



(19) 대한민국특허청(KR)  
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2022년11월25일  
(11) 등록번호 10-2470383  
(24) 등록일자 2022년11월21일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
B32B 27/22 (2006.01) B32B 17/10 (2006.01)  
B32B 27/30 (2006.01)  
(52) CPC특허분류  
B32B 27/22 (2013.01)  
B32B 17/10036 (2021.01)  
(21) 출원번호 10-2022-7000911(분할)  
(22) 출원일자(국제) 2015년01월15일  
심사청구일자 2022년02월09일  
(85) 번역문제출일자 2022년01월11일  
(65) 공개번호 10-2022-0011781  
(43) 공개일자 2022년01월28일  
(62) 원출원 특허 10-2016-7004161  
원출원일자(국제) 2015년01월15일  
심사청구일자 2019년12월17일  
(86) 국제출원번호 PCT/JP2015/050977  
(87) 국제공개번호 WO 2015/108119  
국제공개일자 2015년07월23일  
(30) 우선권주장  
JP-P-2014-005485 2014년01월15일 일본(JP)  
(56) 선행기술조사문헌  
US04452935 A\*  
JP2007070200 A\*  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤  
일본 오사카후 오사카시 기타구 니시템마 2쵸메 4-4  
(72) 발명자  
이와모토, 다츠야  
일본 5288585 시가켄 고우카시 미나구치초 이즈미 1259 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내  
이이, 다이조  
일본 5288585 시가켄 고우카시 미나구치초 이즈미 1259 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내  
(뒷면에 계속)  
(74) 대리인  
장수길, 오현식, 박보현

전체 청구항 수 : 총 11 항

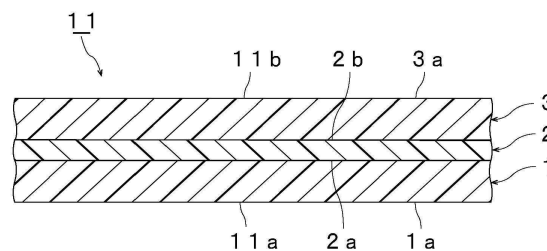
심사관 : 이지혜

(54) 발명의 명칭 **접합 유리용 중간막 및 접합 유리**

(57) 요약

접합 유리의 굽힘 강성을 높일 수 있는 접합 유리용 중간막을 제공한다. 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막은 1층의 구조 또는 2층 이상의 구조를 갖고, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제1 층을 구비하고, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과한다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

**B32B 17/10605** (2021.01)

**B32B 17/10678** (2021.01)

**B32B 17/10761** (2021.01)

**B32B 27/306** (2013.01)

(72) 발명자

**우치무라, 유지**

일본 5288585 시가켄 고우카시 미나구치초 이즈미

1259 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내

---

**미나구치, 나미**

일본 5288585 시가켄 고우카시 미나구치초 이즈미

1259 세키스이가가쿠 고교가부시킴이샤 내

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

1층의 구조 또는 2층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며,  
 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제1 층을 구비하고,  
 상기 제1 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하고,  
 이하의 구성 (b1) 및 구성 (b2) 중 적어도 한 쪽을 만족하는, 접합 유리용 중간막.  
 구성 (b1): 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 아세탈화도가 55몰% 이상 71몰% 이하이며,  
 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $257.3\text{cm}^{-1}$  이상  $267.0\text{cm}^{-1}$  이하임  
 구성 (b2): 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 아세탈화도가 55몰% 이상 66몰% 이하이며,  
 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $257.3\text{cm}^{-1}$  이상  $274.8\text{cm}^{-1}$  이하임

#### 청구항 2

제1항에 있어서, 2층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며,  
 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제2 층을 더 구비하고,  
 상기 제2 층의 제1 표면측에 상기 제1 층이 배치되어 있는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 3

제2항에 있어서, 3층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며,  
 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제3 층을 더 구비하고,  
 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  을 초과하고,  
 상기 제2 층의 상기 제1 표면측과는 반대인 제2 표면측에 상기 제3 층이 배치되어 있는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 4

제3항에 있어서, 상기 제3 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하는, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 5

제2항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은, 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대하여 55중량부 이상인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 6

제2항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 접합 유리용 중간막의 두께를 T로 했을 때에, 상기 제2 층의 두께는  $0.0625T$  이상,  $0.375T$  이하인, 접합 유리용 중간막.

#### 청구항 7

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 두께가 1mm 이하인 제1 유리판을 사용하여, 상기 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용되는, 접합 유리용 중간막.

## 청구항 8

제7항에 있어서, 두께가 1mm 이하인 제1 유리판과 두께가 1mm 이하인 제2 유리판을 사용하여, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용되는, 접합 유리용 중간막.

## 청구항 9

제1 유리판과,

제2 유리판과,

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 기재된 접합 유리용 중간막을 구비하고,

상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에, 상기 접합 유리용 중간막이 배치되어 있는, 접합 유리.

## 청구항 10

제9항에 있어서, 상기 제1 유리판의 두께가 1mm 이하인, 접합 유리.

## 청구항 11

제10항에 있어서, 상기 제2 유리판의 두께가 1mm 이하인, 접합 유리.

## 청구항 12

삭제

## 청구항 13

삭제

## 청구항 14

삭제

## 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 유리의 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 중간막으로서는, 1층의 구조를 갖는 단층의 중간막과, 2층 이상의 구조를 갖는 다층의 중간막이 있다.

[0004] 상기 접합 유리용 중간막의 일례로서, 다음의 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 단층으로 중간막으로서 사용될 수 있다.

[0005] 또한, 다음의 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.

## 선행기술문헌

### 특허문헌

- [0007] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 제2007-070200호 공보  
(특허문헌 0002) US 2013/0236711 A1

## 발명의 내용

### 해결하려는 과제

- [0008] 특허문헌 1, 2에 기재한 바와 같은 종래의 중간막을 사용한 접합 유리에서는, 굽힘 강성이 낮은 경우가 있다. 이로 인해, 예를 들어 접합 유리가 자동차의 사이드 도어에 사용되는 경우, 접합 유리를 고정하는 프레임이 없어, 접합 유리의 강성이 낮은 것에 기인하는 휨이 원인으로 유리의 개폐에 지장을 초래하는 경우가 있다.
- [0009] 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.
- [0010] 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. 또한, 경량인 접합 유리를 자동차에 사용하면, 연비를 향상시킬 수 있어, 결과적으로 환경 부하를 저감시킬 수 있다.
- [0011] 본 발명의 목적은 접합 유리의 굽힘 강성을 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

- [0012] 본 발명의 넓은 국면에 의하면, 1층의 구조 또는 2층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제1 층을 구비하고, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하는, 접합 유리용 중간막이 제공된다.
- [0013] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은, 상기 제1 층을 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비한다.
- [0014] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 2층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제2 층을 더 구비하고, 상기 제2 층의 제1 표면층에 상기 제1 층이 배치되어 있다.
- [0015] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 3층 이상의 구조를 갖는 접합 유리용 중간막이며, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제3 층을 더 구비하고, 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하고, 상기 제2 층의 상기 제1 표면층과는 반대인 제2 표면층에 상기 제3 층이 배치되어 있다.
- [0016] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 상기 제3 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비한다.
- [0017] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대하여, 55중량부 이상이다.

- [0018] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 접합 유리용 중간막의 두께를 T로 했을 때에, 상기 제2 층의 두께는  $0.0625T$  이상,  $0.375T$  이하이다.
- [0019] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과한다.
- [0020] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이다.
- [0021] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 두께가 1mm 이하인 제1 유리판을 사용하여, 상기 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다.
- [0022] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막의 어느 특정한 국면에서는, 상기 중간막은 두께가 1mm 이하인 제1 유리판과 두께가 1mm 이하인 제2 유리판을 사용하여, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다.
- [0023] 본 발명의 넓은 국면에 의하면, 제1 유리판과, 제2 유리판과, 상술한 접합 유리용 중간막을 구비하고, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 상기 접합 유리용 중간막이 배치되어 있는, 접합 유리가 제공된다.
- [0024] 본 발명에 관한 접합 유리의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제1 유리판의 두께가 1mm 이하이다.
- [0025] 본 발명에 관한 접합 유리의 어느 특정한 국면에서는, 상기 제2 유리판의 두께가 1mm 이하이다.

### 발명의 효과

- [0026] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막은 1층의 구조 또는 2층 이상의 구조를 갖고, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제1 층을 구비하고, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하므로, 중간막을 사용한 접합 유리의 굽힘 강성을 높일 수 있다.

### 도면의 간단한 설명

- [0027] 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

- [0028] 이하, 본 발명을 상세하게 설명한다.
- [0029] 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막(본 명세서에 있어서, 「중간막」이라고 약기하는 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 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제1 층을 구비한다. 본 발명에 관한 중간막은 제1 층만을 구비하는 단층의 중간막일 수도 있고, 제1 층과 다른 층을 구비하는 다층의 중간막일 수도 있다.
- [0030] 본 발명에 관한 중간막에서는, (구성 (1)) 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 (구성 (2)) 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과한다. 본 발명에 관한 중간막에서는, 상기

제1 층이 상기한 구성 (1)을 구비하는 것이 바람직하고, 상기한 구성 (2)를 구비하는 것도 바람직하다. 그 중에서도 상기한 구성 (2)가 보다 바람직하다.

[0031] 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 배치된다. 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.

[0032] 상기 중간막은 2층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 제1 층 외에 제2 층을 구비하고 있을 수도 있다. 상기 중간막은 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제2 층을 더 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막이 상기 제2 층을 구비하는 경우에, 상기 제2 층의 제1 표면측에 상기 제1 층이 배치된다.

[0033] 중간막이 후술하는 제3 층을 구비하지 않은 경우나, 중간막이 제1 층과 제2 층의 2층의 구조를 갖는 경우 등에, 상기 제2 층은 (구성 (1')) 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 (구성 (2')) 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하는 것이 바람직하다. 상기 제2 층이 상기한 구성 (1')을 구비하는 것이 바람직하고, 상기한 구성 (2')을 구비하는 것도 바람직하다. 중간막이 후술하는 제3 층을 구비하는 경우에는 특히 상기 제2 층은 상기한 구성 (1')을 구비하지 않을 수도 있고, 상기한 (2')를 구비하지 않을 수도 있다.

[0034] 상기 중간막은 3층 이상의 구조를 갖고 있을 수도 있고, 제1 층 및 제2 층 외에 제3 층을 구비하고 있을 수도 있다. 상기 중간막은 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 함유하는 제3 층을 더 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막이 상기 제2 층 및 상기 제3 층을 구비하는 경우에 상기 제2 층의 상기 제1 표면측과는 반대인 제2 표면측에 상기 제3 층이 배치된다.

[0035] 상기 제3 층은 (구성 (1'')) 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 (구성 (2'')) 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층이 상기한 구성 (1'')을 구비하는 것이 바람직하고, 상기한 구성 (2'')을 구비하는 것도 바람직하다.

[0036] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 중간막은 상기 제1 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막은 상기 제2 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하고 있을 수도 있다. 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 중간막은 상기 제3 층을, 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하는 것이 바람직하다. 상기 중간막은 상기 제1 층과 상기 제3 층을, 각각 중간막에 있어서의 표면층으로서 구비하는 것이 바람직하다.

