



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2017-0132706  
(43) 공개일자 2017년12월04일

- |  |   |
|--|---|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)<br/><b>B32B 17/10</b> (2006.01)</p> <p>(52) CPC특허분류<br/><b>B32B 17/1055</b> (2013.01)<br/><b>B32B 17/10036</b> (2013.01)</p> <p>(21) 출원번호 <b>10-2017-7003894</b></p> <p>(22) 출원일자(국제) <b>2016년03월24일</b><br/>심사청구일자 <b>없음</b></p> <p>(85) 번역문제출일자 <b>2017년02월13일</b></p> <p>(86) 국제출원번호 <b>PCT/JP2016/059474</b></p> <p>(87) 국제공개번호 <b>WO 2016/158695</b><br/>국제공개일자 <b>2016년10월06일</b></p> <p>(30) 우선권주장<br/>JP-P-2015-074434 2015년03월31일 일본(JP)<br/>JP-P-2015-074435 2015년03월31일 일본(JP)</p> | <p>(71) 출원인<br/><b>세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤</b><br/>일본 오사카후 오사카시 기타구 니시템마 2조메 4-4</p> <p>(72) 발명자<br/><b>미카야마, 가오루</b><br/>일본 6180021 오사카후 미시마군 시마모또쵸 하쿠야마 2-1 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내<br/><b>오오히가시, 유지</b><br/>일본 6180021 오사카후 미시마군 시마모또쵸 하쿠야마 2-1 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내</p> <p>(74) 대리인<br/><b>장수길, 박보현</b></p> |
|--|---|

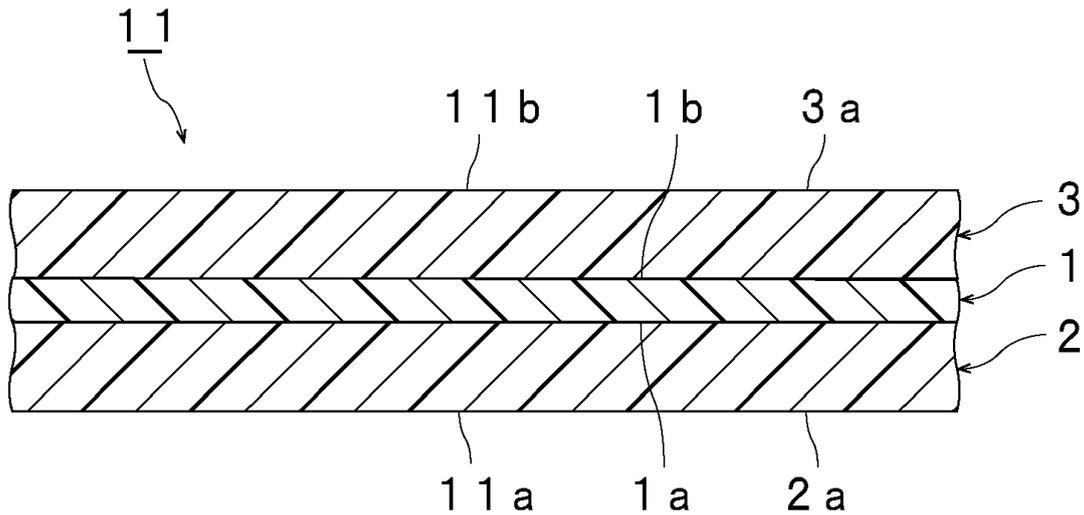
전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 발명의 명칭 **접합 유리용 중간막 및 접합 유리**

(57) 요약

접합 유리의 굽힘 강성, 차음성 및 장기 접착 안정성을 높일 수 있는 접합 유리용 중간막을 제공한다. 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막은, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이고, 또한 10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률을 30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률로 나눈 값이 1 이상, 10 이하이고, 유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하고, -50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ의 최댓값이 0.1 이상, 1 이하이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

**B32B 17/10761** (2013.01)

**B32B 2307/542** (2013.01)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이고,

10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률을 30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률로 나눈 값이 1 이상, 10 이하이고,

유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하고,

-50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의  $\tan \delta$ 의 최댓값이 0.1 이상, 1 이하인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 2

제1항에 있어서, 유리 전이 온도가 -20℃ 이상에 존재하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 중량 평균 분자량이 100000 이상, 1300000 이하인 수지를 포함하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 10% 이상의 온도 영역에서,  $\tan \delta$ 가 0.1 이상인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 400MPa 이하인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 폴리비닐아세탈 수지를 포함하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 7

제6항에 있어서, 상기 폴리비닐아세탈 수지가 폴리비닐아세트아세탈 수지 또는 폴리비닐부티랄 수지인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 8

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 아크릴 중합체를 포함하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 9

제6항 또는 제7항에 있어서, 폴리비닐아세탈 수지 이외의 열 가소성 수지를 포함하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 10

제6항 또는 제7항에 있어서, 아크릴 중합체를 포함하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 11

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서, 두께가 3mm 이하인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 12

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서, 두께가 1.6mm 이하인 제1 유리판을 사용하고, 상기 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용되는, 접합 유리용 중간막.

**청구항 13**

제1항 내지 제12항 중 어느 한 항에 있어서, 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용되고,

상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계가 3.5mm 이하인, 접합 유리용 중간막.

**청구항 14**

제1 접합 유리 부재와,

제2 접합 유리 부재와,

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 기재된 접합 유리용 중간막을 구비하고,

상기 제1 접합 유리 부재와 상기 제2 접합 유리 부재 사이에, 상기 접합 유리용 중간막이 배치되어 있는, 접합 유리.

**청구항 15**

제14항에 있어서, 상기 제1 접합 유리 부재가 제1 유리판이며,

상기 제1 유리판의 두께가 1.6mm 이하인, 접합 유리.

**청구항 16**

제14항 또는 제15항에 있어서, 상기 제1 접합 유리 부재가 제1 유리판이며,

상기 제2 접합 유리 부재가 제2 유리판이며,

상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계가 3.5mm 이하인, 접합 유리.

**발명의 설명**

**기술 분야**

[0001] 본 발명은 접합 유리를 얻기 위하여 사용되는 접합 유리용 중간막에 관한 것이다. 또한, 본 발명은 상기 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리에 관한 것이다.

**배경 기술**

[0002] 접합 유리는 외부 충격을 받아 파손되어도 유리 파편의 비산량이 적어 안전성이 우수하다. 이로 인해, 상기 접합 유리는 자동차, 철도 차량, 항공기, 선박 및 건축물 등에 널리 사용되고 있다. 상기 접합 유리는, 2개의 유리판 사이에 접합 유리용 중간막을 끼워 넣음으로써, 제조되고 있다.

[0003] 상기 접합 유리용 중간막으로서, 1층의 구조를 갖는 단층의 중간막과, 2층 이상의 구조를 갖는 다층의 중간막이 있다.

[0004] 상기 접합 유리용 중간막의 일례로서, 하기의 특허문헌 1에는 아세탈화도가 60 내지 85몰%인 폴리비닐아세탈 수지 100중량부와, 알칼리 금속염 및 알칼리 토금속염 중 적어도 1종의 금속염 0.001 내지 1.0중량부와, 30중량부를 초과하는 가소제를 포함하는 차음층이 개시되어 있다. 이 차음층은 단층이며 중간막으로서 사용될 수 있다.

[0005] 또한, 하기의 특허문헌 1에는 상기 차음층과 다른 층이 적층된 다층의 중간막도 기재되어 있다. 차음층에 적층되는 다른 층은, 아세탈화도가 60 내지 85몰%인 폴리비닐아세탈 수지 100중량부와, 알칼리 금속염 및 알칼리 토금속염 중 적어도 1종의 금속염 0.001 내지 1.0중량부와, 30중량부 이하인 가소제를 포함한다.

[0006] 하기의 특허문헌 2에는 33℃ 이상의 유리 전이 온도를 갖는 중합체층인 중간막이 개시되어 있다. 특허문헌 2에서는, 상기 중합체층이, 두께가 4.0mm 이하인 유리판 사이에 배치되는 것이 기재되어 있다.

[0007] 하기의 특허문헌 3에는 폴리비닐아세탈 (A), 적어도 1종의 가소제 (B), 폼드 실리카 (C) 및 적어도 1종의 염기성 화합물 (D)를 포함하는 중간막이 개시되어 있다. 이 중간막에서는, 폼드 실리카 (C)와 가소화 폴리비닐아세탈(A+B)의 굴절률의 차가 0.015 이하이고, 중량비 C/(A+B)가 2.7/100 내지 60/100이다.

**선행기술문헌**

**특허문헌**

- [0008] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 제2007-070200호 공보
- (특허문헌 0002) US 2013/0236711 A1
- (특허문헌 0003) WO 2008/122608 A1

**발명의 내용**

**해결하려는 과제**

- [0009] 특허문헌 1 내지 3에 기재한 바와 같은 종래의 중간막을 사용한 접합 유리에서는, 굽힘 강성이 낮은 경우가 있다. 이로 인해, 예를 들어 접합 유리가 창 유리로서, 자동차의 사이드 도어에 사용되는 경우에는, 접합 유리를 고정하는 프레임이 없어, 접합 유리의 강성이 낮은 것에 기인하는 휨이 원인으로, 창 유리의 개폐에 지장을 초래하는 경우가 있다.
- [0010] 또한, 근년, 접합 유리를 경량화하기 위하여, 유리판의 두께를 얇게 하는 것이 요구되고 있다. 2개의 유리판 사이에 중간막이 끼워 넣어진 접합 유리에 있어서, 유리판의 두께를 얇게 하면, 굽힘 강성을 충분히 높게 유지하는 것이 매우 곤란하다는 문제가 있다.
- [0011] 예를 들어, 유리판의 두께가 얇아도, 중간막에 기인하여 접합 유리의 굽힘 강성을 높일 수 있으면, 접합 유리를 경량화할 수 있다. 접합 유리가 경량이면, 접합 유리에 사용하는 재료의 양을 적게 할 수 있어, 환경 부하를 저감시킬 수 있다. 더욱이, 경량인 접합 유리를 자동차에 사용하면, 연비를 향상시킬 수 있어, 결과적으로 환경 부하를 저감시킬 수 있다.
- [0012] 또한, 특허문헌 3에서는, 인장 강도 등의 역학 특성이 개선되는 것이 기재되어 있다. 그러나, 일반적으로 인장 강도와 굽힘 강성은 상이하다. 인장 강도를 어느 정도 높일 수 있었다고 해도, 굽힘 강성을 충분히 높일 수 없는 경우가 있다.
- [0013] 또한, 중간막을 사용한 접합 유리에서는, 굽힘 강성이 높은 것 외에, 차음성도 높은 것이 요망된다. 특허문헌 3에서는, 인장 강도를 높일 수 있었다고 해도, 차음성이 충분히 높아지지 않는다. 특히, 두께가 얇은 유리판과, 유리 전이 온도가 낮은 차음층을 구비하는 중간막을 조합함으로써, 접합 유리의 굽힘 강성이 부족하다는 과제는 전혀 시사되어 있지 않다.
- [0014] 또한, 종래의 중간막을 보관하면, 중간막끼리 자착(自着)되어, 취급성이 저하되는 경우가 있고, 장기 접착 안정성이 낮은 경우가 있다.
- [0015] 본 발명의 목적은, 접합 유리의 굽힘 강성, 차음성 및 장기 접착 안정성을 높일 수 있는 접합 유리용 중간막을 제공하는 것이다. 또한, 본 발명은 상기 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리를 제공하는 것도 목적으로 한다.

**과제의 해결 수단**

- [0016] 본 발명의 넓은 국면에 의하면, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이고, 10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률이 30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률로 나눈 값이 1 이상, 10 이하이고, 유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하고, -50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ의 최대값이 0.1 이상, 1 이하인, 접합 유리용 중간막(이하, 중간막이라고 기재하는 경우가 있음)이 제공된다.
- [0017] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 유리 전이 온도가 -20℃ 이상에 존재한다.

- [0018] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은, 중량 평균 분자량이 100000 이상, 1300000 이하인 수지를 포함한다.
- [0019] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 10% 이상의 온도 영역에서,  $\tan \delta$ 가 0.1 이상이다.
- [0020] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 400MPa 이하이다.
- [0021] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 폴리비닐아세탈 수지를 포함한다.
- [0022] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지가 폴리비닐아세트아세탈 수지 또는 폴리비닐부티랄 수지이다.
- [0023] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 아크릴 중합체를 포함한다.
- [0024] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은, 폴리비닐아세탈 수지와, 폴리비닐아세탈 수지 이외의 열 가소성 수지를 포함한다.
- [0025] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은, 폴리비닐아세탈 수지와 아크릴 중합체를 포함한다.
- [0026] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 두께가 3mm 이하이다.
- [0027] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은, 두께가 1.6mm 이하인 제1 유리판을 사용하고, 상기 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다.
- [0028] 본 발명에 관한 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용되고, 상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계가 3.5mm 이하이다.
- [0029] 본 발명의 넓은 국면에 의하면, 제1 접합 유리 부재와, 제2 접합 유리 부재와, 상술한 접합 유리용 중간막을 구비하고, 상기 제1 접합 유리 부재와 상기 제2 접합 유리 부재 사이에, 상기 접합 유리용 중간막이 배치되어 있는, 접합 유리가 제공된다.
- [0030] 본 발명에 관한 접합 유리의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제1 접합 유리 부재가 제1 유리판이며, 상기 제1 유리판의 두께가 1.6mm 이하이다.
- [0031] 본 발명에 관한 접합 유리의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제1 접합 유리 부재가 제1 유리판이며, 상기 제2 접합 유리 부재가 제2 유리판이며, 상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계가 3.5mm 이하이다.

**발명의 효과**

- [0032] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막에서는, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이며, 또한 10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률을 30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률로 나눈 값이 1 이상, 10 이하이고, 유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하고, -50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의  $\tan \delta$ 의 최댓값이 0.1 이상, 1 이하이므로, 중간막을 사용한 접합 유리의 굽힘 강성, 차음성 및 장기 접착 안정성을 높일 수 있다.

**도면의 간단한 설명**

- [0033] 도 1은 본 발명의 제1 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- 도 2는 본 발명의 제2 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- 도 3은 도 1에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- 도 4는 도 2에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- 도 5는 굽힘 강성의 측정 방법을 설명하기 위한 모식도이다.

