



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0096591
(43) 공개일자 2024년06월26일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C08J 11/08 (2006.01) B32B 17/10 (2006.01)
B32B 27/08 (2006.01) B32B 27/18 (2006.01)
B32B 27/22 (2006.01) B32B 27/30 (2006.01)
C08F 8/28 (2006.01) C08J 11/02 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
C08J 11/08 (2021.05)
B32B 17/10036 (2021.01)
- (21) 출원번호 10-2024-7017664
(22) 출원일자(국제) 2022년10월27일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2024년05월27일
(86) 국제출원번호 PCT/US2022/047971
(87) 국제공개번호 WO 2023/076441
국제공개일자 2023년05월04일
(30) 우선권주장
63/263,162 2021년10월28일 미국(US)
(뒷면에 계속)
- (71) 출원인
솔루티아인코포레이티드
미합중국 미주리주 세인트 루이스시 매리빌 센터
드라이브 575
(72) 발명자
마 이농
미국 매사추세츠주 01106 롱메도우 메이플 로드
945
천 원지에
미국 매사추세츠주 01002 애머스트 케스트럴 레인
40
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
제일특허법인(유)

전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 발명의 명칭 재활용된 폴리(비닐 부티랄) 중합체의 회수

(57) 요약

본 발명은 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법에 관한 것이다. 상기 방법은, 용매를 재생 시스템에 제공하는 단계; 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물 및 가소제를 포함하는, 단계; 및 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계를 포함한다.

대표도

- S1 용매 또는 용매 혼합물을 재생 시스템에 제공 및 교반
- S2 재활용 RVB 재료가 재생 시스템에 제공되고 교반되어 혼합물 형성
- S3 PVB 혼합물을 일정 시간 및 온도에서 교반하여
PVB 혼합물로부터 고 PVOH PVB 및 가소제를 추출 또는 용해
- S4 교반 및 추출/용해 후, PVB 혼합물을 여과 또는 체거름하여
저 PVOH PVB 고형물을 제거
- S5 저 PVOH PVB 고형물 중 가소제 및 고 PVOH PVB 수준을 측정하여
추가 재생의 필요성 여부를 결정
- S6 건조된 저 PVOH PVB 중합체 또는 용해된 고 PVOH PVB 용액 중 하나 또는 둘 다
추가 가공 가능

(52) CPC특허분류

B32B 17/1055 (2021.01)
B32B 17/10605 (2021.01)
B32B 17/10633 (2021.01)
B32B 17/10678 (2021.01)
B32B 17/10761 (2021.01)
B32B 27/08 (2021.01)
B32B 27/306 (2013.01)
C08F 8/28 (2013.01)
C08J 11/02 (2013.01)

(72) 발명자

캄포 베르트 요제프

벨기에 오스트-블란데렌 (오브이) 베-9090 멜레 콜
 레게반 63

툼슨 헬렌 엠

미국 위스콘신주 53593 베로나 이스트 채플 로열
 드라이브 317

(30) 우선권주장

63/368,383	2022년07월14일	미국(US)
63/377,410	2022년09월28일	미국(US)
63/377,402	2022년09월28일	미국(US)
63/377,405	2022년09월28일	미국(US)

명세서

청구범위

청구항 1

폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법으로서,

- (a) 재생 시스템(reclamation system)에 용매를 제공하는 단계;
- (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하는, 단계; 및
- (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계를 포함하는 방법.

청구항 2

폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법으로서,

- (a) 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계;
- (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하는, 단계; 및
- (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계로서, 상기 제거된 저 PVOH 고형물이 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는, 단계를 포함하는 방법.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서,

제거된 저 PVOH PVB 고형물이 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하고, 방법이 (d) 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 저 PVOH PVB 고형물로부터 분리하는 단계를 추가로 포함하는, 방법.

청구항 4

제3항에 있어서,

단계 (d)의 분리가 저 PVOH PVB 수지를 세척하는 것을 포함하거나, 또는

단계 (d)의 분리가 용매를 저 PVOH PVB 수지에 첨가하여 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 추가로 용해시키고 제거하는 것을 포함하는, 방법.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,

- (e) 저 PVOH PVB 고형물 중 가소제 및 고 PVOH PVB의 수준을 측정하는 단계를 추가로 포함하는 방법.

청구항 6

제5항에 있어서,

단계 (a) 내지 (e)를 반복하는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 7

제1항 내지 제6항 중 어느 한 항에 있어서,

80% 이상(85%, 90%, 95%, 96%, 97%, 98% 또는 99% 이상)의 고 PVOH PVB 수지가 재활용된 PVB로부터 제거되는, 방법.

청구항 8

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서,

단계 (b)가 약 5℃ 내지 약 60℃ (5℃ 내지 약 50℃, 5℃ 내지 약 40℃, 5℃ 내지 약 30℃, 5℃ 내지 약 20℃ 또는 5℃ 내지 약 10℃)의 온도에서 교반하는 것을 포함하는, 방법.

청구항 9

제1항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서,

재활용된 PVB가 PVB 펠렛의 형태이거나,

재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각이거나,

재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각 및 PVB 펠렛의 형태이거나, 또는

재활용된 PVB가 약 2 내지 약 20 mm의 직경을 갖는, 방법.

청구항 10

제1항 내지 제9항 중 어느 한 항에 있어서,

단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 배치 반응기 시스템을 포함하는, 방법.

청구항 11

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서,

단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물을 포함하거나,

단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물을 포함하고, 이때 알코올이 에탄올, 메탄올, 아이소프로판올 또는 둘 이상의 알코올의 혼합물이거나,

단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물이고, 이때 알코올이 에탄올이고 물이 약 16 중량% 내지 약 24 중량% 또는 약 20 중량% 내지 약 24 중량%의 양으로 존재하거나, 또는

단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물을 포함하고, 이때 알코올이 메탄올이고 물이 약 0 중량% 내지 약 9.5 중량%의 양으로 존재하는, 방법.

청구항 12

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서,

단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 연속 재생 시스템을 포함하거나, 또는

단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 연속 재생 시스템을 포함하고, 이때 연속 재생 시스템이 연속 교반-탱크 반응기인, 방법.

청구항 13

제1항 내지 제12항 중 어느 한 항에 있어서,

재활용된 PVB가 1 중량% 이상(5 중량%, 10 중량%, 15 중량% 또는 20 중량% 이상)의 양으로 용매에 첨가되는, 방법.

청구항 14

제1항 내지 제13항 중 어느 한 항에 따른 방법에 의해 형성된 저 PVOH PVB 수지.

청구항 15

제14항에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 수지층.

청구항 16

제15항에 따른 수지층을 포함하는 중간층(interlayer).

청구항 17

제16항에 있어서,

중간층이 제2 수지층을 추가로 포함하거나, 또는

수지층이 코어층이고, 중간층이 제2 수지층 및 제3 수지층을 추가로 포함하고, 이때 코어층이 제2 수지층과 제3 수지층 사이에 위치하는, 중간층.

청구항 18

제14항에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 조성물.

청구항 19

제1 기판, 제16항 또는 제17항에 따른 중간층 및 제2 기판을 포함하고, 이때 상기 중간층이 상기 제1 기판과 상기 제2 기판 사이에 위치하는, 적층체(laminate).

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 폴리(비닐부티랄) 수지 제조 분야에 관한 것으로, 구체적으로는 본 발명은 생산-후(post-industrial) 및 소비-후(post-consumer) 폴리(비닐부티랄)의 회수 방법을 포함하는, 생산-후 및 소비-후 폴리(비닐부티랄)의 회수 및 재사용 분야에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 자동차 전면유리(automobile windshield) 및 건축용 안전 유리(architectural safety glass)와 같은 적층식 유리 패널(laminated glass panel)은 일반적으로 삽입된 가소화된 중합체 층(중간층(interlayer))으로도 알려짐)과 함께 적층된 2장의 유리로 구성된다. 폴리(비닐 부티랄)(poly(vinyl butyral); "PVB")은 일반적으로 대부분의 자동차 전면유리 및 건축용 안전 유리의 중합체 중간층의 주요 구성요소를 형성하는 일반적인 중합체이다. 폴리(비닐 부티랄) 수지는 전형적으로 시트로 용융 압출되기 전에 가소제와 함께 조합된다.

[0003] 최근 몇 년 동안, 적층식 안전 유리에 사용하기 위해 다층 폴리(비닐 부티랄) 중간층이 시장에 점점 더 많이 판매되고 있다. 다층 중간층은 시트 중앙에 더 부드러운 층("코어층(core layer)")이 있기 때문에 향상된 방음 기능을 제공할 수 있다. 전형적으로, 코어층 조성은 중합체의 양에 대한 가소제의 양 측면에서 외부층("스킨층(skin layer)")의 조성과는 상이하다. 가소제 함량은 일반적으로 스킨층보다 코어층에서 더 높다. 또한, 코어층의 PVB 수지의 화학적 조성은 하이드록실 함량 측면에서, 가능하게는 잔류 폴리(비닐 아세테이트) 함량 측면에서, 스킨층의 PVB 수지의 화학적 조성과는 상이하다.

[0004] 종래의 다층 중간층의 일반적인 형태 중 하나인 삼중층(trilayer) 음향 중간층은, 잔류 하이드록실 함량이 낮고 기존 가소제 함량이 높은 단일 폴리(비닐 부티랄) 수지로 구성된 부드러운 코어층과, 잔류 하이드록실 함량이 상당히 높은 2개의 딱딱한(stiff) 스킨층을 포함한다(예를 들어, 미국 특허 제5,340,654호, 제5,190,826호 및 제7,510,771호 참조). 반대 구성, 즉 2개의 부드러운 층 사이에 하나의 딱딱한 층이 샌드위치된(sandwiched) 중간층은 유리 패널의 충격 성능을 향상시키는 것으로 밝혀졌으며, 방음용으로도 설계될 수 있다.

[0005] 일반적으로, PVB 수지는 천연가스나 석유 정제 공정에서 직접 에탄을 분리하는 합성 공정을 통해 제조된다. 그런 다음, 에탄이 증기 분해되어 에텐(에틸렌)을 생산하고, 이는 아세트산 공급원료와 함께 비닐 아세테이트 단량체를 생산하는 데 사용된다. 비닐 아세테이트 단량체는 자유 라디칼 중합을 통해 폴리(비닐 아세테이트)로 중합된다. 폴리(비닐 아세테이트)는 가수분해되거나 메탄올과 에탄올을 사용한 에스터 교환 반응을 통해 폴리(비

닐 알코올)로 생성되고, 이는 부티르알데하이드와 반응하여 폴리(비닐 부티랄)을 형성한다. 이러한 PVB 수지의 합성 공정은 에너지 집약적이며 재생 불가능한 공급원료의 사용에 의존한다. 결과적으로, 생산-후 및 소비-후의 재활용된 PVB로부터 PVB 수지를 재활용하는 전망은 업계에서 오랫동안 미가공(virgin) PVB 수지보다 생산 비용이 저렴하고 PVB 생산의 환경 영향을 크게 줄일 수 있는 잠재적으로 가치 있는 PVB 공급원으로 간주되어 왔다. 생산-후 대표적인 공급원은 사양을 벗어나거나 손상되거나 사용할 수 없는 PVB 롤, 뿐만 아니라 손상되거나 결함이 있는 생산-후 적층식 유리로부터의 PVB를 포함한다. 소비-후 재활용 PVB의 예시적인 공급원으로는 이전에 사용된 자동차 전면유리 및 건축용 안전 유리뿐만 아니라 전력 장치(예를 들어, 태양광 발전 장치) 및 전자 디스플레이 장치와 같은 이전에 사용된 기타 소비자 제품을 포함한다.

[0006] 폴리(비닐 부티랄) 시트 제품의 트림(trim) 및 등급 외 균질 단층 등급은 시트 제조 공정에서 직접 재사용될 수 있다. 그러나, 생산-후 및 소비-후 PVB는 둘 다 일반적으로 다양한 제품 및/또는 서로 다른 제조업체로부터 수득된 별개의 PVB 조성물, 뿐만 아니라 가소제, UV 흡수제, 태양열 흡수제 등과 같은 첨가제의 서로 다른 혼합물을 포함한다. 결과적으로, 생산-후 및/또는 소비-후 PVB 혼합물은 상이한 폴리비닐 알코올 함량을 포함하는 상이한 폴리(비닐 부티랄) 조성의 PVB를 포함할 수 있다. 재활용된 PVB 혼합물 내의 이러한 조성 차이는 PVB에서 다른 오염물질이 제거되었음에도 불구하고 예외없이 PVB의 허용할 수 없는 높은 헤이즈 및/또는 변색을 초래한다. 구체적으로, 상당히 상이한 조성의 PVB 재료를 함께 혼합하면 화학적 비호환성(chemical incompatibility)으로 인해 굴절률이 다른 비혼화성(immiscible) 마이크로 도메인으로 인해 재료가 흐릿하거나 탁해지며, 이는 자동차 전면유리 및 건축용 안전 유리 응용 분야의 중간층으로 재사용하는 데 크게 제한된다. 따라서, 해당 분야에서 오랫동안 느껴온 필요성에도 불구하고, PVB를 재활용하는 데에는 몇 가지 문제가 있다.

[0007] 마찬가지로, 다층 중간층은 서로 상이한 층이 일반적으로 서로 너무 상이한 조성을 갖기 때문에 직접 압출 공정에서 재활용성이 제한된다. 음향 코어층은 특히 압출 중에 2개의 스킨층 재료와 잘 섞이지 않아 특정 수준의 헤이즈를 유발하는 작지만 개별적인 코어 재료의 도메인을 형성하여, 압출 시 그 함량을 제한한다. 이는 다층 시트 조각이 원료 공급에 사용된 PVB 시트를 포함하는 합판 유리에서 특정 유형의 헤이즈를 볼 수 있게 하는데, 이는 시장에서 판매하기에 적합하지 않거나 특정 제품의 특정 품질 요구사항을 충족하지 못하는 시각적 품질이 떨어지는 제품을 만드는 것이다. 이러한 다층 재료를 재활용할 수 없다는 것은 상당한 경제적 손실이다. 따라서, 다층 스크랩, 트림 및 재활용된 PVB의 재사용을 극대화하는 것은 경쟁 우위일 뿐만 아니라, 환경적으로 건전한 관행이다.

[0008] 상기 관점에서, 다층 중간층의 스킨층으로부터 코어층을 분리할 수 있을 뿐만 아니라, 재활용된 PVB 재료로부터 가소제를 제거할 수 있는 방식으로 생산-후 및/또는 소비-후 PVB를 가공하여, 스킨층으로부터 수득되는 생성된 PVB가 새로운 PVB 수지 및 중간층을 제조하는 데 사용될 수 있는, 예컨대 새로운 적층식 유리 패널 내에 혼입될 수 있는 투명한 중합체가 되도록 할 필요성이 존재한다.

발명의 내용

[0009] 본 발명의 하나의 양태는 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법이며, 상기 방법은 (a) 용매를 재생 시스템에 제공하는 단계; (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고(high) PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저(low) PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하는, 단계; 및 (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계를 포함한다. 제거된 저 PVOH PVB 고형물은 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함할 수 있다. 이러한 방법은 (d) 저 PVOH PVB 고형물로부터 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 분리하는 단계를 추가로 포함할 수 있다.