[0037] 상기 제1 층의 상기 제2 층측과는 반대인 표면은 유리판이 적층되는 표면인 것이 바람직하다. 상기 제1 층에 적층되는 유리판의 두께는 1mm 이하인 것이 바람직하다. 상기 제2 층의 상기 제1 층측과는 반대인 표면(제2 표면)은 유리판이 적층되는 표면일 수도 있다. 상기 제2 층에 적층되는 유리판의 두께는 1mm 이하인 것이 바람직하다. 상기 제3 층의 상기 제2 층측과는 반대인 표면은 유리판이 적층되는 표면인 것이 바람직하다. 상기 제3 층에 적층되는 유리판의 두께는 1mm 이하인 것이 바람직하다.

[0038] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (1)에 있어서는, 상기 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $160\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 바람직하게는  $180\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $200\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $220\text{cm}^{-1}$  이상, 한층 더 바람직하게는  $240\text{cm}^{-1}$  이상이다.

[0039] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (2)에 있어서는, 상기 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $251\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $255\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $270\text{cm}^{-1}$  이상이다. 상기 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭의 상한은 특별히 한정되지 않는다. 상기 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은  $300\text{cm}^{-1}$  이하일 수도



있다.

- [0040] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (1')에 있어서는, 상기 제2 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $160\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 바람직하게는  $180\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $200\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $220\text{cm}^{-1}$  이상, 한층 더 바람직하게는  $240\text{cm}^{-1}$  이상이다.
- [0041] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (2')에 있어서는, 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $251\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $255\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $270\text{cm}^{-1}$  이상이다. 상기 제2 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭의 상한은 특별히 한정되지 않는다. 상기 제2 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은  $300\text{cm}^{-1}$  이하일 수도 있다.
- [0042] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (1'')에 있어서는, 상기 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $160\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 바람직하게는  $180\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $200\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $220\text{cm}^{-1}$  이상, 한층 더 바람직하게는  $240\text{cm}^{-1}$  이상이다.
- [0043] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 구성 (2'')에 있어서는, 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은 바람직하게는  $251\text{cm}^{-1}$  이상, 보다 한층 바람직하게는  $255\text{cm}^{-1}$  이상, 더욱 바람직하게는  $270\text{cm}^{-1}$  이상이다. 상기 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭의 상한은 특별히 한정되지 않는다. 상기 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭은  $300\text{cm}^{-1}$  이하일 수도 있다.
- [0044] 상기 반값폭은 수소 결합의 강도를 나타낸다. 수소 결합력은 수산기의 함유율과, 수산기의 배열 방법에 영향을 받는다. 수소 결합력은 수산기의 함유율에 의해서만 결정되지 않는다. 수산기의 배열 방법에 영향을 주는 하나의 요인으로서, 폴리비닐아세탈 수지의 합성 시의 숙성 온도를 들 수 있다. 예를 들어, 얻어지는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 함유율이 동일해도, 폴리비닐아세탈 수지의 합성 시의 숙성 온도를 높이면, 수소 결합력이 높아지도록 수산기가 배열되어, 수산기의 반값폭이 커진다.
- [0045] 상기 반값폭은 후술하는 실시예 등의 평가란에 기재된 방법에 따라 평가할 수 있다.
- [0046] 중간막에 기인하여 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있으므로, 상기 중간막은 두께가 1mm 이하인 제1 유리판을 사용하여, 해당 제1 유리판과 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 적절하게 사용된다. 중간막에 기인하여 굽힘 강성을 충분히 높일 수 있으므로, 상기 중간막은 두께가 1mm 이하인 제1 유리판과 두께가 1mm 이하인 제2 유리판을 사용하여, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 배치되어, 접합 유리를 얻기 위하여 보다 적합하게 사용된다.
- [0047] 이하, 도면을 참조하면서, 본 발명의 구체적인 실시 형태를 설명한다.
- [0048] 도 1에 본 발명의 제1 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 단면도로 도시한다.
- [0049] 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. 제2 층(2)의 제1 표면(2a)에 제1 층(1)이 배치되어 있고, 적층되어 있다. 제2 층(2)의 제1 표면(2a)과는 반대인 제2 표면(2b)에 제3 층(3)이 배치되어 있고, 적층되어 있다. 제2 층(2)은 중간층이다. 제1 층(1) 및 제3 층(3)은 각각 보호층이며, 본 실시 형태에서는 표면층이다. 제2 층(2)은 제1 층(1)과 제3 층(3) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다. 따라서, 중간막(11)은 제1 층(1)과 제2 층(2)과 제3 층(3)이 이 순으로 적층된 다층 구조(제1 층(1)/제2 층(2)/제3 층(3))를 갖는다.
- [0050] 또한, 제1 층(1)과 제2 층(2) 사이 및 제2 층(2)과 제3 층(3) 사이에는 각각 다른 층이 배치되어 있을 수도 있다. 제1 층(1)과 제2 층(2) 및 제2 층(2)과 제3 층(3)은 각각 직접 적층되어 있는 것이 바람직하다. 다른 층으로서, 폴리에틸렌테레프탈레이트 등을 포함하는 층을 들 수 있다.
- [0051] 제1 층(1)은 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 포함한다. 제1 층(1)은 상기한 구성 (1) 또는 상기한 구성 (2)를 구비한다. 제2 층(2)은 폴리비닐아세탈 수지를 포함하는 것이 바람직하고, 가소제를 포함하는 것이



바람직하다. 제3 층(3)은 폴리비닐아세탈 수지를 포함하는 것이 바람직하고, 가소제를 포함하는 것이 바람직하다.

[0052] 도 2에 본 발명의 제2 실시 형태에 관한 접합 유리용 중간막을 모식적으로 단면도로 도시한다.

[0053] 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.

[0054] 중간막(11A)(제1 층)은 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 포함한다. 중간막(11A)은 상기한 구성 (1) 또는 상기한 구성 (2)를 구비한다.

[0055] 이하, 본 발명에 관한 중간막을 구성하는 상기 제1 층(단층의 중간막을 포함함), 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 상세 및 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층에 포함되는 각 성분의 상세를 설명한다.

[0056] (폴리비닐아세탈 수지 또는 열가소성 수지)

[0057] 상기 제1 층(단층의 중간막을 포함함)은 폴리비닐아세탈 수지(이하, 폴리비닐아세탈 수지 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함한다. 상기 제2 층은 열가소성 수지(이하, 열가소성 수지 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하고, 열가소성 수지 (2)로서 폴리비닐아세탈 수지(이하, 폴리비닐아세탈 수지 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 열가소성 수지(이하, 열가소성 수지 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하고, 열가소성 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 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 열가소성 수지 (2)와 상기 열가소성 수지 (3)은 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있다. 상기 열가소성 수지 (2) 및 상기 열가소성 수지 (3)은 각각 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.

[0058] 상기 열가소성 수지로서는, 폴리비닐아세탈 수지, 에틸렌-아세트산비닐 공중합체 수지, 에틸렌-아크릴산 공중합체 수지, 폴리우레탄 수지 및 폴리비닐알코올 수지 등을 들 수 있다. 이들 이외의 열가소성 수지를 사용할 수도 있다.

[0059] 상기 폴리비닐아세탈 수지는, 예를 들어 폴리비닐알코올을 알데히드에 의해 아세탈화함으로써 제조할 수 있다. 상기 폴리비닐알코올은, 예를 들어 폴리아세트산비닐을 비누화함으로써 얻어진다. 상기 폴리비닐알코올의 비누화도는 일반적으로 70 내지 99.9몰%이다.

[0060] 상기 폴리비닐알코올의 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 내관통성이 한층 더 높아진다. 상기 평균 중합도가 상기 상한 이하이면, 중간막의 성형이 용이해진다.

[0061] 상기 폴리비닐알코올의 평균 중합도는 JIS K6726 「폴리비닐알코올 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 구해진다.

[0062] 상기 폴리비닐아세탈 수지에 포함되는 아세탈기의 탄소수는 특별히 한정되지 않는다. 상기 폴리비닐아세탈 수지를 제조할 때에 사용하는 알데히드는 특별히 한정되지 않는다. 상기 폴리비닐아세탈 수지에 있어서의 아세탈기의 탄소수는 3 내지 5인 것이 바람직하고, 3 또는 4인 것이 바람직하다. 상기 폴리비닐아세탈 수지에 있어서의 아세탈기의 탄소수가 3 이상이면 중간막의 유리 전이 온도가 충분히 낮아진다.

[0063] 상기 알데히드는 특별히 한정되지 않는다. 일반적으로는, 탄소수가 1 내지 10인 알데히드가 적절하게 사용된다. 상기 탄소수가 1 내지 10인 알데히드로서는, 예를 들어 포름알데히드, 아세트알데히드, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드, 이소부틸알데히드, n-배럴알데히드, 2-에틸부틸알데히드, n-헥실알데히드, n-옥틸알데히드, n-노닐알데히드, n-데실알데히드 및 벤즈알데히드 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드, 이소부틸알데히드, n-헥실알데히드 또는 n-배럴알데히드가 바람직하고, 프로피온알데히드, n-부틸알데히드 또는 이소부틸알데히드가 보다 바람직하고, n-부틸알데히드가 더욱 바람직하다. 상기 알데히드는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.

- [0064] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)의 수산기의 함유율(수산기량)은 바람직하게는 17몰% 이상, 보다 바람직하게는 20몰% 이상, 더욱 바람직하게는 22몰% 이상, 바람직하게는 30몰% 이하, 보다 바람직하게는 27몰% 미만, 더욱 바람직하게는 25몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율이 상기 하한 이상이면 중간막의 접착력이 한층 더 높아진다. 특히, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)의 수산기의 함유율이 20몰% 이상이면 반응 효율이 높고 생산성이 우수하고, 또한 27몰% 미만이면 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다. 또한, 상기 수산기의 함유율이 상기 상한 이하이면, 중간막의 유연성이 높아지고, 중간막의 취급이 용이해진다.
- [0065] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)의 수산기의 각 함유율은 바람직하게는 25몰% 이상, 보다 바람직하게는 28몰% 이상, 더욱 바람직하게는 30몰% 이상, 특히 바람직하게는 31몰% 이상, 바람직하게는 35몰% 이하, 보다 바람직하게는 34.5몰% 이하, 더욱 바람직하게는 32몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율이 상기 하한 이상이면 중간막의 접착력이 한층 더 높아진다. 또한, 상기 수산기의 함유율이 상기 상한 이하이면, 중간막의 유연성이 높아지고, 중간막의 취급이 용이해진다.
- [0066] 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 함유율은 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량을 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 계산하여 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다. 상기 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량은, 예를 들어 JIS K6726 「폴리비닐알코올 시험 방법」에 준거하여, 측정함으로써 구할 수 있다.
- [0067] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)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 15몰% 이하이다. 상기 아세틸화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가소제의 상용성이 높아진다. 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.
- [0068] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1) 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 가소제의 상용성이 높아진다. 상기 아세틸화도가 상기 상한 이하이면, 중간막 및 접합 유리의 내습성이 높아진다.
- [0069] 상기 아세틸화도는 주쇄의 전체 에틸렌기량으로부터, 아세탈기가 결합하고 있는 에틸렌기량과, 수산기가 결합하고 있는 에틸렌기량을 차감한 값을, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 계산하여 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다. 상기 아세탈기가 결합하고 있는 에틸렌기량은, 예를 들어 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거하여 측정할 수 있다.
- [0070] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)의 아세탈화도(폴리비닐부티랄 수지의 경우에는 부티랄화도)는 바람직하게는 47몰% 이상, 보다 바람직하게는 60몰% 이상, 바람직하게는 80몰% 이하, 보다 바람직하게는 70몰% 이하이다. 상기 아세탈화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가소제의 상용성이 높아진다. 상기 아세탈화도가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간이 짧아진다.
- [0071] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (3)의 각 아세탈화도(폴리비닐부티랄 수지의 경우에는 부티랄화도)는 바람직하게는 55몰% 이상, 보다 바람직하게는 67몰% 이상, 바람직하게는 75몰% 이하, 보다 바람직하게는 71몰% 이하이다. 상기 아세탈화도가 상기 하한 이상이면 폴리비닐아세탈 수지와 가소제의 상용성이 높아진다. 상기 아세탈화도가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간이 짧아진다.
- [0072] 상기 아세탈화도는 아세탈기가 결합하고 있는 에틸렌기량을, 주쇄의 전체 에틸렌기량으로 계산하여 구한 몰 분율을 백분율로 나타낸 값이다. 상기 아세탈화도는 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법에 의해, 산출될 수 있다.
- [0073] 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 D1396-92JIS K6728에 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.
- [0074] 접합 유리의 내관통성을 한층 더 양호하게 하는 관점에서는, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)는 아세틸화도 (a)가

8몰% 이하이며, 또한 아세탈화도 (a)가 70몰% 이상인 폴리비닐아세탈 수지 (A)이거나, 또는 아세탈화도 (b)가 8몰%를 초과하는 폴리비닐아세탈 수지 (B)인 것이 바람직하다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (1)은 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)일 수도 있고, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)일 수도 있다. 상기 폴리비닐아세탈 수지 (2)는 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)일 수도 있고, 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)일 수도 있다.