**발명을 실시하기 위한 구체적인 내용**

- [0034] 이하, 본 발명을 상세하게 설명한다.
- [0035] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막(이하, 중간막이라고 기재하는 경우가 있음)은 1층의 구조 또는 2층 이상의 구조를 갖는다. 본 발명에 관한 중간막은 1층의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 2층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있다. 본 발명에 관한 중간막은 2층의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 3층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있다. 본 발명에 관한 중간막은 제1 층을 구비한다. 본 발명에 관한 중간막은, 제1 층만을 구비하는 단층의 중간막일 수도 있고, 제1 층과 다른 층을 구비하는 다층의 중간막일 수도 있다.
- [0036] 본 발명에 관한 중간막에 있어서, 주파수 1Hz에서 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역에서의 전단 저장 등가 탄성률을 측정한다. 본 발명에 관한 중간막에서는, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 상기 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이다.
- [0037] 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, 10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률을 30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률로 나눈 값(10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률/30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률)이 1 이상, 10 이하이다.
- [0038] 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, 유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재한다. 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, -50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ의 최댓값이 0.1 이상, 1 이하이다.
- [0039] 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기한 구성이 구비되어 있으므로, 중간막을 사용한 접합 유리의 굽힘 강성을 높일 수 있다. 또한, 접합 유리를 얻기 위하여, 중간막은, 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되는 경우가 많다. 제1 유리판의 두께가 얇아도, 본 발명에 관한 중간막의 사용에 의해, 접합 유리의 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있다. 또한, 제1 유리판과 제2 유리판 양쪽의 두께가 얇아도, 본 발명에 관한 중간막의 사용에 의해, 접합 유리의 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있다. 또한, 제1 유리판과 제2 유리판 양쪽의 두께가 두꺼우면, 접합 유리의 굽힘 강성은 보다 한층 높아진다.
- [0040] 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기한 구성이 구비되어 있으므로, 중간막을 사용한 접합 유리의 차음성도 높일 수 있다.
- [0041] 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기한 구성이 구비되어 있으므로, 내관통성이 우수한 접합 유리를 얻을 수 있다.
- [0042] 만곡된 접합 유리를 얻는 것 등을 목적으로 하여, 중간막은, 굽힘 유리에 적용되는 경우가 있다. 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기한 구성이 구비되어 있으므로, 중간막의 굽힘 접합성을 높일 수 있다. 굽힘 접합성이란, 굽힘 유리에 접합할 때의 접합하기 쉬움을 의미한다.
- [0043] 또한, 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기한 구성이 구비되어 있으므로, 중간막을 보관해도, 중간막끼리 자착되기 어려워, 장기간에 걸쳐 양호한 취급성을 유지할 수 있고, 장기 접착 안정성을 높일 수 있다.
- [0044] 전단 저장 등가 탄성률은, 다층체를 단층으로 간주했을 때의 전단 저장 탄성률을 나타낸다. 또한, 단층의 경우에는, 단층의 전단 저장 탄성률을 나타낸다. 전단 저장 등가 탄성률은, 층간에서 미끄러지지 않는 경우, 예를 들어 중간막을 구성하는 층 구성의 상태에서, 일반적인 동적 점탄성 측정 방법으로 전단 저장 탄성률을 측정함으로써, 측정할 수 있다.
- [0045] 상기 전단 저장 등가 탄성률을 측정하는 방법으로서, 중간막을, 실온 23±2℃, 습도 25±5%의 환경 하에 12시간 보관한 직후에, 메트라비브(Metravib)사제의 점탄성 측정 장치 「DMA+1000」을 사용하여, 점탄성을 측정하는 방법을 들 수 있다. 중간막을 길이 50mm, 폭 20mm로 잘라내고, 전단 모드에서 2℃/분의 승온 속도로 -50℃로부터 100℃까지 온도를 상승시키는 조건, 및 주파수 1Hz 및 변형 0.05%의 조건에서 측정하는 것이 바람직하다.
- [0046] 또한, 전단 저장 등가 탄성률 G'\*은 이하의 식 (X)에 의해 구해진다.
- [0047] 
$$G' * = (\sum i a_i) / (\sum i a_i / G' i) \quad \dots \text{식 (X)}$$
- [0048] 상기 식 (X) 중의 G'i는 중간막에 있어서의 i층째의 전단 저장 탄성률을 나타내고, ai는 중간막에 있어서의 i층째의 두께를 나타낸다. Σi는 i층의 수치의 합을 계산하는 것을 의미한다.
- [0049] 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 상기 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하임으로써, 높은 굽힘 강성과, 높은 차음성 모두를 달성할 수 있다. 특히, 접합 유리가 범용되는 온도 조건에서, 높은 굽힘 강성과, 높은 차음성 모두를 양립시킬 수 있다.

- [0050] 전단 저장 등가 탄성률이 낮으면, 굽힘 강성이 낮아지는 경향이 있다. 전단 저장 등가 탄성률이 높으면, 코인시던스 주파수가 저주파수측이 되기 때문에, 귀에서 감도 높게 소리가 인식되어, 차음성이 나빠지는 경향이 있고, 또한 유연성이 저하되어, 내관통성 및 굽힘 접합 특성도 저하되는 경향이 있다. 또한, 전단 저장 등가 탄성률이 낮으면, 자착성이 높아지기 때문에, 장기 접착 안정성이 나빠져, 성능을 안정되게 발휘하지 않게 될 가능성이 있다.
- [0051] 굽힘 강성과 차음성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 상기 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 400MPa 이하인 것이 바람직하다.
- [0052] 상기 값(10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률/30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률)은 1 이상, 바람직하게는 1.1 이상, 보다 바람직하게는 2 이상, 10 이하, 바람직하게는 9 이하, 보다 바람직하게는 5 이하이다. 상기 값이 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 접합 유리가 범용되는 온도 조건에서, 굽힘 강성이 보다 한층 높아지고, 차음성이 보다 한층 높아진다.
- [0053] 본 발명에 관한 중간막에서는, 유리 전이 온도가 -25℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하는 것이 바람직하다. 본 발명에 관한 중간막에서는, 유리 전이 온도가 -20℃ 이상, 0℃ 이하에 존재하는 것이 보다 바람직하다. 유리 전이 온도가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 시간 온도 환산칙에 의해 코인시던스 주파수에 대응하는 온도로 할 수 있어, 차음성을 개선할 수 있다. 또한, 빠른 속도에 대응 가능하게 되기 때문에, 고속의 충격 에너지 흡수성이 높아지고, 내관통성이 향상된다.
- [0054] 상기 유리 전이 온도를 측정하는 방법으로서, 얻어진 중간막을, 실온 23±2℃, 습도 25±5%의 환경 하에 12시간 보관한 직후에, 메트라비브사제의 점탄성 측정 장치 「DMA1000」을 사용하여, 점탄성을 측정하는 방법을 들 수 있다. 중간막을 길이 50mm, 폭 20mm로 잘라내고, 전단 모드에서 2℃/분의 승온 속도로 -50℃로부터 100℃까지 온도를 상승시키는 조건, 및 주파수 1Hz 및 변형 0.05%의 조건에서, 유리 전이 온도를 측정하는 것이 바람직하다.
- [0055] -50℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tanδ의 최댓값은 0.1 이상, 바람직하게는 0.11 이상, 1 이하, 바람직하게는 0.8 이하, 보다 바람직하게는 0.6 이하이다. tanδ의 최댓값이 상기 하한 이상이면 에너지 손실능이 높아지기 때문에, 차음성, 내관통성 및 굽힘 접합성이 효과적으로 높아진다. tanδ의 최댓값이 상기 상한 이하이면, 전단 저장 등가 탄성률이 적절하게 높아지고, 굽힘 강성 및 내관통성이 효과적으로 높아진다. 또한, tanδ의 최댓값이 상기 상한 이하이면, 장기 접착 안정성이 효과적으로 높아진다.
- [0056] -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 10% 이상의 온도 영역에서, tanδ가 0.1 이상인 것이 바람직하다. 이 경우에는, 저온부터 실온(23℃)까지의 온도 영역에서의 차음성이 효과적으로 높아진다.
- [0057] 상기 중간막은 2층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 제1 층 외에 제2 층을 구비하고 있을 수도 있다. 상기 중간막은, 제2 층을 더 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막이 상기 제2 층을 구비하는 경우에, 상기 제1 층의 제1 표면측에 상기 제1 층이 배치된다.
- [0058] 상기 중간막은, 3층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 제1 층 및 제2 층 외에 제3 층을 구비하고 있을 수도 있다. 상기 중간막은, 제3 층을 더 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막이 상기 제2 층 및 상기 제3 층을 구비하는 경우에, 상기 제1 층의 상기 제1 표면과는 반대인 제2 표면측에 상기 제3 층이 배치된다.
- [0059] 상기 제2 층의 상기 제1 층측과는 반대의 표면은, 접합 유리 부재 또는 유리판이 적층되는 표면인 것이 바람직하다. 상기 제2 층에 적층되는 유리판의 두께는 바람직하게는 1.6mm 이하, 보다 바람직하게는 1.3mm 이하이다. 상기 제1 층의 제1 표면(상기 제2 층측의 표면)과는 반대인 제2 표면은, 접합 유리 부재 또는 유리판이 적층되는 표면일 수도 있다. 상기 제1 층에 적층되는 유리판의 두께가 바람직하게는 1.6mm 이하, 보다 바람직하게는 1.3mm 이하이다. 상기 제3 층의 상기 제1 층측과는 반대의 표면은, 접합 유리 부재 또는 유리판이 적층되는 표면인 것이 바람직하다. 상기 제3 층에 적층되는 유리판의 두께는 바람직하게는 1.6mm 이하, 보다 바람직하게는 1.3mm 이하이다.
- [0060] 상기 중간막은 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 적합하게 사용된다. 중간막에 기인하여 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있으므로, 상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계는 바람직하게는 3.5mm 이하, 보다 바람직하게는 3mm 이하이다. 상기 중간막은 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 적합하게 사용된다. 중간막에 기인하여 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있으므로, 상기 중간막은, 두께가 1.6mm 이하(바람직하게는 1.3mm 이하)인 제1 유리판을 사용하고, 해당 제1 유

리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 적합하게 사용된다. 중간막에 기인하여 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있으므로, 상기 중간막은, 두께가 1.6mm 이하(바람직하게는 1.3mm 이하)인 제1 유리판과 두께가 1.6mm 이하(바람직하게는 1.3mm 이하)인 제2 유리판을 사용하고, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 보다 적합하게 사용된다.

- [0061] 이하, 도면을 참조하면서, 본 발명의 구체적인 실시 형태를 설명한다.
- [0062] 도 1에, 본 발명의 제1 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 단면도로 나타낸다.
- [0063] 도 1에 도시하는 중간막(11)은 2층 이상의 구조를 갖는 다층의 중간막이다. 중간막(11)은 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다. 중간막(11)은 접합 유리용 중간막이다. 중간막(11)은 제1 층(1)과, 제2 층(2)과, 제3 층(3)을 구비한다. 제1 층(1)의 제1 표면(1a)에, 제2 층(2)이 배치되어 있고, 적층되어 있다. 제1 층(1)의 제1 표면(1a)과는 반대인 제2 표면(1b)에, 제3 층(3)이 배치되어 있고, 적층되어 있다. 제1 층(1)은 중간층이다. 제2 층(2) 및 제3 층(3)은 각각 보호층이며, 본 실시 형태에서는 표면층이다. 제1 층(1)은 제2 층(2)과 제3 층(3) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다. 따라서, 중간막(11)은 제2 층(2)과 제1 층(1)과 제3 층(3)이 이 순으로 적층된 다층 구조(제2 층(2)/제1 층(1)/제3 층(3))를 갖는다.
- [0064] 또한, 제2 층(2)과 제1 층(1) 사이, 및 제1 층(1)과 제3 층(3) 사이에는 각각 다른 층이 배치되어 있을 수도 있다. 제2 층(2)과 제1 층(1), 및 제1 층(1)과 제3 층(3)은 각각 직접 적층되어 있는 것이 바람직하다. 다른 층으로서, 폴리에틸렌테레프탈레이트 등을 포함하는 층을 들 수 있다.
- [0065] 도 2에 본 발명의 제2 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 단면도로 나타낸다.
- [0066] 도 2에 도시하는 중간막(11A)은, 1층의 구조를 갖는 단층의 중간막이다. 중간막(11A)은 제1 층이다. 중간막(11A)은 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다. 중간막(11A)은 접합 유리용 중간막이다.
- [0067] 이하, 본 발명에 관한 중간막을 구성하는 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 상세, 및 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층에 포함되는 각 성분의 상세를 설명한다.
- [0068] (수지)
- [0069] 중간막, 상기 제1 층, 상기 제2 층, 상기 제3 층은, 수지를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 수지로서는, 열경화성 수지 및 열 가소성 수지를 들 수 있다.
- [0070] 상기 수지의 중량 평균 분자량은, 바람직하게는 30000 이상, 보다 바람직하게는 100000 이상, 더욱 바람직하게는 120000 이상, 바람직하게는 1500000 이하, 보다 바람직하게는 1300000 이하, 더욱 바람직하게는 1200000 이하, 특히 바람직하게는 750000 이하, 가장 바람직하게는 450000 이하이다. 상기 중량 평균 분자량이 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 압출 성형에 의해 중간막을 용이하게 얻을 수 있고, 또한 전단 저장 등가 탄성률이 적당해지고, 굽힘 접합성이나 발포 억제성이 보다 한층 양호해진다.
- [0071] 상기 중량 평균 분자량은, 겔 투과 크로마토그래피(GPC)에 의해 측정되는 폴리스티렌 환산으로의 중량 평균 분자량을 나타낸다.
- [0072] 상기 수지는 열 가소성 수지인 것이 바람직하고, 폴리비닐아세탈 수지, 아크릴 중합체, 우레탄 중합체, 실리콘 중합체, 고무 또는 아세트산비닐 중합체인 것이 바람직하고, 폴리비닐아세탈 수지 또는 아크릴 중합체인 것이 보다 바람직하고, 폴리비닐아세탈 수지인 것이 더욱 바람직하다. 폴리비닐아세탈 수지의 사용에 의해, 강인성이 효과적으로 높아지고, 내관통성이 보다 한층 높아진다. 상기 열 가소성 수지는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용되어 있을 수도 있다.
- [0073] 강성, 차음성, 내관통성, 굽힘 접합성 및 장기 접착 안정성을 효과적으로 높이는 관점에서는, 상기 중간막은 폴리비닐아세탈 수지 또는 아크릴 중합체를 포함하는 것이 바람직하다. 이 경우에, 폴리비닐아세탈 수지와 아크릴 중합체 중 한쪽만을 사용할 수도 있고, 양쪽을 사용할 수도 있다. 강성, 차음성, 내관통성, 굽힘 접합성 및 장기 접착 안정성을 효과적으로 높이는 관점에서는, 중간막은 폴리비닐아세탈 수지를 포함하는 것이 바람직하고, 아크릴 중합체를 포함하는 것이 바람직하다.
- [0074] 상기 중간막은, 폴리비닐아세탈 수지와, 폴리비닐아세탈 수지 이외의 열 가소성 수지를 포함하고 있을 수도 있다. 상기 중간막은, 아크릴 중합체 이외의 열 가소성 수지와, 아크릴 중합체를 포함하고 있을 수도 있다. 상기 열 가소성 수지를 2종 이상 병용하는 경우의 조합으로서, 상기 중간막은 폴리비닐아세탈 수지와 아크릴 중합체를 포함하는 것이 특히 바람직하다. 상기 열 가소성 수지를 2종 이상 병용한 경우에는 성능 밸런스를 용이

하게 조정할 수 있고, 강성, 차음성, 내관통성, 굽힘 접합성 및 장기 접착 안정성을 효과적으로 높일 수 있다. 특히, 폴리비닐아세탈 수지와 아크릴 중합체의 조합에 의해, 상기 성능을 더욱 높일 수 있다.