[0010] 본 발명의 또 다른 양태는 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법에 관한 것으로, 상기 방법은 (a) 용매를 재생 시스템에 제공하는 단계; (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하는, 단계; 및 (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계로서, 이때 제거된 저 PVOH 고형물은 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는, 단계를 포함할 수 있다. 제거된 저 PVOH PVB 고형물은 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함할 수 있다. 이러한 방법은 (d) 저 PVOH PVB 고형물로부터 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 분리하는 단계를 추가로 포함할 수 있다. 저 PVOH 고형물은 재활용된 PVB로부터의 20% 미만(15%, 10%, 5%, 4%, 3%, 2% 또는 1%)의 고 PVOH PVB 수지를 포함할 수 있다.

[0011] 본 발명의 하나의 양태는 삼중층 중간층의 스킨층으로부터 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법에 관한 것이다. 이러한 방법은 공급물에 조성이 잘 분산된 재료, 예컨대 재활용된 다층 PVB 중간층으로부터의 압출 및 펠릿화된 재료에 더욱 적합하다. 이러한 방법은 재생 시스템에 용매를 제공하는 것을 포함한다. 추가 단계는 재활용된

PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 것을 포함한다. PVB 혼합물은 교반되어 더 높은 폴리(비닐 알코올)("PVOH") 수준을 갖는 PVB 수지(본원에서는 고 PVOH PVB 수지로 지칭됨)와 가소제를 용해시키면서 더 낮은 PVOH 수준(본원에서 저 PVOH PVB 수지로 지칭됨)을 갖는 PVB 수지를 고형물로서 유지한다. 이러한 경우, 고 PVOH 수지는 다층 중간층의 스킨 또는 외부층(들)에 존재한다. 추가 단계는 PVB 혼합물을 여과 및/또는 임의적으로 원심분리하여 용액 내부층에서 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 용해될 때까지 여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 용액을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다.

[0012] 본 발명의 또 다른 양태는 회수된 폴리(비닐 부티랄)(PVB) 중합체에 관한 것이다. 회수된 PVB 중합체는 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계를 포함하는 방법에 의해 생산된다. 추가 단계는 재활용된 PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 것을 포함한다. PVB 혼합물을 교반하여 저 PVOH PVB(코어) 수지를 고형물로서 유지하면서 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제를 용해시킨다. 추가 단계는 PVB 혼합물을 여과 및/또는 임의적으로 원심분리하여 용액 내부층에서 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 용해될 때까지 여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 용액을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다.

[0013] 본 발명의 또 다른 양태는 회수된 폴리(비닐 부티랄)(PVB)를 포함하는 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널에 관한 것이다. 회수된 PVB는 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계를 포함하는 방법에 의해 생산된다. 추가 단계는 재활용된 PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 것을 포함한다. PVB 혼합물을 교반하여 저-PVOH PVB(코어) 수지를 고형물로서 유지하면서 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제를 용해시킨다. 추가 단계는 PVB 혼합물을 여과 및/또는 임의적으로 원심분리하여 용액 내부층에서 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 용해될 때까지 여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 용액을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다.

[0014] 본 발명의 하나의 양태는 삼중층 중간층의 스킨층으로부터 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법에 관한 것이다. 이러한 방법은 용해되지 않은 물질이 작업 중에 특정 형태와 크기를 유지할 수 있는 분쇄된 다층 중간층 물질과 같이 여전히 층상 형태인 공급물에 더 적합하다. 이러한 방법은 재생 시스템에 용매를 제공하는 것을 포함한다. 추가 단계는 재활용된 PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 저 PVOH PVB(코어) 수지를 고형물로서 유지하면서 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제를 추출하는 것을 포함한다. 추가 단계는 거친 스크린(coarse screen)에 저 PVOH PVB 수지를 수집하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 추출될 때까지 여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 추출물을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다.

[0015] 본 발명의 또 다른 양태는 회수된 폴리(비닐 부티랄)(PVB) 중합체에 관한 것이다. 회수된 PVB 중합체는 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계를 포함하는 방법에 의해 생산된다. 추가 단계는 재활용된 PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 저 PVOH PVB(코어) 수지를 고형물로서 유지하면서 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제를 추출하는 것을 포함한다. 추가 단계는 거친 스크린에 저 PVOH PVB 수지를 수집하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 추출될 때까지 여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 추출물을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다.

[0016] 본 발명의 또 다른 양태는 회수된 폴리(비닐 부티랄)(PVB)를 포함하는 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널에 관한 것이다. 회수된 PVB는 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계를 포함하는 방법에 의해 생산된다. 추가 단계는 재활용된 PVB를 용매에 첨가하고 특정 온도에서 특정 시간 동안 교반하여 저 PVOH PVB(코어) 수지를 고형물로서 유지하면서 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제를 추출하는 것을 포함한다. 추가 단계는 거친 스크린에 저 PVOH PVB 수지를 수집하는 것을 포함한다. 이 단계는 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제가 완전히 추출될 때까지

여러 번 반복될 수 있다. 추가 단계는 추출물을 증발, 진공 및/또는 열 또는 당업자에게 공지된 다른 공정과 같은 추가 공정으로 가공하여 회수된 고 PVOH PVB 중합체 함유 가소제를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 회수된 고 PVOH PVB 중합체로부터 가소제를 분리하는 것을 포함할 수 있다

[0017] 또 다른 양태는 회수된 고 PVOH PVB 중합체를, 예컨대 재아세틸화 공정으로 추가로 가공하는 것을 포함한다. 회수된 고 PVOH PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 특정 양의 촉매 및 특정 양의 부티르알데하이드와 함께 특정 시간 동안 교반하여 용해시키고, 회수된 고 PVOH PVB 중합체를 PVB 용액으로 평형화시키는 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 칼륨 하이드록사이드(KOH)와 같은 염기로 PVB 용액을 중화시키는 것을 포함한다. 추가 단계는 중화된 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고형물을 수득하는 단계를 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함한다. 실시양태에서, PVB 중합체는 단일 조성물일 수 있다(즉, 동일한 잔류 하이드록실 수준과 같이, 단일 공급원으로부터 동일하거나 유사한 특성을 갖는 것과 같은 공지되거나 균질한 조성물). 다른 실시양태에서, PVB 중합체는 다수의 또는 알려지지 않은 공급원으로부터의 비균질한 조성물일 수 있다.

[0018] 또 다른 양태는 단일 중합체 조성물인 회수된 고 PVOH PVB 중합체를 추가로 가공하는 것을 포함한다. PVB 중합체가 단일(즉, 공지되거나 균질한) 조성물인 경우, 회수된 PVB 중합체는 직접 가공될 수 있다. 회수된 PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 회수된 PVB 중합체가 PVB 용액에 완전히 용해될 때까지 교반하는 추가 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고체를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고, 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다. 대안적으로, 침전 대신에, 여과 후 추가 단계는 용매를 증발시켜 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다.

[0019] 또 다른 양태는 회수된 저 PVOH PVB 중합체를, 예컨대 재아세틸화 공정으로 추가로 가공하는 것을 포함한다. 회수된 저 PVOH PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 특정 양의 촉매 및 특정 양의 부티르알데하이드와 함께 특정 시간 동안 교반하여 용해시키고, 회수된 저 PVOH PVB 중합체를 PVB 용액으로 평형화시키는 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 칼륨 하이드록사이드(KOH)와 같은 염기로 PVB 용액을 중화시키는 것을 포함한다. 추가 단계는 중화된 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고형물을 수득하는 단계를 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함한다. 실시양태에서, PVB 중합체는 단일 조성물일 수 있다(즉, 동일한 잔류 하이드록실 수준과 같이, 단일 공급원으로부터 동일하거나 유사한 특성을 갖는 것과 같은 공지되거나 균질한 조성물). 다른 실시양태에서, PVB 중합체는 다수의 또는 알려지지 않은 공급원으로부터의 비균질한 조성물일 수 있다.

[0020] 또 다른 양태는 단일 중합체 조성물인 회수된 저 PVOH PVB 중합체를 추가로 가공하는 것을 포함한다. PVB 중합체가 단일(즉, 공지되거나 균질한) 조성물인 경우, 회수된 PVB 중합체는 직접 가공될 수 있다. 회수된 PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 회수된 PVB 중합체가 PVB 용액에 완전히 용해될 때까지 교반하는 추가 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고체를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고, 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다. 대안적으로, 침전 대신에, 여과 후 추가 단계는 용매를 증발시켜 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다.

도면의 간단한 설명

[0021] 도 1은 본 발명의 실시양태에 따른 예시적인 PVB 회수 방법을 도시한다.

도 2는 9 중량%(상단), 16 중량%(중간) 및 20 중량%(하단) 물을 함유한 에탄올 중 재활용된 PVB 추출물을 도시하는 GPEC 크로마토그램이다.

도 3은 0 중량%(상단), 9.5 중량%(중간) 및 4.9 중량%(하단) 물을 함유한 메탄올 중 재활용된 PVB 추출물을 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 4는 0 중량%(상단) 및 32 중량% 물(하단)을 함유한 아이소프로판올 중 재활용된 PVB 추출물을 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 5는 재활용된 PVB 수지의 선택적 용해 및 여과를 통한 분리 공정의 개략도이다.

도 6은 4 중량% 물을 함유한 메탄올(상단), 출발 혼합물(중간) 및 최종 여액 샘플(하단)로 용해시킨 후 현탁액 샘플의 GPEC 크로마토그램이다.

도 7은 20 중량% 물을 함유한 에탄올로 용해시킨 후의 현탁액 샘플(상단) 및 조합된 여액(하단)의 GPEC 크로마토그램이다.

도 8은 체거름(straining) 및 세척 또는 원심분리 및 세척을 통한 재활용된 PVB 플레이크의 선택적 용해 및 분리 공정의 개략도이다.

도 9는 출발 물질(에탄올 중 재활용된 펠릿)(상단), 원심분리 이후 상등액(중간) 및 대부분 코어 수지를 나타내는 침전물(하단)을 함유한 에탄올 중 재활용된 PVB를 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 10은 원심분리 이후 상등액을 함유한 에탄올 중 재활용된 PVB 펠릿(상단) 및 원심분리 이후 상등액을 함유한 에탄올 중 재활용된 PVB 플레이크(하단)를 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 11은 첫 번째 원심분리 이후 상등액을 함유한 에탄올 중 10 중량%의 재활용된 PVB 펠릿 및 1차 원심분리 후 상등액(상단) 및 첫 번째 원심분리 이후 상등액을 함유한 5 중량%의 재활용된 PVB 펠릿(하단)을 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 12는 첫 번째 원심분리 이후의 상등액(상단) 및 두 번째 원심분리 이후의 상등액(하단)을 함유한 에탄올 중 5 중량%의 재활용된 PVB 펠릿을 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 13은 첫 번째 원심분리 이후의 상등액(상단) 및 두 번째 원심분리 이후의 상등액(하단)을 함유한 에탄올 중 10 중량%의 재활용된 PVB 펠릿을 도시는 GPEC 크로마토그램이다.

도 14는 중합체 중간층에 반대되는 한 쌍의 유리 판을 포함하는 적층식 유리 패널의 개략도이며, 중합체 중간층은 코어층에 반대되는 한 쌍의 스킨층과 함께 삼중층을 포함한다.

도 15는 중합체 중간층에 대향하는 한 쌍의 유리판을 포함하는 적층 유리 패널의 또 다른 개략도이고, 중합체 중간층은 쐬기 형상(wedge shape)을 갖는다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0022]

본 발명의 실시양태는 폴리(비닐 부티랄)("PVB")의 회수, 재활용 및/또는 재사용 방법에 관한 것이다. 더욱 구체적으로, 본 발명의 실시양태는 생산-후 및/또는 소비-후 재활용된 PVB를 재활용하여 중합체 중간층 및/또는 중합체 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널 형성에 사용될 수 있거나, 다른 가공 단계에서 사용될 수 있는 충분한 품질의 PVB 중합체를 수득하는 방법에 관한 것이다. 더욱 상세하게, 도 1은 본 발명의 실시양태에 따른 예시적인 PVB 재활용 방법을 도시한다. 이러한 방법은 재생 시스템에 용매를 제공하는 단계 S1을 포함한다. 용매는 저 PVOH PVB가 용매(예컨대, 알코올 또는 알코올-물 혼합물)에 용해되지 않도록 일정량의 물을 함유하는 알코올 또는 알코올과 물의 혼합물일 수 있다. 용매 또는 용매 혼합물은 교반된다. 이러한 방법은 재활용 PVB 재료를 용매에 첨가하여 PVB 혼합물을 형성하는 추가 단계 S2를 포함할 수 있다. 이러한 재활용된 재료는 필름(하기 추가로 기재되는 바와 같이 임의적으로 더 작은 조각으로 잘게 잘리거나(chopped), 파쇄되거나(shredded), 절단(cut)될 수 있음), 펠릿으로 압출된 필름, 또는 출발 다층 필름에서 유래되는 기타 구조의 형태를 가질 수 있다. 재활용된 PVB는 적어도 일부 가소제를 포함할 수 있다. 추가 단계 S3은 고 PVOH PVB 및 가소제가 재활용된 PVB로부터 용해 또는 추출되어 액체와 PVB 고형물의 혼합물을 형성할 수 있도록 특정 온도에서 특정 시간 동안 저 PVOH PVB 혼합물을 교반하는 것을 포함할 수 있다. 추가 단계 S4는 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 것을 포함할 수 있다. 이러한 버전의 S4 단계는 출발 물질이 압출된 펠릿 형태인 경우 더욱 적합하다. 대안적으로, 단계 S4는 저 PVOH 고형물을 함유하는 용액을 스크린(예를 들어, 거친 스크린)을 통해 통과시켜 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 것을 포함할 수 있다. 일반적으로, 출발 물질이 펠릿 형태가 아닌 필름 형태인 경우 단계 S4에서 스크린을 사용하는 것이 더욱 적합하다.