[0075] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 아세탈화도 (a)는 8몰% 이하, 바람직하게는 7.5몰% 이하, 보다 바람직하게는 7몰% 이하, 더욱 바람직하게는 6.5몰% 이하, 특히 바람직하게는 5몰% 이하, 바람직하게는 0.1몰% 이상, 보다 바람직하게는 0.5몰% 이상, 더욱 바람직하게는 0.8몰% 이상, 특히 바람직하게는 1몰% 이상이다. 상기 아세탈화도 (a)가 상기 상한 이하 및 상기 하한 이상이면 가소제의 이행을 용이하게 제어할 수 있어, 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다.

[0076] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 아세탈화도 (a)는 70몰% 이상, 바람직하게는 70.5몰% 이상, 보다 바람직하게는 71몰% 이상, 더욱 바람직하게는 71.5몰% 이상, 특히 바람직하게는 72몰% 이상, 바람직하게는 85몰% 이하, 보다 바람직하게는 83몰% 이하, 더욱 바람직하게는 81몰% 이하, 특히 바람직하게는 79몰% 이하이다. 상기 아세탈화도 (a)가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다. 상기 아세탈화도 (a)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (A)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0077] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A)의 수산기의 함유율 (a)는 바람직하게는 18몰% 이상, 보다 바람직하게는 19몰% 이상, 더욱 바람직하게는 20몰% 이상, 특히 바람직하게는 21몰% 이상, 바람직하게는 31몰% 이하, 보다 바람직하게는 30몰% 이하, 더욱 바람직하게는 29몰% 이하, 특히 바람직하게는 28몰% 이하이다. 상기 수산기의 함유율 (a)가 상기 하한 이상이면 상기 제2 층의 접착력이 한층 더 높아진다. 상기 수산기의 함유율 (a)가 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다.

[0078] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 아세탈화도 (b)는 8몰%를 초과하고, 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 한층 더 높아진다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (B)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0079] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 아세탈화도 (b)는 바람직하게는 50몰% 이상, 보다 바람직하게는 53몰% 이상, 더욱 바람직하게는 55몰% 이상, 특히 바람직하게는 60몰% 이상, 바람직하게는 80몰% 이하, 보다 바람직하게는 78몰% 이하, 더욱 바람직하게는 76몰% 이하, 특히 바람직하게는 74몰% 이하이다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다. 상기 아세탈화도 (b)가 상기 상한 이하이면, 폴리비닐아세탈 수지 (B)를 제조하기 위하여 필요한 반응 시간을 단축할 수 있다.

[0080] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)의 수산기의 함유율 (b)는 바람직하게는 18몰% 이상, 보다 바람직하게는 19몰% 이상, 더욱 바람직하게는 20몰% 이상, 특히 바람직하게는 21몰% 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 제2 층의 접착력이 한층 더 높아진다. 상기 수산기의 함유율 (b)가 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 차음성이 한층 더 높아진다.

[0081] 상기 폴리비닐아세탈 수지 (A) 및 상기 폴리비닐아세탈 수지 (B)는 각각 폴리비닐부티랄 수지인 것이 바람직하다.

[0082] (가소제)

[0083] 상기 제1 층(단층의 중간막을 포함함)은 가소제(이하, 가소제 (1)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함한다. 상기 제2 층은 가소제(이하, 가소제 (2)라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 상기 제3 층은 가소제(이하, 가소제 (3)이라고 기재하는 경우가 있음)를 포함하는 것이 바람직하다. 폴리비닐아세탈 수지와 가소제의 병용에 의해, 폴리비닐아세탈 수지와 가소제를 포함하는 층의 접합 유리 부재 또는 다른 층에 대한 접착력이 적절하게 높아진다. 상기 가소제는 특별히 한정되지 않는다. 상기 가소제 (1)과 상기 가소제 (2)와 상기 가소제 (3)은 동일할 수도 있고, 상이할 수도 있다. 상기 가소제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.

[0084] 상기 가소제로서는, 일염기성 유기산 에스테르 및 다염기성 유기산 에스테르 등의 유기 에스테르 가소제 및 유기 인산 가소제 및 유기 아인산 가소제 등의 유기 인산 가소제 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 유기 에스테르

가소제가 바람직하다. 상기 가소제는 액상 가소제인 것이 바람직하다.

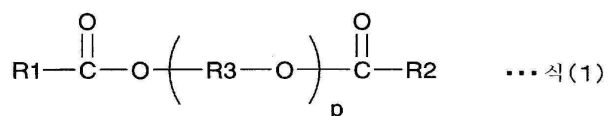
[0085] 상기 일염기성 유기산 에스테르로서는, 글리콜과 일염기성 유기산의 반응에 의해 얻어진 글리콜에스테르 등을 들 수 있다. 상기 글리콜로서는, 트리에틸렌글리콜, 테트라에틸렌글리콜 및 트리프로필렌글리콜 등을 들 수 있다. 상기 일염기성 유기산으로서는, 부티르산, 이소부티르산, 카프로산, 2-에틸부티르산, 헵탈산, n-옥틸산, 2-에틸헥실산, n-노닐산 및 데실산 등을 들 수 있다.

[0086] 상기 다염기성 유기산 에스테르로서는, 다염기성 유기산과, 탄소수 4 내지 8의 직쇄 또는 분지 구조를 갖는 알코올의 에스테르 화합물 등을 들 수 있다. 상기 다염기성 유기산으로서는, 아디프산, 세박산 및 아젤라산 등을 들 수 있다.

[0087] 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 아디프산노닐과의 혼합물, 아디프산디이소노닐, 아디프산디이소데실, 아디프산헵틸노닐, 세박산디부틸, 오일 변성 세박산알키드 및 인산에스테르와 아디프산에스테르의 혼합물 등을 들 수 있다. 이들 이외의 유기 에스테르 가소제를 사용할 수도 있다. 상술한 아디프산에스테르 이외의 다른 아디프산에스테르를 사용할 수도 있다.

[0088] 상기 유기 인산 가소제로서는, 트리부톡시에틸포스페이트, 이소데실페닐포스페이트 및 트리아이소프로필포스페이트 등을 들 수 있다.

[0089] 상기 가소제는, 하기 식 (1)로 표시되는 디에스테르 가소제인 것이 바람직하다.



[0090]

[0091] 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.

[0092] 상기 가소제는 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트(3G0), 트리에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트(3GH) 또는 트리에틸렌글리콜디-2-에틸프로파노에이트인 것이 바람직하고, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트 또는 트리에틸렌글리콜디-2-에틸부티레이트인 것이 보다 바람직하고, 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트인 것이 더욱 바람직하다.

[0093] 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하인 경우는 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 5중량부 이상, 30중량부 미만이다. 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하인 경우는 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 바람직하게는 5중량부 이상, 바람직하게는 30중량부 미만이다. 상기 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이면 접합 유리의 굽힘 강성을 높일 수 있다. 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량 및 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 각각 바람직하게는 10중량부 이상, 보다 바람직하게는 15중량부 이상, 바람직하게는 28중량부 이하, 보다 바람직하게는 26중량부 이하, 더욱 바람직하게는 24중량부 이하이다. 상기 가소제의 함유량이 상기 하한 이상이면 접합 유리용 중간막의 내관통성이 높아지고, 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높일 수 있다.

[0094] 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과하는 경우, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량 및 상



기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 각각 바람직하게는 10중량부 이상, 보다 바람직하게는 12중량부 이상, 더욱 바람직하게는 15중량부 이상, 특히 바람직하게는 30중량부를 초과하고, 바람직하게는 35중량부 이하, 보다 바람직하게는 34중량부 이하, 더욱 바람직하게는 33중량부 이하이다. 상기 가소제의 함유량이 상기 하한 이상이면 접합 유리용 중간막의 내관통성이 높아지고, 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높일 수 있다.

[0095] 접합 유리용 중간막에 특정한 기능을 부여하기 위하여, 제2 층을 제1 층 및 제3 층보다 유연한 층으로 하는 경우가 있다. 예를 들어, 접합 유리용 중간막에 차음성을 부여하기 위하여, 제2 층의 유리 전이 온도를, 제1 층의 유리 전이 온도보다 낮추거나, 제3 층의 유리 전이 온도보다 낮추거나 하는 경우가 있다. 얻어진 접합 유리의 차음성은 향상되지만, 유연한 층에 의해 접합 유리의 굽힘 강성이 저하되어 버린다. 이렇게 접합 유리의 차음성과 강성을 양립하는 것은 곤란하다. 그러나, 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 제1 층 및 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과한다는 구성에 의해, 접합 유리의 차음성을 유지하면서 강성을 높일 수 있다.

[0096] 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 특별히 한정되지 않는다. 상기 제2 층에 포함되는 상기 열가소성 수지 100중량부(열가소성 수지가 폴리비닐아세탈 수지인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 100중량부)에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은 바람직하게는 50중량부를 초과하고, 보다 바람직하게는 55중량부 이상, 더욱 바람직하게는 60중량부 이상, 바람직하게는 100중량부 이하, 보다 바람직하게는 90중량부 이하, 더욱 바람직하게는 85중량부 이하, 특히 바람직하게는 80중량부 이하이다. 상기 가소제의 함유량이 상기 하한 이상이면 접합 유리의 차음성이 향상되고, 상기 가소제의 함유량이 상기 상한 이하이면, 접합 유리의 내관통성이 향상된다.

[0097] 상기 제2 층에 포함되는 상기 열가소성 수지 100중량부(열가소성 수지가 폴리비닐아세탈 수지인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 100중량부)에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량보다, 바람직하게는 21중량부 이상 많고, 보다 바람직하게는 22중량부 이상 많고, 더욱 바람직하게는 25중량부 이상 많다. 상기 제2 층에 포함되는 상기 열가소성 수지 100중량부(열가소성 수지가 폴리비닐아세탈 수지인 경우에는, 폴리비닐아세탈 수지 100중량부)에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량은, 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량보다, 바람직하게는 21중량부 이상 많고, 보다 바람직하게는 22중량부 이상 많고, 더욱 바람직하게는 25중량부 이상 많다. 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 많아도, 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 제1 층 및 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$ 을 초과한다는 구성에 의해, 접합 유리의 차음성을 유지하면서 강성을 높일 수 있다.