- [0075] 강성, 차음성, 내관통성, 굽힘 접합성 및 장기 접착 안정성을 효과적으로 높이는 관점에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지는 폴리비닐아세타아세탈 수지 또는 폴리비닐부티랄 수지인 것이 바람직하다. 본 명세서에 있어서, 폴리비닐아세탈 수지에는 아세타아세탈화된 수지가 포함된다.
- [0076] 상기 수지는 극성기를 갖는 것이 바람직하고, 수산기를 갖는 것이 바람직하다. 이러한 기의 존재에 의해, 중간막은 강인해질 뿐만 아니라, 중간막과 접합 유리 부재의 접착성이 보다 한층 높아지고, 굽힘 강성 및 내관통성이 보다 한층 높아진다.
- [0077] 상기 아크릴 중합체는, (메트)아크릴산에스테르를 포함하는 중합 성분의 중합체인 것이 바람직하다. 상기 아크릴 중합체는, 폴리(메트)아크릴산에스테르인 것이 바람직하다.
- [0078] 상기 폴리(메트)아크릴산에스테르는 특별히 한정되지 않는다. 상기 폴리(메트)아크릴산에스테르로서는, 예를 들어 폴리(메트)아크릴산메틸, 폴리(메트)아크릴산에틸, 폴리(메트)아크릴산n-프로필, 폴리(메트)아크릴산i-프로필, 폴리(메트)아크릴산n-부틸, 폴리(메트)아크릴산i-부틸, 폴리(메트)아크릴산t-부틸, 폴리(메트)아크릴산2-에틸헥실, 폴리(메트)아크릴산2-히드록시에틸, 폴리(메트)아크릴산4-히드록시부틸, 폴리(메트)아크릴산글리시딜, 폴리(메트)아크릴산옥틸, 폴리(메트)아크릴산프로필, 폴리(메트)아크릴산2-에틸옥틸, 폴리(메트)아크릴산노닐, 폴리(메트)아크릴산이소노닐, 폴리(메트)아크릴산데실, 폴리(메트)아크릴산이소데실, 폴리(메트)아크릴산라우릴, 폴리(메트)아크릴산이소테트라데실, 폴리(메트)아크릴산 시클로헥실 및 폴리(메트)아크릴산벤질 등을 들 수 있다. 또한, 극성기를 갖는 (메트)아크릴산 및 (메트)아크릴산에스테르로서는, (메트)아크릴산, (메트)아크릴산2-히드록시에틸, (메트)아크릴산4-히드록시부틸 및 (메트)아크릴산글리시딜 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 동적 점탄성 스펙트럼에 있어서, 손실 정점의 극대값을 나타내는 온도를 적당한 범위 내로 용이하게 제어할 수 있는 점에서, 폴리아크릴산에스테르가 바람직하고, 폴리아크릴산에틸, 폴리아크릴산n-부틸, 폴리아크릴산2-에틸헥실 또는 폴리아크릴산옥틸이 보다 바람직하다. 이들 바람직한 폴리(메트)아크릴산에스테르의 사용에 의해, 중간막의 생산성과 중간막의 특성의 밸런스가 보다 한층 양호해진다. 상기 폴리(메트)아크릴산에스테르는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0079] 상기 열 가소성 수지는 가교 구조를 가질 수도 있다. 상기 열 가소성 수지가 가교 구조를 가짐으로써, 전단 저항 증가 탄성률을 제어할 수 있고, 우수한 가요성과 높은 강도를 겸비한 중간막을 제작할 수 있다. 상기 열 가소성 수지를 가교시키는 방법으로서, 수지의 중합체 구조 중에 서로 반응하는 관능기를 도입해 두고, 가교를 형성시키는 방법, 수지의 중합체 구조 중에 존재하는 관능기에 대하여 반응하는 관능기를 2개 이상 갖는 가교제를 사용하여 가교시키는 방법, 과산화물 등의 수소 인발능을 갖는 라디칼 발생제를 사용하여 중합체를 가교시키는 방법, 및 전자선 조사에 의해 가교시키는 방법 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 전단 저항 증가 탄성률을 제어하기 쉽고, 중간막의 생산성이 높아지는 점에서, 수지의 중합체 구조 중에 서로 반응하는 관능기를 도입해 두고, 가교를 형성시키는 방법이 적합하다.
- [0080] 상기 제1 층은 열 가소성 수지(이하, 열 가소성 수지 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하고, 열 가소성 수지 (1)로서, 폴리비닐아세탈 수지(이하, 폴리비닐아세탈 수지 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 열 가소성 수지(이하, 열 가소성 수지 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하고, 열 가소성 수지 (2)로서, 폴리비닐아세탈 수지(이하, 폴리비닐아세탈 수지 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 열 가소성 수지(이하, 열 가소성 수지 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하고, 열 가소성 수지 (3)으로서, 폴리비닐아세탈 수지(이하, 폴리비닐아세탈 수지 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)과 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)와 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)은, 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있지만, 차음성이 보다 한층 높아지는 점에서, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)은, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)과 상이한 것이 바람직하다. 상기 열 가소성 수지 (1)과 상기 열 가소성 수지 (2)와 상기 열 가소성 수지 (3)은, 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1), 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)은 각각 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다. 상기 열 가소성 수지 (1), 상기 열 가소성 수지 (2) 및 상기 열 가소성 수지 (3)은 각각 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0081] 상기 열 가소성 수지로서는, 폴리비닐아세탈 수지, 폴리아크릴 수지, 에틸렌-아세트산비닐 공중합체 수지, 에틸렌-아크릴산 공중합체 수지, 폴리우레탄 수지 및 폴리비닐알코올 수지 등을 들 수 있다. 이들 이외의 열 가소

성 수지를 사용할 수도 있다.

- [0082] 상기 폴리비닐아세탈 수지는, 예를 들어 폴리비닐알코올을 알데히드에 의해 아세탈화함으로써 제조할 수 있다. 상기 폴리비닐아세탈 수지는, 폴리비닐알코올의 아세탈화물인 것이 바람직하다. 상기 폴리비닐알코올은, 예를 들어 폴리아세트산비닐을 비누화함으로써 얻어진다. 상기 폴리비닐알코올의 비누화도는, 일반적으로 70 내지 99.9몰%이다.
- [0083] 상기 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도는, 바람직하게는 200 이상, 보다 바람직하게는 500 이상, 보다 한층 바람직하게는 1500 이상, 더욱 바람직하게는 1600 이상, 특히 바람직하게는 2600 이상, 특히 바람직하게는 2700 이상, 바람직하게는 5000 이하, 보다 바람직하게는 4000 이하, 더욱 바람직하게는 3500 이하이다. 상기 평균 중합도가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 내관통성과 굽힘 강성이 보다 한층 높아진다. 상기 평균 중합도가 상기 상한 이하이면, 중간막의 성형이 용이해진다.
- [0084] 상기 폴리비닐알코올의 평균 중합도는, JIS K6726 「폴리비닐알코올 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 구해진다.
- [0085] 상기 폴리비닐아세탈 수지에 있어서의 아세탈기의 탄소수는 2 내지 10인 것이 바람직하고, 2 내지 5인 것이 보다 바람직하고, 2, 3 또는 4인 것이 더욱 바람직하다. 또한, 상기 폴리비닐아세탈 수지에 있어서의 아세탈기의 탄소수가 2 또는 4인 것이 바람직하고, 이 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지의 생산이 효율적이다.
- [0086] 상기 알데히드로서, 일반적으로는, 탄소수가 1 내지 10인 알데히드가 적합하게 사용된다. 상기 탄소수가 1 내지 10인 알데히드로서는, 예를 들어 포름알데히드, 아세트알데히드, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드, 이소부틸알데히드, n-발레르알데히드, 2-에틸부틸알데히드, n-헥실알데히드, n-옥틸알데히드, n-노닐알데히드, n-데실알데히드 및 벤즈알데히드 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 아세트알데히드, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드, 이소부틸알데히드, n-헥실알데히드 또는 n-발레르알데히드가 바람직하고, 아세트알데히드, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드, 이소부틸알데히드 또는 n-발레르알데히드가 보다 바람직하고, 아세트알데히드, n-부틸알데히드 또는 n-발레르알데히드가 더욱 바람직하다. 상기 알데히드는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0087] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)을 단층의 중간막의 일부로서 사용하는 경우에는, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율(수산기량)은, 바람직하게는 25몰% 이상, 보다 바람직하게는 28몰% 이상, 보다 바람직하게는 30몰% 이상, 보다 한층 바람직하게는 31.5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 32몰% 이상, 특히 바람직하게는 33몰% 이상, 바람직하게는 37몰% 이하, 보다 바람직하게는 36.5몰% 이하, 더욱 바람직하게는 36몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율이 상기 하한 이상이면 굽힘 강성이 보다 한층 높아지고, 중간막의 접착력이 보다 한층 높아진다. 또한, 상기 수산기의 함유율이 상기 상한 이하이면, 중간막의 유연성이 높아져, 중간막의 취급이 용이해진다.
- [0088] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율(수산기량)은, 바람직하게는 17몰% 이상, 보다 바람직하게는 20몰% 이상, 더욱 바람직하게는 22몰% 이상, 바람직하게는 28몰% 이하, 보다 바람직하게는 27몰% 이하, 더욱 바람직하게는 25몰% 이하, 특히 바람직하게는 24몰% 이하이다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)을 다층의 중간막의 일부로서 사용하는 경우에는 특히, 이 수산기의 함유율의 하한 및 상한을 충족하는 것이 바람직하다. 상기 수산기의 함유율이 상기 하한 이상이면 중간막의 기계 강도가 보다 한층 높아진다. 특히, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율이 20몰% 이상이면 반응 효율이 높고 생산성이 우수하고, 또한 28몰% 이하이면, 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 또한, 상기 수산기의 함유율이 상기 상한 이하이면, 중간막의 유연성이 높아져, 중간막의 취급이 용이해진다. 특히, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율이 28몰% 이하인 중간막을 사용한 접합 유리는 굽힘 강성이 낮아지는 경향이 있지만, 본 발명의 구성에 의해, 굽힘 강성을 현저하게 개선할 수 있다.
- [0089] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)의 수산기의 각 함유율은, 바람직하게는 25몰% 이상, 보다 바람직하게는 28몰% 이상, 보다 바람직하게는 30몰% 이상, 보다 한층 바람직하게는 31.5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 32몰% 이상, 특히 바람직하게는 33몰% 이상, 바람직하게는 37몰% 이하, 보다 바람직하게는 36.5몰% 이하, 더욱 바람직하게는 36몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율이 상기 하한 이상이면 굽힘 강성이 보다 한층 높아지고, 중간막의 접착력이 보다 한층 높아진다. 또한, 상기 수산기의 함유율이 상기 상한 이하이면, 중간막의 유연성이 높아져, 중간막의 취급이 용이해진다.
- [0090] 차음성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율은, 상기 폴리비닐아

세탈 수지 (2)의 수산기의 함유율보다도 낮은 것이 바람직하다. 차음성을 더욱 한층 높이는 관점에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율과, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)의 수산기의 함유율의 차의 절댓값은, 바람직하게는 1몰% 이상, 보다 바람직하게는 5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 9몰% 이상, 특히 바람직하게는 10몰% 이상, 특히 바람직하게는 12몰% 이상이다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 수산기의 함유율과, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)의 수산기의 함유율의 차의 절댓값은, 바람직하게는 20몰% 이하이다.

- [0091] 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 함유율은, 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량을, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 나누어 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다. 상기 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량은, 예를 들어 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거하여 측정할 수 있다.
- [0092] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 아세틸화도(아세틸기량)는, 바람직하게는 0.01몰% 이상, 보다 바람직하게는 0.1몰% 이상, 보다 한층 바람직하게는 7몰% 이상, 더욱 바람직하게는 9몰% 이상, 바람직하게는 30몰% 이하, 보다 바람직하게는 25몰% 이하, 더욱 바람직하게는 24몰% 이하이다. 상기 아세틸화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가스제나 다른 열 가소성 수지와와의 상용성이 높아지고, 차음성이나 내관통성이 보다 한층 우수하고, 장기간에 걸쳐 성능이 한층 더 안정된다. 상기 아세틸화도가 상기 상한 이하이면, 중간막 및 접합 유리의 내습성이 높아진다. 특히, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 아세틸화도가 0.1몰% 이상, 25몰% 이하이면, 내관통성이 우수하다.
- [0093] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)의 각 아세틸화도는, 바람직하게는 0.01몰% 이상, 보다 바람직하게는 0.5몰% 이상, 바람직하게는 10몰% 이하, 보다 바람직하게는 2몰% 이하이다. 상기 아세틸화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가스제의 상용성이 높아진다. 상기 아세틸화도가 상기 상한 이하이면, 중간막 및 접합 유리의 내습성이 높아진다.
- [0094] 상기 아세틸화도는, 아세틸기가 결합하고 있는 에틸렌기량을, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 나누어 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다. 상기 아세틸기가 결합하고 있는 에틸렌기량은, 예를 들어 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거하여 측정할 수 있다.
- [0095] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)의 아세탈화도(폴리비닐부티랄 수지의 경우에는 부티랄화도)는, 바람직하게는 47몰% 이상, 보다 바람직하게는 60몰% 이상, 바람직하게는 85몰% 이하, 보다 바람직하게는 80몰% 이하, 더욱 바람직하게는 75몰% 이하이다. 상기 아세탈화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가스제의 상용성이 높아진다. 상기 아세탈화도가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간이 짧아진다.
- [0096] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)의 각 아세탈화도(폴리비닐부티랄 수지의 경우에는 부티랄화도)는, 바람직하게는 55몰% 이상, 보다 바람직하게는 60몰% 이상, 바람직하게는 75몰% 이하, 보다 바람직하게는 71몰% 이하이다. 상기 아세탈화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가스제의 상용성이 높아진다. 상기 아세탈화도가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간이 짧아진다.
- [0097] 상기 아세탈화도는, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로부터, 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량과, 아세틸기가 결합하고 있는 에틸렌기량을 차감한 값을, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 나누어 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다.
- [0098] 또한, 상기 수산기의 함유율(수산기량), 아세탈화도(부티랄화도) 및 아세틸화도는, JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 측정된 결과로부터 산출하는 것이 바람직하다. 단, ASTM D1396-92에 의한 측정을 사용할 수도 있다. 폴리비닐아세탈 수지가 폴리비닐부티랄 수지인 경우는, 상기 수산기의 함유율(수산기량), 상기 아세탈화도(부티랄화도) 및 상기 아세틸화도는, JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 측정된 결과로부터 산출될 수 있다.
- [0099] 접합 유리의 내관통성을 한층 더 양호하게 하는 관점에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)은, 아세틸화도 (a)가 8몰% 미만이며, 또한 아세탈화도 (a)가 65몰% 이상인 폴리비닐아세탈 수지 (A)이거나, 또는 아세틸화도 (b)가 8몰% 이상인 폴리비닐아세탈 수지 (B)인 것이 바람직하다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)은, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)일 수도 있고, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)일 수도 있다.
- [0100] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 아세틸화도 (a)는 8몰% 미만, 바람직하게는 7.9몰% 이하, 보다 바람직하게는 7.8몰% 이하, 더욱 바람직하게는 6.5몰% 이하, 특히 바람직하게는 6몰% 이하, 바람직하게는 0.1몰% 이상,

보다 바람직하게는 0.5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 0.7몰% 이상, 특히 바람직하게는 1몰% 이상이다. 상기 아세탈화도 (a)가 0.1몰% 이상, 8몰% 미만이면 내관통성이 보다 한층 우수하고, 가스제의 이행을 용이하게 제어할 수 있고, 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 아세탈화도 (a)는 5몰% 이상일 수도 있고, 1몰% 이상일 수도 있다.

[0101] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 아세탈화도 (a)는 64몰% 이상, 바람직하게는 65몰% 이상, 보다 바람직하게는 66몰% 이상, 더욱 바람직하게는 67몰% 이상, 더욱 한층 바람직하게는 67.5몰% 이상, 특히 바람직하게는 68몰% 이상, 바람직하게는 85몰% 이하, 보다 바람직하게는 84몰% 이하, 더욱 바람직하게는 83몰% 이하, 특히 바람직하게는 82몰% 이하이다. 아세탈화도 (a)는 75몰% 이하일 수도 있다. 상기 아세탈화도 (a)가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 상기 아세탈화도 (a)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (A)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0102] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 수산기의 함유율 (a)는 바람직하게는 18몰% 이상, 보다 바람직하게는 19몰% 이상, 더욱 바람직하게는 20몰% 이상, 특히 바람직하게는 21몰% 이상, 특히 바람직하게는 23몰% 이상, 바람직하게는 37몰% 이하, 보다 바람직하게는 36몰% 이하, 더욱 바람직하게는 35몰% 이하, 특히 바람직하게는 34몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율 (a)가 상기 하한 이상이면 장기 접촉 안정성이 보다 한층 우수하고, 상기 제1 층과 상기 제2 층이 직접 적층되어 있는 경우, 상기 제1 층에 대한 상기 제2 층의 접착력이 보다 한층 높아진다. 상기 수산기의 함유율 (a)가 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 수산기의 함유율 (a)는 31몰% 이하일 수도 있고, 30몰% 이하일 수도 있고, 29몰% 이하일 수도 있고, 28몰% 이하일 수도 있다.