- [0023] 추가 단계 S5는 추가 재생이 필요한지 여부를 결정하기 위해 저 PVOH PVB 고형물에서 가소제 및 고 PVOH PVB의 수준을 결정하는 것을 포함할 수 있다. 고 PVOH의 양이 저 PVOH PVB 고형물 중 원하는 수준보다 높으면, 저 PVOH PVB 고형물을 단계 S1로 되돌리고 단계를 반복하여 공정을 반복할 수 있다.
- [0024] 추가 단계 S6은 제거된 PVB 중합체, 고 PVOH PVB 중합체 또는 저 PVOH PVB 중합체 또는 둘 모두를 독립적으로 가공 또는 처리하는 것, 예컨대 저 PVOH 부분을 새로운 용매로 세정하여 고 PVOH 및 가소제를 제거하여 분리를 개선하거나, 또는 열, 증발 및/또는 진공을 사용하여 건조된 PVB 중합체 또는 용해된 PVB 용액을 형성하는 것을 포함할 수 있다. 단계 S6은 임의적으로 건조된 PVB 중합체 또는 용해된 PVB 용액을 추가로 가공하는 것을 포함할 수 있다. 회수된 저 PVOH PVB 중합체는 가소제 또는 고 PVOH PVB 중합체의 상당 부분을 보유하지 않으며, 검출 가능한 수준의 가소제 및/또는 고 PVOH PVB 중합체를 포함하지 않을 수도 있다. 상기 기재된 단계 동안 회수된 생성된 PVB 중합체, 즉, 고 PVOH PVB 중합체 또는 저 PVOH 중합체 또는 둘 다는 독립적으로 추가로 처리될 수 있거나, 또는 중합체 중간층 및/또는 중합체 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널과 같은 상업 제품 제조에 부분적으로 또는 전체적으로 사용되거나, 수지 제조 공정에 사용되고 재아세틸화되어 PVB 수지를 형성하기에 충분한 품질(예를 들어, 충분한 투명도 및/또는 색상)을 가질 수 있다. 회수된 PVB는 회수된 PVB로 형성될 수 있는 접착제뿐만 아니라 바닥재, 세라믹 조성물, 결합제, 코팅, 잉크, 분산액 및 기타 용도와 같은 다른 용도에도 사용될 수 있다.
- [0025] 본 발명자들은 알코올 또는 알코올과 물의 혼합물(이때, 물은 특정 양 또는 수준으로 존재하는 경우(하기 기재됨))을 포함하는 용매가 공정 동안 저 PVOH PVB의 최소 용해와 함께 가소제 및 고 PVOH PVB만 용해한다는 것을 발견하였다. 너무 많은 물이 용매 혼합물에 존재하는 경우 오직 가소제만 용매에 용해되며, 너무 적은 물이 용매 혼합물에 존재하는 경우(용매에 따라 다름) 3가지 구성 요소, 즉 고 PVOH PVB, 상당량의 저 PVOH PVB 및 가소제가 모두 용매에 용해된다. 따라서, 저 PVOH PVB 수지로부터 고 PVOH PVB와 가소제만이 용해 분리될 수 있도록 최적의 양을 사용하여 용매를 제조하고 선택해야 한다.
- [0026] 알코올 물 용매 혼합물에 대한 바람직한 알코올은 에탄올, 메탄올 및 아이소프로판올이다. 알코올이 에탄올인 경우, 재활용 PVB로부터 가소제 및 고 PVOH PVB 수지의 추출을 위한 에탄올/물 용매 혼합물 중 물 중량%의 최적 범위는 약 16 내지 24 중량%의 물, 또는 약 20 내지 약 24 중량%, 또는 16 중량% 이상, 17 중량% 이상, 18 중량% 이상, 19 중량% 이상, 20 중량% 이상 및 약 24 중량% 이하, 24 중량% 미만, 23 중량% 미만, 22 중량% 미만, 또는 약 21 중량% 미만의 물이다. 에탄올/물 혼합물 중 물의 양이 약 24 중량%의 물을 초과하는 경우, 알코올/물 혼합물 중 고 PVOH PVB 수지의 용해도는 매우 제한되게 된다. 에탄올/물 용매 혼합물 중 물 함량이 약 20 중량% 미만인 경우, 저 PVOH PVB 수지가 용해되기 시작하고, 수분 함량이 약 16 중량% 미만인 경우, 저 PVOH PVB 수지의 가용성이 매우 높아진다.
- [0027] 유사하게, 메탄올과 물의 용매 혼합물이 사용되는 경우, 물 범위는 물을 거의 또는 전혀 포함하지 않는 경우(즉, 약 0 중량%)부터 약 9.5 중량%까지의 물의 범위, 또는 물을 전혀 포함하지 않거나, 0 중량% 초과, 0.5 중량% 초과, 1.0 중량% 초과, 1.5 중량% 초과, 2.0 중량% 초과, 2.5 중량% 초과, 3.0 중량% 초과, 3.5 중량% 초과, 4.0 중량% 초과, 4.5 중량% 초과, 5.0 중량% 초과, 5.5 중량% 초과, 또는 약 9.5 중량% 미만, 9.0 중량% 미만, 약 8.5 중량% 미만, 8.0 중량% 미만, 약 7.5 중량% 미만, 7.0 중량% 미만, 약 6.5 중량% 미만, 6.0 중량% 미만, 또는 약 4.0 내지 약 6.0 중량%이다. 메탄올/물 혼합물 중 물의 양이 약 9.5 중량%의 물을 초과하는 경우, 알코올/물 혼합물 중 고 PVOH PVB의 용해도가 너무 낮아져 용매가 더 이상 수지 분리에 효과적이지 않게 된다. 메탄올/물 용매 혼합물 중 물 함량이 약 4.0 중량% 미만인 경우, 저 PVOH PVB 수지가 용해되기 시작하고, 물 수준이 0 중량%에 가깝게 감소함에 따라 저 PVOH PVB 수지의 가용성이 점점 더 높아진다.
- [0028] 마지막으로, 물과 아이소프로판올의 용매 혼합물을 사용할 수 있으나, 용액 중 PVB의 용해도가 낮고, 고 PVOH PVB 수지는 에탄올 및 메탄올 용매 시스템 둘 다의 추출 효율 및 수율에 비하여 가소제에 비해 용매로 추출이 불충분하다. 이러한 이유로, 아이소프로판올은 상기 공정에서 에탄올 및 메탄올과 같은 알코올보다 사용하기에 덜 적합한 알코올이지만, 아이소프로판올을 사용하는 경우, 용매 혼합물에 더 높은 수준 또는 양의 물이 필요할 수도 있다.
- [0029] 사용되는 물의 양이 특정 범위 내에 있는 것으로 설명되어 있지만, 상세한 설명 및 하기 다수의 실시예에 기재된 각 용매 혼합물의 물의 특정 양은 PVB 층(즉, 스킨 및 코어층)의 특정 수준의 PVOH에 적합하다. 예를 들어, 재활용된 PVB 재료의 일부는, 고 PVOH 중합체가 약 18 내지 20 중량%(wt.%)의 잔류 PVOH 수준을 갖는 스킨 수지, 및 저 PVOH 중합체가 약 9 내지 11 중량%의 잔류 PVOH 수준을 갖는 코어 수지에 포함되어 있다. PVB 혼합물의 구성에 따라, 성분의 최적 분리를 보장하기 위해 용매 혼합물 중 물의 양을 적절하게 증가시키거나 감소시

켜야할 수도 있다.

- [0030] 헤이즈는 방향이 입사 광선의 방향에서 지정된 각도 이상 벗어나도록 산란되는 투과광의 백분율이다. 헤이즈는 당업자에게 공지된 헤이즈 미터 또는 분광 광도계를 사용하여 ASTM D1003-절차 B에 따라 광원 C를 사용하여 관찰자 각도 2도에서 측정할 수 있다. 일부 실시양태에서, 본 명세서에 기재된 바와 같이 회수된 고 PVOH PVB를 혼입하는 유리 패널, 중합체 층 및/또는 중간층은 5% 미만, 약 4% 미만, 약 3% 미만, 약 2% 미만, 약 1% 미만 또는 약 0.5% 미만의 헤이즈 값을 가질 수 있다.
- [0031] 단계 S2의 재생 시스템에 제공되는 재활용 PVB는 생산-후 및/또는 소비-후 재활용된 PVB를 포함할 수 있다. 이러한 생산-후 재활용된 PVB는 사양을 벗어나거나, 손상되거나, 사용할 수 없는 PVB 물을 포함할 수 있지만, 소비-후 재활용된 PVB는 이전에 제조 및/또는 사용된 자동차 전면유리 및 건축용 안전 유리, 뿐만 아니라 가장자리 또는 기타 트림 재료에서 회수된 재료를 포함될 수 있다. 재활용된 PVB 재료는 또한 전력 장치(예를 들어, 태양광 발전 장치), 전자 디스플레이 장치 등과 같은 다른 소비 제품뿐만 아니라 다른 공급원으로부터의 스크랩 또는 소비-후 재료를 포함할 수도 있다.
- [0032] 재활용된 PVB 재료는 다양한 양의 폴리비닐 알코올("PVOH") 양, 뿐만 아니라 다양한 양과 유형의 가소제 및 기타 첨가제와 같은 다양한 PVB 조성을 가질 수 있다. 본원에 사용된 저 PVOH PVB 중합체는 잔류 PVOH 함량이 약 8 중량% 내지 15 중량%, 또는 약 8 중량% 이상, 약 9 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 11 중량% 이상, 약 12 중량% 이상, 약 13 중량% 이상, 또는 약 14 중량% 이상, 또는 약 15 중량% 이하, 또는 약 15 중량% 미만, 약 14 중량% 미만, 약 13 중량% 미만 또는 약 12 중량% 미만인 PVB를 지칭하는 반면, 고 PVOH PVB 중합체는 잔류 PVOH 함량이 약 17 중량% 내지 27 중량%, 또는 약 17 중량% 이상, 약 18 중량% 이상, 약 19 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 21 중량% 이상, 약 22 중량% 이상, 약 23 중량% 이상, 또는 약 24 중량% 이상, 또는 약 27 중량% 이하, 또는 약 27 중량% 미만, 약 26 중량% 미만, 약 25 중량% 미만, 약 24 중량% 미만, 약 23 중량% 미만 또는 약 22 중량% 미만인 PVB를 지칭하지만, 적절하거나 이용 가능한 경우 다른 양이 사용될 수 있다. 또한, 재활용된 PVB에는 여러 가지 상이한 PVB 수지가 있을 수 있다. 예를 들어, 재활용된 PVB의 제1 부분은 약 9 내지 15 중량%의 PVOH 양을 가질 수 있고, 재활용된 PVB의 제2 부분은 약 15 내지 20 중량%의 PVOH 양을 가질 수 있으며, 재활용된 PVB의 제3 부분은 약 20 내지 27 중량%의 PVOH 양을 가질 수 있다. 일반적으로, 재활용된 PVB는 약 8 내지 약 27 중량% 이상의 PVOH 양을 가질 수 있지만, 출발 물질에 따라 다른 양도 가능하다. 이러한 PVOH 양은 단지 예시 목적일 뿐이며, 사용된 재료와 재료의 공급원에 따라 다른 범위의 PVOH 양(또는 상이한 PVOH 범위)도 가능할 수 있다.
- [0033] 재활용된 PVB는 또한 PVB를 연화시키고/시키거나, PVB의 유리 전이 온도 T_g 를 낮추기 위해 일반적으로 사용되는 일정량의 가소제(또는 출발 재활용된 PVB에 따라 다양한 양의 가소제)를 포함할 수 있다. 고려되는 가소제로는 다염기산의 에스터, 다가 알코올, 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸부티레이트), 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("3-GEH"로도 알려짐), 트라이에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 다이헥실 아디페이트, 다이옥틸 아디페이트, 헥실 사이클로헥실아디페이트, 헵틸 및 노닐 아디페이트의 혼합물, 다이아이소노닐 아디페이트, 헵틸노닐 아디페이트, 다이부틸 세바케이트, 및 중합체성 가소제, 예컨대 오일-개질된 세바스산 알키드(alkyd) 및 포스페이트 및 아디페이트의 혼합물, 및 이들의 혼합물 및 조합을 포함하지만 이에 제한되지 않는다. 일부 실시양태에서, 3-GEH가 특히 바람직하다. 적합한 가소제의 다른 예로는 테트라에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("4-GEH"), 다이(부톡시에틸) 아디페이트, 및 비스(2-(2-부톡시에톡시)에틸) 아디페이트, 다이옥틸 세바케이트, 노닐페닐 테트라에틸렌 글리콜, 및 이들의 혼합물을 포함할 수 있지만, 이에 제한되지 않는다. 일반적으로, PVB 재료(예를 들어, 수지 또는 스크랩)의 가소제 함량은 중량 기준으로 수지 100부당 부(parts per hundred resin parts, "phr")로 측정된다. 예를 들어, 가소제 30 g을 중합체 수지 100 g에 첨가하면 생성된 가소화된 중합체의 가소제 함량은 30 phr이 된다. 재활용된 PVB 재료는 다양한 양 및/또는 유형의 가소제를 가질 수 있다.
- [0034] 재활용된 PVB 재료는 절단되어, 잘게 썰어 및/또는 파쇄되어 작은(예컨대, 2 내지 20 mm, 장비 및 기타 요인에 따라 최대 1 cm를 포함한 다른 크기를 사용할 수 있음) 직경의 칩, 과립, 펠릿 또는 PVB 재료의 플레이크를 형성할 수 있다(칩, 과립, 펠릿, 플레이크 등은 본원에서 "분쇄된 PVB 재료"로 지칭됨). PVB 재료의 플레이크, 칩 및/또는 펠릿과 같은 분쇄된 PVB 재료는 함께 결합되어 혼합 조성물(예를 들어, 혼합된 양의 PVOH 또는 다른 요소를 가짐)을 형성하거나, 하나의 공급원(예컨대, 알려진 조성을 갖는 PVB 물로서) 단독으로 사용될 수 있다. 이러한 분쇄된 PVB 물질은 단일 배치 반응기 재활용 시스템 또는 연속 재생 재활용 시스템의 형태일 수 있는 재생 시스템에 제공될 수 있다. 예를 들어, 단일 배치 반응기는 연속 교반 탱크 반응기(CSTR) 형태의 탱크 또는

역류 스크류 프레스 추출기 또는 당업자에게 공지된 다른 장비와 같은 다른 유사한 반응기를 포함할 수 있다. 본원에 기재된 방법의 단계 중 하나 이상(또는 전부)은 단일 배치 반응기 내에서 수행될 수 있다. 대안적으로, 연속 재생 시스템은 복수의 상호연결된 탱크(예를 들어, CSTR) 또는 관형 배열의 구획을 포함하는 연속 재생 시스템을 사용할 수 있다. 연속 재생 시스템에서, 단계 각각은 관형 배열의 복수의 탱크 또는 구획 중 하나 이상 내에서 독립적으로 수행될 수 있다. 연속 재생 시스템의 이점에는 단일 배치 반응기에 비해 더 높은 처리량과 더 높은 효율성이 포함될 수 있다.

[0035] 단계 S1로 돌아가서, 재생 시스템(예를 들어, 단일 배치 반응기 재활용 시스템 또는 연속 재생 재활용 시스템)에 첨가되는 용매는 재활용된 PVB 재료의 성분을 선택적으로 용해시키고 용액 또는 혼합물을 형성하기에 충분한 다양한 용매를 포함할 수 있다. 적합한 용매의 예로는 하나 이상의 알코올, 예를 들어 에탄올, 메탄올 또는 아이소프로판올과, 임의적으로 재활용된 PVB의 하나 이상의 성분(예컨대, 가소제, 하나 이상의 PVB 수지 및 기타 첨가제, 예컨대 UV 흡수제, 태양광 또는 적외선 흡수제, 항산화제 등)을 우선적으로 용해시키기에 충분한 양의 물의 혼합물을 포함할 수 있다. 용매 혼합물은 재활용된 PVB 재료의 고 PVOH PVB 수지(및 가소제)를 선택적으로 용해하여 용해된 고 PVOH 수지, 용매 및 가소제(및 기타 물질 및 불순물)로부터 저 PVOH PVB 수지를 분리하기 위해 여과될 수 있는 PVB 용액을 형성하도록 구성된다. 분리 또는 제거된 저 PVOH PVB 고형물은 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함할 수 있다. 이러한 방법은 (d) 저 PVOH PVB 고형물로부터 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 분리하는 단계를 추가로 포함할 수 있다.

[0036] 단계 S2로 돌아가서, 재활용된 PVB를 재생 시스템(및 용매)에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성한다.

[0037] 단계 S3으로 돌아가서, PVB 혼합물은 일정 시간 동안 교반될 수 있다. 교반 시간은 1시간 이상, 2시간 이상, 3시간 이상, 4시간 이상 또는 5시간 이상일 수 있지만, 다른 시간이 적절할 수도 있다. 혼합물은 실온(약 22 내지 23℃)에서 교반될 수 있거나, 혼합물은 약 5℃ 이상, 10℃ 이상, 15℃ 이상, 20℃ 이상, 25℃ 이상, 30℃ 이상, 35℃ 이상, 40℃ 이상, 45℃ 이상, 50℃ 이상, 55℃ 이상, 또는 약 60℃ 이상과 같은 실온 초과의 온도로 가열될 수 있다. 교반 시간과 온도는 재활용된 PVB에서 가소제를 추출하는 데 효과적일도록 선택된다. 일부 양태에서, 교반 온도는 약 10℃ 내지 약 30℃ 또는 약 15℃ 내지 약 25℃이다. 다른 양태에서, 교반 온도는 약 5℃ 내지 약 60℃, 약 5℃ 내지 약 50℃, 약 5℃ 내지 약 40℃, 약 5℃ 내지 약 30℃, 5℃ 내지 약 20℃ 또는 약 5℃ 내지 약 10℃이다.