[0098] (차열성 화합물)

[0099] 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.

[0100] 성분 X:

[0101] 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.

[0102] 상기 성분 X는 특별히 한정되지 않는다. 성분 X로서, 종래 공지된 프탈로시아닌 화합물, 나프탈로시아닌 화합물 및 안트라시아닌 화합물을 사용할 수 있다.

[0103] 상기 성분 X로서는, 프탈로시아닌, 프탈로시아닌의 유도체, 나프탈로시아닌, 나프탈로시아닌의 유도체, 안트라

시아닌 및 안트라시아닌의 유도체 등을 들 수 있다. 상기 프탈로시아닌 화합물 및 상기 프탈로시아닌의 유도체는 각각 프탈로시아닌 골격을 갖는 것이 바람직하다. 상기 나프탈로시아닌 화합물 및 상기 나프탈로시아닌의 유도체는 각각 나프탈로시아닌 골격을 갖는 것이 바람직하다. 상기 안트라시아닌 화합물 및 상기 안트라시아닌의 유도체는 각각 안트라시아닌 골격을 갖는 것이 바람직하다.

[0104] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 한층 더 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.

[0105] 차열성을 효과적으로 높이면서, 또한 장기간에 걸쳐 가시광선 투과율을 한층 더 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 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 성분 X는 바나듐 원자에 산소 원자가 결합한 구조 단위를 갖는 것이 바람직하다.

[0106] 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 높아지면서, 또한 가시광선 투과율이 충분히 높아진다. 예를 들어, 가시광선 투과율을 70% 이상으로 하는 것이 가능하다.

[0107] 차열 입자:

[0108] 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.

[0109] 접합 유리의 차열성을 한층 더 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.

[0110] 가시광보다 긴 파장 780nm 이상의 적외선은 자외선과 비교하여 에너지양이 작다. 그러나, 적외선은 열적 작용이 커 적외선이 물질에 흡수되면 열로서 방출된다. 이 때문에, 적외선은 일반적으로 열선이라고 부르고 있다. 상기 차열 입자의 사용에 의해 적외선(열선)을 효과적으로 차단할 수 있다. 또한, 차열 입자란, 적외선을 흡수 가능한 입자를 의미한다.

[0111] 상기 차열 입자의 구체예로서는, 알루미늄 도핑 산화주석 입자, 인듐 도핑 산화주석 입자, 안티몬 도핑 산화주석 입자(ATO 입자), 갈륨 도핑 산화아연 입자(GZO 입자), 인듐 도핑 산화아연 입자(IZO 입자), 알루미늄 도핑 산화아연 입자(AZO 입자), 니오븀 도핑 산화티타늄 입자, 나트륨 도핑 산화텅스텐 입자, 세슘 도핑 산화텅스텐 입자, 탈륨 도핑 산화텅스텐 입자, 루비듐 도핑 산화텅스텐 입자, 주석 도핑 산화인듐 입자(ITO 입자), 주석 도핑 산화아연 입자, 규소 도핑 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 높고, 또한 입수가 용이하므로, 주석 도핑 산화인듐 입자(ITO 입자)가 바람직하고, 산화텅스텐 입자도 바람직하다.

[0112] 상기 산화텅스텐 입자는 하기 식 (X1) 또는 하기 식 (X2)로 일반적으로 표시된다. 상기 중간막에서는, 하기 식 (X1) 또는 하기 식 (X2)로 표시되는 산화텅스텐 입자가 적절하게 사용된다.

[0113]  $W_yO_z \cdots \text{식 (X1)}$

[0114] 상기 식 (X1)에 있어서, W는 텅스텐, O는 산소를 나타내고, y 및 z는  $2.0 < z/y < 3.0$ 을 만족한다.

[0115]  $M_xW_yO_z \cdots \text{식 (X2)}$



- [0116] 상기 식 (X2)에 있어서, M은 H, He, 알칼리 금속, 알칼리 토금속, 희토류 원소, Mg, Zr, Cr, Mn, Fe, Ru, Co, Rh, Ir, Ni, Pd, Pt, Cu, Ag, Au, Zn, Cd, Al, Ga, In, Tl, Si, Ge, Sn, Pb, Sb, B, F, P, S, Se, Br, Te, Ti, Nb, V, Mo, Ta 및 Re로 이루어지는 군으로부터 선택되는 적어도 1종의 원소, W는 텅스텐, O는 산소를 나타내고, x, y 및 z는  $0.001 \leq x/y \leq 1$  및  $2.0 < z/y \leq 3.0$ 을 만족한다.
- [0117] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 한층 더 높이는 관점에서는, 산화텅스텐 입자는 금속 도핑 산화텅스텐 입자인 것이 바람직하다. 상기 「산화텅스텐 입자」에는 금속 도핑 산화텅스텐 입자가 포함된다. 상기 금속 도핑 산화텅스텐 입자로서는, 구체적으로는 나트륨 도핑 산화텅스텐 입자, 세슘 도핑 산화텅스텐 입자, 탈륨 도핑 산화텅스텐 입자 및 루비듐 도핑 산화텅스텐 입자 등을 들 수 있다.
- [0118] 중간막 및 접합 유리의 차열성을 한층 더 높이는 관점에서는, 세슘 도핑 산화텅스텐 입자가 특히 바람직하다. 중간막 및 접합 유리의 차열성을 한층 더 높이는 관점에서는, 해당 세슘 도핑 산화텅스텐 입자는 식:  $\text{Cs}_{0.33}\text{WO}_3$ 으로 표시되는 산화텅스텐 입자인 것이 바람직하다.
- [0119] 상기 차열 입자의 평균 입자 직경은 바람직하게는  $0.01\mu\text{m}$  이상, 보다 바람직하게는  $0.02\mu\text{m}$  이상, 바람직하게는  $0.1\mu\text{m}$  이하, 보다 바람직하게는  $0.05\mu\text{m}$  이하이다. 평균 입자 직경이 상기 하한 이상이면 열선의 차폐성이 충분히 높아진다. 평균 입자 직경이 상기 상한 이하이면, 차열 입자의 분산성이 높아진다.
- [0120] 상기 「평균 입자 직경」은 부피 평균 입자 직경을 나타낸다. 평균 입자 직경은 입도 분포 측정 장치(닛키소사 제 「UPA-EX150」) 등을 사용하여 측정할 수 있다.
- [0121] 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 3.0중량% 이하이다. 상기 차열 입자의 함유량이 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 차열성이 충분히 높아지면서, 또한 가시광선 투과율이 충분히 높아진다.
- [0122] 상기 차열 입자를 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층)은 상기 차열 입자를  $0.1\text{g}/\text{m}^2$  이상,  $12\text{g}/\text{m}^2$  이하의 비율로 함유하는 것이 바람직하다. 상기 차열 입자의 비율이 상기 범위 내인 경우에는, 차열성이 충분히 높아지면서, 또한 가시광선 투과율이 충분히 높아진다. 상기 차열 입자의 비율은 바람직하게는  $0.5\text{g}/\text{m}^2$  이상, 보다 바람직하게는  $0.8\text{g}/\text{m}^2$  이상, 더욱 바람직하게는  $1.5\text{g}/\text{m}^2$  이상, 특히 바람직하게는  $3\text{g}/\text{m}^2$  이상, 바람직하게는  $11\text{g}/\text{m}^2$  이하, 보다 바람직하게는  $10\text{g}/\text{m}^2$  이하, 더욱 바람직하게는  $9\text{g}/\text{m}^2$  이하, 특히 바람직하게는  $7\text{g}/\text{m}^2$  이하이다. 상기 비율이 상기 하한 이상이면 차열성이 한층 더 높아진다. 상기 비율이 상기 상한 이하이면, 가시광선 투과율이 한층 더 높아진다.
- [0123] (금속염)
- [0124] 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 유리판의 접착성 또는 중간막에 있어서의 각 층간의 접착성을 제어하는 것이 용이해진다. 상기 금속염 M은 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0125] 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.
- [0126] 또한, 상기 금속염 M은 탄소수 2 내지 16의 유기산 알칼리 금속염 또는 탄소수 2 내지 16의 유기산 알칼리 토금속염인 것이 보다 바람직하고, 탄소수 2 내지 16의 카르복실산마그네슘염 또는 탄소수 2 내지 16의 카르복실산칼륨염인 것이 더욱 바람직하다.
- [0127] 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.
- [0128] 상기 금속염 M을 포함하는 층(제1 층, 제2 층 또는 제3 층)에 있어서의 Mg 및 K의 함유량의 합계는 바람직하게

는 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 유리판의 접착성 또는 중간막에 있어서의 각 층간의 접착성을 한층 더 양호하게 제어할 수 있다.

- [0129] (자외선 차폐제)
- [0130] 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 따라, 중간막 및 접합 유리가 장기간 사용되어도, 가시광선 투과율이 한층 더 저하되기 어려워진다. 상기 자외선 차폐제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0131] 상기 자외선 차폐제에는 자외선 흡수제가 포함된다. 상기 자외선 차폐제는 자외선 흡수제인 것이 바람직하다.
- [0132] 상기 자외선 차폐제로서는, 예를 들어 금속계 자외선 차폐제, 금속 산화물계 자외선 차폐제, 벤조트리아졸계 자외선 차폐제, 벤조페논계 자외선 차폐제, 트리아진계 자외선 차폐제, 말론산에스테르계 자외선 차폐제, 옥살산아닐리드계 자외선 차폐제 및 벤조에이트계 자외선 차폐제 등을 들 수 있다.
- [0133] 상기 금속계 자외선 흡수제로서는, 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.
- [0134] 상기 자외선 차폐제는 바람직하게는 벤조트리아졸계 자외선 차폐제, 벤조페논계 자외선 차폐제, 트리아진계 자외선 차폐제 또는 벤조에이트계 자외선 차폐제이며, 보다 바람직하게는 벤조트리아졸계 자외선 차폐제 또는 벤조페논계 자외선 차폐제이며, 더욱 바람직하게는 벤조트리아졸계 자외선 흡수제이다.
- [0135] 상기 금속 산화물계 자외선 흡수제로서는, 예를 들어 산화아연, 산화티타늄 및 산화세륨 등을 들 수 있다. 또한, 상기 금속 산화물계 자외선 흡수제에 관해서, 표면이 피복되어 있을 수도 있다. 상기 금속 산화물계 자외선 흡수제의 표면 피복재료로서는, 절연성 금속 산화물, 가수분해성 유기 규소 화합물 및 실리콘 화합물 등을 들 수 있다.
- [0136] 상기 절연성 금속 산화물로서는, 실리카, 알루미늄 및 지르코니아 등을 들 수 있다. 상기 절연성 금속 산화물은, 예를 들어 5.0eV 이상의 밴드 갭 에너지를 갖는다.
- [0137] 상기 벤조트리아졸계 자외선 흡수제로서는, 예를 들어 2-(2'-히드록시-5'-메틸페닐)벤조트리아졸(바스프(BASF)사제 「티누빈(Tinubin) 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-아미페닐)벤조트리아졸(바스프사제 「티누빈 328」) 등의 벤조트리아졸계 자외선 흡수제를 들 수 있다. 자외선을 흡수하는 성능이 우수한 점에서, 상기 자외선 차폐제는 할로젠 원자를 포함하는 벤조트리아졸계 자외선 흡수제인 것이 바람직하고, 염소 원자를 포함하는 벤조트리아졸계 자외선 흡수제인 것이 보다 바람직하다.
- [0138] 상기 벤조페논계 자외선 흡수제로서는, 예를 들어 옥타벤존(바스프사제 「Chimassorb81」) 등을 들 수 있다.
- [0139] 상기 트리아진계 자외선 흡수제로서는, 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.
- [0140] 상기 말론산에스테르계 자외선 차폐제로서는, 2-(*p*-메톡시벤질리덴)말론산 디메틸, 테트라에틸-2,2-(1,4-페닐렌 디메틸리덴)비스말로네이트, 2-(*p*-메톡시벤질리덴)-비스(1,2,2,6,6-펜타메틸-4-피페리딘)말로네이트 등을 들 수 있다.
- [0141] 상기 말론산에스테르계 자외선 차폐제의 시판품으로서, 호스타빈(Hostavin) B-CAP, 호스타빈 PR-25, 호스타빈 PR-31(모두 클라리안트사제)을 들 수 있다.
- [0142] 상기 옥살산아닐리드계 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 「SanduvorVSU」) 등의 질소 원자 상에 치환된 아릴기 등을 갖는 옥살산디아미드류를 들 수 있다.