[0103] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 아세탈화도 (b)는 8몰% 이상, 바람직하게는 9몰% 이상, 보다 바람직하게는 9.5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 10몰% 이상, 특히 바람직하게는 10.5몰% 이상, 바람직하게는 30몰% 이하, 보다 바람직하게는 28몰% 이하, 더욱 바람직하게는 26몰% 이하, 특히 바람직하게는 24몰% 이하이다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (B)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0104] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 아세탈화도 (b)는 바람직하게는 50몰% 이상, 보다 바람직하게는 53몰% 이상, 더욱 바람직하게는 55몰% 이상, 특히 바람직하게는 60몰% 이상, 바람직하게는 78몰% 이하, 보다 바람직하게는 75몰% 이하, 더욱 바람직하게는 72몰% 이하, 특히 바람직하게는 70몰% 이하이다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (B)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0105] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 수산기의 함유율 (b)는 바람직하게는 18몰% 이상, 보다 바람직하게는 19몰% 이상, 더욱 바람직하게는 20몰% 이상, 특히 바람직하게는 21몰% 이상, 특히 바람직하게는 23몰% 이상, 바람직하게는 31몰% 이하, 보다 바람직하게는 30몰% 이하, 더욱 바람직하게는 29몰% 이하, 특히 바람직하게는 28몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율 (b)가 상기 하한 이상이면 상기 제1 층과 상기 제2 층이 직접 적층되어 있는 경우, 상기 제1 층에 대한 상기 제2 층의 접착력이 보다 한층 높아진다. 상기 수산기의 함유율 (b)가 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 차음성이 보다 한층 높아진다.

[0106] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)는 각각 폴리비닐아세탈 수지 또는 폴리비닐부티랄 수지인 것이 바람직하다.

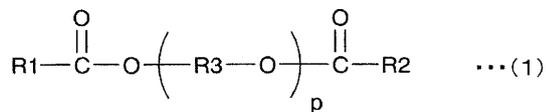
[0107] (가스제)

[0108] 상기 제1 층(단층의 중간막을 포함함)은 가스제(이하, 가스제 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 가스제(이하, 가스제 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 가스제(이하, 가스제 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 가스제의 사용에 의해, 또한 폴리비닐아세탈 수지와 가스제의 병용에 의해, 내관통성이 보다 한층 우수하고, 폴리비닐아세탈 수지와 가스제를 포함하는 층의 접합 유리 부재 또는 다른 층에 대한 접착력이 적절하게 높아진다. 상기 가스제는 특별히 한정되지 않는다. 상기 가스제 (1)과 상기 가스제 (2)와 상기 가스제 (3)은 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있다. 상기 가스제 (1), 상기 가스제 (2) 및 상기 가스제 (3)은 각각 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.

[0109] 상기 가스제로서는, 일염기성 유기산 에스테르 및 다염기성 유기산 에스테르 등의 유기 에스테르 가스제, 및 유기 인산 가스제 및 유기 아인산 가스제 등의 유기 인산 가스제 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 유기 에스테르

가소제가 바람직하다. 상기 가소제는 액상 가소제인 것이 바람직하다.

- [0110] 상기 일염기성 유기산 에스테르로서는, 글리콜과 일염기성 유기산의 반응에 의해 얻어진 글리콜에스테르 등을 들 수 있다. 상기 글리콜로서는, 트리에틸렌글리콜, 테트라에틸렌글리콜 및 트리프로필렌글리콜 등을 들 수 있다. 상기 일염기성 유기산으로서는, 부티르산, 이소부티르산, 카프로산, 2-에틸부티르산, 헵탈산, n-옥틸산, 2-에틸헥실산, n-노닐산 및 데실산 등을 들 수 있다.
- [0111] 상기 다염기성 유기산 에스테르로서는, 다염기성 유기산과, 탄소수 4 내지 8의 직쇄 또는 분지 구조를 갖는 알코올과의 에스테르 화합물 등을 들 수 있다. 상기 다염기성 유기산으로서는, 아디프산, 세바스산 및 아젤라산 등을 들 수 있다.
- [0112] 상기 유기 에스테르 가소제로서는, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸프로파노에이트, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트, 트리에틸렌글리콜디카프릴레이트, 트리에틸렌글리콜디-n-옥타노에이트, 트리에틸렌글리콜디-n-헵타노에이트, 테트라에틸렌글리콜디-n-헵타노에이트, 디부틸세바케이트, 디옥틸아젤레이트, 디부틸카르비톨아디페이트, 에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 1,3-프로필렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 1,4-부틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 디에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 디에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트, 디프로필렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헵타노에이트, 테트라에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트, 디에틸렌글리콜디카프릴레이트, 아디프산디헥실, 아디프산디옥틸, 아디프산헥실시클로헥실, 아디프산헵틸과 아디프산노닐의 혼합물, 아디프산디이소노닐, 아디프산디이소데실, 아디프산헵틸노닐, 세바스산디부틸, 유연성 세바스산알키드, 및 인산에스테르와 아디프산에스테르의 혼합물 등을 들 수 있다. 이들 이외의 유기 에스테르 가소제를 사용할 수도 있다. 상술한 아디프산에스테르 이외의 다른 아디프산에스테르를 사용할 수도 있다.
- [0113] 상기 유기 인산 가소제로서는, 트리부톡시에틸포스페이트, 이소데실페닐포스페이트 및 트리아이소프로필포스페이트 등을 들 수 있다.
- [0114] 상기 가소제는, 하기 식 (1)로 표시되는 디에스테르 가소제인 것이 바람직하다.



- [0115]
- [0116] 상기 식 (1) 중 R1 및 R2는 각각 탄소수 2 내지 10의 유기기를 나타내고, R3은 에틸렌기, 이소프로필렌기 또는 n-프로필렌기를 나타내고, p는 3 내지 10의 정수를 나타낸다. 상기 식 (1) 중의 R1 및 R2는 각각 탄소수 5 내지 10의 유기기인 것이 바람직하고, 탄소수 6 내지 10의 유기기인 것이 보다 바람직하다.
- [0117] 상기 가소제는, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트(3G0), 트리에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트(3GH) 또는 트리에틸렌글리콜디-2-에틸프로파노에이트를 포함하는 것이 바람직하고, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트 또는 트리에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트를 포함하는 것이 보다 바람직하고, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트를 포함하는 것이 더욱 바람직하다.
- [0118] 상기 열 가소성 수지 (2) 100중량부(열 가소성 수지 (2)가 폴리비닐아세탈 수지 (2)인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 (2) 100중량부)에 대한 상기 가소제 (2)의 함유량(이하, 함유량 (2)라고 기재하는 경우가 있음) 및 상기 열 가소성 수지 (3) 100중량부(열 가소성 수지 (3)이 폴리비닐아세탈 수지 (3)인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 (3) 100중량부)에 대한 상기 가소제 (3)의 함유량(이하, 함유량 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)은 각각 바람직하게는 10중량부 이상, 보다 바람직하게는 15중량부 이상, 바람직하게는 40중량부 이하, 보다 바람직하게는 35중량부 이하, 더욱 바람직하게는 32중량부 이하, 특히 바람직하게는 30중량부 이하이다. 상기 함유량 (2) 및 상기 함유량 (3)이 상기 하한 이상이면 중간막의 유연성이 높아져, 중간막의 취급이 용이해진다. 상기 함유량 (2) 및 상기 함유량 (3)이 상기 상한 이하이면, 굽힘 강성이 보다 한층 높아진다.
- [0119] 상기 열 가소성 수지 (1) 100중량부(열 가소성 수지 (1)이 폴리비닐아세탈 수지 (1)인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 (1) 100중량부) 100중량부에 대한 상기 가소제 (1)의 함유량(이하, 함유량 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)은, 바람직하게는 1중량부 이상, 보다 바람직하게는 3중량부 이상, 더욱 바람직하게는 5중량부 이상, 바람직하게는 90중량부 이하, 보다 바람직하게는 85중량부 이하, 더욱 바람직하게는 80중량부 이하이다. 상기 함유량 (1)이 상기 하한 이상이면 중간막의 유연성이 높아져, 중간막의 취급이 용이해진다. 상기 함유량 (1)이 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 내관통성이 보다 한층 높아진다. 상기 열 가소성 수지 (1) 100중량부에 대한

상기 가소제 (1)은 50중량부 이상일 수도 있고, 55중량부 이상일 수도 있고, 60중량부 이상일 수도 있다.

- [0120] 상기 중간막이 2층 이상인 경우에는, 접합 유리의 차열성을 높이기 위하여, 상기 함유량 (1)은 상기 함유량 (2)보다도 많은 것이 바람직하고, 상기 함유량 (1)은 상기 함유량 (3)보다도 많은 것이 바람직하다. 특히, 상기 함유량 (1)이 55중량부 이상인 중간막을 사용한 접합 유리는 굽힘 강성이 낮아지는 경향이 있지만, 본 발명의 구성에 의해, 굽힘 강성을 현저하게 개선할 수 있다.
- [0121] 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 상기 함유량 (2)와 상기 함유량 (1)의 차의 절댓값, 및 상기 함유량 (3)과 상기 함유량 (1)의 차의 절댓값은 각각 바람직하게는 10중량부 이상, 보다 바람직하게는 15중량부 이상, 더욱 바람직하게는 20중량부 이상이다. 상기 함유량 (2)와 상기 함유량 (1)의 차의 절댓값, 및 상기 함유량 (3)과 상기 함유량 (1)의 차의 절댓값은 각각 바람직하게는 80중량부 이하, 보다 바람직하게는 75중량부 이하, 더욱 바람직하게는 70중량부 이하이다.
- [0122] (차열성 화합물)
- [0123] 상기 중간막은 차열성 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 차열성 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 차열성 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 차열성 화합물을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 차열성 화합물은 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0124] 성분 X:
- [0125] 상기 중간막은, 프탈로시아닌 화합물, 나프탈로시아닌 화합물 및 안트라시아닌 화합물 중 적어도 1종의 성분 X를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 상기 성분 X를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 상기 성분 X를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 상기 성분 X를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 성분 X는 차열성 화합물이다. 상기 성분 X는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0126] 상기 성분 X는 특별히 한정되지 않는다. 성분 X로서, 종래 공지된 프탈로시아닌 화합물, 나프탈로시아닌 화합물 및 안트라시아닌 화합물을 사용할 수 있다.
- [0127] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 상기 성분 X는, 프탈로시아닌, 프탈로시아닌의 유도체, 나프탈로시아닌 및 나프탈로시아닌의 유도체로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종인 것이 바람직하고, 프탈로시아닌 및 프탈로시아닌의 유도체 중 적어도 1종인 것이 보다 바람직하다.
- [0128] 차열성을 효과적으로 높이며, 또한 장기간에 걸쳐 가시광선 투과율을 보다 한층 높은 레벨로 유지하는 관점에서는, 상기 성분 X는 바나듐 원자 또는 구리 원자를 함유하는 것이 바람직하다. 상기 성분 X는 바나듐 원자를 함유하는 것이 바람직하고, 구리 원자를 함유하는 것도 바람직하다. 상기 성분 X는, 바나듐 원자 또는 구리 원자를 함유하는 프탈로시아닌 및 바나듐 원자 또는 구리 원자를 함유하는 프탈로시아닌의 유도체 중 적어도 1종인 것이 보다 바람직하다. 중간막 및 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 상기 성분 X는, 바나듐 원자에 산소 원자가 결합한 구조 단위를 갖는 것이 바람직하다.
- [0129] 상기 성분 X를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층) 100중량% 중 상기 성분 X의 함유량은, 바람직하게는 0.001중량% 이상, 보다 바람직하게는 0.005중량% 이상, 더욱 바람직하게는 0.01중량% 이상, 특히 바람직하게는 0.02중량% 이상, 바람직하게는 0.2중량% 이하, 보다 바람직하게는 0.1중량% 이하, 더욱 바람직하게는 0.05중량% 이하, 특히 바람직하게는 0.04중량% 이하이다. 상기 성분 X의 함유량이 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 차열성이 충분히 높아지며, 또한 가시광선 투과율이 충분히 높아진다. 예를 들어, 가시광선 투과율을 70% 이상으로 하는 것이 가능하다.
- [0130] 차열 입자:
- [0131] 상기 중간막은 차열 입자를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 상기 차열 입자를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 상기 차열 입자를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 상기 차열 입자를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 차열 입자는 차열성 화합물이다. 차열 입자의 사용에 의해, 적외선(열선)을 효과적으로 차단할 수 있다. 상기 차열 입자는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0132] 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 상기 차열 입자는 금속 산화물 입자인 것이 보다 바람직하다. 상기 차열 입자는, 금속의 산화물에 의해 형성된 입자(금속 산화물 입자)인 것이 바람직하다.
- [0133] 가시광보다도 긴 파장 780nm 이상의 적외선은, 자외선과 비교하여 에너지량이 작다. 그러나, 적외선은 열적 작용이 커, 적외선이 물질에 흡수되면 열로서 방출된다. 이로 인해, 적외선은 일반적으로 열선이라고 부르고 있

다. 상기 차열 입자의 사용에 의해, 적외선(열선)을 효과적으로 차단할 수 있다. 또한, 차열 입자란, 적외선을 흡수 가능한 입자를 의미한다.

