用中間膜，藉由與實施例 1 相同之方法進行自黏力之評價。將結果示於表 9。

【0134】 [表 9]

			實施例 37	實施例 38	比較例 11
第 1 第 2 保護層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	1700	1700	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	69.9	68.5	68.5
		乙醯化度 (mol%)	1.1	0.5	0.5
		羥基之含有率 (mol%)	29	31	31
		含量 (質量份)	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	39	36	36
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	350	350	350	
中間層	聚乙烯醇縮丁醛樹脂	PVA 之平均聚合度	2300	2300	1700
		縮丁醛化度 (mol%)	77.8	67	67
		乙醯化度 (mol%)	1.5	8	8
		羥基之含有率 (mol%)	20.7	25	25
		含量 (質量份)	100	100	100
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO
		含量 (質量份)	79	75	75
構造	厚度 ( $\mu\text{m}$ )	100	100	100	
中間膜整體	構造	構成	第 1 保護層/ 中間層/ 第 2 保護層	第 1 保護層/ 中間層/ 第 2 保護層	第 1 保護層/ 中間層/ 第 2 保護層
		厚度 ( $\mu\text{m}$ )	800	800	800
第 1 形狀	賦予方法 (製造例 2)	模具~水面間 距離 (mm)	100	200	300
	第 1 表面之凹 凸形狀	Sa (nm)	388	260	135
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	25	17	19
	第 2 表面之凹 凸形狀	Sa (nm)	374	259	133
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	22	18	18
第 2 形狀	賦予方法	壓紋類型 (形狀)	刻線	刻線	刻線
	第 1 表面之凹 凸形狀	Sa (nm)	320	209	98
		頂部 Sa (nm)	367	254	129
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	44	43	37
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	200	201	199
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	60	70	88
	第 2 表面之凹 凸形狀	Sa (nm)	33	209	105
		頂部 Sa (nm)	380	250	133
		Rz ( $\mu\text{m}$ )	44	43	41
		Sm ( $\mu\text{m}$ )	200	200	180
		前端 R ( $\mu\text{m}$ )	63	68	80
刻線交叉角 ( $^{\circ}$ )			20	90	90
評價	自黏力 (N/15 cm)		8.8	6.5	28.0

[產業上之可利用性]

【0135】 根據本發明，可提供一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

【符號說明】

【0136】

- 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

201700292

## 發明摘要

※ 申請案號：105711160

※ 申請日：105. 4. 8.

※IPC 分類：

B32B17/10(2006.01)

B32B3/30(2006.01)

C08J5/18(2006.01)

B29C59/04(2006.01)

C03C27/12(2006.01)

B29L7/00(2006.01)

### 【發明名稱】(中文/英文)

層合玻璃用中間膜、層合玻璃、及層合玻璃用中間膜之製造方法

### 【中文】

本發明之目的在於提供一種即便於積層狀態下保管亦不會自黏而能夠容易地剝離之層合玻璃用中間膜、使用該層合玻璃用中間膜而成之層合玻璃、及該層合玻璃用中間膜之製造方法。

本發明之層合玻璃用中間膜於至少一表面具有大量凹部，上述具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。

### 【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

## 申請專利範圍

1. 一種層合玻璃用中間膜，其於至少一表面具有大量凹部，其特徵在於：  
上述具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。
2. 如申請專利範圍第 1 項之層合玻璃用中間膜，其中，具有凹部之表面之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 250 nm 以上。
3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之層合玻璃用中間膜，其中，具有凹部之表面其大量之凹部具有底部連續之溝形。
4. 如申請專利範圍第 3 項之層合玻璃用中間膜，其中，鄰接之底部連續之溝形之凹部平行且規則地並列。
5. 如申請專利範圍第 3 或 4 項之層合玻璃用中間膜，其於具有凹部之表面進一步具有大量凸部，上述凸部之頂部之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。
6. 如申請專利範圍第 3、4 或 5 項之層合玻璃用中間膜，其於兩面具有大量凹部，上述兩面之凹部具有底部連續之溝形，一面所具有之上述底部連續之溝形之凹部與另一面所具有之上述底部連續之溝形之凹部的交叉角  $\theta$  為  $10^\circ$  以上。
7. 如申請專利範圍第 3、4、5 或 6 項之層合玻璃用中間膜，其於具有凹部之表面進一步具有大量凸部，上述凸部之旋轉半徑 R 為 200  $\mu\text{m}$  以下。
8. 如申請專利範圍第 1、2、3、4、5、6 或 7 項之層合玻璃用中間膜，其中，具有凹部之表面之依據 JIS B 0601 (1994) 所測得之十點平均粗糙度 Rz 為 10  $\mu\text{m}$  以上。