[0038] 단계 S4로 돌아가서, 이 단계는 PVB 혼합물을 여과하여 혼합물로부터 저 PVOH PVB 중합체 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 일부 실시양태에서, 필터는 스크린, 메쉬, 천, 또는 기타 유사한 여과 요소를 포함할 수 있다. S4 단계에서는, PVB 혼합물로부터 용매와 고 PVOH PVB 가소제(및 기타 불순물)를 제거하여 회수된 저 PVOH PVB 중합체를 획득할 수 있다. 하기에 더욱 상세히 기재되는 바와 같이, 고 PVOH PVB는 초기 여과 단계 후에도 여전히 상당한 수준의 원래의 가소제 및 저 PVOH PVB를 유지할 수 있다. 그런 다음, 가소제 및 고 PVOH PVB 수지를 추가로 용해(및 추출)하려면, 회수된 저 PVOH PVB를 재생 공정의 S1 또는 S2 단계로 되돌려야 할 수도 있다. 공정 시작으로서의 복귀는 1회 이상 수행될 수 있으며, 실시양태에서는, 가소제 및 고 PVOH PVB 수지가 완전히 제거되거나 감지할 수 없는 수준이 될 때까지 공정 시작으로서의 복귀가 반복된다. 회수된 PVB에는 (원하는 경우) 일부 남은 가소제 및 고 PVOH PVB가 있을 수 있거나, 또는 여러 번 반복한 후에(하기에 추가 설명), 감지 가능한 수준의 가소제 및 고 PVOH PVB가 없거나 매우 적은 양의 가소제 및 고 PVOH PVB가 있을 수 있다(즉, 회수된 PVB는 원래 재활용된 PVB의 일부로서 포함된 원래 가소제 및 고 PVOH PVB를 작은 수준으로 유지할 수 있다).

[0039] 단계 S5로 돌아가면, 회수된 PVB 고형물을 분석하여 회수된 PVB 고형물에 남아 있는 가소제 및 고 PVOH PVB의 양을 결정할 수 있고, 가소제 및 고 PVOH PVB의 수준이 너무 높은 경우(즉, 감지할 수 없는 수준 이상 또는 원하는 수준 이상인 경우), 회수된 저 PVOH PVB 고형물은 단계 S1 이후 재생 시스템으로 반환할 수 있다(재생 시스템에 새로운 용매가 추가되거나 존재하는 경우).

[0040] 단계 S6으로 돌아가서, 고 PVOH PVB 중합체, 저 PVOH PVB 중합체 또는 둘 다는 독립적으로, 예를 들어 알코올과 물의 건조, 증발 또는 진공 제거에 의해 제거되는 용매(알코올과 물)를 가질 수 있다. 예를 들어, 회수된 PVB 고형물(고 PVOH, 저 PVOH 또는 둘 다)은 특정 온도에서 일정 시간 동안 오븐 등에서 건조되어, 건조된 PVB 중합체를 형성할 수 있다. 건조 시간은 1시간 이상, 2시간 이상, 3시간 이상, 4시간 이상, 5시간 이상, 6시간 이상, 7시간 이상, 8시간 이상, 9시간 이상, 10시간 이상, 11시간 이상 또는 12시간 이상일 수 있다. 건조 온도는 약 20℃ 이상, 약 25℃ 이상, 약 30℃ 이상, 약 35℃ 이상, 약 40℃ 이상, 약 45℃ 이상, 약 50℃ 이상, 약 55℃ 이상, 약 60℃ 이상, 약 65℃ 이상 또는 약 70℃ 이상일 수 있다. 건조 시간과 온도는 건조 방법이나 수분, 알코올 제거 방법에 따라 달라질 수 있다.

- [0041] 대안적인 실시양태에서, 회수된 PVB 고형물, 즉, 고 PVOH PVB 중합체, 저 PVOH 중합체 또는 둘 다는 독립적으로 용매의 건조 또는 제거 없이 추가 가공을 위해 알코올과 같은 용매에 용해될 수 있다. 회수된 PVB 중합체가 공지된 또는 균질한 중합체인 경우, 회수된 PVB 중합체는 직접 추가 가공될 수 있다. 회수된 PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 회수된 PVB 중합체가 PVB 용액에 완전히 용해될 때까지 교반하는 추가 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고체를 수득하는 것을 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고, 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다. 대안적으로, 침전 대신에, 여과 후 추가 단계는 용매를 증발시켜 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함하며, 이때 회수된 PVB 중합체는 단일 또는 균질한 조성물이다.
- [0042] 회수된 PVB, 즉 고 PVOH PVB 중합체, 저 PVOH 중합체 또는 둘 다가 독립적으로 혼합된 또는 비균질한 조성물인 경우, 회수된 PVB를 추가로 가공하는 단계는 회수된 PVB 중합체를 알코올과 같은 용매에 첨가하고, 특정 온도에서 특정 양의 촉매 및 특정 양의 부티르알데하이드와 함께 특정 시간 동안 교반하여 용해시키고, 회수된 PVB 중합체를 특정 PVOH%를 갖는 단일 PVB 용액으로 평형화시키는 단계를 포함할 수 있다. 추가 단계는 PVB 용액을 여과하여 용해되지 않은 고형물을 제거하는 것을 포함한다. 추가 단계는 칼륨 하이드록사이드(KOH)와 같은 염기로 중화하여, 중화된 PVB 용액을 형성하는 것을 포함한다. 추가 단계는 중화된 PVB 용액을 침전시키고 물로 세척하여 용매를 제거하여 PVB 고형물을 수득하는 단계를 포함한다. 추가 단계는 수득된 PVB 고형물을 여과하고 여과된 PVB 고형물을 건조하여 회수된 PVB 중합체를 수득하는 것을 포함한다.
- [0043] 회수된 고 PVOH PVB 중합체는 PVB 중간층 및/또는 PVB 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널을 형성하기 위해 (예를 들어, 압출기 또는 공압출기를 통해) 압출 공정에서 임의적으로 사용될 수 있다. 생성된 회수된 고 PVOH PVB 중합체는, 특히 생산-후 재활용된 재료의 경우, 중합체 중간층 및/또는 중합체 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널의 제조와 같이 상업 제품에 사용되기에 충분한 품질 및/또는 투명도를 가질 수 있다.
- [0044] 회수된 저 PVOH PVB 중합체도 또한 PVB 중간층 및/또는 PVB 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널을 형성하기 위해 (예를 들어, 압출기 또는 공압출기를 통해) 압출 공정에서 임의적으로 사용될 수 있다. 그러나, 특히 회수된 저 PVOH PVB 중합체는 재활용된 PVB에 원래 포함되었던 가소제를 거의 또는 전혀 포함하지 않을 수 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 회수된 저 PVOH PVB 중합체는 원래 재활용된 PVB에 포함되었던 가소제를 약 5% 이하, 약 4% 이하, 약 3% 이하, 약 2% 이하, 약 1.5% 이하, 약 0.5% 이하 또는 약 0%(또는 감지할 수 없는 수준) 보유할 수 있다. 따라서, 압출 또는 기타 추가 가공 전에 추가 가소제가 첨가되어야할 수도 있다.
- [0045] 특정 실시양태에서, 전술한 단계 S1 내지 S6에 대한 변형, 추가 및/또는 제외가 이루어질 수 있다. 또한, 회수된 PVB 중합체(고 PVOH PVB 및/또는 저 PVOH PVB)는 이전에 기재된 바와 같이 추가의 처리를 거칠 수 있다.
- [0046] 또한, 저 PVOH PVB 수지는 상기 기재된 단계 외에도 원심분리를 사용하여 용액에서 분리될 수 있다. 먼저, 중간층을 혼합물에 2가지 수지 중 하나만 용해하는 용매 시스템으로 처리한 다음(상기 기재됨), 생성된 현탁액을 원심분리하여 분리를 촉진한다. 1가지 성분(예컨대, 고 또는 저 PVOH PVB 수지)의 완전한 제거 또는 부분적 제거는 재활용을 위한 헤이즈 감소에 도움을 줄 수 있다.
- [0047] 상기 기재된 회수 방법 단계를 사용하여 회수된 PVB는 수지, 수지층, 중합체 중간층 및/또는 중합체 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널을 형성하는데 사용될 수 있다. 본원에 사용된 용어 "중합체 중간층 시트", "중간층", "중합체 층" 및 "중합체 용융 시트"는 단일층 시트 또는 다층 중간층을 나타낼 수 있다. 명칭에서 알 수 있듯이, "단일층 시트"는 하나의 층으로 압출된 단일 중합체 층이다. 반면, 다층 중간층은 개별적으로 압출된 층, 공압출된 층, 또는 개별적으로 공압출된 층의 임의의 조합을 포함하는 다층 층을 포함할 수 있다. 따라서, 다층 중간층은, 예를 들어, 함께 조합된 2개 이상의 단일층 시트("복수층 시트"); 함께 공압출된 2개 이상의 층("공압출 시트"); 함께 조합된 2개 이상의 공압출된 시트; 하나 이상의 단일층 시트와 하나 이상의 공압출된 시트의 조합; 및 적어도 하나의 복수층 시트와 적어도 하나의 공압출된 시트의 조합을 포함한다. 본 발명의 다양한 실시양태에서, 다층 중간층은 서로 직접 접촉하여 배치된 2개 이상의 중합체 층(예를 들어, 단일 층 또는 공압출된 다층 층)을 포함하며, 이때 각 층은 중합체 수지를 포함한다. 본원에 사용된 용어 "수지"는 산 촉매작용 및 중합체성 전구체의 후속 중화로부터 생성된 혼합물로부터 제거된 중합체 성분(예를 들어, PVB)을 지칭한다. 일반적으로, 상기에서 상세히 논의된 것과 같은 가소제가 수지에 첨가되어 가소화된 중합체를 생성하게 된다. 추가적으로, 수지는 중합체 및 가소제 외에, 예를 들어, 아세테이트, 염 및 알코올을 포함하는 다른 성분을 가질 수 있다.

- [0048] 상기 기재된 재활용 단계가 수행되어 적어도 일부 고유의 가소제(예를 들어, 3 내지 5 phr의 가소제)를 갖는 회수된 PVB를 수득할 수 있지만, 실시양태에서는 PVB가 사용되어 중합체 중간층 및/또는 중합체 중간층을 포함하는 적층식 유리 패널을 형성하기 전에 추가 가소제가 PVB에 첨가되어야 할 수도 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 중합체 중간층 및/또는 적층식 유리 패널이 제조되기 전에, 25 내지 50 phr, 25 내지 45 phr, 30 내지 40 phr, 또는 33 내지 35 phr의 추가 양이 생성된 PVB에 첨가될 수 있다. 다른 실시양태에서, 중합체 중간층 및/또는 적층식 유리 패널이 제조되기 전에, 25 phr 미만, 또는 20 phr 미만, 또는 50 phr 초과, 또는 55 phr 초과, 또는 60 phr 초과, 또는 65 phr 초과, 또는 70 phr 초과 또는 그 이상의 추가 양이 생성된 PVB에 첨가될 수 있다. 원하는 특성 및 용도에 따라, 원하는 만큼 더 많거나 더 적은 양의 가소제가 첨가될 수 있다. 고 PVOH PVB 수지의 경우, 수지 내 가소제 수준을 조절하거나 감소시키기 위해 추가 수지가 첨가될 수 있다.
- [0049] 회수된 PVB 수지(또는 수지들)는, 저각 레이저 광 산란을 이용한 크기 배제 크로마토그래피로 측정 시, 전형적으로 30,000 달톤 초과, 또는 500,000 달톤 미만, 또는 약 30,000 내지 약 500,000 달톤, 또는 약 500,000 내지 약 500,000 달톤, 또는 100,000 내지 약 425,000 달톤의 분자량을 갖는다. 본원에 사용된 용어 "분자량"은 중량 평균 분자량을 의미한다.
- [0050] 회수된 저 PVOH PVB 수지에 충분한 양의 가소제가 첨가된 후, 또는 대안적으로 추가 수지가 고 PVOH PVB 수지에 첨가된 후(필요한 경우), 중합체 중간층 시트는 다층 패널(예컨대, 유리 적층체)에 사용될 수 있는 중합체 중간층 시트를 생성하는 당업자에게 공지된 임의의 적합한 공정에 의해 생성될 수 있는 것으로 간주된다. 예를 들어, 중합체 중간층 시트는 용액 주조, 압축 성형, 사출 성형, 용융 압출, 용융 취입 또는 당업자에게 공지된 중합체 중간층 시트의 생산 및 제조를 위한 임의의 다른 절차를 통해 형성될 수 있는 것으로 간주된다. 또한, 다중 중합체 중간층이 활용되는 실시양태에서, 이러한 다중 중합체 중간층은 공압출, 블로운 필름(blown film), 침지 코팅(dip coating), 용액 코팅, 블레이드(blade), 패들(paddle), 에어나이프(air-knife), 프린팅, 분말 코팅, 스프레이 코팅 또는 당업자에게 공지된 기타 공정을 통해 형성될 수 있는 것으로 간주된다. 당업자에게 공지된 중합체 중간층 시트의 모든 제조 방법이 본원에 기재된 중합체 중간층 시트를 제조하기 위한 가능한 방법으로서 고려되지만, 본 발명에서는 압출 및/또는 공압출 공정을 통해 생산된 중합체 중간층 시트에 중점을 둔 것이다.
- [0051] 압출 공정에서, 상기 기재된 임의의 수지 및 가소제를 비롯한 열가소성 수지 및 가소제는 일반적으로 미리 혼합되어 압출기 장치에 공급된다. 착색제 및 UV 억제제(액체, 분말 또는 펠릿 형태)와 같은 첨가제를 사용할 수 있으며, 압출기 장치에 도달하기 전에 열가소성 수지 또는 가소제 내에 혼합될 수 있다. 이러한 첨가제는 열가소성 중합체 수지, 나아가서 생성된 중합체 중간층 시트에 통합되어 중합체 중간층 시트의 특정 특성 및 최종 다층 유리 패널 제품에서의 성능을 향상시킨다.
- [0052] 압출기 장치에서는, 상기 기재된 수지, 가소제 및 기타 첨가제를 비롯한 열가소성 원료 및 가소제의 입자가 추가로 혼합되고 용융되어, 온도와 조성이 일반적으로 균일한 용융물이 생성된다. 본 발명의 실시양태는 용융 온도가 대략 200℃인 용융물을 제공할 수 있다. 용융물이 압출기 장치의 끝에 도달하면, 용융물은 압출기 다이로 추진된다. 압출기 다이는 최종 중합체 중간층 시트 제품에 프로파일을 제공하는 압출기 장치의 구성요소이다. 다이는 일반적으로 수직 치수보다 한 치수가 실질적으로 더 큰 립(lip)에 의해 정의된 개구부를 갖는다. 일반적으로, 다이는 용융물이 다이에서 나오는 원통형 프로파일에서 제품의 끝 프로파일 형상으로 균일하게 흐르도록 설계된다. 연속적인 프로파일이 존재하는 한 다이에 의해 최종 중합체 중간층 시트에 복수의 형상이 부여될 수 있다. 일반적으로, 가장 기본적인 의미에서, 압출은 고정된 단면 프로파일의 물체를 만드는 데 사용되는 공정이다. 이는 최종 제품에 대해 원하는 단면의 다이를 통해 재료를 밀거나 당기는 방식으로 수행된다.
- [0053] 일부 실시양태에서, 공압출 공정이 활용될 수 있다. 공압출은 다중 층의 고분자 재료를 동시에 압출하는 공정이다. 일반적으로, 이러한 유형의 압출은 2개 이상의 압출기를 활용하여 공압출 다이를 통해 점도나 기타 특성이 다른 다양한 열가소성 용융물을 용융시키고, 원하는 최종 형태로 일정한 부피 처리량을 전달한다. 예를 들어, 본 발명의 다중 중간층(예를 들어, 삼중층 중간층의 형태)은 바람직하게는 제1 다이 매니폴드, 제2 다이 매니폴드, 및 제3 다이 매니폴드를 포함하는 바람직하게는 다중 매니폴드 공압출 장치를 사용하여 공압출될 수 있다. 공압출 장치는 각 매니폴드로부터 다이를 통해 개구 밖으로 중합체 용융물을 동시에 압출함으로써 작동할 수 있으며, 이때 다중 중간층은 3개의 개별 중합체 층의 복합체로서 압출된다. 중합체 용융물은 코어층이 스킨층 사이에 위치되도록 다이를 통해 유동하여 코어층이 스킨층 사이에 샌드위치된 삼중층 중간층을 제조할 수 있다. 다이 개구부는 개구부의 양측에 위치한 한 쌍의 립을 포함할 수 있다. 중합체 용융물의 위치 방향을 고려하면, 스킨층이 립과 접촉할 수 있다. 그럼에도 불구하고, 다이 개구부에 위치한 다이 립 사이의 거리를 조정하여 중

간층 두께를 변경할 수 있다.