- [0134] 상기 차열 입자의 구체예로서는, 알루미늄 도프 산화주석 입자, 인듐 도프 산화주석 입자, 안티몬 도프 산화주석 입자(ATO 입자), 갈륨 도프 산화아연 입자(GZO 입자), 인듐 도프 산화아연 입자(IZO 입자), 알루미늄 도프 산화아연 입자(AZO 입자), 니오븀 도프 산화티타늄 입자, 나트륨 도프 산화텅스텐 입자, 세슘 도프 산화텅스텐 입자, 탈륨 도프 산화텅스텐 입자, 루비듐 도프 산화텅스텐 입자, 주석 도프 산화인듐 입자(ITO 입자), 주석 도프 산화아연 입자, 규소 도프 산화아연 입자 등의 금속 산화물 입자나, 육붕화란탄(LaB<sub>6</sub>) 입자 등을 들 수 있다. 이들 이외의 차열 입자를 사용할 수도 있다. 그 중에서도, 열선의 차폐 기능이 높기 때문에, 금속 산화물 입자가 바람직하고, ATO 입자, GZO 입자, IZO 입자, ITO 입자 또는 산화텅스텐 입자가 보다 바람직하고, ITO 입자 또는 산화텅스텐 입자가 특히 바람직하다. 특히, 열선의 차폐 기능이 높으며, 또한 입수가 용이하므로, 주석 도프 산화인듐 입자(ITO 입자)가 바람직하고, 산화텅스텐 입자도 바람직하다.
- [0135] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 산화텅스텐 입자는, 금속 도프 산화텅스텐 입자인 것이 바람직하다. 상기 「산화텅스텐 입자」에는 금속 도프 산화텅스텐 입자가 포함된다. 상기 금속 도프 산화텅스텐 입자로서는, 구체적으로는, 나트륨 도프 산화텅스텐 입자, 세슘 도프 산화텅스텐 입자, 탈륨 도프 산화텅스텐 입자 및 루비듐 도프 산화텅스텐 입자 등을 들 수 있다.
- [0136] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 세슘 도프 산화텅스텐 입자가 특히 바람직하다. 중간막 및 접합 유리의 차열성을 보다 한층 높이는 관점에서는, 해당 세슘 도프 산화텅스텐 입자는 식: Cs<sub>0.33</sub>WO<sub>3</sub>으로 표시되는 산화텅스텐 입자인 것이 바람직하다.
- [0137] 상기 차열 입자의 평균 입자 직경은 바람직하게는 0.01 $\mu$ m 이상, 보다 바람직하게는 0.02 $\mu$ m 이상, 바람직하게는 0.1 $\mu$ m 이하, 보다 바람직하게는 0.05 $\mu$ m 이하이다. 평균 입자 직경이 상기 하한 이상이면 열선의 차폐성이 충분히 높아진다. 평균 입자 직경이 상기 상한 이하이면, 차열 입자의 분산성이 높아진다.
- [0138] 상기 「평균 입자 직경」은, 부피 평균 입자 직경을 나타낸다. 평균 입자 직경은, 입도 분포 측정 장치(니키소 사제 「UPA-EX150」) 등을 사용하여 측정할 수 있다.
- [0139] 상기 차열 입자를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층) 100중량% 중 상기 차열 입자의 함유량은, 바람직하게는 0.01중량% 이상, 보다 바람직하게는 0.1중량% 이상, 더욱 바람직하게는 1중량% 이상, 특히 바람직하게는 1.5중량% 이상, 바람직하게는 6중량% 이하, 보다 바람직하게는 5.5중량% 이하, 더욱 바람직하게는 4중량% 이하, 특히 바람직하게는 3.5중량% 이하, 가장 바람직하게는 3중량% 이하이다. 상기 차열 입자의 함유량이 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 차열성이 충분히 높아지며, 또한 가시광선 투과율이 충분히 높아진다.
- [0140] (금속염)
- [0141] 상기 중간막은, 알칼리 금속염 및 알칼리 토금속염 중 적어도 1종의 금속염(이하, 금속염 M이라고 기재하는 경우가 있음)을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 상기 금속염 M을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 상기 금속염 M을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 상기 금속염 M을 포함하는 것이 바람직하다. 상기 금속염 M의 사용에 의해, 중간막과 접합 유리 부재의 접착성 또는 중간막에 있어서의 각 층간의 접착성을 제어하는 것이 용이해진다. 상기 금속염 M은 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0142] 상기 금속염 M은, Li, Na, K, Rb, Cs, Mg, Ca, Sr 및 Ba로 이루어지는 군으로부터 선택된 적어도 1종의 금속을 포함하는 것이 바람직하다. 중간막 중에 포함되어 있는 금속염은, K 및 Mg 중 적어도 1종의 금속을 포함하는 것이 바람직하다.
- [0143] 또한, 상기 금속염 M은, 탄소수 2 내지 16의 유기산의 알칼리 금속염 또는 탄소수 2 내지 16의 유기산의 알칼리 토금속염인 것이 보다 바람직하고, 탄소수 2 내지 16의 카르복실산마그네슘염 또는 탄소수 2 내지 16의 카르복실산칼륨염인 것이 더욱 바람직하다.
- [0144] 상기 탄소수 2 내지 16의 카르복실산마그네슘염 및 상기 탄소수 2 내지 16의 카르복실산칼륨염으로서는 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어 아세트산마그네슘, 아세트산칼륨, 프로피온산마그네슘, 프로피온산칼륨, 2-에틸부티르산마그네슘, 2-에틸부탄산칼륨, 2-에틸헥산산마그네슘 및 2-에틸헥산산칼륨 등을 들 수 있다.

- [0145] 상기 금속염 M을 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층)에 있어서의 Mg 및 K의 함유량의 합계는, 바람직하게는 5ppm 이상, 보다 바람직하게는 10ppm 이상, 더욱 바람직하게는 20ppm 이상, 바람직하게는 300ppm 이하, 보다 바람직하게는 250ppm 이하, 더욱 바람직하게는 200ppm 이하이다. Mg 및 K의 함유량의 합계가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 중간막과 접합 유리 부재의 접착성 또는 중간막에 있어서의 각 층간의 접착성을 한층 더 양호하게 제어할 수 있다.
- [0146] (자외선 차폐제)
- [0147] 상기 중간막은 자외선 차폐제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 자외선 차폐제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 자외선 차폐제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 자외선 차폐제를 포함하는 것이 바람직하다. 자외선 차폐제의 사용에 의해, 중간막 및 접합 유리가 장기간 사용되어도, 가시광선 투과율이 한층 더 저하되지 어려워진다. 상기 자외선 차폐제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0148] 상기 자외선 차폐제에는 자외선 흡수제가 포함된다. 상기 자외선 차폐제는 자외선 흡수제인 것이 바람직하다.
- [0149] 상기 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 금속 원자를 포함하는 자외선 차폐제, 금속 산화물을 포함하는 자외선 차폐제, 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제, 벤조페논 구조를 갖는 자외선 차폐제, 트리아진 구조를 갖는 자외선 차폐제, 말론산에스테르 구조를 갖는 자외선 차폐제, 옥살산아닐리드 구조를 갖는 자외선 차폐제 및 벤조에이트 구조를 갖는 자외선 차폐제 등을 들 수 있다.
- [0150] 상기 금속 원자를 포함하는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 백금 입자, 백금 입자의 표면을 실리카로 피복한 입자, 팔라듐 입자 및 팔라듐 입자의 표면을 실리카로 피복한 입자 등을 들 수 있다. 자외선 차폐제는, 차열 입자가 아닌 것이 바람직하다.
- [0151] 상기 자외선 차폐제는, 바람직하게는 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제, 벤조페논 구조를 갖는 자외선 차폐제, 트리아진 구조를 갖는 자외선 차폐제 또는 벤조에이트 구조를 갖는 자외선 차폐제이며, 보다 바람직하게는 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제 또는 벤조페논 구조를 갖는 자외선 차폐제이며, 더욱 바람직하게는 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제이다.
- [0152] 상기 금속 산화물을 포함하는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 산화아연, 산화티타늄 및 산화세륨 등을 들 수 있다. 또한, 상기 금속 산화물을 포함하는 자외선 차폐제에 관해서, 표면이 피복되어 있을 수도 있다. 상기 금속 산화물을 포함하는 자외선 차폐제의 표면의 피복 재료로서는, 절연성 금속 산화물, 가수분해성 유기 규소 화합물 및 실리콘 화합물 등을 들 수 있다.
- [0153] 상기 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 2-(2'-히드록시-5'-메틸페닐)벤조트리아졸(바스프(BASF)사제 「티누빈(Tinuvin) P」), 2-(2'-히드록시-3',5'-디-t-부틸페닐)벤조트리아졸(바스프사제 「티누빈 320」), 2-(2'-히드록시-3'-t-부틸-5-메틸페닐)-5-클로로벤조트리아졸(바스프사제 「티누빈 326」) 및 2-(2'-히드록시-3',5'-디-아밀페닐)벤조트리아졸(바스프사제 「티누빈 328」) 등의 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 흡수제를 들 수 있다. 자외선을 흡수하는 성능이 우수한 점에서, 상기 자외선 차폐제는, 할로겐 원자를 포함하는 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제인 것이 바람직하고, 염소 원자를 포함하는 벤조트리아졸 구조를 갖는 자외선 차폐제인 것이 보다 바람직하다.
- [0154] 상기 벤조페논 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 옥타벤존(바스프사제 「키마소르브(Chimassorb) 81」) 등을 들 수 있다.
- [0155] 상기 트리아진 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 아데카(ADEKA)사제 「LA-F70」 및 2-(4,6-디페닐-1,3,5-트리아진-2-일)-5-[(헥실)옥시]-페놀(바스프사제 「티누빈 1577FF」) 등을 들 수 있다.
- [0156] 상기 말론산에스테르 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, 2-(p-메톡시벤질리덴)말론산디메틸, 테트라에틸-2,2-(1,4-페닐렌디메틸리덴)비스말로네이트, 2-(p-메톡시벤질리덴)-비스(1,2,2,6,6-헵타메틸-4-피페리딘)말로네이트 등을 들 수 있다.
- [0157] 상기 말론산에스테르 구조를 갖는 자외선 차폐제의 시판품으로서, 호스타빈(Hostavin) B-CAP, 호스타빈 PR-25, 호스타빈 PR-31(모두 클라리안트사제)을 들 수 있다.
- [0158] 상기 옥살산아닐리드 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, N-(2-에틸페닐)-N'-(2-에톡시-5-t-부틸페닐)옥살산디아미드, N-(2-에틸페닐)-N'-(2-에톡시-페닐)옥살산디아미드, 2-에틸-2'-에톡시-옥시아닐리드(클라리안트사제 「센

두버(Sanduvor) VSU」) 등의 질소 원자 상에 치환된 아릴기 등을 갖는 옥살산디아미드류를 들 수 있다.

- [0159] 상기 벤조에이트 구조를 갖는 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 2,4-디-tert-부틸페닐-3,5-디-tert-부틸-4-히드록시벤조에이트(바스프사제 「티누빈 120」) 등을 들 수 있다.
- [0160] 기간 경과 후의 가시광선 투과율 저하를 보다 한층 억제하는 관점에서는, 상기 자외선 차폐제를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층) 100중량% 중 상기 자외선 차폐제의 함유량은, 바람직하게는 0.1중량% 이상, 보다 바람직하게는 0.2중량% 이상, 더욱 바람직하게는 0.3중량% 이상, 특히 바람직하게는 0.5중량% 이상, 바람직하게는 2.5중량% 이하, 보다 바람직하게는 2중량% 이하, 더욱 바람직하게는 1중량% 이하, 특히 바람직하게는 0.8중량% 이하이다. 특히, 상기 자외선 차폐제를 포함하는 층 100중량% 중 상기 자외선 차폐제의 함유량이 0.2중량% 이상임으로써, 중간막 및 접합 유리의 기간 경과 후의 가시광선 투과율 저하를 현저하게 억제할 수 있다.
- [0161] (산화 방지제)
- [0162] 상기 중간막은 산화 방지제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제1 층은 산화 방지제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층은 산화 방지제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 산화 방지제를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 산화 방지제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0163] 상기 산화 방지제로서는, 페놀계 산화 방지제, 황계 산화 방지제 및 인계 산화 방지제 등을 들 수 있다. 상기 페놀계 산화 방지제는 페놀 골격을 갖는 산화 방지제이다. 상기 황계 산화 방지제는 황 원자를 함유하는 산화 방지제이다. 상기 인계 산화 방지제는 인 원자를 함유하는 산화 방지제이다.
- [0164] 상기 산화 방지제는, 페놀계 산화 방지제 또는 인계 산화 방지제인 것이 바람직하다.
- [0165] 상기 페놀계 산화 방지제로서는, 2,6-디-t-부틸-p-크레졸(BHT), 부틸화 히드록시아니솔(BHA), 2,6-디-t-부틸-4-에틸페놀, 스테아릴-β-(3,5-디-t-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트, 2,2'-메틸렌비스-(4-메틸-6-부틸페놀), 2,2'-메틸렌비스-(4-에틸-6-t-부틸페놀), 4,4'-부틸리덴-비스-(3-메틸-6-t-부틸페놀), 1,1,3-트리스-(2-메틸-히드록시-5-t-부틸페닐)부탄, 테트라키스[메틸렌-3-(3',5'-부틸-4-히드록시페닐)프로피오네이트]메탄, 1,3,3-트리스-(2-메틸-4-히드록시-5-t-부틸페놀)부탄, 1,3,5-트리메틸-2,4,6-트리스(3,5-디-t-부틸-4-히드록시벤질)벤젠, 비스(3,3'-t-부틸페놀)부티릭에시드글리콜에스테르 및 비스(3-t-부틸-4-히드록시-5-메틸벤젠프로판산)에틸렌비스(옥시에틸렌) 등을 들 수 있다. 이들 산화 방지제 중 1종 또는 2종 이상이 적합하게 사용된다.
- [0166] 상기 인계 산화 방지제로서는, 트리데실포스파이트, 트리스(트리데실)포스파이트, 트리페닐포스파이트, 트리노닐페닐포스파이트, 비스(트리데실)펜타에리트리톨디포스파이트, 비스(데실)펜타에리트리톨디포스파이트, 트리스(2,4-디-t-부틸페닐)포스파이트, 비스(2,4-디-t-부틸-6-메틸페닐)에틸에스테르아인산, 트리스(2,4-디-t-부틸페닐)포스파이트 및 2,2'-메틸렌비스(4,6-디-t-부틸-1-페닐옥시)(2-에틸헥실옥시)포스포러스 등을 들 수 있다. 이들 산화 방지제 중 1종 또는 2종 이상이 적합하게 사용된다.
- [0167] 상기 산화 방지제의 시판품으로서, 예를 들어 바스프사제 「이르가녹스(IRGANOX) 245」, 바스프사제 「이르가포스(IRGAFOS) 168」, 바스프사제 「이르가포스 38」, 스미토모 가가쿠 고교사제 「스밀라이저 BHT」 및 바스프사제 「이르가녹스 1010」 등을 들 수 있다.
- [0168] 중간막 및 접합 유리의 높은 가시광선 투과율을 장기간에 걸쳐 유지하기 위하여, 상기 중간막 100중량% 중 또는 산화 방지제를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층) 100중량% 중 상기 산화 방지제의 함유량은 0.1중량% 이상인 것이 바람직하다. 또한, 산화 방지제의 첨가 효과가 포화하므로, 상기 중간막 100중량% 중 또는 상기 산화 방지제를 포함하는 층 100중량% 중 상기 산화 방지제의 함유량은 2중량% 이하인 것이 바람직하다.
- [0169] (다른 성분)
- [0170] 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층은 각각 필요에 따라, 규소, 알루미늄 또는 티타늄을 포함하는 커플링제, 분산제, 계면 활성제, 난연제, 대전 방지제, 필터, 안료, 염료, 접착력 조정제, 내습제, 형광 증백제 및 자외선 흡수제 등의 첨가제를 포함하고 있을 수도 있다. 이들 첨가제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0171] 전단 저장 등가 탄성률을 적합한 범위로 제어하기 위하여, 중간막, 제1 층, 제2 층 및 제3 층은, 필터를 포함하고 있을 수도 있다. 상기 필터로서는, 탄산칼슘 입자 및 실리카 입자 등을 들 수 있다. 굽힘 강성을 효과적으

로 높이고, 투명성의 저하를 효과적으로 억제하는 관점에서는, 실리카 입자가 바람직하다.