9. 一種層合玻璃，其中，申請專利範圍第 1、2、3、4、5、6、7 或 8 項之層合玻璃用中間膜被積層於一對玻璃板之間。
10. 一種層合玻璃用中間膜，其於至少一表面具有大量凹部與大量凸部，其特徵在於：上述大量凹部具有底部連續之溝形，上述凸部之頂部之依據 ISO 25178 所測得之面算術平均粗糙度 Sa 為 200 nm 以上。
11. 一種層合玻璃，其中，申請專利範圍第 10 項之層合玻璃用中間膜被積層於一對玻璃板之間。
12. 一種層合玻璃用中間膜之製造方法，其係申請專利範圍第 1、2、3、4、5、6、7、8 或 10 項之層合玻璃用中間膜之製造方法，且具有使用藉由如下製造步驟所製作之壓紋輥，利用壓紋輥法對層合玻璃用中間膜之至少一表面賦予大量凹部的步驟，上述壓紋輥之製造步驟包括：

壓紋輥製造步驟 1，其係藉由使用研削材之噴擊處理而於金屬輥形成凹凸；壓紋輥製造步驟 2，其係對上述形成有凹凸之金屬輥之凸部之一部分進行研磨而形成平滑面；及壓紋輥製造步驟 3，其係藉由使用較上述壓紋輥製造步驟 1 中所使用之研削材微細之研削材進行噴擊處理而形成凹凸。
13. 如申請專利範圍第 12 項之層合玻璃用中間膜之製造方法，其中，壓紋輥製造步驟 3 中所使用之研削材之依據 JIS R6001 (1998) 之累積高度 3% 點之粒徑為 150  $\mu\text{m}$  以下，且依據 JIS R6001 (1998) 之累積高度 94% 點之粒徑為 11  $\mu\text{m}$  以上。
14. 一種層合玻璃用中間膜之製造方法，其係申請專利範圍第 1、2、3、4、5、6、7、8 或 10 項之層合玻璃用中間膜之製造方法，並

藉由控制熔體破裂現象之壓紋賦予法對層合玻璃用中間膜之至少一表面賦予大量凹部，且

具有自模具擠出用以形成層合玻璃用中間膜之樹脂組成物的步驟、及使用冷卻水槽冷卻所擠出之層合玻璃用中間膜的步驟；又，於上述冷卻步驟中將自上述模具至上述冷卻水槽之距離設為 250 mm 以下。