- [0143] 상기 벤조에이트계 자외선 흡수제로서는, 예를 들어 2,4-디-tert-부틸페닐-3,5-디-tert-부틸-4-히드록시벤조에이트(바스프사제 「티누빈 120」) 등을 들 수 있다.
- [0144] 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.
- [0145] (산화 방지제)
- [0146] 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.
- [0147] 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.
- [0148] 상기 산화 방지제는 페놀계 산화 방지제 또는 인계 산화 방지제인 것이 바람직하다.
- [0149] 상기 페놀계 산화 방지제로서는, 2,6-디-t-부틸-p-크레졸(BHT), 부틸화히드록시아니솔(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)부티락에시드글리콜에스테르 및 비스(3-t-부틸-4-히드록시-5-메틸벤젠프로판산)에틸렌비스(옥시에틸렌) 등을 들 수 있다. 이들 산화 방지제 중 1종 또는 2종 이상이 적절하게 사용된다.
- [0150] 상기 인계 산화 방지제로서는, 트리데실포스파이트, 트리스(트리데실)포스파이트, 트리페닐포스파이트, 트리노닐페닐포스페이트, 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 적절하게 사용된다.
- [0151] 상기 산화 방지제의 시판품으로서는, 예를 들어 스미토모 가가쿠 고교사제 「스밀라이저 BHT」, 시바 가이기가사제 「이르가녹스 1010」 등을 들 수 있다.
- [0152] 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 포화되므로, 상기 중간막 100중량% 중 또는 상기 산화 방지제를 포함하는 층 100중량% 중 상기 산화 방지제의 함유량은 2중량% 이하인 것이 바람직하다.
- [0153] (다른 성분)
- [0154] 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층은 각각 필요에 따라, 난연제, 대전 방지제, 안료, 염료, 접착력 조정제, 내습제, 형광 증백제 및 적외선 흡수제 등의 첨가제를 포함하고 있을 수도 있다. 이들 첨가제는 1종만이 사용될 수도 있고, 2종 이상이 병용될 수도 있다.
- [0155] (접합 유리용 중간막의 다른 상세)
- [0156] 접합 유리의 굽힘 강성을 한층 더 높이는 관점에서는, 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 유리 전이 온도는 각각 바람직하게는 31℃ 이상, 보다 바람직하게는 33℃ 이상, 보다 한층 바람직하게는 35℃ 이상이다. 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 유리 전이 온도의 상한은 특별히 한정되지 않는다. 중간막의 차음성을 한층 더 높이는 관점에서, 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 유리 전이 온도는 60℃ 이하일 수도 있다.

- [0157] 상기 중간막의 두께는 특별히 한정되지 않는다. 실용면의 관점 및 집합 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 집합 유리의 내관통성 및 굽힘 강성이 높아진다. 중간막의 두께가 상기 상한 이하이면, 중간막의 투명성이 한층 더 양호해진다.
- [0158] 중간막의 두께를 T로 한다. 다층의 중간막인 경우에, 상기 제2 층의 두께는 바람직하게는 0.0625T 이상, 보다 바람직하게는 0.1T 이상, 바람직하게는 0.375T 이하, 보다 바람직하게는 0.25T 이하이다. 예를 들어, 집합 유리용 중간막에 차음성을 부여하기 위하여, 상기 제2 층의 유리 전이 온도를 상기 제1 층 및 제3 층의 유리 전이 온도보다 낮추는 경우가 있다. 구체적으로는, 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이, 상기 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제1 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 많거나, 상기 제2 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제2 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이, 상기 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 상기 제3 층에 포함되는 상기 가소제의 함유량이 많거나 하는 경우, 집합 유리의 굽힘 강성이 저하된다. 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 제1 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 제1 층에 포함되는 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 제1 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  을 초과한다고 하는 구성으로 하는 것 외에, 상기 제2 층의 두께를 0.0625T 이상, 0.375T 이하로 함으로써, 집합 유리의 차음성과 강성을 한층 더 높일 수 있다. 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  이하이며, 또한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 제1 층 및 제3 층에 포함되는 가소제의 함유량이 5중량부 이상, 30중량부 미만이거나, 또는 제1 층 및 제3 층에 포함되는 상기 폴리비닐아세탈 수지의 수산기의 반값폭이  $250\text{cm}^{-1}$  을 초과한다고 하는 구성으로 하는 것 외에, 상기 제2 층의 두께를 0.0625T 이상, 0.375T 이하로 함으로써, 집합 유리의 차음성과 강성을 한층 더 높일 수 있다. 상기 제2 층의 두께는 보다 바람직하게는 0.075 이상, 더욱 바람직하게는 0.09 이상, 특히 바람직하게는 0.1 이상, 보다 바람직하게는 0.37 이하, 더욱 바람직하게는 0.33 이하, 특히 바람직하게는 0.27 이하이다.
- [0159] 집합 유리의 강성을 한층 더 높일 수 있는 점에서, 상기 제2 층의 최대 두께는, 중간막의 최대 두께보다 작은 것이 바람직하고,  $100\mu\text{m}$  이상 작은 것이 보다 바람직하고,  $300\mu\text{m}$  이상 작은 것이 더욱 바람직하고,  $500\mu\text{m}$  이상 작은 것이 특히 바람직하다.
- [0160] 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 각 두께는 바람직하게는 0.3125T 이상, 보다 바람직하게는 0.375T 이상, 바람직하게는 0.9375T 이하, 보다 바람직하게는 0.9T 이하이다. 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 각 두께는 0.46875T 이하일 수도 있고, 0.45T 이하일 수도 있다. 또한, 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 각 두께가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 집합 유리의 굽힘 강성이 한층 더 높아지고, 가소제의 블리드 아웃을 억제할 수 있다.
- [0161] 집합 유리용 중간막이 1층의 구조뿐인 경우, 즉 상기 제1 층뿐인 경우, 집합 유리의 강성이 한층 더 높아지는 점에서, 상기 제1 층의 두께는  $760\mu\text{m}$  이상인 것이 바람직하고,  $760\mu\text{m}$ 를 초과하는 것이 보다 바람직하고,  $800\mu\text{m}$ 를 초과하는 것이 더욱 바람직하고,  $1000\mu\text{m}$  이상인 것이 특히 바람직하고,  $1500\mu\text{m}$  이상인 것이 가장 바람직하다.
- [0162] 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 합계의 두께는 바람직하게는 0.625T 이상, 보다 바람직하게는 0.75T 이상, 바람직하게는 0.9375T 이하, 보다 바람직하게는 0.9T 이하이다. 또한, 상기 제1 층 및 상기 제3 층의 합계의 두께가 상기 하한 이상 및 상기 상한 이하이면, 집합 유리의 굽힘 강성이 한층 더 높아지고, 가소제의 블리드 아웃을 억제할 수 있다.
- [0163] 상기 제1 층, 상기 제2 층 및 상기 제3 층의 두께를 측정하는 방법으로서, 이하의 방법을 들 수 있다. 키엔스(KEYENCE)사제의 디지털 현미경 VHX-100을 사용한다. 대물 렌즈로서 25배 내지 175배로 배율을 선택할 수 있는 렌즈를 사용하여, 배율을 175배로 설정한다. SFC사제의 조명기인 투과광 BOXA3-3 상에서, 디지털 현미경에 의해 중간막의 단면을 관찰한다. 중간막의 각 층의 두께는 VHX 메인 메뉴 중 계측 툴의 2점간 계측을 사용하여 측정한다. 중간막의 단면을 관찰할 때에는 예리한 칼날로 관찰 부분의 단면을 매끄럽게 트림한 후에 관찰을 행하는 것이 바람직하다.
- [0164] 본 발명에 관한 중간막의 제조 방법으로서, 특별히 한정되지 않는다. 본 발명에 관한 중간막의 제조 방법으로서, 단층의 중간막인 경우에, 수지 조성물을 압출기를 사용하여 압출하는 방법을 들 수 있다. 본 발명에 관



한 중간막의 제조 방법으로서, 다층의 중간막인 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.

[0165] 중간막의 제조 효율이 우수한 점에서, 상기 제1 층과 상기 제3 층에 동일한 폴리비닐아세탈 수지가 포함되어 있는 것이 바람직하고, 상기 제1 층과 상기 제3 층에 동일한 폴리비닐아세탈 수지 및 동일한 가소제가 포함되어 있는 것이 보다 바람직하고, 상기 제1 층과 상기 제3 층이 동일한 수지 조성물에 의해 형성되어 있는 것이 더욱 바람직하다.

[0166] 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, 엠보싱 롤법, 캘린더 롤법 및 이형 압출법 등을 들 수 있다. 그 중에서도 정량적으로 일정한 요철 모양인 다수의 요철 형상의 엠보싱을 형성할 수 있는 점에서, 엠보싱 롤법이 바람직하다.

[0167] (접합 유리)

[0168] 도 3은, 도 1에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.

[0169] 도 3에 도시하는 접합 유리(31)는 제1 유리판(21)과, 제2 유리판(22)과, 중간막(11)을 구비한다. 중간막(11)은 제1 유리판(21)과 제2 유리판(22) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다.

[0170] 중간막(11)의 제1 표면(11a)에 제1 유리판(21)이 적층되어 있다. 중간막(11)의 제1 표면(11a)과는 반대인 제2 표면(11b)에 제2 유리판(22)이 적층되어 있다. 제1 층(1)의 외측의 표면(1a)에 제1 유리판(21)이 적층되어 있다. 제3 층(3)의 외측의 표면(3a)에 제2 유리판(22)이 적층되어 있다.

[0171] 도 4는, 도 2에 도시하는 접합 유리용 중간막을 사용한 접합 유리의 일례를 모식적으로 도시하는 단면도이다.

[0172] 도 4에 도시하는 접합 유리(31A)는 제1 유리판(21)과, 제2 유리판(22)과, 중간막(11A)을 구비한다. 중간막(11A)은 제1 유리판(21)과 제2 유리판(22) 사이에 배치되어 있고, 끼워 넣어져 있다.