- [0172] 필터를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층) 100중량% 중 상기 필터의 함유량은, 바람직하게는 1중량% 이상, 보다 바람직하게는 5중량% 이상, 더욱 바람직하게는 10중량부 이상, 바람직하게는 60중량% 이하, 보다 바람직하게는 50중량% 이하이다.
- [0173] (접합 유리용 중간막의 기타 상세)
- [0174] 상기 중간막의 두께는 특별히 한정되지 않는다. 실용면의 관점, 및 접합 유리의 내관통성 및 굽힘 강성을 충분히 높이는 관점에서는, 중간막의 두께는, 바람직하게는 0.1mm 이상, 보다 바람직하게는 0.25mm 이상, 바람직하게는 3mm 이하, 보다 바람직하게는 1.5mm 이하이다. 중간막의 두께가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 내관통성 및 굽힘 강성이 보다 한층 높아진다. 중간막의 두께가 상기 상한 이하이면, 중간막의 투명성이 보다 한층 양호해진다.
- [0175] 중간막의 두께를 T라 한다. 상기 제1 층의 두께는, 바람직하게는 0.035T 이상, 보다 바람직하게는 0.0625T 이상, 더욱 바람직하게는 0.1T 이상, 바람직하게는 0.4T 이하, 보다 바람직하게는 0.375T 이하, 더욱 바람직하게는 0.25T 이하, 특히 바람직하게는 0.15T 이하이다. 상기 제1 층의 두께가 0.4T 이하이면, 굽힘 강성이 보다 한층 양호해진다.
- [0176] 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 각 두께는, 바람직하게는 0.3T 이상, 보다 바람직하게는 0.3125T 이상, 더욱 바람직하게는 0.375T 이상, 바람직하게는 0.97T 이하, 보다 바람직하게는 0.9375T 이하, 더욱 바람직하게는 0.9T 이하이다. 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 각 두께는 0.46875T 이하일 수도 있고, 0.45T 이하일 수도 있다. 또한, 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 각 두께가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 강성과 차음성이 보다 한층 높아진다.
- [0177] 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 합계의 두께는, 바람직하게는 0.625T 이상, 보다 바람직하게는 0.75T 이상, 더욱 바람직하게는 0.85T 이상, 바람직하게는 0.97T 이하, 보다 바람직하게는 0.9375T 이하, 더욱 바람직하게는 0.9T 이하이다. 또한, 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 합계의 두께가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 강성과 차음성이 보다 한층 높아진다.
- [0178] 본 발명에 관한 중간막의 제조 방법으로서 특별히 한정되지 않는다. 본 발명에 관한 중간막의 제조 방법으로서, 단층의 중간막의 경우에, 수지 조성물을 압출기를 사용하여 압출하는 방법을 들 수 있다. 본 발명에 관한 중간막의 제조 방법으로서, 다층의 중간막의 경우에, 각 층을 형성하기 위한 각 수지 조성물을 사용하여 각 층을 각각 형성한 후에, 예를 들어 얻어진 각 층을 적층하는 방법, 및 각 층을 형성하기 위한 각 수지 조성물을 압출기를 사용하여 공압출함으로써, 각 층을 적층하는 방법 등을 들 수 있다. 연속적인 생산에 적합하기 때문에, 압출 성형하는 제조 방법이 바람직하다.
- [0179] 중간막의 제조 효율이 우수한 점에서, 상기 제2 층과 상기 제3 층에, 동일한 폴리비닐아세탈 수지가 포함되어 있는 것이 바람직하고, 상기 제2 층과 상기 제3 층에, 동일한 폴리비닐아세탈 수지 및 동일한 가소제가 포함되어 있는 것이 보다 바람직하고, 상기 제2 층과 상기 제3 층이 동일한 수지 조성물에 의해 형성되어 있는 것이 더욱 바람직하다.
- [0180] 상기 중간막은, 양측의 표면 중 적어도 한 쪽의 표면에 요철 형상을 갖는 것이 바람직하다. 상기 중간막은, 양측의 표면에 요철 형상을 갖는 것이 보다 바람직하다. 상기한 요철 형상을 형성하는 방법으로서 특별히 한정되지 않고 예를 들어, 립 엠보싱법, 엠보싱 롤법, 캘린더 롤법 및 이형 압출법 등을 들 수 있다. 정량적으로 일정한 요철 모양인 다수의 요철 형상의 엠보싱을 형성할 수 있는 점에서, 엠보싱 롤법이 바람직하다.
- [0181] (접합 유리)
- [0182] 도 3은, 도 1에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- [0183] 도 3에 도시하는 접합 유리(31)는, 제1 접합 유리 부재(21)와, 제2 접합 유리 부재(22)와, 중간막(11)을 구비한다. 중간막(11)은 제1 접합 유리 부재(21)와 제2 접합 유리 부재(22) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다.
- [0184] 중간막(11)의 제1 표면(11a)에 제1 접합 유리 부재(21)가 적층되어 있다. 중간막(11)의 제1 표면(11a)과는 반대인 제2 표면(11b)에 제2 접합 유리 부재(22)가 적층되어 있다. 제2 층(2)의 외측의 표면(2a)에 제1 접합 유리 부재(21)가 적층되어 있다. 제3 층(3)의 외측의 표면(3a)에 제2 접합 유리 부재(22)가 적층되어 있다.

- [0185] 도 4는, 도 2에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.
- [0186] 도 4에 도시하는 접합 유리(31A)는, 제1 접합 유리 부재(21)와, 제2 접합 유리 부재(22)와, 중간막(11A)을 구비한다. 중간막(11A)은 제1 접합 유리 부재(21)와 제2 접합 유리 부재(22) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다.
- [0187] 중간막(11A)의 제1 표면(11a)에 제1 접합 유리 부재(21)가 적층되어 있다. 중간막(11A)의 제1 표면(11a)과는 반대인 제2 표면(11b)에 제2 접합 유리 부재(22)가 적층되어 있다.
- [0188] 이와 같이, 본 발명에 관한 접합 유리는, 제1 접합 유리 부재와, 제2 접합 유리 부재와, 중간막을 구비하고 있고, 해당 중간막이, 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막이다. 본 발명에 관한 접합 유리에서는, 상기 제1 접합 유리 부재와 상기 제2 접합 유리 부재 사이에, 상기 중간막이 배치되어 있다.
- [0189] 상기 제1 접합 유리 부재는 제1 유리판인 것이 바람직하다. 상기 제2 접합 유리 부재는 제2 유리판인 것이 바람직하다.
- [0190] 상기 접합 유리 부재로서는, 유리판 및 PET(폴리에틸렌테레프탈레이트) 필름 등을 들 수 있다. 접합 유리에는, 2매의 유리판 사이에 중간막이 끼워 넣어져 있는 접합 유리뿐만 아니라, 유리판과 PET 필름 등과의 사이에 중간막이 끼워 넣어져 있는 접합 유리도 포함된다. 상기 접합 유리는, 유리판을 구비한 적층체이며, 적어도 1매의 유리판이 사용되고 있는 것이 바람직하다. 상기 제1 접합 유리 부재 및 상기 제2 접합 유리 부재가 각각 유리판 또는 PET 필름이며, 또한 상기 접합 유리는, 상기 제1 접합 유리 부재 및 상기 제2 접합 유리 부재 중 적어도 한 쪽으로서, 유리판을 구비하는 것이 바람직하다.
- [0191] 상기 유리판으로서, 무기 유리 및 유기 유리를 들 수 있다. 상기 무기 유리로서는, 플로트 판유리, 열선 흡수 판유리, 열선 반사 판유리, 연마 판유리, 형판 유리 및 선입 판유리 등을 들 수 있다. 상기 유기 유리는, 무기 유리에 대응되는 합성 수지 유리이다. 상기 유기 유리로서는, 폴리카르보네이트판 및 폴리(메트)아크릴 수지판 등을 들 수 있다. 상기 폴리(메트)아크릴 수지판으로서, 폴리메틸(메트)아크릴레이트판 등을 들 수 있다.
- [0192] 상기 접합 유리 부재의 두께는, 바람직하게는 1mm 이상, 바람직하게는 5mm 이하, 보다 바람직하게는 3mm 이하이다. 또한, 상기 접합 유리 부재가 유리판인 경우에, 해당 유리판의 두께는, 바람직하게는 0.5mm 이상, 보다 바람직하게는 0.7mm 이상, 바람직하게는 5mm 이하, 보다 바람직하게는 3mm 이하이다. 상기 접합 유리 부재가 PET 필름인 경우에, 해당 PET 필름의 두께는, 바람직하게는 0.03mm 이상, 바람직하게는 0.5mm 이하이다.
- [0193] 본 발명에 관한 중간막의 사용에 의해, 접합 유리의 두께가 얇아도, 접합 유리의 굽힘 강성을 높게 유지할 수 있다. 접합 유리를 경량화하거나, 접합 유리의 재료를 적게 하여 환경 부하를 저감시키거나, 접합 유리의 경량화에 의해 자동차의 연비를 향상시켜 환경 부하를 저감시키거나 하는 관점에서는, 상기 유리판의 두께는, 바람직하게는 2mm 이하, 보다 바람직하게는 1.8mm 이하, 보다 한층 바람직하게는 1.6mm 이하, 보다 한층 바람직하게는 1.5mm 이하, 더욱 바람직하게는 1.4mm 이하, 더욱 바람직하게는 1.3mm 이하, 더욱 한층 바람직하게는 1.0mm 이하, 특히 바람직하게는 0.7mm 이하이다. 접합 유리를 경량화하거나, 접합 유리의 재료를 적게 하여 환경 부하를 저감시키거나, 접합 유리의 경량화에 의해 자동차의 연비를 향상시켜 환경 부하를 저감시키거나 하는 관점에서는, 상기 제1 유리판의 두께와 상기 제2 유리판의 두께의 합계는, 바람직하게는 3.5mm 이하, 보다 바람직하게는 3.2mm 이하, 더욱 바람직하게는 3mm 이하, 특히 바람직하게는 2.8mm 이하이다.
- [0194] 상기 접합 유리의 제조 방법은 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 상기 제1 접합 유리 부재와 상기 제2 접합 유리 부재 사이에 중간막을 끼우고, 가압 롤에 통과시키거나, 또는 고무 백에 넣어 감압 흡인하거나 하여, 상기 제1 접합 유리 부재와 상기 제2 접합 유리 부재와 중간막 사이에 잔류하는 공기를 탈기한다. 그 후, 약 70 내지 110℃에서 예비 접착하여 적층체를 얻는다. 이어서, 적층체를 오토클레이브에 넣거나, 또는 프레스하거나 하여, 약 120 내지 150℃ 및 1 내지 1.5MPa의 압력으로 압착한다. 이와 같이 하여, 접합 유리를 얻을 수 있다. 상기 접합 유리의 제조 시에, 제1 층과 제2 층과 제3 층을 적층할 수도 있다.
- [0195] 상기 중간막 및 상기 접합 유리는 자동차, 철도 차량, 항공기, 선박 및 건축물 등에 사용할 수 있다. 상기 중간막 및 상기 접합 유리는 이들 용도 이외에도 사용할 수 있다. 상기 중간막 및 상기 접합 유리는, 차량용 또는 건축용의 중간막 및 접합 유리인 것이 바람직하고, 차량용의 중간막 및 접합 유리인 것이 보다 바람직하다. 상기 중간막 및 상기 접합 유리는 자동차의 앞유리, 사이드 유리, 리어 유리 또는 루프 유리 등에 사용할 수 있다. 상기 중간막 및 상기 접합 유리는 자동차에 적합하게 사용된다. 상기 중간막은, 자동차의 접합 유리를 얻

기 위하여 사용된다.

- [0196] 이하에 실시예를 들어 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다. 본 발명은 이들 실시예에만 한정되지 않는다.
- [0197] 이하의 재료를 준비했다.
- [0198] (수지)
- [0199] 하기의 표 1 내지 4에 나타내는 폴리비닐아세탈 수지를 적절히 사용했다. 사용한 폴리비닐아세탈 수지에 대해서는, 실시예 20 내지 22이외에서는, 아세탈화에, 탄소수 4의 n-부틸알데히드가 사용되고 있어, 폴리비닐부티랄 수지가 사용되고 있다. 실시예 20 내지 22에서는, 아세탈화에, 탄소수 2의 아세트알데히드가 사용되고 있어, 폴리비닐아세트아세탈 수지가 사용되고 있다.
- [0200] 폴리비닐아세탈 수지에 관해서는, 아세탈화도(부티랄화도), 아세틸화도 및 수산기의 함유율은 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 측정했다. 또한, ASTM D1396-92에 의해 측정된 경우도, JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법과 마찬가지로 수치를 나타냈다. 또한, 아세탈의 종류가 아세트아세탈인 경우에는, 아세탈화도는, 마찬가지로 아세틸화도, 수산기의 함유율을 측정하여, 얻어진 측정 결과로부터 물 분율을 산출하고, 계속해서 100몰%로부터 아세탈화도 및 수산기의 함유율을 차감함으로써 산출했다.
- [0201] 또한, 하기의 표 1 내지 4에 나타내는 아크릴 중합체를 적절히 사용했다. 하기의 표 1 내지 4에 나타내는 아크릴 중합체는, 아크릴산에틸과 아크릴산부틸과 아크릴산벤질과 아크릴산2-히드록시에틸과 아크릴산2-에틸헥실을 하기의 표 1 내지 4에 나타내는 함유량으로 포함하는 중합 성분을 중합시킨 아크릴 중합체이다.
- [0202] (첨가제)
- [0203] 실리카 입자(도소·실리카사제 「BZ-400」 BET법에 의한 비표면적 450m<sup>2</sup>/g)
- [0204] (가소제)
- [0205] 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트(3G0)
- [0206] (자외선 차폐제)
- [0207] 티누빈 326(2-(2'-히드록시-3'-t-부틸-5-메틸페닐)-5-클로로벤조트리아졸, 바스프사제 「티누빈 326」)
- [0208] (산화 방지제)
- [0209] BHT(2,6-디-t-부틸-p-크레졸)
- [0210] (실시예 1)
- [0211] 제1 층을 형성하기 위한 조성물 제작:
- [0212] 하기의 표 1에 나타내는 종류의 폴리비닐아세탈 수지 100중량부와, 가소제(3G0) 70중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 제1 층을 형성하기 위한 조성물을 얻었다.
- [0213] 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물 제작:
- [0214] 하기의 표 1에 나타내는 종류의 폴리비닐아세탈 수지 100중량부와, 가소제(3G0) 20중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물을 얻었다.
- [0215] 중간막의 제작:
- [0216] 제1 층을 형성하기 위한 조성물과, 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물을, 공압출기를 사용하여 공압출함으로써, 제2 층(두께 800 $\mu$ m)/제1 층(두께 60 $\mu$ m)/제3 층(두께 800 $\mu$ m)의 적층 구조를 갖는 중간막(두께 1660 $\mu$ m)을 제작했다.
- [0217] 접합 유리 A의 제작(굽힘 강성 측정용):
- [0218] 얻어진 중간막을 세로 20cm×가로 2.5cm의 크기로 절단했다. 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재로서, 하기의 표 1에 나타내는 두께의 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 20cm×가로 2.5cm)을 준비했다. 이 2개의 유리판 사이에, 얻어진 중간막을 끼워 넣어, 적층체를 얻었다. 얻어진 적층체를 고무 백 내에 넣고, 2660Pa(20torr)의 진공도로 20분간 탈기했다. 그 후, 탈기된 상태로 적층체를 오토클레이브 내에서 또한 90℃

에서 30분간 유지하면서, 진공 프레스했다. 이와 같이 하여 예비 압착된 적층체를, 오토클레이브 내에서 135℃, 압력 1.2MPa(12kg/cm<sup>2</sup>)의 조건에서 20분간 압착을 행하여, 접합 유리 A를 얻었다.