[0054] 종종, 3개의 층을 갖는 중합체 중간층이 적층 유리 패널의 제조에 사용된다. 예를 들어, 본 발명의 일부 실시양태에서, 연결 층의 증가된 음향 감쇠 특성은 딱딱한(stiff)/단단한(rigid) 층의 기계적 강도와 결합되어 다중 중간층을 생성한다. 이러한 실시양태에서, 중앙의 부드러운 층이 2개의 딱딱한/단단한 외부 층 사이에 샌드위치된다(sandwiched). 이러한 (딱딱한)/(부드러운)/(딱딱한) 구성은 쉽게 다룰 수 있고 기존 적층 방법에 사용할 수 있으며 상대적으로 얇고 가벼운 층으로 구성할 수 있는 다중 중간층을 생성한다. 부드러운 코어층은 일반적으로 상대적으로 더 딱딱한 스킨층보다 더 낮은 잔류 하이드록실 함량, 더 높은 가소제 함량 및/또는 더 낮은 유리 전이 온도를 특징으로 한다.

[0055] 하기는 상기 기재된 공정에 따라 형성된 중간층과 결합하여 일반적으로 다중 유리 패널이 생산되는 방식에 대한 간단한 설명을 제공한다. 먼저, 상기 논의된 바와 같이, 다중 매니폴드 공압출 장치를 사용하여 다중층 중간층이 공압출될 수 있다. 이러한 장치는 각 매니폴드에서 압출 개구부를 향해 중합체 용융물을 동시에 압출하여 작동한다. 이러한 층의 특성은 압출 개구부에서 다이 립의 속성(예를 들어, 온도 및/또는 개구부 치수)을 조정하여 변경될 수 있다. 일단 형성되면, 중간층 시트가 2개의 유리 기판 사이에 배치될 수 있으며, 가장자리에서 임의의 여분의 중간층을 잘라내어 조립체를 만든다. 다중 중합체 중간층 시트 또는 다중 층을 갖는 중합체 중간층 시트(또는 둘 모두의 조합)가 다중 중합체 중간층을 갖는 다중 층 유리 패널을 생성하는 2개의 유리 기판 내에 배치되는 것은 드문 일이 아니다. 그런 다음, 당업자에게 공지된 적용가능한 공정 또는 방법에 의해 조립체로부터, 예를 들어 닢 롤러, 진공 백 또는 기타 탈기 메커니즘을 통해 공기가 제거된다. 또한, 중간층은 당업자에게 공지된 임의의 방법에 의해 기판에 부분적으로 압착된다. 마지막 단계에서, 최종 단일 구조를 형성하기 위해, 고온 및 압력 적층 공정, 또는 오토클레이빙(이에 국한되지 않음)과 같은 당업자에게 알려진 임의의 다른 방법에 의해 이러한 예비 결합이 더욱 영구적이게 된다.

[0056] 상기 관점에서 볼 때, 다중 패널은 2장의 유리 또는 기타 적용 가능한 기판으로 구성되며, 그 사이에 중합체 중간층 시트가 샌드위치된다. 다중 패널은 일반적으로 2개의 기판 사이에 하나 이상의 중합체 중간층 시트를 배치하여 조립체를 생성함으로써 생산된다. 도 14는 한 쌍의 유리 시트(12) 및 그 사이에 샌드위치된 다중 중간층을 포함하는 다중 패널(10)을 예시한다. 다중 중간층은 부드러운 코어층(14) 및 코어층(14)의 양측에 위치한 2개의 상대적으로 더 딱딱한 스킨층(16)을 포함하는 3개의 개별 중합체 중간층 시트를 갖는 3중 중간층으로 구성된다. 이러한 삼중층을 포함하는 유리 패널은 상기 논의된 바와 같이 부드러운 코어층에 의해 제공되는 소음 감쇠로 인해 우수한 음향 특성을 가질 수 있다.

[0057] 일부 실시양태에서, 중간층(예를 들어, 코어층(14) 및 스킨층(16))은 중간층의 길이에 대해 일반적으로 일정하거나 균일한 두께를 가질 것이다(예를 들어, 도 14 참조). 그러나, 대안의 실시양태에서, 도 15에 도시된 바와 같이, 중간층은 두께가 불균일한 적어도 하나의 영역을 가질 수 있다. 예를 들어, 코어층(14)과 스킨층(16)으로 구성된 중간층은 중간층의 두께가 중간층의 길이에 대해 (예를 들어, 선형적으로) 변화도록 쐐기형(wedge-shaped)일 수 있다. 일부 이러한 실시양태에서, 중간층의 두께는 코어층(14)의 두께 변화로 인해 변할 수 있다(즉, 스킨층(16)은 일반적으로 일정한 두께를 가짐). 대안적으로, 중간층의 두께는 스킨층(16)의 두께 변화로 인해 변할 수 있다(즉, 코어층(14)은 일반적으로 일정한 두께를 가짐). 추가 대안에서, 중간층의 두께는 코어층(14)과 스킨층(16) 모두의 두께 변화로 인해 변할 수 있다. 추가 실시양태에서(도시되지 않음), 하나 이상의 층은 중간층의 교차 기계 방향으로 두께가 증가하는 동시에 하나 이상의 층은 두께가 감소되면서, 쐐기형 중간층과 같이 두께가 불균일한 하나 이상의 영역을 갖는 중간층을 유지할 수 있다. 이러한 삼중층을 포함하는 유리 패널은 상기 논의된 바와 같이 부드러운 코어층에 의해 제공되는 소음 감쇠로 인해 우수한 음향 특성을 가질 수 있다. 또한, 삼중층의 불균일한 두께로 인해 유리 패널은 원치 않는 이미지 투사 결합(예를 들어, 고스트 이미지(ghost image) 감소)을 줄여, 헤드업 디스플레이(heads-up displays; "HUD")에 사용하기 위한 유익한 특성을 제공할 수 있다.

[0058] 본 발명이 현재 바람직한 실시양태라고 여겨지는 것들을 비롯하여 특정 실시양태의 설명과 함께 개시되었지만, 상세한 설명은 예시를 위한 것이며, 본 개시의 범위를 제한하는 것으로 이해되어서는 안 된다. 당업자가 이해하는 바와 같이, 본 명세서에 상세히 기재된 것 이외의 실시양태도 본 발명에 포함된다. 기재된 실시양태의 수정 및 변형은 본 발명의 사상 및 범위를 벗어나지 않고 이루어질 수 있다.

[0059] 본 개시내용의 임의의 단일 구성요소에 대해 주어진 임의의 범위, 값 또는 특성은, 본원 전체에 주어진 바와 같이 성분 각각에 정의된 값을 갖는 실시양태를 형성하기 위해, 호환되는 경우, 본 개시내용의 임의의 다른 성분에 대해 주어진 임의의 범위, 값 또는 특성과 상호교환적으로 사용될 수 있는 것이 이해될 것이다. 예를 들어,

본 발명의 범위 내에 있지만 나열하기 어려울 수 있는 많은 순열을 형성하기 위해, 적절한 경우, 잔류 하이드록실 함량에 대해 주어진 임의의 범위에 더하여, 임의의 주어진 범위 중 가소제 함량을 포함하는 중합체 층이 형성될 수 있다.

[0060] **실시예**

[0061] **재료**

[0062] 하기 재료를 하기 실시예에서 사용하였다.

[0063] PVB 플레이크(PVB 시트라고도 함)는 더 작은 플레이크 또는 조각으로 절단된 삼중 PVB 시트이다. 사용된 PVB 플레이크는 수지 단독 기준으로 약 10 내지 15 중량%의 저 PVOH PVB 수지와 약 85 내지 90 중량%의 고 PVOH PVB 수지를 포함한다(플레이크 또는 시트의 가소제 제외). 다수의 실시예에서, PVB 플레이크는 더 작은 플레이크로 절단되거나 잘게 잘려있는 Saflex® Q 시리즈 Acoustic PVB 시트(Eastman Chemical Company로부터 재활용됨)일 수 있다.

[0064] PVB 펠릿은 압출기를 통과하여 펠릿화된 PVB 플레이크(Saflex® Q 시리즈 Acoustic PVB 포함)로 구성된 펠릿이다. 전형적으로, 펠릿 내 저 PVOH PVB(코어) 수지의 낮은 함량으로 인해, 펠릿은 고 PVOH PVB(스킨) 수지 매트릭스에 분산된 작은 도메인으로 구성된다.

[0065] Recycle PVB1은 알 수 없거나 측정되지 않은 함량을 포함하는 소비-후 PVB 시트의 첫 번째 샘플이다(Recyverre에서 구입). 이러한 물질은 잘게 잘리거나, 파쇄되거나 또는 분쇄되어 물질의 작은 조각 또는 플레이크를 형성하였다.

[0066] Recycle PVB2는 알 수 없거나 측정되지 않은 함량을 포함하는 소비-후 PVB 시트의 두 번째 샘플이다(Recyverre에서 구입). 이러한 물질은 잘게 잘리거나, 파쇄되거나 또는 분쇄되어 물질의 작은 조각 또는 플레이크를 형성하였다.

[0067] **알코올/물 혼합물에서의 용해도를 예시하는 실시예**

[0068] 구매 중합체 용출 크로마토그래피(GPEC)는 공중합체 또는 삼원공중합체의 조성과 가소제의 양을 포함한 중합체 성분의 농도에 대한 정보를 제공할 수 있는 기법이다. GPEC 방법은 먼저 중합체(즉, PVB)를 좋은 용매에 용해하거나 추출된 성분의 농도가 관심 있는 경우 추출물을 사용하는 것을 포함한다. 용해된 샘플 또는 용액을 중합체가 침전되는 용매 조건 하에서 컬럼에 주입한다. 그런 다음, 이동상이 용출되는 구배로 변경하면, 중합체가 다시 용해되면서 용출될 것이다. PVB의 경우, 1차 분리 메커니즘은 이동상에서 PVB 분획의 용해도인 것으로 여겨지며, 용매에 대한 높은 용해도와 낮은 분자량으로 인해 가소제가 먼저 용출된다. 또한, PVB와 컬럼 패키지의 상호작용으로 인한 분리 메커니즘이 있을 수도 있다. 분리에 영향을 미치는 여러 요인이 있을 수 있지만, 공중합체 조성이 가장 큰 요인인 것으로 여겨진다. GPEC 방법은 중합체 조성을 결정하는 데 사용될 수 있으며, 이 경우 샘플 내 수지 및 가소제의 농도를 결정하는 데 사용될 수 있다.

[0069] GPEC 테스트에 사용된 실험 조건 및 기기:

[0070] i. Thermo Scientific Dionex Ultimate 3000 Series HPLC

[0071] ii. Corona Veo 하전 에어로졸 감지기 - 증발기(낮은 설정)

[0072] iii. 컬럼: Supelco Discovery C18, 150 mm, 4.6 mm, 5 마이크로, 180A.

[0073] iv. 컬럼 온도: 30°C

[0074] v. 주입 부피: 10 µl

vi. 구매 (유속: 1 ml/분)

시간 (분)	H ₂ O %	MeOH %	아이소프로판올 %
0	80	20	0
2	80	20	0
2.1	40	20	40
22.1	0	20	80
35.0	0	20	80
35.1	80	20	0
41	80	20	0

GPEC 샘플 제조: PVB 중간층 고형물 샘플을 아세트산에 용해시키고, 추출물을 그대로 사용하였다(아세트산 10 ml에 약 0.05 내지 0.5 g). 용액을 실온에 방치하여 밤새 용해시켰다. 샘플 유형에는 알코올/물 혼합물 추출물, 가소제 용액, 가소제/수지 젤 및 펠릿, 수지 또는 시트 샘플이 포함되었다.

GPEC 정량화: 수지(R)와 가소제(Pz)의 상대 농도는 하기 방정식을 사용하여 상대 면적 백분율을 기준으로 추정된다:

$Pz/R = (a * \text{가소제 면적}) / (\text{수지 면적})$ [이때, a는 반응 계수임].

스킨 및 코어 수지의 상대 농도는 상대 면적 백분율을 기준으로 추정된다:

% 코어 수지 = (코어 수지 면적) * 100 / (코어 수지 면적 + 스킨 수지 면적)

% 스킨 수지 = (스킨 수지 면적) * 100 / (코어 수지 면적 + 스킨 수지 면적)

샘플 중 수지 중량%는 알려진 수지 농도의 용액을 분석하고 단일 지점 반응 계수 또는 선형 교정을 결정하여 결정된다.

실시예 1 내지 8

15 ml의 용매 혼합물과 함께 0.1 g의 재활용된 PVB 플레이크 또는 PVB 펠릿을 20 mL 신틸레이션 바이알에 넣어 샘플 1 내지 8을 형성하여 GPEC 용해도 테스트를 수행하였다. 재활용된 PVB 플레이크는 삼중층 구조를 갖고 있으며, 이때 스킨층은 약 18.7 중량% PVOH를 함유한 고 PVOH PVB 수지이고, 코어층은 약 10.5% PVOH를 함유한 저 PVOH PVB 수지였다(수지 단독 기준으로, 약 11 중량%의 저 PVOH PVB 수지 및 약 89 중량%의 고 PVOH PVB 수지, 또는 전체 중량 기준으로 약 7 중량%의 저 PVOH PVB 수지, 약 63 중량%의 고 PVOH PVB 수지 및 약 30 중량% 가소제). 코어층 및 스킨층 둘 모두 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)(3-GEH)로 가소화하였다. 바이알의 뚜껑을 닫고(capping), 샘플링 전 12시간 동안 진탕기에 두었다. 각각의 추출물을 GPEC를 사용하여 분석하였다. 추출물은 외관(투명하거나 흐릿한지 여부)에 관계없이, 0.5 마이크론 필터로 여과하였고, 여과된 샘플은 주입을 위해 투명해야 했다.