圖式

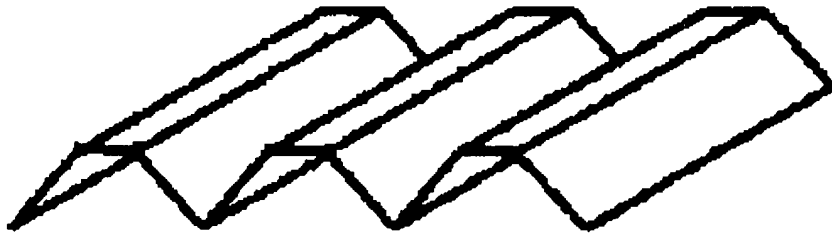


圖1

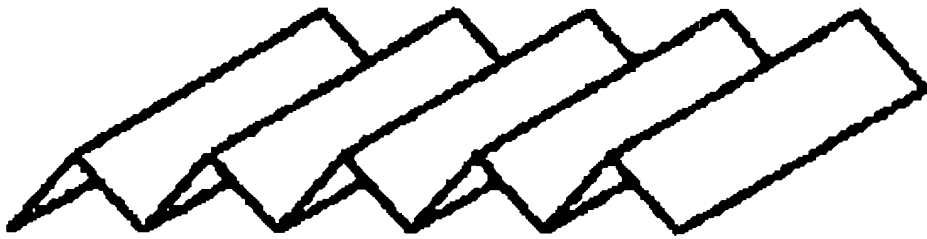


圖2

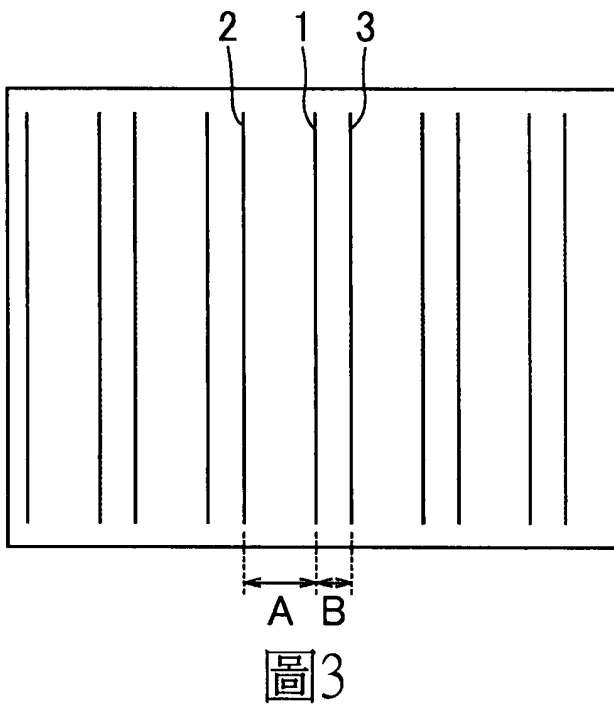


圖3