- [0219] 접합 유리 B의 제작(차음성 측정용):
- [0220] 얻어진 중간막을 세로 30cm×가로 2.5cm의 크기로 절단했다. 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재로서, 하기의 표 1에 나타내는 두께의 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 30cm×가로 2.5cm)을 준비했다. 2매의 유리판 사이에, 중간막을 끼워 넣어, 적층체를 얻었다. 이 적층체를 고무 백 내에 넣고, 2.6kPa의 진공도로 20분간 탈기한 후, 탈기된 상태로 오븐 내로 옮기고, 또한 90℃에서 30분간 유지하여 진공 프레스하여, 적층체를 예비 압착했다. 오토클레이브 내에서 135℃ 및 압력 1.2MPa의 조건에서, 예비 압착된 적층체를 20분간 압착하여, 접합 유리 B를 얻었다.
- [0221] 접합 유리 C의 제작(내관통성 시험용):
- [0222] 얻어진 중간막을 세로 15cm×가로 15cm의 크기로 절단했다. 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재로서, 하기의 표 1에 나타내는 두께의 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 15cm×가로 15cm)을 준비했다. 2매의 유리판 사이에, 중간막을 끼워 넣어, 적층체를 얻었다. 이 적층체를 고무 백 내에 넣고, 2.6kPa의 진공도로 20분간 탈기한 후, 탈기된 상태로 오븐 내로 옮기고, 또한 90℃에서 30분간 유지하여 진공 프레스하여, 적층체를 예비 압착했다. 오토클레이브 내에서 135℃ 및 압력 1.2MPa의 조건에서, 예비 압착된 적층체를 20분간 압착하여, 접합 유리 C를 얻었다.
- [0223] 중간막, PET 적층체의 제작(굽힘 접합 시험용):
- [0224] 얻어진 중간막을 세로 5cm×가로 2.5cm의 크기로 절단했다. 동일한 크기의 50마이크로미터의 이형 처리가 실시되어 있지 않은 PET 필름을 1매 준비했다. 이 PET 필름과, 얻어진 중간막을 적층하여, 적층체를 얻었다. 얻어진 적층체를, 오토클레이브 내에서, 90℃에서 30분간 유지하면서, 진공 프레스했다. 이와 같이 하여 예비 압착된 적층체를, 오토클레이브 내에서 135℃, 압력 1.2MPa(12kg/cm<sup>2</sup>)의 조건에서 20분간 압착을 행하여, 적층체 A를 얻었다.
- [0225] (실시예 2 내지 4 및 비교예 1 내지 3)
- [0226] 제1 층을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 수지, 가소제의 종류와 배합량, 및 첨가제의 종류와 배합량을 하기의 표 1에 나타낸 바와 같이 설정한 것, 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 수지, 및 가소제의 종류와 배합량을 하기의 표 1에 나타낸 바와 같이 설정한 것, 및 제1 층, 제2 층, 제3 층, 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재의 두께를 하기의 표 1에 나타낸 바와 같이 설정한 것 이외는 실시예 1과 마찬가지로 하여, 중간막 및 접합 유리를 얻었다. 또한, 실시예 2 내지 4 및 비교예 1 내지 3에서는, 실시예 1과 동일한 종류의 자외선 차폐제 및 산화 방지제를, 실시예 1과 마찬가지로의 배합량(열 가소성 수지 100중량부에 대하여 0.2중량부)으로 배합했다.
- [0227] (실시예 5)
- [0228] 중간막을 형성하기 위한 조성물 제작:
- [0229] 하기의 표 2에 나타내는 종류의 폴리비닐아세탈 수지 100중량부와, 하기의 표 2에 나타내는 종류의 폴리비닐아세탈 수지 이외의 수지(아크릴 중합체) 100중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 중간막을 형성하기 위한 조성물을 얻었다.
- [0230] 중간막의 제작:
- [0231] 중간막을 형성하기 위한 조성물을, 압출기를 사용하여 압출함으로써, 단층의 중간막(두께 760 $\mu$ m)을 제작했다.
- [0232] (실시예 6 내지 22 및 비교예 4 내지 6)
- [0233] 중간막을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 수지, 및 가소제의 종류와 배합량을 하기의 표 2에 나타낸 바와 같이 설정한 것, 및 중간막, 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재의 두께를 하기의 표 2에 나타낸 바와 같이 설정한 것, 및 중간막, 제1 접합 유리 부재 및 제2 접합 유리 부재의 두께를 하기의 표 2에 나타낸 바와 같이 설정한 것 이외는 실시예 5와 마찬가지로 하여, 중간막 및 접합 유리를 얻었다. 또한, 실시예 6 내지 22 및 비교예 4 내지 6에서는, 실시예 1과 동일한 종류의 자외선 차폐제 및 산화 방지제를, 실시예 1과 마찬가지로의 배합량(열 가소성 수지 100중량부에 대하여 0.2중량부)으로 배합했다.

- [0234] (평가)
- [0235] (0) 중량 평균 분자량
- [0236] 중간막에 사용한 수지의 중량 평균 분자량을, 겔 투과 크로마토그래피(GPC)에 의해 측정했다.
- [0237] (1) 등가 점탄성
- [0238] 전단 저장 등가 탄성률:
- [0239] 주파수 1Hz에서, 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역에서의 전단 저장 등가 탄성률을 측정했다. 구체적으로는, 얻어진 중간막을, 실온 23±2℃, 습도 25±5%의 환경 하에 12시간 보관한 직후에, 메트라비브사제의 점탄성 측정 장치 「DMA+1000」을 사용하여, 중간막을 길이 50mm, 폭 20mm로 잘라내고, 전단 모드에서 2℃/분의 승온 속도로 -50℃부터 100℃까지, 주파수 1Hz 및 변형 0.05%의 조건에서 측정을 행했다. 각 층간의 미끄럼에 의한 측정 문제가 없는 경우에는, 전단 저장 등가 탄성률을 이하의 기준으로 판정했다. 문제가 있는 경우에는, 각 층의 점탄성을 상기한 방법으로 측정하고, 계산에 의해 전단 저장 등가 탄성률을 산출했다. 전단 저장 등가 탄성률을 이하의 기준으로 판정했다.
- [0240] [전단 저장 등가 탄성률의 판정 기준]
- [0241] ○○: 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 400MPa 이하이다
- [0242] ○: ○○의 기준에 상당하지 않으며, 또한 0℃ 이상 30℃ 이하의 온도 영역 중 80% 이상의 온도 영역에서, 전단 저장 등가 탄성률이 10MPa 이상, 500MPa 이하이다
- [0243] ×: ○○ 및 ○의 기준에 상당하지 않는다
- [0244] 또한, 값(10℃에서의 전단 저장 등가 탄성률/30℃에서의 전단 저장 등가 탄성률)을 구했다. 하기의 표에서는, 전단 저장 등가 탄성률의 나눈 값(10℃-30℃)으로서 기재했다.
- [0245] 유리 전이 온도 Tg:
- [0246] 얻어진 중간막을, 실온 23±2℃, 습도 25±5%의 환경 하에 12시간 보관한 직후에, 메트라비브사제의 점탄성 측정 장치 「DMA+1000」을 사용하여, 중간막을 길이 50mm, 폭 20mm로 잘라내고, 전단 모드에서 2℃/분의 승온 속도로 -50℃부터 100℃까지, 주파수 1Hz 및 변형 0.05%의 조건에서 측정을 행했다. 얻어진 점탄성 스펙트럼에서, 손실 정점이 -25℃ 내지 0℃에 피크가 있는 경우에는 피크 온도를, 없는 경우에는 「없음」이라고 기재했다.
- [0247] -25℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ의 최댓값 및 -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ:
- [0248] -25℃ 이상, 0℃ 이하의 온도 영역에서의 tan δ의 최댓값을 평가했다. 구체적으로는, 얻어진 중간막을, 실온 23±2℃, 습도 25±5%의 환경 하에 12시간 보관한 직후에, 메트라비브사제의 점탄성 측정 장치 「DMA+1000」을 사용하여, 중간막을 길이 50mm, 폭 20mm로 잘라내고, 전단 모드에서 2℃/분의 승온 속도로 -50℃부터 100℃까지, 주파수 1Hz 및 변형 0.05%의 조건에서 측정을 행했다. 얻어진 점탄성 스펙트럼에서, 손실 정점이 -25℃ 내지 0℃에 피크가 있는 경우에는 피크값을 기재했다.
- [0249] 또한, -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 10% 이상의 온도 영역에서, tan δ가 0.1 이상인지의 여부를 평가하여 tan δ를 이하의 기준으로 판정했다.
- [0250] [tan δ의 판정 기준]
- [0251] ○: -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 10% 이상의 온도 영역에서, tan δ가 0.1 이상이다
- [0252] △: -50℃ 이상 0℃ 이하의 온도 영역 중 5% 이상, 10% 미만의 온도 영역에서, tan δ가 0.1 이상이다
- [0253] ×: ○ 및 △의 기준에 상당하지 않는다
- [0254] (2) 굽힘 강성
- [0255] 얻어진 접합 유리 A를 사용하여, 굽힘 강성을 평가했다.
- [0256] 도 5에 모식적으로 도시하는 시험 방법으로 굽힘 강성을 평가했다. 측정 장치로서는, 3점 굽힘 시험 지그를 구

비한 오리엔테크사제의 UTA-500을 사용했다. 측정 조건으로서는, 측정 온도 10℃(10℃±3℃), 또는 20℃(20±3℃), 거리 D1은 12cm, 거리 D2는 20cm로 하고, 변위 속도 1mm/분으로 F의 방향으로 접합 유리에 변형을 가하고, 1.5mm의 변위를 가했을 때의 응력을 측정하여, 굽힘 강성을 산출했다. 굽힘 강성을 이하의 기준으로 판정했다. 굽힘 강성의 수치가 높을수록, 굽힘 강성이 우수하다.

[0257] [굽힘 강성의 판정 기준]

[0258] ○: 굽힘 강성이 50N/mm 이상

[0259] △: 굽힘 강성이 45N/mm 이상, 50N/mm 미만

[0260] ×: 굽힘 강성이 45N/mm 미만

[0261] (3) 차음성

[0262] 얻어진 접합 유리 B를 댄핑 시험용의 진동 발생기(신켄사제 「가진기 G21-005D」)에 의해 가진하고, 그곳으로부터 얻어진 진동 특성을 기계 임피던스 측정 장치(리온사제 「XG-81」)로 증폭하고, 진동 스펙트럼을 FFT 스펙트럼 애널리저(요코가와 휴렛 팩커드사제 「FFT 애널리저 HP3582A」)에 의해 해석했다.

[0263] 이와 같이 하여 얻어진 손실 계수와 접합 유리 B의 공진 주파수의 비로부터, 10℃ 및 20℃에서의 소리 주파수(Hz)와 음향 투과 손실(dB)의 관계를 나타내는 그래프를 작성하고, 소리 주파수 3,000Hz 부근에 있어서의 극소의 음향 투과 손실(TL값)을 구했다. 이 TL값이 높을수록, 차음성이 높아진다. 차음성을 하기의 기준으로 판정했다.

[0264] [차음성의 판정 기준]

[0265] ○: TL값이 35dB 이상

[0266] △: TL값이 30dB 이상, 35dB 미만

[0267] ×: TL값이 30dB 미만

[0268] (4) 내관통성

[0269] 얻어진 접합 유리 C를, 표면 온도가 20℃가 되도록 조정했다. 계속해서, 1.5m의 높이로부터, 6매의 접합 유리에 대하여 각각 질량 2260g 및 직경 82mm의 강구를, 접합 유리의 중심 부분에 낙하시켰다. 6매의 접합 유리 모두에 대하여, 강구가 충돌한 후 5초 이내에 강구가 관통하지 않은 경우를 합격으로 했다. 강구가 충돌한 후 5초 이내에 강구가 관통하지 않은 접합 유리가 3매 이하인 경우는 불합격으로 했다. 4매인 경우에는, 새롭게 6매의 접합 유리의 내관통성을 평가했다. 5매인 경우에는, 새롭게 1매의 접합 유리를 추가 시험하고, 강구가 충돌한 후 5초 이내에 강구가 관통하지 않은 경우를 합격으로 했다. 마찬가지로의 방법으로, 25cm씩 높게 하고, 6매의 접합 유리에 대하여 각각 질량 2260g 및 직경 82mm의 강구를, 접합 유리의 중심 부분에 낙하시켜, 접합 유리의 내관통성(최대 높이)을 평가했다. 내관통성을 이하의 기준으로 판정했다.

[0270] [내관통성의 판정 기준]

[0271] ○: 2m의 높이에서도 합격

[0272] ×: 2m 미만에서 불합격

[0273] (5) 장기 접착 안정성

[0274] 얻어진 중간막을 23℃에서 30일간 보관했다. 보관 전후에, 다음의 자착력의 측정을 행했다.

[0275] 자착력의 측정:

[0276] 23℃ 및 습도 50%RH의 조건 하에서, 중간막으로부터 시료(폭 10mm×길이 100mm)를 2매 잘라냈다. 2매의 중간막을 겹치도록 위치 정렬한 후, 2kg의 물리를 시료 상에서 길이 방향으로 2왕복시켜, 압착하여, 시험편을 얻었다. 얻어진 시험편의 편측에 양면 테이프를 붙이고, 그 양면 테이프를 개재하여 SUS제의 고정판에 시험편을 고정했다. 박리 속도 500mm/분으로 180도 박리 시험을 행하여, 박리 강도를 측정했다. 장기 접착 안정성을 하기의 기준으로 판정했다.

[0277] [장기 접착 안정성의 판정 기준]

- [0278] ○: 보관 후의 박리 강도가 보관 전의 박리 강도의  $\pm 10\%$ 의 범위 내
- [0279] ×: ○의 기준에 상당하지 않는다
- [0280] (6) 굽힘 접합성
- [0281] 얻어진 적층체 A를 사용하여, 굽힘 접합성을 평가했다.
- [0282] 도 5에 모식적으로 도시하는 시험 방법으로, 굽힘 접합성을 평가했다. 측정 장치로서는, 3점 굽힘 시험 지그를 구비한 오리엔테크사제의 UTA-500을 사용했다. 측정 조건으로서는, 측정 온도  $20^{\circ}\text{C}$  ( $20 \pm 3^{\circ}\text{C}$ ), 거리 D1은 3cm, 거리 D2는 5cm로 하고, 변위 속도 1mm/분으로 F의 방향으로 접합 유리에 변형을 가하여, 1mm의 변위를 가했을 때의 응력을 측정하여, 굽힘 접합성을 평가했다. 굽힘 접합성을 이하의 기준으로 판정했다.
- [0283] [굽힘 접합성의 판정 기준]
- [0284] ○: 굽힘 접합성의 응력이 3N/mm 미만
- [0285] △: 굽힘 접합성의 응력이 3N/mm 이상, 3.5N/mm 미만
- [0286] ×: 굽힘 접합성의 응력이 3.5N/mm 이상
- [0287] 상세 및 결과를 하기의 표 1 내지 4에 나타낸다. 또한, 하기의 표 1 내지 4에서는, 수지, 가소제 및 첨가제인 실리카 입자 이외의 배합 성분의 기재는 생략했다.