각 알코올 시스템에서 약 10.5 중량% PVOH를 함유한 수지가 더 이상 GPEC 수단으로 검출될 수 없는 저 PVOH 수지 용해도 컷오프(cutoff) 지점에 대한 물 %를 하기와 같이 결정하였다:

에탄올: 약 20 중량% 초과와 물; 및

메탄올: 약 4 중량% 초과와 물.

각 알코올 시스템에서 고 PVOH 수지가 GPEC 수단으로 더 이상 검출될 수 없는 고 PVOH 수지 용해도 컷오프 지점에 대한 물 %는 하기와 같이 결정하였다:

에탄올: 약 35 중량% 초과와 물; 및

메탄올: 약 20 중량% 초과와 물.

하기 표 1 및 도 2 내지 4는 GPEC를 사용하여 분석된 다양한 용매 혼합물(물에 다양한 수준의 알코올을 가짐)을 사용하여 얻은 샘플 1 내지 8에 대한 PVB 추출물에 대한 데이터를 나타낸다. 구체적으로, 도 2는 에탄올과 물의 혼합물에서 재활용된 PVB의 GPEC 크로마토그램을 도시한다. 약 9 중량%의 물과 함께 에탄올에 용해된 PVB 혼합물은 2가지 수지 모두 혼합물에 용해되는 것으로 나타났다(상단 차트). 에탄올 중 물 함량이 약 16 중량%로 증가함에 따라 저 PVOH PVB 수지의 가용성이 감소했지만, 여전히 검출 가능해졌다(중앙 차트). 약 20 중량%의 물을 함유한 에탄올에서는, 저 PVOH 수지가 거의 검출되지 않았다(하단 차트).

[0093] 도 3은 메탄올 수용액 내 재활용 PVB의 GPEC 크로마토그램을 도시한다. 순수한 메탄올(물이 첨가되지 않음)에 용해된 중간층 혼합물은 여전히 검출 가능한 일부 저 PVOH 수지를 나타낸다(상단 차트). 메탄올에 약 9.5 중량%의 물이 있으면, 고 PVOH PVB 수지의 용해도가 가소제에 비해 낮아진다(중상 차트). 약 4.9 중량%의 물을 함유한 메탄올은 저 PVOH PVB 수지가 거의 없으며 고 PVOH PVB 수지의 용해도가 우수하다(하단 차트).

[0094] 도 4는 아이소프로판올과 물의 혼합물 중 재활용 PVB의 GPEC 크로마토그램을 도시한다. 100% 아이소프로판올(상단 차트)과 32 중량%의 물을 함유한 아이소프로판올(하단 차트) 모두 가소제에 비해 고 PVOH PVB의 용해도가 낮음을 도시한다.

[0095] 도 2 내지 4의 크로마토그램으로부터의 면적(%)을 표 1에 요약하였다. 재료의 측정은 고 PVOH PVB(추출되거나 용해된 부분)에서 수행하였다.

[0096] [표 1]

실시에 번호	알코올 중 물, 중량%	알코올 유형	고 PVOH PVB %	저 PVOH PVB %
1	9	에탄올	85	15
2	16	에탄올	90	10
3	20	에탄올	98	2
4	0	메탄올	97	3
5	4.9	메탄올	98	2
6	9.5	메탄올	100	0
7	0	아이소프로판올	90	10
8	32	아이소프로판올	90	10

[0097]

[0098] 도 2 내지 4 및 표 1의 데이터는 각각의 수지에서 저 PVOH 및 고 PVOH 백분율을 도시한다. 실시예 1은 대조군 샘플이다. 에탄올에 약 9 중량%의 물을 사용하면 저 PVOH PVB 수지의 선택적 용해를 제공하지 않았다. 실시예 2, 7 및 8은 에탄올(실시예 2) 또는 아이소프로판올(실시예 7 및 8에서는 각각 0% 또는 32% 물 함유) 중 단지 16 중량%의 물을 사용하여 고 PVOH PVB 수지 모두와 저 PVOH PVB 수지 일부를 추출물에 용해시켰음을 보여준다. 실시예 3, 4, 5 및 6은 에탄올 중 20 중량% 물 또는 메탄올 중 0 내지 9.5 중량%의 물(실시예 4, 5 및 6)과의 선택적 용해를 사용하여 (저 PVOH PVB 수지에 비해) 고 PVOH PVB 수지를 추출물에 선택적으로 용해시켰다. 다르게 말하면, 실시예 3, 4, 5 및 6은 저 PVOH PVB 수지에 비해 고 PVOH PVB 수지를 우선적으로 용해시키는 반면, 실시예 2, 7 및 8은 실시예 3, 4, 5 및 6만큼 선택적이지 않다.

[0099] **펠릿화된 물질을 이용한 용해/여과 방법**

[0100] 상기 기재된 용해도 연구에 기초하여, 도 5의 흐름도에 기술된 바와 같은 선택적 용해 후 여과를 사용하는 분리 공정을 하기 기재된 실시예 9 내지 16의 생산-후 및 소비-후 재활용된 PVB 중간층 둘 다에 대해 테스트하였다. 용해 및 여과 방법은 공급 물질에 조성이 잘 분산된 물질, 예컨대 펠릿화된 재활용된 다층 PVB에 더욱 적합하다. PVB 펠릿에 미리 혼합된 재료는, 용해되지 않은 저 PVOH PVB(코어) 수지 영역이 매우 작고 현탁 상태로 유지되는 시각적으로 흐릿한 용액을 생성하였다. 각각의 용매 조합(하기 표시)에 10% 재활용 PVB 펠릿을 포함하는 혼합물을 50℃에서 2시간 동안 교반하여, 점성이 있고 흐릿한 현탁액을 생성하였다. 시각적으로 흐릿한 이러한 현탁액은 표 2에서 "이전" 샘플로 정의하였다. 그런 다음, 혼합물의 일부를 1 mm 스트레이너(strainer)로 스크리닝하여 더 큰 수지 칩을 수집한 다음, M-503 필터 매질이 포함된 실험실 규모 10 T 필터(ErtelAlsop)를 사용하여 추가로 여과하였다. 결과의 샘플은 표 2에서 "이후" 샘플로 정의하였다. 여과되지 않은(이전) 샘플과 여과된(이후) 샘플 모두 오븐에서 50℃에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 약 760 마이크론의 두께를 갖는 시트로 압축하고, 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다. 결합된 여액으로부터 용매를 제거(즉, 건조)한 후 생성된 물질의 헤이즈는 여과 중에 통과하는 용해되지 않은 물질의 다양한 정도를 반영한다(하기 표 2). 당업자에게 공지되고 이전에 기재된 기술을 사용하여 분광 광도계를 사용하여 적층되고 건조된 물질에 대해 헤이즈를 측정하였다.

[0101] **실시예 9**

[0102] 20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 펠릿 50부를 첨가하고, 50℃에서 2시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로

건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 대조군으로서 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다. 헤이즈 값은 51.6이었다.

[0103] 실시예 10

20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 펠릿 50부를 첨가하고, 50℃에서 2시간 동안 교반하였다. 이어서, 생성된 혼합물을 M-503 필터 매질(ErtelAlsop)을 갖는 lab 10 T 필터를 사용하여 60 psi에서 여과하였다. 점성의 용액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다. 헤이즈 값은 1.9였다.

[0105] 실시예 11

4% 물을 함유하는 메탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 펠릿 50부를 첨가하고, 50℃에서 2시간 동안 교반하였다. 이어서, 생성된 혼합물을 M-503 필터 매질(ErtelAlsop)을 갖는 lab 10 T 필터를 사용하여 60 psi에서 여과하였다. 점성의 용액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 헤이즈 측정을 위해 2개의 투명한 유리 조각 사이에 적층하였다. 헤이즈 값은 17.7이었다.

[0107] 실시예 12

20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 펠릿 50부를 첨가하고, 실온에서 12시간 동안 교반하였다. 이어서, 생성된 혼합물을 M-503 필터 매질(ErtelAlsop)을 갖는 lab 10 T 필터를 사용하여 60 psi에서 여과하였다. 점성의 용액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다. 헤이즈 값은 11.8이었다.

하기 표 2는 상기 기재된 실시예 9 내지 12의 사용되는 PVB 재료의 유형, 용매 및 헤이즈 값을 나타낸다.

[표 2]

실시예 번호				헤이즈 %
실시예 9	PVB 펠릿	이전	에탄올 중 20% 물	51.6
실시예 10	PVB 펠릿	이후	에탄올 중 20% 물	1.9
실시예 11	PVB 펠릿	이후	메탄올 중 4% 물	17.7
실시예 12	PVB 펠릿	이후	에탄올 중 20% 물	11.8

표 2는 본 발명의 공정에 의해 저 PVOH PVB가 제거된 원래(이전) 샘플부터 회수된(이후) 샘플까지 헤이즈가 크게 감소했음을 보여준다. 실시예 9를 실시예 10, 11 및 12와 비교하면, 에탄올과 물 또는 메탄올과 물의 용매를 사용하는 경우 본 발명의 방법을 사용하면 헤이즈가 크게 감소한다는 것을 알 수 있다.

여과 이전 및 이후의 샘플도 도 6 및 7에 도시된 바와 같이 GPEC를 사용하여 분석하였다. 일부 경우에, 도 6의 최종 여액에서 볼 수 있듯이 용해되지 않은 수지가 통과하는 것이 관찰되었다. 도 6은 실시예 11의 10% PVB 펠릿을 4 중량% 물과 메탄올로 용해시킨 후 현탁액 샘플의 GPEC 크로마토그램을 보여준다(상단 차트). 출발 여과 샘플은 검출가능한 저 PVOH PVB 수지를 나타내지 않았다(중앙 차트). 최종 여액 샘플은 필터 매질을 통과하는 일부 저 PVOH PVB 수지를 보여준다(하단 차트). 도 7은 실시예 10의 10% PVB 펠릿을 20 중량% 물과 함께 에탄올에 용해시킨 후 현탁액 샘플의 GPEC 크로마토그램(상단 차트) 및 조합된 여액(하단 차트)을 도시한다. 전체 여과된 재료를 조합하였다.

[0114] 삼중층 중간층을 이용한 추출/제거를 방법

추출 접근법은, 용해되지 않은 물질이 작업 중에 특정 형태와 크기를 유지할 수 있어 거친 스크린을 사용하여 추출물에서 쉽게 분리될 수 있는 분쇄된 다층 중간층 물질(즉, 시트와 같은 다층 재료의 작은 조각으로 잘게 잘

리거나 더 작은 조각으로 자른 PVB 플레이트)과 같이 여전히 층상 형태인 공급물에 더욱 적합하다. 일반적인 공정이 도 8에 도시된다. 추출 부분 또는 단계는 일반적으로 주변 조건에서 수행되며, 일반적으로는 양호한 분리를 위해 적어도 세 가지 추출 단계를 포함한다. 추출물과 용해되지 않은 수지는 매우 거친 스크린을 사용하여 쉽게 분리할 수 있다.

[0116] 실시예 13

물 800부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에, 시트르산 0.5부, 황산 4부 및 Recycle PVB1에서 잘라낸 ½ 인치 플레이트 200부를 첨가하고, 50℃에서 1시간 동안 교반하였다. 생성된 플레이트를 1 mm 스크린이 있는 스트레이너에 붓고 수돗물로 행구었다. 세척된 플레이트를 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 후속 사용을 위해 오븐에서 50℃에서 2시간 동안 추가로 건조하였다.

[0118] 실시예 14

20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에, 실시예 13의 건조된 Recycle PVB1 플레이트 50부를 첨가하고, 50℃에서 2시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 두 부분으로 나누었다. 한 부분을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 대조군으로서 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다(이전 샘플). 두 번째 부분을 M-503 펄터 매질(ErtelAlsop)을 갖는 lab 10 T 펄터를 사용하여 60 psi에서 여과하였다. 점성의 용액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 50℃ 오븐에서 2시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고, 헤이즈 측정을 위해 2개의 유리 조각 사이에 적층하였다. 헤이즈 값은 13.7이었다.

[0120] 실시예 15

실시예 13에 대해 상기 기재된 공정을 재활용 PVB1 대신 재활용 PVB2에서 잘라낸 ½ 인치 플레이트를 사용하여 반복하였다. 생성된 물질을 실시예 16에서 후속 사용을 위해 건조시켰다.

[0122] 실시예 16

실시예 15에서 수득한 물질을 사용하여 실시예 14에 대해 상기 기재된 공정을 반복하였다.

하기 표 3은 상기 기재된 실시예 13 내지 16의 사용되는 PVB 재료, 용매 및 헤이즈 값을 나타낸다.

[표 3]

실시예 번호				헤이즈 %
실시예 13	Recycle PVB1	이전	에탄올 중 20% 물	28.5
실시예 14	Recycle PVB1	이후	에탄올 중 20% 물	13.7
실시예 15	Recycle PVB2	이전	에탄올 중 20% 물	11.7
실시예 16	Recycle PVB2	이후	에탄올 중 20% 물	3.4

표 3은 본 발명의 공정에 의해 저 PVOH PVB가 제거된 원래(이전) 샘플부터 회수된(이후) 샘플까지 헤이즈가 크게 감소했음을 보여준다. 실시예 13과 실시예 14를 비교하면, 본 발명의 방법을 사용하여 헤이즈가 28.5%에서 13.7%로 감소하였다. 유사하게, 실시예 15 및 16을 비교하면, 헤이즈가 11.7%에서 3.4%로 감소하였다.

[0128] 실시예 17

프루프 에탄올(에탄올 중 약 9 중량%의 물) 190부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 플레이크(½ 인치 조각) 50부를 첨가하고, 주변 온도(약 22 내지 23℃)에서 12시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 40℃ 오븐에서 12시간 동안 추가로 건조시킨 후, 두께 760 마이크론의 시트로 압축하고 2개의 유리 조각 사이에 적층하여 61.3%의 헤이즈를 얻었다. GPEC 분석 결과, 해당 재료의 수지 조성은 약 89 중량%의 고 PVOH(스킨) 수지, 및 11 중량%로 나타났다.

[0130] 실시예 18

[0131] 20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 플레이크($\frac{1}{2}$ 인치 절단, 8 메쉬 이상) 50부를 첨가하고, 주위 온도(약 22 내지 23℃)에서 3시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 1 mm 스크린의 스트레이너로 여과하였다. 여액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 오븐에서 40℃에서 12시간 동안 추가로 건조하여, 가소제 46.9 phr을 갖는 PVB 38.42부를 생성하였다. 생성된 PVB를 760 마이크론의 두께를 갖는 시트로 압축하고, 2개의 투명한 유리 조각 사이에 적층하여 헤이즈가 4.2%인 중간층을 생성하였다. 스크린 위의 재료는 건조 후 12부를 얻었으며, GPEC 분석에 따르면 스크린 위의 재료의 수지 조성이 약 31 중량%의 고 PVOH(스킨) 수지 및 69 중량%의 저 PVOH(코어) 수지와 25 phr의 가소제인 것으로 나타났다. 고 PVOH 물질의 대부분이 제거되었으며, 여과된 물질(실시예 18)은 실시예 17의 출발 물질보다 고 PVOH PVB 수지가 훨씬 적었다. 추가적으로, 실시예 18의 생성된 물질은 상당히 감소된 헤이즈 수준을 가졌다.