[0173] 중간막(11A)의 제1 표면(11a)에 제1 유리판(21)이 적층되어 있다. 중간막(11A)의 제1 표면(11a)과는 반대인 제2 표면(11b)에 제2 유리판(22)이 적층되어 있다.

[0174] 이와 같이, 본 발명에 관한 접합 유리는 제1 유리판과, 제2 유리판과, 중간막을 구비하고 있고, 해당 중간막이 본 발명에 관한 접합 유리용 중간막이다. 본 발명에 관한 접합 유리에서는, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 상기 중간막이 배치되어 있다.

[0175] 상기 유리판으로서, 무기 유리 및 유기 유리를 들 수 있다. 상기 무기 유리로서는, 플롯트 판유리, 열선 흡수 판유리, 열선 반사 판유리, 연마 판유리, 형판 유리, 망입 판유리 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.

[0176] 상기 유리판의 두께는 바람직하게는 0.5mm 이상, 보다 바람직하게는 0.7mm 이상, 바람직하게는 5mm 이하, 보다 바람직하게는 3mm 이하이다.

[0177] 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 1.5mm 이하, 더욱 바람직하게는 1mm 이하, 한층 더 바람직하게는 0.8mm 이하, 특히 바람직하게는 0.7mm 이하이다.

[0178] 상기 접합 유리의 제조 방법은 특별히 한정되지 않는다. 예를 들어, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판 사이에 중간막을 끼우고, 가압 롤에 통과시키거나, 또는 고무 백에 넣고 감압 흡인하거나 하여, 상기 제1 유리판과 상기 제2 유리판과 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.

- [0179] 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 적절하게 사용된다. 상기 중간막은 자동차의 접합 유리를 얻기 위하여 사용된다.
- [0180] 이하에 실시예를 들어 본 발명을 더욱 상세하게 설명한다. 본 발명은 이들 실시예에만 한정되지 않는다.
- [0181] 이하의 재료를 준비했다.
- [0182] (폴리비닐아세탈 수지)
- [0183] 이하의 실시예 및 비교예에서 사용한 폴리비닐부티랄(PVB) 수지에 관해서는, 부티랄화도(아세탈화도), 아세틸화도 및 수산기의 함유율은 JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법에 의해 측정했다. 또한, ASTM D1396-92에 의해 측정한 경우도, JIS K6728 「폴리비닐부티랄 시험 방법」에 준거한 방법과 마찬가지로 수치를 나타냈다.
- [0184] (합성예 1)
- [0185] 폴리비닐아세탈 수지 A의 합성:
- [0186] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.1몰%의 폴리비닐알코올을 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 21g을 첨가하고, 온도를 17℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 154g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 172g을 첨가하고, 60℃로 가열하고, 66℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 A를 얻었다.
- [0187] 얻어진 폴리비닐아세탈 수지 A에 관해서는, 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도 1700, 수산기의 함유율 34.4몰%, 아세틸화도 0.8몰%, 아세탈화도(부티랄화도) 64.8몰%, 반값폭  $274.8\text{cm}^{-1}$ 이었다.
- [0188] (합성예 2)
- [0189] 폴리비닐아세탈 수지 B의 합성:
- [0190] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.1몰%의 폴리비닐알코올을 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 21g을 첨가하고, 온도를 17℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 165g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 240g을 첨가하고, 55℃로 가열하고, 58℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 B를 얻었다.
- [0191] 얻어진 폴리비닐아세탈 수지 B에 관해서는, 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도 1700, 수산기의 함유율 30.0몰%, 아세틸화도 0.9몰%, 아세탈화도(부티랄화도) 69.1몰%, 반값폭  $239.3\text{cm}^{-1}$ 이었다.
- [0192] (합성예 3)
- [0193] 폴리비닐아세탈 수지 X의 합성:
- [0194] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 3290ml, 평균 중합도 2300, 비누화도 87.3몰%의 폴리비닐알코올을 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 74g을 첨가하고, 온도를 12℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 183g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 277g을 첨가하고, 51℃로 가열하고, 56℃에서 3시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 X를 얻었다.
- [0195] 얻어진 폴리비닐아세탈 수지 X에 관해서는, 폴리비닐부티랄(PVB) 수지, 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도 2300, 수산기의 함유율 22.7몰%, 아세틸화도 12.1몰%, 아세탈화도(부티랄화도) 65.2몰%, 반값폭  $164.9\text{cm}^{-1}$ 이



었다.

[0196] (합성예 4)

[0197] 폴리비닐아세탈 수지 C의 합성:

[0198] 교반 장치를 구비한 반응기에 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.1몰%의 폴리비닐알코올을 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산을 21g 첨가하고, 온도를 14℃로 조정한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 154g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산을 134g 첨가하고, 55℃로 가열하고, 60℃에서 2.0시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 C를 얻었다.

[0199] 얻어진 폴리비닐아세탈 수지 C에 관해서는, 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도 1700, 수산기의 함유율 35몰%, 아세틸화도 0.8몰%, 아세탈화도(부티랄화도) 64.2몰%, 반값폭  $251\text{cm}^{-1}$ 이었다.

[0200] (합성예 5)

[0201] 폴리비닐아세탈 수지 D의 합성:

[0202] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2500ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.1몰%의 폴리비닐알코올을 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 60중량% 질산을 22.6g 첨가하고, 온도를 14℃로 조정한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 169g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 60중량% 질산을 86.3g 첨가하고, 50℃로 가열하고, 55℃에서 3.0시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 D를 얻었다.

[0203] 얻어진 폴리비닐아세탈 수지 D에 관해서는, 폴리비닐알코올(PVA)의 평균 중합도 1700, 수산기의 함유율 29.4몰%, 아세틸화도 0.9몰%, 아세탈화도(부티랄화도) 69.7몰%, 반값폭  $235.6\text{cm}^{-1}$ 이었다.

[0204] (합성예 6)

[0205] 폴리비닐아세탈 수지 Y의 합성:

[0206] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 3267ml, 평균 중합도 3000, 비누화도 88.2몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 60중량% 질산 47.3g을 첨가하고, 온도를 10℃로 조정한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 187.1g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 60중량% 질산 144g을 첨가하고, 55℃로 가열하고, 57.5℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 Y를 얻었다.

[0207] (합성예 7)

[0208] 폴리비닐아세탈 수지 Z의 합성:

[0209] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 3299ml, 평균 중합도 3000, 비누화도 88.2몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 60중량% 질산 47.3g을 첨가하고, 온도를 10℃로 조정한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 171.3g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 60중량% 질산 144g을 첨가하고, 55℃로 가열하고, 57.5℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 Z를 얻었다.

[0210] (합성예 8)

[0211] 폴리비닐아세탈 수지 E(PVB 수지)의 합성:

[0212] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.0몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 21g을 첨가하고, 온도를 14℃로 조정한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 155g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 172g을 첨가하고, 60℃로 가열하고, 66℃

에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 E를 얻었다.

[0213] (합성예 9)

[0214] 폴리비닐아세탈 수지 F(PVB 수지)의 합성:

[0215] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.0몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 21g을 첨가하고, 온도를 14℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 160g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 172g을 첨가하고, 57℃로 가열하고, 63℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 F를 얻었다.

[0216] (합성예 10)

[0217] 폴리비닐아세탈 수지 G(PVB 수지)의 합성:

[0218] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 2700ml, 평균 중합도 1700, 비누화도 99.0몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 35.5중량% 염산 21g을 첨가하고, 온도를 14℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 160g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 35.5중량% 염산 172g을 첨가하고, 40℃로 가열하고, 46℃에서 3시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 G를 얻었다.

[0219] (합성예 11)

[0220] 폴리비닐아세탈 수지 V(PVB 수지)의 합성:

[0221] 교반 장치를 구비한 반응기에, 이온 교환수 3244ml, 평균 중합도 3000, 비누화도 88.2몰%의 폴리비닐알코올 300g을 넣고, 교반하면서 가열 용해하여, 용액을 얻었다. 이어서, 이 용액에 촉매로서 60중량% 질산 47.3g을 첨가하고, 온도를 10℃로 조정 한 후, 교반하면서 n-부틸알데히드 199g을 첨가한 바, 백색 입자상의 폴리비닐부티랄 수지가 석출되었다. 석출되고 나서 20분 후에, 60중량% 질산 144g을 첨가하고, 65℃로 가열하고, 67.5℃에서 2시간 숙성시켰다. 계속해서, 용액을 냉각하고, 중화한 후, 폴리비닐부티랄 수지를 수세하고, 건조시킴으로써, 폴리비닐아세탈 수지 V를 얻었다.

[0222] (가소제)

[0223] 트리에틸렌글리콜디-2-에틸헥사노에이트(3G0)

[0224] (자외선 차폐제)

[0225] 티누빈 326(2-(2'-히드록시-3'-t-부틸-5-메틸페닐)-5-클로로벤조트리아졸, 바스프사제 「티누빈 326」)

[0226] (산화 방지제)

[0227] BHT(2,6-디-t-부틸-p-크레졸)

[0228] (실시예 1)

[0229] 제1 층을 형성하기 위한 조성물 제작:

[0230] 폴리비닐아세탈 수지(폴리비닐아세탈 수지 A) 100중량부와, 가소제(3G0) 30중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 제1 층을 형성하기 위한 조성물을 얻었다.

[0231] 중간막의 제작:

[0232] 제1 층을 형성하기 위한 조성물을, 압출기를 사용하여 압출함으로써, 제1 층(두께 760 $\mu$ m)뿐인 단층의 중간막(두께 760 $\mu$ m)을 제작했다.

[0233] 접합 유리 A의 제작:

[0234] 세정 및 건조한 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 25cm×가로 10cm×두께 2.5mm)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, 탈기한 상태에서 적층체를 오토클레이브 중에서 또한 90℃에서 30분간 유지하면서, 진공 프레스했다. 이와 같이 하여 예비 압착된 적층체를, 오토클레이브 중에서 135℃, 압력 1.2MPa(12kg/cm<sup>2</sup>)의 조건에서 20분간 압착을 행하여, 접합 유리를 얻었다.

[0235] 접합 유리 B의 제작:

[0236] 세정 및 건조한 1개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 25cm×가로 10cm×두께 2.5mm)을 준비했다. 세정 및 건조한 1개의 유리판(고릴라 글래스, 세로 25cm×가로 10cm×두께 0.7mm)을 준비했다. 이 2개의 유리판을 사용한 것 이외는 접합 유리 A와 마찬가지로 하여, 접합 유리 B를 얻었다.

[0237] 접합 유리 C의 제작:

[0238] 세정 및 건조한 2개의 유리판(고릴라 글래스, 세로 25cm×가로 10cm×두께 0.7mm)을 준비했다. 이 2개의 유리판을 사용한 것 이외는 접합 유리 A와 마찬가지로 하여, 접합 유리 C를 얻었다.

[0239] (실시예 2 내지 11 및 비교예 1, 2)

[0240] 제1 층을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 폴리비닐아세탈 수지 및 가소제의 종류와, 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 가소제의 배합량과, 제1 층의 두께를 다음의 표 1에 나타낸 바와 같이 설정한 것 이외는 실시예 1과 마찬가지로 하여, 중간막, 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C를 얻었다.

[0241] (실시예 12)

[0242] 제1 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물 제작:

[0243] 폴리비닐아세탈 수지(폴리비닐아세탈 수지 A) 100중량부와, 가소제(3G0) 31.5중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 제1 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물 X를 얻었다.