표 1

			실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	비교예 1	비교예 2	비교예 3	
접합유리의 구성	제1 층	제1 접합 유리 부재의 두께 (mm)		1.0	1.0	1.0	1.6	1.0	1.0	1.0
		폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	100	100	100	100
			평균 중합도	1700	1700	1700	800	1700	1700	1700
			수산기의 함유율 (mol%)	30.6	30.6	30.6	32.5	30.6	30.6	30.6
			아세탈화도 (mol%)	68.5	68.5	68.5	66.3	68.5	68.5	68.5
			아세틸화도 (mol%)	0.9	0.9	0.9	1.2	0.9	0.9	0.9
			중량 평균 분자량	27만	27만	27만	16만	27만	27만	27만
		가스제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
			함유량(중량부)	20	20	20	20	35	20	20
		두께(μm)		800	400	330	360	330	800	800
	제2 층	폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	-	100	100	100
			평균 중합도	3000	2500	800	-	2500	3000	3000
			수산기의 함유율 (mol%)	20.8	20.9	34	-	20.9	20.8	20.8
			아세탈화도 (mol%)	55.7	66.6	65.1	-	66.6	55.7	55.7
			아세틸화도 (mol%)	23.5	12.5	0.9	-	12.5	23.5	23.5
			중량 평균 분자량	43만	35만	28만	-	35만	43만	43만
		폴리비닐 아세탈 수지 이외의 수지	함유량(중량부)	-	-	200	100	-	-	-
			아크릴산에틸(중량%)	-	-	28	28	-	-	-
			아크릴산부틸(중량%)	-	-	22	22	-	-	-
			아크릴산벤질(중량%)	-	-	30	30	-	-	-
			아크릴산2-히드록시에틸(중량%)	-	-	20	20	-	-	-
			아크릴산2-에틸헥실(중량%)	-	-	-	-	-	-	-
		중량 평균 분자량		-	-	20만	9만	-	-	-
		접가제	실리카 입자(중량부)	-	20	-	-	-	-	-
		가스제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
			함유량(중량부)	70	60	20	0	70	70	70
		두께(μm)		60	60	100	50	100	20	40
제3 층	폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	100	100	100	100	
		평균 중합도	1700	1700	1700	800	1700	1700	1700	
		수산기의 함유율 (mol%)	30.6	30.6	30.6	32.5	30.6	30.6	30.6	
		아세탈화도 (mol%)	68.5	68.5	68.5	66.3	68.5	68.5	68.5	
		아세틸화도 (mol%)	0.9	0.9	0.9	1.2	0.9	0.9	0.9	
		중량 평균 분자량	27만	27만	27만	16만	27만	27만	27만	
	가스제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
함유량(중량부)		20	20	20	20	35	20	20		
두께(μm)		800	400	330	360	330	800	800		
제2 접합 유리 부재의 두께 (mm)			1.0	1.4	1.8	1.6	1.4	1.0	1.0	
평가	(1) 동가 점탄성	전단 저장 등가 탄성률(판정)	○○	○○	○○	○○	×	○○	○○	
		전단 저장 탄성률의 나눈 값 (10°C-30°C)	1.3	1.2	3.1	5.7	15	1.2	1.2	
		Tg(=tan δ 피크 온도)(°C)	-5	-7	-4	-2	-5	-5	-5	
		tan δ의 최댓값(-50~0°C)	0.2	0.2	0.4	0.6	0.6	0.08	0.09	
		tan δ (판정)	○	○	○	○	○	×	×	
	(2) 굽힘 강성	판정 (10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	△/△	△/×	○/○	○/○	
	(3) 차음성	판정 (10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	×/×	×/×	
	(4) 내관통성	판정 (20°C)	○	○	○	○	○	○	○	
	(5) 장기 접착 안정성	판정	○	○	○	○	×	○	○	
	(6) 굽힘 접합성	판정	△	○	○	○	○	×	×	

[0288]

표 2

			실시에 5	실시에 6	비교예 4	실시에 7	실시에 8	실시에 9	실시에 10	
접합유리의 구성	제1 접합 유리 부재의 두께 (mm)		1.0	0.7	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	
	폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	100	100	100	100	
		평균 중합도	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
		수산기의 함유율 (mol%)	34.2	34.2	30.6	34.2	34.2	34.2	34.2	
		아세탈화도 (mol%)	65	65	68.5	65	65	65	65	
		아세틸화도 (mol%)	0.8	0.8	0.9	0.8	0.8	0.8	0.8	
		중량 평균 분자량	28만	28만	27만	28만	28만	28만	28만	
	중간막	폴리비닐 아세탈 수지 이외의 수지	함유량(중량부)	100	80	-	100	120	140	200
		아크릴산에틸(중량%)	22	25	-	-	-	-	-	
		아크릴산부틸(중량%)	28	25	-	-	-	-	-	
		아크릴산벤질(중량%)	30	30	-	32	32	32	32	
		아크릴산2-히드록시에틸(중량%)	20	20	-	30	30	30	30	
		아크릴산2-에틸헥실(중량%)	-	-	-	38	38	38	38	
	중량 평균 분자량	35만	80만	-	28만	32만	42만	63만		
	접가제	실리카 입자(중량부)	-	-	-	-	-	-	-	
	가소제	종류	-	-	-	-	-	-	-	
함유량(중량부)		-	-	-	-	-	-	-		
두께(μm)		760	760	760	800	800	800	800		
제2 접합 유리 부재의 두께 (mm)		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.4		
평가	(1)등가 점탄성	전단 저장 등가 탄성률(판정)	○○	○	○	○○	○○	○○	○○	
		전단 저장 탄성률의 나눈 값 (10°C-30°C)	1.5	1.2	1.1	1.2	1.2	1.3	1.4	
		Tg(=tan δ 피크 온도)(°C)	-7	-4	없음	-10	-9	-10	-11	
		tan δ의 최댓값(-50~0°C)	0.2	0.2	-	0.11	0.12	0.16	0.31	
		tan δ (판정)	○	△	×	○	○	○	○	
	(2)굽힘 강성	판정(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	
	(3)차음성	판정(10°C/20°C)	○/○	△/△	×/×	○/○	○/○	○/○	○/○	
	(4)내관통성	판정(20°C)	○	○	×	○	○	○	○	
	(5)장기 접착 안정성	판정	○	○	○	○	○	○	○	
	(6)굽힘 접합성	판정	○	△	×	○	○	○	○	

[0289]

표 3

			실시에 11	실시에 12	실시에 13	실시에 14	실시에 15	실시에 16	실시에 17	
접합유리의 구성	제1 접합 유리 부재의 두께 (mm)		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.2	1.2	
	중간막	폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	100	100	100	100
			평균 중합도	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
			수산기의 함유율 (mol%)	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2
			아세탈화도 (mol%)	65	65	65	65	65	65	65
			중량 평균 분자량	28만	28만	28만	28만	28만	28만	28만
			중량 평균 분자량	28만	28만	28만	28만	28만	28만	28만
	중간막	폴리비닐 아세탈 수지 이외의 수지	함유량(중량부)	140	120	120	120	150	150	150
			아크릴산에틸(중량%)	-	-	-	-	-	-	-
			아크릴산부틸(중량%)	-	-	-	-	-	49	57
			아크릴산벤질(중량%)	32	32	32	32	32	21	23
			아크릴산2-히드록시에틸(중량%)	30	30	30	30	40	30	20
			아크릴산2-에틸헥실(중량%)	38	38	38	38	28	-	-
	중량 평균 분자량	42만	32만	32만	32만	25만	33만	35만		
	첨가제	실리카 입자(중량부)	-	-	-	-	-	-	-	
	가스제	종류	-	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		함유량(중량부)	-	5	10	15	5	5	5	
두께( $\mu$ m)		800	800	800	800	800	800	800		
제2 접합 유리 부재의 두께 (mm)			1.4	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	
평가	(1) 등가 점탄성	전단 저장 등가 탄성률(판정)	○	○	○	○	○	○	○	
		전단 저장 탄성률의 나눈 값 (10°C-30°C)	1.3	1.3	1.3	1.4	1.3	1.3	1.4	
		Tg(=-tan $\delta$ 피크 온도)(°C)	-10	-12	-13	-15	-8	-12	-12	
		tan $\delta$ 의 최댓값(-50~0°C)	0.16	0.12	0.13	0.13	0.14	0.16	0.16	
		tan $\delta$ (판정)	○	○	○	○	○	○	○	
	(2) 굽힘 강성	판정(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	
	(3) 차음성	판정(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	
	(4) 내관통성	판정(20°C)	○	○	○	○	○	○	○	
	(5) 장기 접촉 안정성	판정	○	○	○	○	○	○	○	
	(6) 굽힘 접합성	판정	○	○	○	○	○	○	○	

[0290]

표 4

			실시에 18	실시에 19	실시에 20	실시에 21	실시에 22	비교예 5	비교예 6
집합유리의 구성	제1 집합 유리 부재의 두께 (mm)		1.2	1.2	1.0	1.0	1.6	1.0	1.6
	폴리비닐 아세탈 수지	함유량(중량부)	100	100	100	100	100	100	100
		평균 중합도	1700	1700	2000	2000	2000	1700	1700
		수산기의 함유율(mol%)	34.2	34.2	27	27	27	34.2	34.2
		아세탈화도(mol%)	65	65	72.5	72.5	72.5	65	65
		중량 평균 분자량	28만	28만	27만	27만	27만	28만	28만
	폴리비닐 아세탈 수지 이외의 수지	함유량(중량부)	150	150	150	150	150	-	-
		아크릴산에틸(중량%)	-	-	-	-	-	-	-
		아크릴산부틸(중량%)	65	69	-	-	-	-	-
		아크릴산벤질(중량%)	25	26	32	32	32	-	-
		아크릴산2-히드록시에틸(중량%)	10	5	30	30	30	-	-
		중량 평균 분자량	39만	46만	25만	25만	25만	-	-
	첨가제	실리카 입자(중량부)	-	-	-	-	-	-	-
	가스제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		함유량(중량부)	5	5	10	10	10	40	40
두께(μm)		800	800	800	800	800	760	760	
제2 집합 유리 부재의 두께 (mm)		1.0	1.0	1.0	1.4	1.6	1.8	1.6	
평가	(1)등가 점탄성	전단 저장 등가 탄성률(판정)	○	○	○	○	○	○	○
		전단 저장 탄성률의 나눈 값 (10°C~30°C)	1.3	1.3	1.2	1.2	1.2	21.3	21.3
		Tg(=tan δ 피크 온도)(°C)	-17	-21	-10	-10	-10	없음	없음
		tan δ의 최댓값(-50~0°C)	0.18	0.18	0.2	0.2	0.2	-	-
		tan δ (판정)	○	○	○	○	○	×	×
	(2)굽힘 강성	판정(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○
	(3)차음성	판정(10°C/20°C)	○/○	○/△	○/○	○/○	○/○	×/×	×/×
	(4)내관통성	판정(20°C)	○	○	○	○	○	○	○
	(5)장기 접착 안정성	판정	○	○	○	○	○	×	×
	(6)굽힘 접합성	판정	○	○	○	○	○	○	○

[0291]

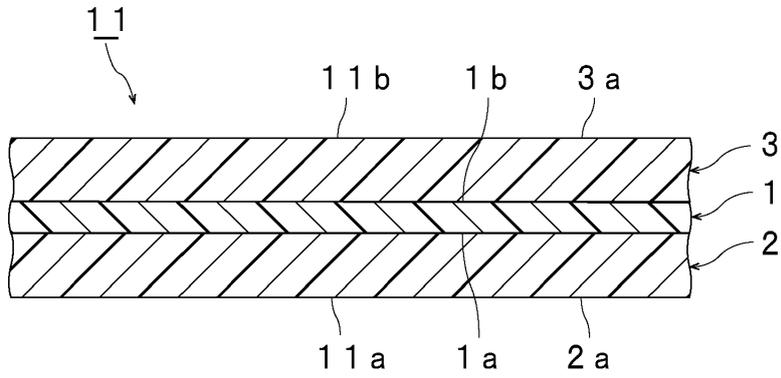
부호의 설명

[0292]

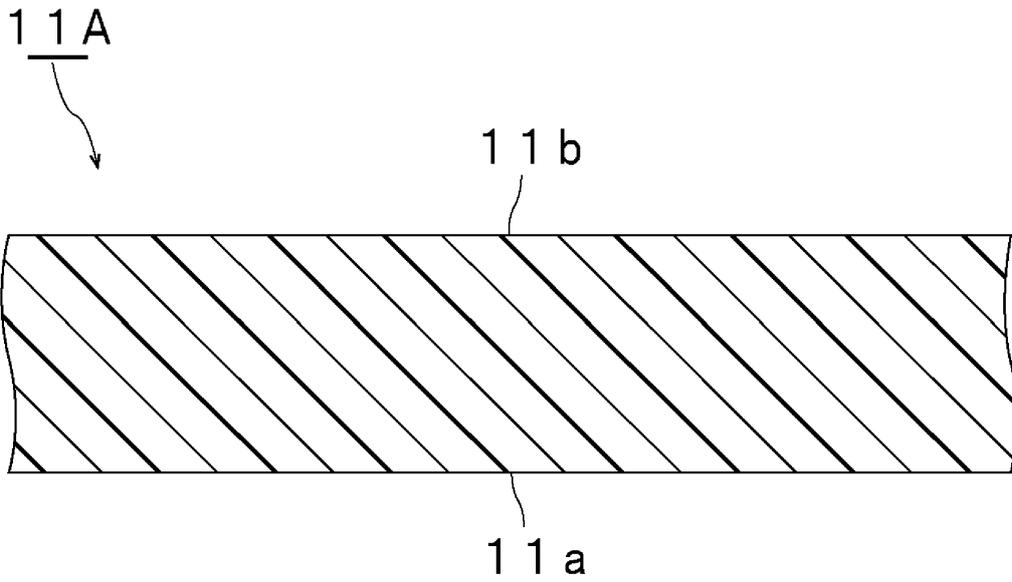
- 1: 제1 층
- 1a: 제1 표면
- 1b: 제2 표면
- 2: 제2 층
- 2a: 외측의 표면
- 3: 제3 층
- 3a: 외측의 표면
- 11: 중간막
- 11A: 중간막(제1 층)
- 11a: 제1 표면
- 11b: 제2 표면
- 21: 제1 집합 유리 부재
- 22: 제2 집합 유리 부재
- 31: 집합 유리
- 31A: 집합 유리

도면

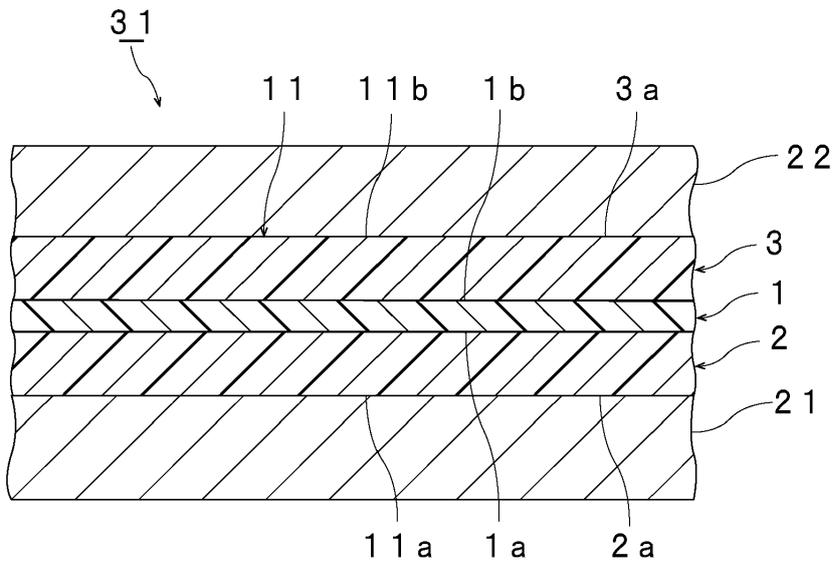
도면1



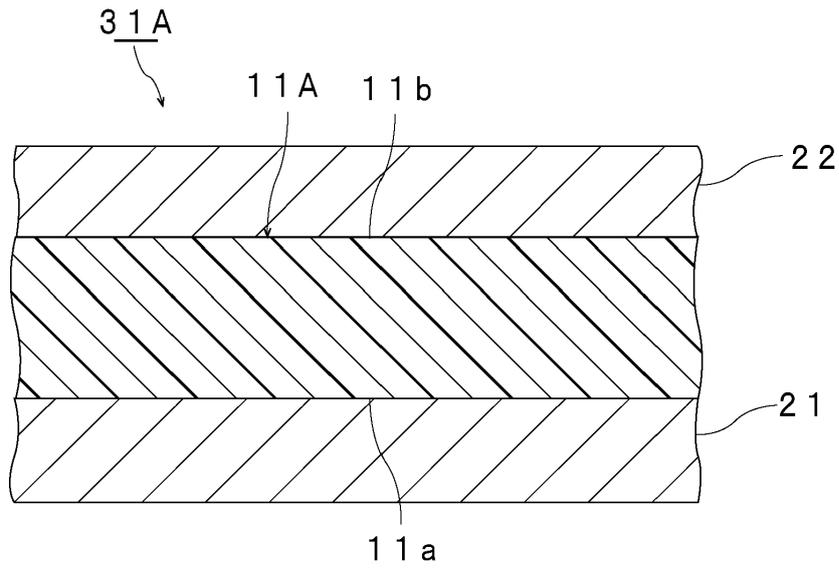
도면2



도면3



도면4



도면5