[0132] 실시예 19

[0133] PVB 플레이크 50부를 20 중량%의 물을 함유하는 에탄올 450부에 첨가하였다. 혼합물을 4시간 동안 교반하고 상등액을 따라냈다. 450부(에탄올 중 물 20 중량%)의 새로운 용매를 나머지 플레이크에 첨가하고 4시간 동안 교반하였다. 상기 공정을 한 번 더 반복하였다. 증발 후 추출된 플레이크는 건조된 수지 3.8부를 생성하고 증발 후 혼합 추출물은 고 PVOH 수지 및 가소제 혼합물 46부를 생성하였으며, 이는 이러한 기법 및 에탄올 물 혼합물을 사용한 매우 높은 분리 수율을 나타낸다. 더욱 오랜 시간 동안 교반하면 저 PVOH PVB 수지로부터 분리 및 제거하기 위해 더 많은 고 PVOH PVB 수지가 용해된다.

[0134] 저 PVOH PVB 수지는 원심분리를 사용하여 용액에서 분리될 수 있다. 먼저, 중간층을 혼합물에 2가지 수지 중 하나만 용해하는 용매 시스템으로 처리한 다음, 생성된 현탁액을 원심분리하여 분리를 촉진한다. 1가지 성분의 완전한 제거 또는 부분적 제거는 재활용을 위한 헤이즈 감소에 도움을 줄 수 있다.

[0135] 실시예 20

[0136] PVB 펠릿을 165 내지 174 프루프 알코올(약 5 중량%의 물을 함유한 메탄올)로 처리하였다. 혼합물을 몇 시간 동안 교반하여 점성 현탁액을 생성하였다. 상기 현탁액을 원심분리하여 상등액과 침전물을 생성하였다. 상등액은 주로 고 PVOH PVB(스킨) 수지와 가소제로 구성되었다. 침전물은 저 PVOH PVB(코어) 수지가 풍부하였다. 도 9는 출발 PVB 펠릿(상단 차트), 상등액(중앙 차트) 및 침전물(하단 차트)의 GPEC 크로마토그램을 도시한다. 170 프루프 알코올에서 5 중량% PVB Q 물질을 원심분리하면, 상등액에서 저 PVOH PVB(코어) 수지가 약 60% 감소하며, 침전물 물질이 주로 저 PVOH PVB(코어) 수지이다.

[0137] 실시예 21

[0138] PVB 펠릿을 공급물로서 사용하는 경우, 고 PVOH PVB 수지 및 저 PVOH PVB 수지의 분리는 파쇄된 PVB 플레이크를 사용한 것만큼 깨끗하지 않은데, 이는 PVB 펠릿에서 2가지 수지(코어 및 스킨)가 미리 혼합되어 있고, 용해되지 않은 물질이 훨씬 더 미세한 현탁된 입자를 형성하여 원심분리기를 사용하여 분리하기 더욱 어렵기 때문이다. 도 10은 둘 다 원심분리 후 PVB 펠릿의 상등액(상단) 및 PVB 플레이크의 상등액(하단)의 GPEC 크로마토그램을 도시한다. 170 프루프 에탄올에서 10% 중량 PVB 펠릿을 원심분리하면 상등액에서 저 PVOH PVB(코어) 수지가 36% 감소하는 것으로 나타났다. 비교를 위해, 170 프루프 에탄올에서 10% 중량 PVB 플레이크를 원심분리하면 상등액에 남아 있는 저 PVOH PVB(코어) 수지가 거의 없는 것으로 나타났다.

[0139] 실시예 22

[0140] 압출된 PVB 펠릿으로 만든 현탁액의 경우, 총 고형물 백분율(TS%)이 증가함에 따라 상등액과 현탁액 물질 사이의 분리 효율이 감소한다. 도 11에서, 원심분리 후 165 프루프 에탄올 중 10% PVB 펠릿의 상등액에 대한 GPEC 크로마토그램(상부 차트)은, 저 PVOH PVB(코어) 수지가 36% 감소한 것을 도시한다. 원심분리 후 170 프루프 에탄올에 용해된 5% PVB 펠릿의 상등액(하단 차트)은 저 PVOH PVB(코어) 수지가 60% 감소한 것으로 나타났다. 전체 고형물 수준을 10%에서 5%로 줄이면 저 PVOH PVB 수지의 감소 또는 제거가 거의 2배가 된다.

[0141] 실시예 23

[0142] 20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에, PVB 펠릿 25부를 첨가하고, 주위 온도(약 22 내지 23℃)에서 3시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 4200 rpm에서 40분 동안 원심분리하였다. 생성된 상등액 및 침전물 물질을 GPEC를 사용하여 분석하였다. 상등액 층은 저 PVOH PVB(코어)

수지의 60% 감소를 나타낸다(도 12, 상단 차트 참조). 상기 원심분리 절차를 반복하면, GPEC에 따라 상등액에서 저 PVOH PVB(코어) 수지가 82% 감소하였다(도 12, 하단 차트 참조).

[0143] 실시예 24

[0144] 24% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에 PVB 펠릿 50부를 첨가하고, 주위 온도(약 22 내지 23℃)에서 3시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 원심분리하였다. 생성된 상등액 및 침전물 물질을 GPEC를 사용하여 분석하였다. 상등액 층은 저 PVOH PVB(코어) 수지의 30% 감소를 나타낸다(도 13, 상단 차트 참조). 상기 원심분리 절차를 반복하면, GPEC에 따라 상등액에서 저 PVOH PVB(코어) 수지가 53% 감소하였다(도 13, 하단 차트 참조).

[0145] 전체 고형물 수준에 관계없이 추가 원심분리를 통해 추가 분리를 달성할 수 있다. 예를 들어, 상기 논의되고 도 12 및 13에 도시된 바와 같이, 두 번째 원심분리 단계에서 저 PVOH PVB(코어) 수지 감소율은, 각각 출발 전체 고형물 함량이 5%인 재료의 경우 60%에서 82%로, 총 고형물 함량이 10%인 경우 재료의 경우 36%에서 53%로 증가하여(각각, 실시예 23 및 24), 다단계 또는 연속 원심분리가 고 PVOH 및 저 PVOH PVB 수지의 분리를 더욱 향상시킬 수 있음을 시사한다.

[0146] 실시예 25

[0147] 20% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에, PVB 플레이크(8 메쉬 이상) 50부를 첨가하고, 주위 온도(약 22 내지 23℃)에서 3시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 원심분리하였다. 상등액을 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 오븐에서 40℃에서 12시간 동안 추가로 건조하여, 가소제 45.5 phr을 갖는 PVB 41.5부를 생성하였다. 재료를 약 760 마이크론의 두께를 갖는 시트로 압축하고, 2개의 투명한 유리 조각 사이에 적층하고, 헤이즈에 대해 테스트하였다. 헤이즈 값은 3.6%이었다. 조합된 침전된 물질은 건조 후 8부를 얻었으며, GPEC 분석에 따르면 수지 조성이 33% 고 PVOH PVB(스킨) 수지 및 67% 저 PVOH PVB(코어) 수지와 22.1 phr의 가소제인 것으로 나타났다.

[0148] 실시예 26

[0149] 9% 물을 함유하는 에탄올 450부를 1 L의 3구 재킷 유리 반응기에 채웠다. 교반된 혼합물에, PVB 플레이크 50부를 첨가하고, 주위 온도(약 22 내지 23℃)에서 3시간 동안 교반하였다. 생성된 혼합물을 원심분리하지 않고 알루미늄 트레이에 붓고, 중량 손실이 감지되지 않을 때까지 환기 후드에서 증발을 통해 건조되도록 두었다. 그런 다음, 재료를 오븐에서 40℃에서 12시간 동안 추가로 건조시키고 약 760 마이크론의 두께를 갖는 시트로 압축하였다. 그런 다음, 시트를 두 장의 투명 유리 사이에 적층하고 헤이즈를 측정하였다. 결과의 헤이즈는 51.6%이었다.

[0150] 상기 내용은 용해가 원심분리와 조합되어 고 PVOH 및 저 PVOH PVB 수지를 분리하는 또 다른 방법을 제공할 수 있음을 보여준다.

[0151] 본 발명 및 이의 바람직한 실시양태가 항목 1 내지 항목 57을 참조하여 추가로 설명된다.

[0152] 항목 1. 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법으로서,

[0153] (a) 재생 시스템(reclamation system)에 용매를 제공하는 단계;

[0154] (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하는, 단계; 및

[0155] (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계\$를 포함하는 방법.

[0156] 항목 2. 항목 1에 있어서, 제거된 저 PVOH PVB 고형물이 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하고, 방법이 (d) 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 저 PVOH PVB 고형물로부터 분리하는 단계를 추가로 포함하는, 방법.

[0157] 항목 3. 항목 2에 있어서, 단계 (d)의 분리가 저 PVOH PVB 수지를 세척하는 것을 포함하는, 방법.

[0158] 항목 4. 항목 2에 있어서, 단계 (d)의 분리가 용매를 저 PVOH PVB 수지에 첨가하여 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 추가로 용해시키고 제거하는 것을 포함하는, 방법.

[0159] 항목 5. 항목 1에 있어서, (e) 저 PVOH PVB 고형물 중 가소제 및 고 PVOH PVB의 수준을 측정하는 단계를 추가로

포함하는 방법.

- [0160] 항목 6. 항목 5에 있어서, 단계 (a) 내지 (e)를 반복하는 것을 추가로 포함하는 방법.
- [0161] 항목 7. 항목 6에 있어서, 80% 이상(85%, 90%, 95%, 96%, 97%, 98% 또는 99% 이상)의 고 PVOH PVB 수지가 재활용된 PVB로부터 제거되는, 방법.
- [0162] 항목 8. 항목 1에 있어서, 단계 (b)가 약 5℃ 내지 약 60℃(5℃ 내지 약 50℃, 5℃ 내지 약 40℃, 5℃ 내지 약 30℃, 5℃ 내지 약 20℃ 또는 5℃ 내지 약 10℃)의 온도에서 교반하는 것을 포함하는, 방법.
- [0163] 항목 9. 항목 1에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 펠렛의 형태인, 방법.
- [0164] 항목 10. 항목 1에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각의 형태인, 방법.
- [0165] 항목 11. 항목 1에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각 및 PVB 펠렛인, 방법.
- [0166] 항목 12. 항목 1에 있어서, 단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 배치 반응기 시스템을 포함하는, 방법.
- [0167] 항목 13. 항목 1에 있어서, 단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물을 포함하는, 방법.
- [0168] 항목 14. 항목 13에 있어서, 알코올이 에탄올, 메탄올, 아이소프로판올 또는 둘 이상의 알코올의 혼합물인, 방법.
- [0169] 항목 15. 항목 14에 있어서, 알코올이 에탄올이고, 물이 약 16 중량% 내지 약 24 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0170] 항목 16. 항목 14에 있어서, 알코올이 에탄올이고, 물이 약 20 중량% 내지 약 24 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0171] 항목 17. 항목 14에 있어서, 알코올이 메탄올이고, 물이 약 0 중량% 내지 약 9.5 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0172] 항목 18. 항목 9에 있어서, 재활용된 PVB가 약 2 내지 약 20 mm의 직경을 갖는, 방법.
- [0173] 항목 19. 항목 1에 있어서, 단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 연속 재생 시스템을 포함하는, 방법.
- [0174] 항목 20. 항목 19에 있어서, 연속 재생 시스템이 연속 교반-탱크 반응기인, 방법.
- [0175] 항목 21. 항목 1에 있어서, 재활용된 PVB가 1 중량% 이상(5 중량%, 10 중량%, 15 중량% 또는 20 중량% 이상)의 양으로 용매에 첨가되는, 방법.
- [0176] 항목 22. 항목 1 내지 항목 21 중 어느 하나에 따른 방법에 의해 형성된 저 PVOH PVB 수지.
- [0177] 항목 23. 항목 22에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 수지층.
- [0178] 항목 24. 항목 23에 따른 수지층을 포함하는 중간층.
- [0179] 항목 25. 항목 24에 있어서, 제2 수지층을 추가로 포함하는 중간층.
- [0180] 항목 26. 항목 23에 있어서, 수지층이 코어층이고, 중간층이 제2 수지층 및 제3 수지층을 추가로 포함하고, 이때 코어층이 제2 수지층과 제3 수지층 사이에 위치하는, 중간층.
- [0181] 항목 27. 항목 22에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 조성물.
- [0182] 항목 28. 제1 기판, 항목 24에 따른 중간층, 및 제2 기판을 포함하고, 상기 중간층이 상기 제1 기판과 상기 제2 기판 사이에 위치하는, 적층체.
- [0183] 항목 29. 폴리(비닐 부티랄)(PVB)의 회수 방법으로서,
- [0184] (a) 재생 시스템(reclamation system)에 용매를 제공하는 단계;
- [0185] (b) 재활용된 PVB를 상기 용매에 첨가하고 교반하여 PVB 혼합물을 형성하는 단계로서, 상기 PVB 혼합물이 용해된 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는 액체 부분, 및 저 PVOH PVB 고형물을 포함하는 고체 부분을 포함하

는, 단계; 및

- [0186] (c) 상기 PVB 혼합물을 여과하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거하는 단계로서, 이때 제거된 저 PVOH 고형물이 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 포함하는, 단계
- [0187] 를 포함하는 방법.
- [0188] 항목 30. 항목 29에 있어서, 저 PVOH 고형물이 재활용된 PVB로부터의 20% 미만(15%, 10%, 5%, 4%, 3%, 2% 또는 1%)의 고 PVOH PVB 수지를 포함하는, 방법.
- [0189] 항목 31. 항목 28에 있어서, (d) 저 PVOH PVB 고형물로부터 잔류 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 분리하는 단계를 추가로 포함하는 방법.
- [0190] 항목 32. 항목 31에 있어서, 단계 (d)의 분리가 저 PVOH PVB 수지를 세척하는 것을 포함하는, 방법.
- [0191] 항목 33. 항목 31에 있어서, 단계 (d)의 분리가 용매를 저 PVOH PVB 수지에 첨가하여 고 PVOH PVB 수지 및 가소제를 추가로 용해시키고 제거하는 것을 포함하는, 방법.
- [0192] 항목 34. 항목 29에 있어서, (e) 저 PVOH PVB 고형물 중 가소제 및 고 PVOH PVB의 수준을 측정하는 단계를 추가로 포함하는 방법.
- [0193] 항목 35. 항목 34에 있어서, 단계 (a) 내지 (e)를 반복하는 것을 추가로 포함하는 방법.
- [0194] 항목 36. 항목 35에 있어서, 80% 이상(85%, 90%, 95%, 96%, 97%, 98% 또는 99% 이상)의 고 PVOH PVB 수지가 재활용된 PVB로부터 제거되는, 방법.
- [0195] 항목 37. 항목 29에 있어서, 단계 (b)가 약 5℃ 내지 약 60℃(5℃ 내지 약 50℃, 5℃ 내지 약 40℃, 5℃ 내지 약 30℃, 5℃ 내지 약 20℃ 또는 5℃ 내지 약 10℃)의 온도에서 교반하는 것을 포함하는, 방법.
- [0196] 항목 38. 항목 29에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 펠릿의 형태인, 방법.
- [0197] 항목 39. 항목 29에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각의 형태인, 방법.
- [0198] 항목 40. 항목 29에 있어서, 재활용된 PVB가 PVB 플레이크, 또는 PVB 필름 또는 시트의 조각 및 PVB 펠릿인, 방법.
- [0199] 항목 41. 항목 29에 있어서, 단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 배치 반응기 시스템을 포함하는, 방법.
- [0200] 항목 42. 항목 29에 있어서, 단계 (a) 동안 첨가되는 용매가 물과 알코올의 혼합물을 포함하는, 방법.
- [0201] 항목 43. 항목 42에 있어서, 알코올이 에탄올, 메탄올, 아이소프로판올 또는 둘 이상의 알코올의 혼합물인, 방법.
- [0202] 항목 44. 항목 43에 있어서, 알코올이 에탄올이고, 물이 약 16 중량% 내지 약 24 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0203] 항목 45. 항목 43에 있어서, 알코올이 에탄올이고, 물이 약 20 중량% 내지 약 24 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0204] 항목 46. 항목 43에 있어서, 알코올이 메탄올이고, 물이 약 0 중량% 내지 약 9.5 중량%의 양으로 존재하는, 방법.
- [0205] 항목 47. 항목 39에 있어서, 재활용된 PVB가 약 2 내지 약 20 mm의 직경을 갖는, 방법.
- [0206] 항목 48. 항목 29에 있어서, 단계 (a)에서 재활용된 PVB가 제공되는 재생 시스템이 연속 재생 시스템을 포함하는, 방법.
- [0207] 항목 49. 항목 48에 있어서, 연속 재생 시스템이 연속 교반-탱크 반응기인, 방법.
- [0208] 항목 50. 항목 29에 있어서, 재활용된 PVB가 1 중량% 이상(5 중량%, 10 중량%, 15 중량% 또는 20 중량% 이상)의 양으로 용매에 첨가되는, 방법.
- [0209] 항목 51. 항목 1 내지 항목 50 중 어느 하나에 따른 방법에 의해 형성된 저 PVOH PVB 수지.