[0244] 제2 층을 형성하기 위한 조성물 제작:

[0245] 폴리비닐아세탈 수지(폴리비닐아세탈 수지 X) 100중량부와, 가소제(3G0) 60중량부와, 자외선 차폐제(티누빈 326) 0.2중량부와, 산화 방지제(BHT) 0.2중량부를 혼합하여, 제2 층을 형성하기 위한 조성물을 얻었다.

[0246] 중간막의 제작:

[0247] 제1 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물과, 제2 층을 형성하기 위한 조성물을, 공압출기를 사용하여 공압출함으로써, 제1 층(두께 330 $\mu$ m)/제2 층(두께 100 $\mu$ m)/제3 층(두께 330 $\mu$ m)의 구조를 갖는 다층의 중간막(두께 760 $\mu$ m)을 제작했다.

[0248] 접합 유리의 제작:

[0249] 얻어진 중간막을 사용한 것 이외는 실시예 1과 마찬가지로 하여, 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C를 얻었다.

[0250] 차음성 측정용의 접합 유리의 제작:

[0251] 세정 및 건조한 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 30cm×가로 2.5cm×두께 2.5mm)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, 탈기한 상태에서 적층체를 오토클레이브 중에서 또한 90℃에서 30분간 유지하면서, 진공 프레스했다. 이와 같이 하여 예비 압착된 적층체를, 오토클레이브 중에서 135℃, 압력 1.2MPa(12kg/cm<sup>2</sup>)의 조건에서 20분간 압착을 행하여, 차음성 측정용의 접합 유리를 얻었다.

[0252] (실시예 13 내지 27)

[0253] 제1 층, 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 폴리비닐아세탈 수지 및 가소제의 종류와, 폴리비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 가소제의 배합량과, 제1 층, 제2 층 및 제3 층의 두께를 다음의 표 2, 3에 나타낸 바와 같이 설정한 것 이외는 실시예 12와 마찬가지로 하여, 중간막, 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C를 얻었다.

[0254] (비교예 3, 4)

[0255] 제1 층, 제2 층 및 제3 층을 형성하기 위한 조성물에 사용하는 폴리비닐아세탈 수지 및 가소제의 종류와, 폴리

비닐아세탈 수지 100중량부에 대한 가소제의 배합량과, 제1 층, 제2 층 및 제3 층의 두께를 다음의 표 2, 3에 나타낸 바와 같이 설정한 것 이외는 실시예 12와 마찬가지로 하여, 중간막, 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C를 얻었다.

- [0256] (평가)
- [0257] (1) 반값폭
- [0258] 폴리비닐아세탈 수지의 반값폭을 이하와 같이 하여 측정했다.
- [0259] 적외 흡수 스펙트럼 측정용 필름의 제작 방법:
- [0260] 폴리비닐아세탈 수지 0.5g을, 메탄올과 부탄올의 혼합 용매(혼합 부피비 1:1) 9.5g에 용해시켜, 용액을 얻었다. 알루미늄판(세로 15cm×가로 5cm×두께 1mm)에 폴리에틸렌 필름을 씌운 필름 제작용 기판을 준비했다. 필름 제작용 기판에 대하여, 상기 용액을 전체면에 골고루 퍼지도록 흘려, 도포했다. 기판을 수직으로 세워, 잉여의 용액을 회수했다. 이 기판을 적외선 건조기(시미즈 리가카쿠 기키 세이사쿠쇼사제) 내에서 15분 건조시켰다. 그 후, 기판을 취출하여, 수평하게 하고, 수직으로 서 있을 때의 기판의 하측 절반(세로 7.5cm×가로 5cm)에 용액을 흘려, 도포했다. 기판을 수직으로 세워, 잉여의 용액을 회수했다. 다시, 기판을 적외선 건조기 내에서 1시간 건조시켰다. 그 후, 기판을 각형 진공 정온 건조기(야마토 가가쿠사제 「DP33」, 진공 펌프: 야마토 가가쿠사제 「MINIVAC PD-102」) 내에서, 60℃에서 4시간 진공 건조시켰다. 건조시킨 샘플에 관해서는, 진공 정온 건조기로부터 취출한 후 곧바로 데시케이터 내로 옮겨, 30분간 방냉하여, 필름을 구비한 기판을 얻었다.
- [0261] 또한, 중간막 중의 폴리비닐아세탈 수지의 반값폭을 평가하기 위해서는, 폴리비닐아세탈 수지를 채침전법에 의해 단리할 필요가 있다. 먼저, 중간막(다층 구성의 경우에는 분석 대상의 층을 박리하고, 단리된 층을 사용) 2g을, 양용매인 테트라히드로푸란(THF) 40g에 용해시켜, THF 용액을 얻는다. 1L 비이커에 n-헥산 600g을 넣고 자석 교반기로 교반하면서, 상기 THF 용액을 1방울씩 적하한다. 전량의 적하가 완료된 후에 비이커의 바닥에 침전된 수지의 덩어리만을 핀셋으로 취출하여, 샤알레 내에서 건조하기 쉽도록 풀어, 적외 건조기 및 진공 건조기를 사용하여 완전히 유기 용매를 제거한다. 이와 같이 하여 얻어진 수지 0.5g을 사용하여 앞단락과 동일한 방법으로, 적외 흡수 스펙트럼 측정용 필름을 제작한다.
- [0262] 적외 흡수 스펙트럼 측정 방법:
- [0263] 측정에는, 호리바 세이사쿠쇼사제 IR-720 푸리에 변환 적외선 분광 광도계를 사용했다. 소프트웨어는 「HORIBA FT-IR for Windows(등록 상표) version 4.06」을 사용했다. 측정 결과에 대한 샘플의 흡습 및 습도 자체의 영향을 방지하기 위하여, 측정을 행하는 방의 환경을, 온도: 23±2℃, 습도: RH25±5%로 항상 유지하고, 데시케이터로부터 필름 부착 기판 하나를 취출하여 1회의 측정이 완료될 때까지 필요로 하는 시간은 5분 이내로 했다.
- [0264] 측정 수순은 이하와 같다. 데시케이터로부터 기판을 취출하여, 커터 나이프로 필름만을 잘라내어, 샘플 폴더에 세팅했다. 테스트 모드에서 측정을 반복하여 행하여, 2950cm<sup>-1</sup> 부근에 나타나는 피크의 투과율이 20±0.5%의 범위에 들어가도록 필름의 위치를 조정했다. 조정 후, 측정을 개시했다.
- [0265] 측정 조건은 다음과 같다. 스캔 횟수: 5, 장치 함수: H-G, 주사 속도: 12.5, 분해능: 2, 게인: 1, 측정 범위: 400 내지 4000, 스펙트럼: %T.
- [0266] 측정 완료 후, 스무딩을 행했다. 스무딩은 강도: 13, 설정 범위: 최댓값 4000, 최솟값 400에서 실행했다. 스무딩을 완료한 후, 3500cm<sup>-1</sup> 부근에 나타나는 피크와 2950cm<sup>-1</sup> 부근에 나타나는 피크에 대하여 베이스 라인을 보정을 행했다. 3500cm<sup>-1</sup> 부근의 피크(수산기 유래의 피크)의 고파수측의 근원인 3700cm<sup>-1</sup> 부근에서 투과율이 높아지고 있는 점과 2500cm<sup>-1</sup>의 점에서 베이스 라인을 그어 보정했다. 베이스 라인 보정이 완료된 후, 수산기 유래의 피크 부분을 확대한 스펙트럼 차트를 인쇄했다(예를 들어 파수 범위: 3100 내지 3700cm<sup>-1</sup>, 투과율 범위: 50 내지 100%). 인쇄된 스펙트럼 차트로부터 수산기의 반값폭을 평가했다.
- [0267] 수산기의 반값폭의 평가 방법:
- [0268] 수산기 피크에 있어서의 투과율 X%에서의 피크폭을 정규로 측정했다( $X = \sqrt{100 \times 0H}$ 기 피크 톱의 투과율)). 측정된 길이를 A<sub>mm</sub>로 한다. 이어서, 횡축에 있어서의 3100cm<sup>-1</sup>과 3600cm<sup>-1</sup> 사이의 길이를 정규로 측정했다. 측정된 길이를 B<sub>mm</sub>로 한다. 이상의 결과로부터, 500×A/B로 계산한 값을 수산기의 반값폭으로 했다.

- [0269] (2) 유리 전이 온도
- [0270] 실시예 및 비교예에 있어서의 제1 층 및 제3 층의 각 조성을 갖는 혼련물을 준비했다. 얻어진 혼련물을 프레스 성형기로 프레스 성형하여, 두께가 0.35mm인 수지막 A를 얻었다. 얻어진 수지막 A를 25℃ 및 상대 습도 30%의 조건에서 2시간 방치했다. 2시간 방치한 후에, TA INSTRUMENTS사제 「ARES-G2」를 사용하여, 점탄성을 측정했다. 지그로서, 직경 8mm의 병렬판을 사용했다. 3℃/분의 강온 속도로 100℃로부터 -10℃까지 온도를 저하시키는 조건 및 주파수 1Hz 및 왜곡 1%의 조건에서 측정을 행했다. 얻어진 측정 결과에 있어서, 손실 정점의 피크 온도를 유리 전이 온도 Tg(℃)로 했다.
- [0271] (3) 굽힘 강성
- [0272] 얻어진 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C를 준비했다. 접합 유리 A, 접합 유리 B 및 접합 유리 C에서는, 이하의 유리판을 사용하고 있다.
- [0273] 접합 유리 A: 2개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 25cm×가로 10cm×두께 2.5mm)
- [0274] 접합 유리 B: 1개의 유리판(클리어 플로트 유리, 세로 25cm×가로 10cm×두께 2.5mm)과 1개의 유리판(고릴라 글래스, 세로 25cm×가로 10cm×두께 0.7mm)
- [0275] 접합 유리 C: 2개의 유리판(고릴라 글래스, 세로 25cm×가로 10cm×두께 0.7mm)
- [0276] 도 5에 모식적으로 도시하는 시험 방법으로 굽힘 강성을 평가했다. 측정 장치로서는, 정적 3점 굽힘 시험 지그 2810을 구비한 인스트론 재팬 컴퍼니 리미티드사제의 만능 재료 시험기 5966을 사용했다. 측정 조건으로서는, 측정 온도 20±3℃, 거리 D1은 18cm, 거리 D2는 25cm로 하고, 변위 속도 1mm/분으로 F의 방향으로 접합 유리에 변형을 가하고, 1.5mm의 변위를 가했을 때의 응력을 측정하여, 굽힘 강성을 산출했다. 굽힘 강성을 다음의 기준으로 판정했다.
- [0277] [굽힘 강성의 판정 기준]
- [0278] 1: 접합 유리 C에서의 측정값이 0.002mm/N 미만
- [0279] 2: 접합 유리 C에서의 측정값이 0.002mm/N 이상, 0.005mm/N 미만
- [0280] 3: 1, 2의 판정 기준에 상당하지 않고, 접합 유리 B에서의 측정값이 0.005mm/N 미만
- [0281] 4: 1 내지 3의 판정 기준에 상당하지 않고, 접합 유리 C에서의 측정값이 0.11mm/N 미만
- [0282] 5: 1 내지 3의 판정 기준에 상당하지 않고, 접합 유리 C에서의 측정값이 0.11mm/N 이상
- [0283] (4) 차음성
- [0284] 실시예 12 내지 27 및 비교예 3, 4의 차음성 측정용의 접합 유리의 차음성을, 댐핑 시험용의 진동 발생기(신켄 사제 「가진기 G21-005D」)에 의해 진동을 가하고, 그것으로부터 얻어진 진동 특성을 기계 임피던스 측정 장치(리온사제 「XG-81」)로 증폭시켜, 진동 스펙트럼을 FFT 스펙트럼 애널라이저(요코가와 휴렛 팩커드사제 「FFT 애널라이저 HP3582A」)에 의해 해석했다.
- [0285] 이와 같이 하여 얻어진 손실 계수와 접합 유리의 공진 주파수의 비로부터, 20℃에서의 소리 주파수(Hz)와 음향 투과 손실(dB)의 관계를 나타내는 그래프를 작성하고, 소리 주파수 2,000Hz 부근에 있어서의 극소의 음향 투과 손실(TL값)을 구했다. 이 TL값이 높을수록 차음성이 높아진다. 차음성을 다음의 기준으로 판정했다.
- [0286] [차음성의 판정 기준]
- [0287] ○: TL값이 37dB 이상
- [0288] △: TL값이 35dB 이상, 37dB 미만
- [0289] ×: TL값이 35dB 미만
- [0290] 상세 및 결과를 다음의 표 1 내지 3에 나타낸다. 또한, 다음의 표 1 내지 3에서는, 폴리비닐아세탈 수지 및 가소제 이외의 배합 성분의 기재는 생략했다.