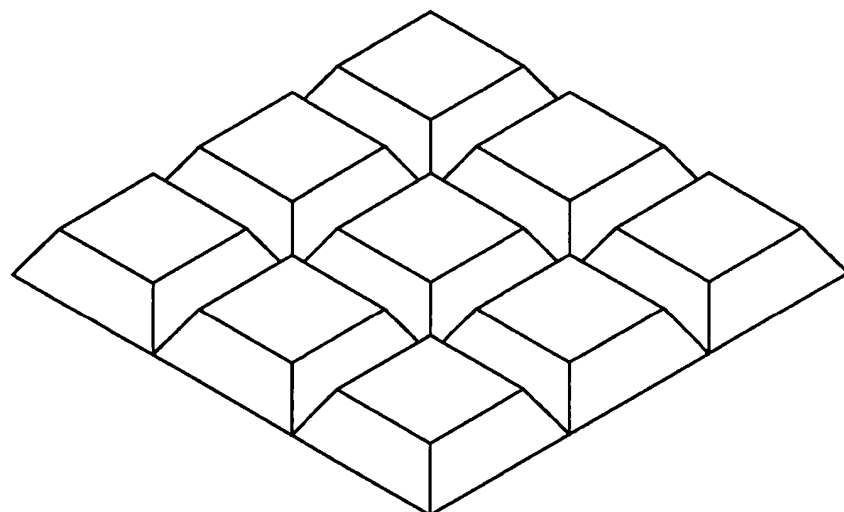


圖4

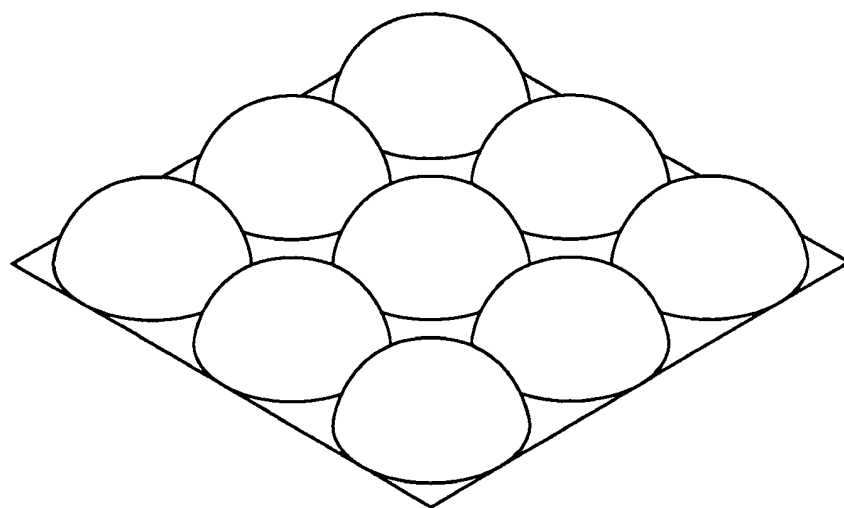


圖5

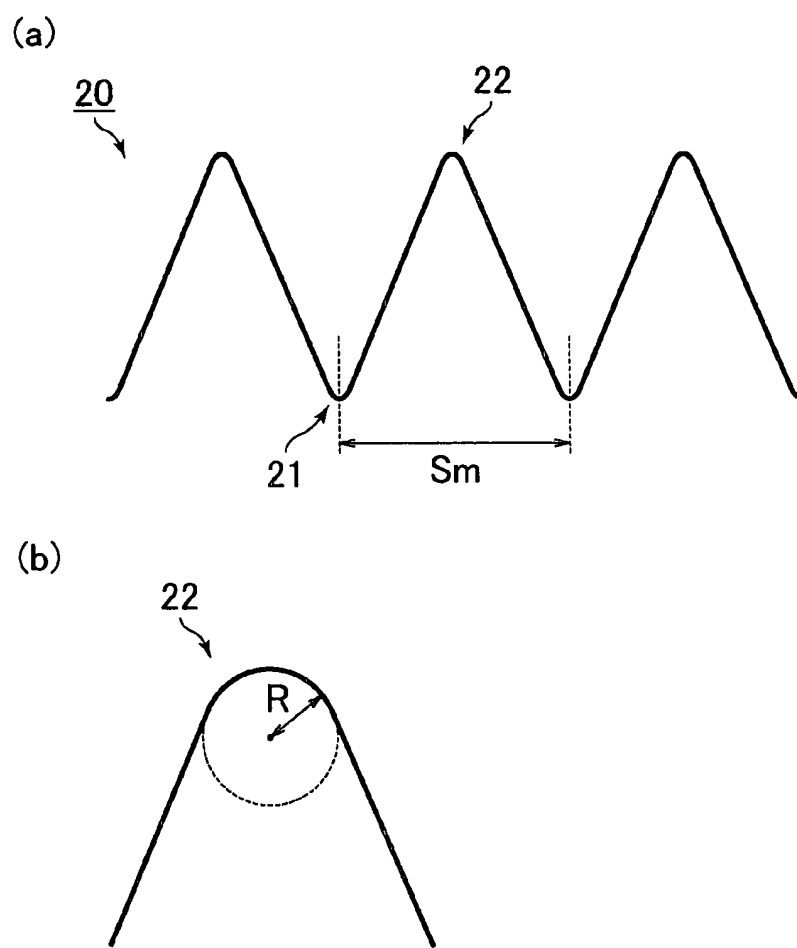


圖6

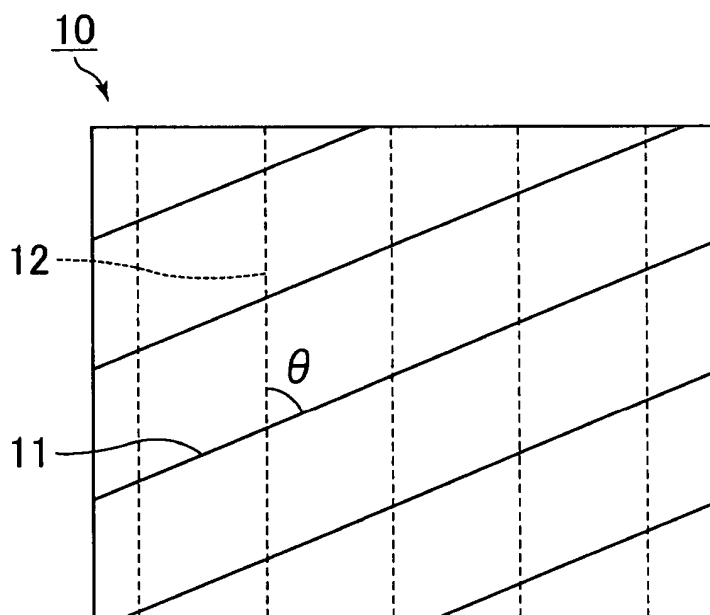


圖7