표 1

		실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	실시예 5	실시예 6	비교예 1	실시예 7	실시예 8	비교예 2	실시예 9	실시예 10	실시예 11
두께		μm	760	760	760	1520	1520	1520	760	760	1520	1520	760	760
제1 층	종류		A	A	A	A	A	A	B	B	B	B	C	D
	PVA 의 평균 증착도	-	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	수산화기의 함유율	물 %	34.4	34.4	34.4	34.4	34.4	34.4	30.0	30.0	30.0	30.0	35.0	29.4
	아세틸화도	물 %	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8	0.9
	아세틸화도	물 %	64.8	64.8	64.8	64.8	64.8	64.8	69.1	69.1	69.1	69.1	64.2	69.7
	수지	cm <sup>-1</sup>	274.8	274.8	274.8	274.8	274.8	274.8	239.3	239.3	239.3	239.3	251.0	235.6
	만광속	중량부	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	함유량		3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	중류	중량부	30	20	15	30	20	15	40	20	12	40	30	29
	제1 층의 유리 전이 온도	℃	39.6	47.9	51.6	39.6	47.9	51.6	27.8	44.4	53.0	27.8	44.4	38.3
평가	평가		4	3	2	4	3	1	5	3	2	4	3	4
	평가		4	3	2	4	3	1	5	3	2	4	3	4
	평가		4	3	2	4	3	1	5	3	2	4	3	4



표 2

			실시예 12	실시예 13	실시예 14	실시예 15	실시예 16	실시예 17	실시예 18	실시예 19	실시예 20
각 두께	종류	μm	330	330	330	330	355	355	355	355	240
	A	E	F	G	A	E	F	G	A		
제1 층 제3 층	폴리비닐아세탈 수지	PVA의 평균 중합도	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
		수산화기의 함유율	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5
		아세틸화도	물% 0.8	1.0	1.0	1.0	0.8	1.0	1.0	1.0	0.8
		아세틸화도	물% 64.8	64.2	66.0	64.1	64.8	64.2	66.0	64.1	64.8
		반값폭	cm <sup>-1</sup> 274.8	267.0	257.3	247.6	274.8	267.0	257.3	247.6	274.8
		함유량	중량부 100	100	100	100	100	100	100	100	100
	가소제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		함유량	중량부 31.5	28.8	35.6	24.5	31.5	28.8	35.6	24.5	31.5
		μm	100	100	100	100	50	50	50	50	280
		두께	X	Y	Z	V	X	Y	Z	V	X
제2 층	폴리비닐아세탈 수지	PVA의 평균 중합도	2300	3000	3000	3000	2300	3000	3000	3000	2300
		수산화기의 함유율	물% 22.7	23.3	25.6	21.7	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7
		아세틸화도	물% 12.1	11.8	11.8	11.8	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1
		아세틸화도	물% 65.2	64.9	62.6	66.5	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2
		반값폭	cm <sup>-1</sup> 164.9	165.1	168.4	160.4	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9
		함유량	중량부 100	100	100	100	100	100	100	100	100
	가소제	종류	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		함유량	중량부 60	75	75	75	60	75	75	75	60
		중량부	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0
		제1 층 및 제3 층의 유리 전이 온도	mm/N 0.0041	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0036	0.0036	0.0035	0.0035
평가	균열 강성	점함 유리 A	mm/N 0.0080	0.0087	0.0086	0.0086	0.0073	0.0075	0.0073	0.0110	
		점함 유리 C	mm/N 0.0602	0.0572	0.0557	0.0555	0.0386	0.0405	0.0385	0.0381	0.0974
		차음성	TL값 -	○	○	○	○	○	○	○	○
평가			4	4	4	4	4	4	4	4	4

II 3

	각 두께	실시예 21	실시예 22	실시예 23	실시예 24	실시예 25	실시예 26	실시예 27	비교예 3	비교예 4		
제1 층	폴리비닐아세탈 수지	종류	E	F	G	A	E	F	G	B	B	
		PVA의 평균 중합도	-	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
		수신기의 함유율	34.8	33.0	34.9	34.5	34.8	33.0	34.9	30.0	30.0	
		아세탈화도	물%	1.0	1.0	1.0	0.8	1.0	1.0	1.0	0.9	
		아세탈화도	물%	64.2	66.0	64.1	64.8	64.2	66.0	64.1	69.1	
	가소제	반값폭	cm <sup>-1</sup>	267.0	257.3	247.6	274.8	267.0	257.3	247.6	239.3	239.3
		함유량	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		중류	360	360	360	360	360	360	360	360	360	360
		중량부	28.8	35.6	24.5	31.5	28.8	35.6	24.5	36.5	38.5	100
		두께	μm	280	280	280	100	100	100	100	100	100
제2 층	폴리비닐아세탈 수지	중류	Y	Z	V	X	Y	Z	V	X	X	
		PVA의 평균 중합도	3000	3000	3000	2300	3000	3000	3000	2300	2300	
		수신기의 함유율	물%	23.3	25.6	21.7	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7	22.7
		아세탈화도	물%	11.8	11.8	11.8	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1	12.1
		아세탈화도	물%	64.9	62.6	66.5	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2	65.2
	가소제	반값폭	cm <sup>-1</sup>	165.1	168.4	160.4	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9	164.9
		함유량	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		중류	360	360	360	360	360	360	360	360	360	360
		중량부	75	75	75	50	50	50	50	75	60	28.4
		제1 층 및 제3 층의 유리 전이 온도	℃	33.2	40.1	43.5	39.0	33.2	40.1	43.5	30.2	28.4
평가	굴절 강성	점접 유리 A	mm <sup>2</sup> /N	0.0057	0.0057	0.0057	0.0057	0.0040	0.0040	0.0062	0.0053	
		점접 유리 B	mm <sup>2</sup> /N	0.0110	0.0110	0.0110	0.0081	0.0082	0.0081	0.0113	0.0113	
		점접 유리 C	mm <sup>2</sup> /N	0.0980	0.0974	0.0973	0.0480	0.0495	0.0479	0.0477	0.1122	0.1135
평가	저음성	TL값	-	○	○	△	△	△	△	○	○	
	평가		4	4	4	4	4	4	4	5	5	

## 부호의 설명

1: 제1 층  
1a: 외측의 표면  
2: 제2 층  
2a: 제1 표면  
2b: 제2 표면  
3: 제3 층

3a: 외측의 표면

11: 중간막

11A: 중간막(제1 층)

11a: 제1 표면

11b: 제2 표면

21: 제1 유리판

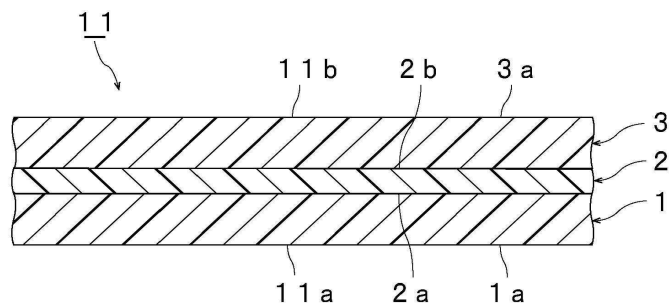
22: 제2 유리판

31: 접합 유리

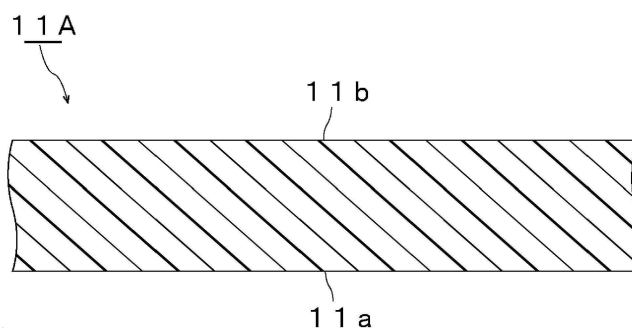
31A: 접합 유리

## 도면

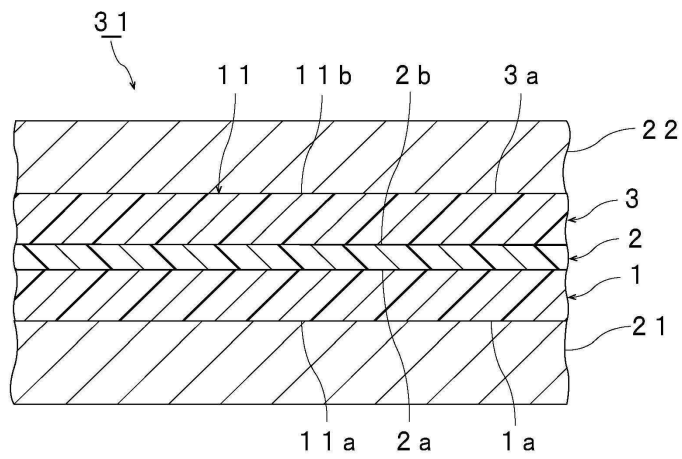
### 도면1



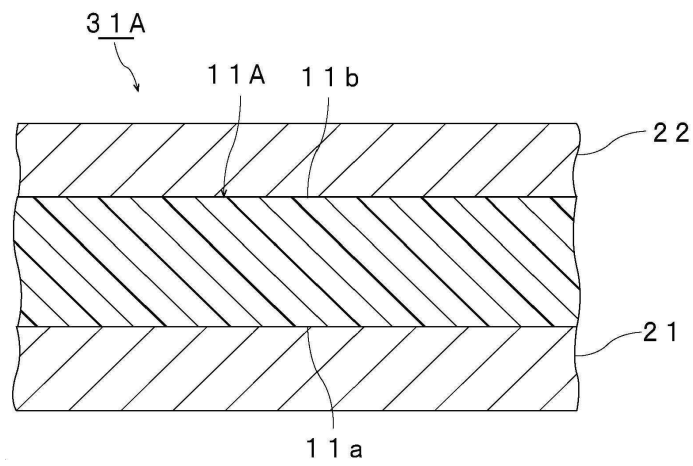
### 도면2



도면3



도면4



도면5