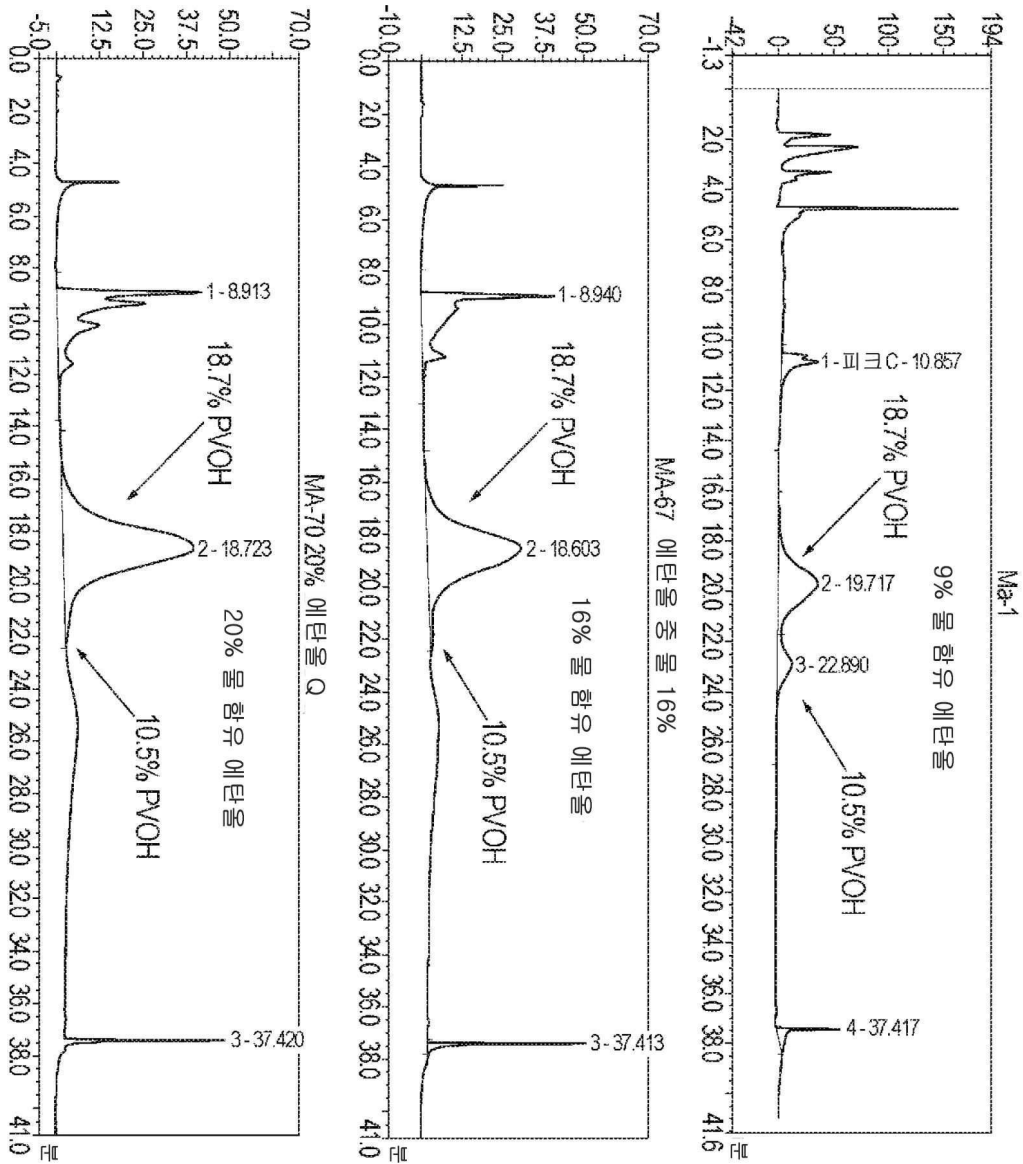
- [0210] 항목 52. 항목 48에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 수지층.
- [0211] 항목 53. 항목 49에 따른 수지층을 포함하는 중간층.
- [0212] 항목 54. 항목 53에 있어서, 제2 수지층을 추가로 포함하는 중간층.
- [0213] 항목 55. 항목 52에 있어서, 수지층이 코어층이고, 중간층이 제2 수지층 및 제3 수지층을 추가로 포함하고, 이때 코어층이 제2 수지층과 제3 수지층 사이에 위치하는, 중간층.
- [0214] 항목 56. 항목 51에 따른 저 PVOH PVB 수지를 포함하는 조성물.
- [0215] 항목 57. 제1 기관, 항목 53에 따른 중간층, 및 제2 기관을 포함하고, 상기 중간층이 상기 제1 기관과 상기 제2 기관 사이에 위치하는, 적층체.

도면

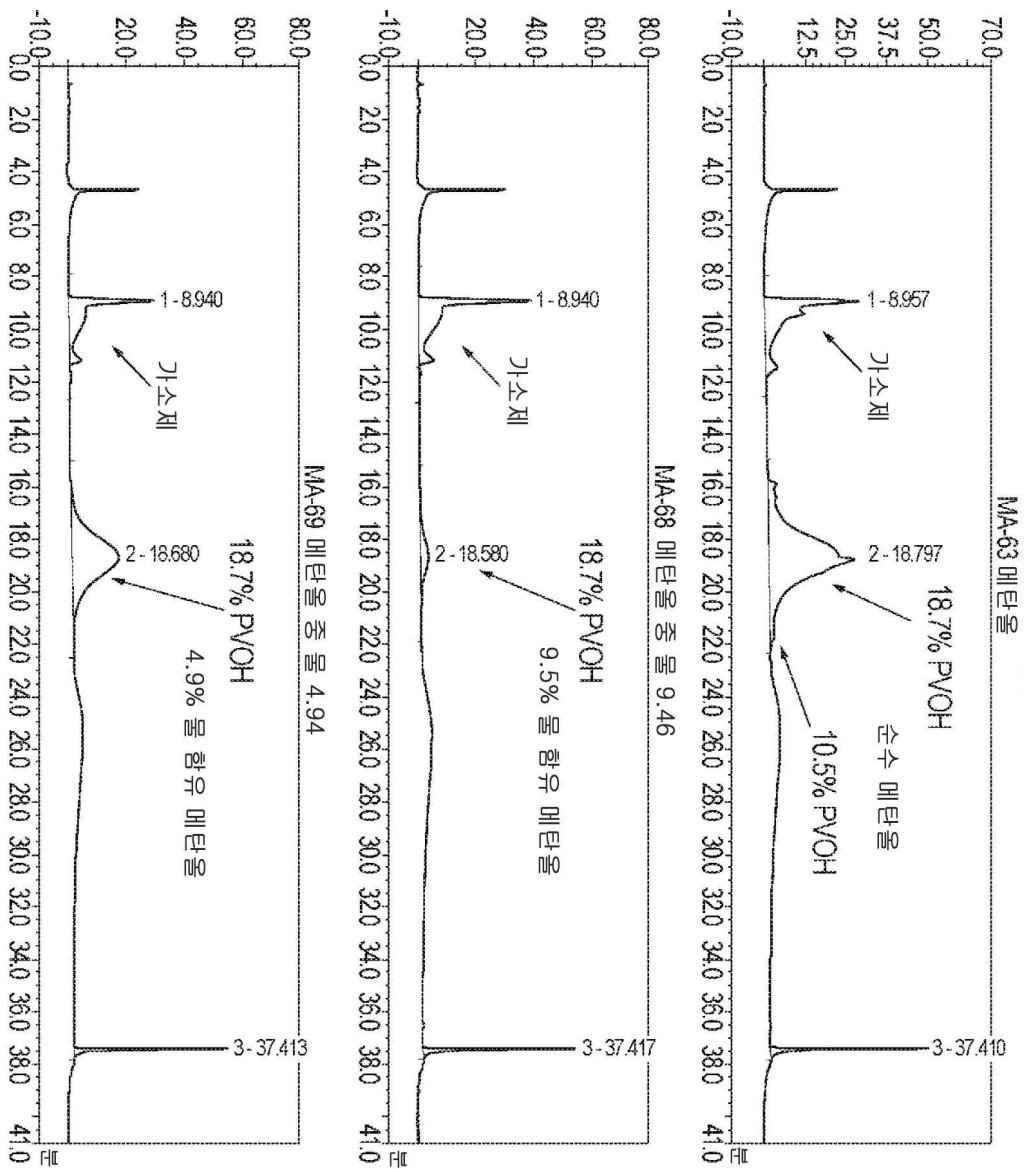
도면1

S1	용매 또는 용매 혼합물을 재생 시스템에 제공 및 교반
S2	재활용 RVB 재료가 재생 시스템에 제공되고 교반되어 혼합물 형성
S3	PVB 혼합물을 일정 시간 및 온도에서 교반하여 PVB 혼합물로부터 고 PVOH PVB 및 가소제를 추출 또는 용해
S4	교반 및 추출/용해 후, PVB 혼합물을 여과 또는 제거하여 저 PVOH PVB 고형물을 제거
S5	저 PVOH PVB 고형물 중 가소제 및 고 PVOH PVB 수준을 측정하여 추가 재생의 필요성 여부를 결정
S6	건조된 저 PVOH PVB 중합체 또는 용해된 고 PVOH PVB 용액 중 하나 또는 둘 다 추가 가공 가능

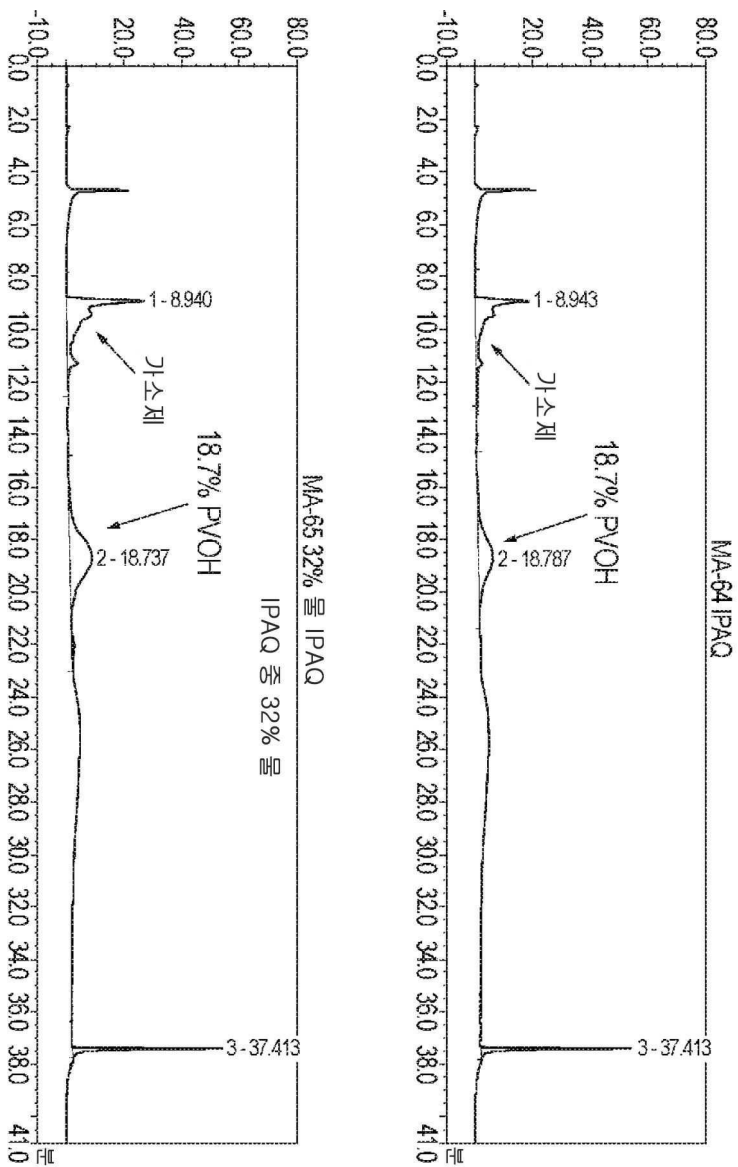
도면2



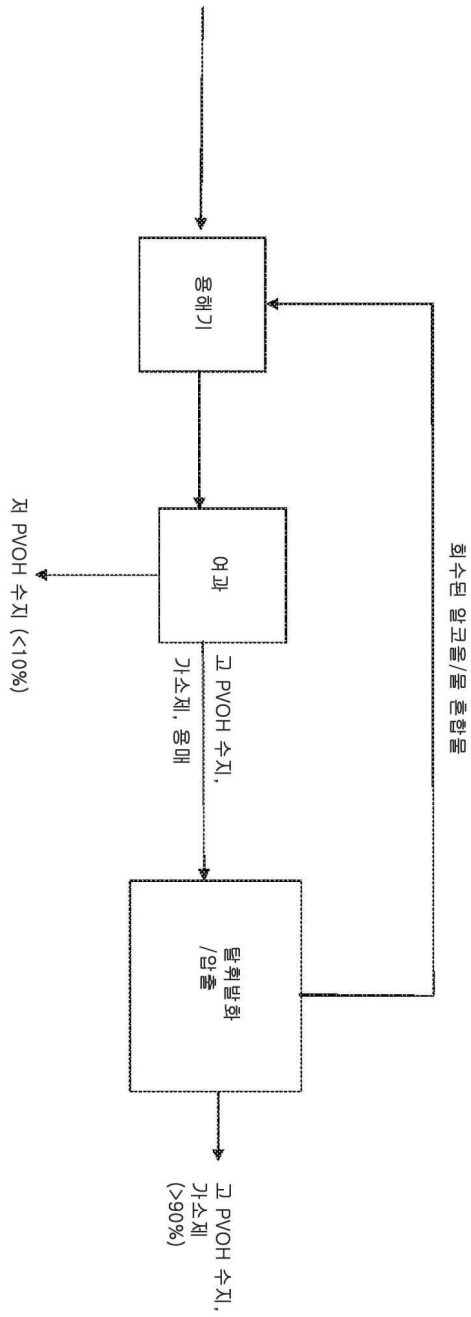
도면3



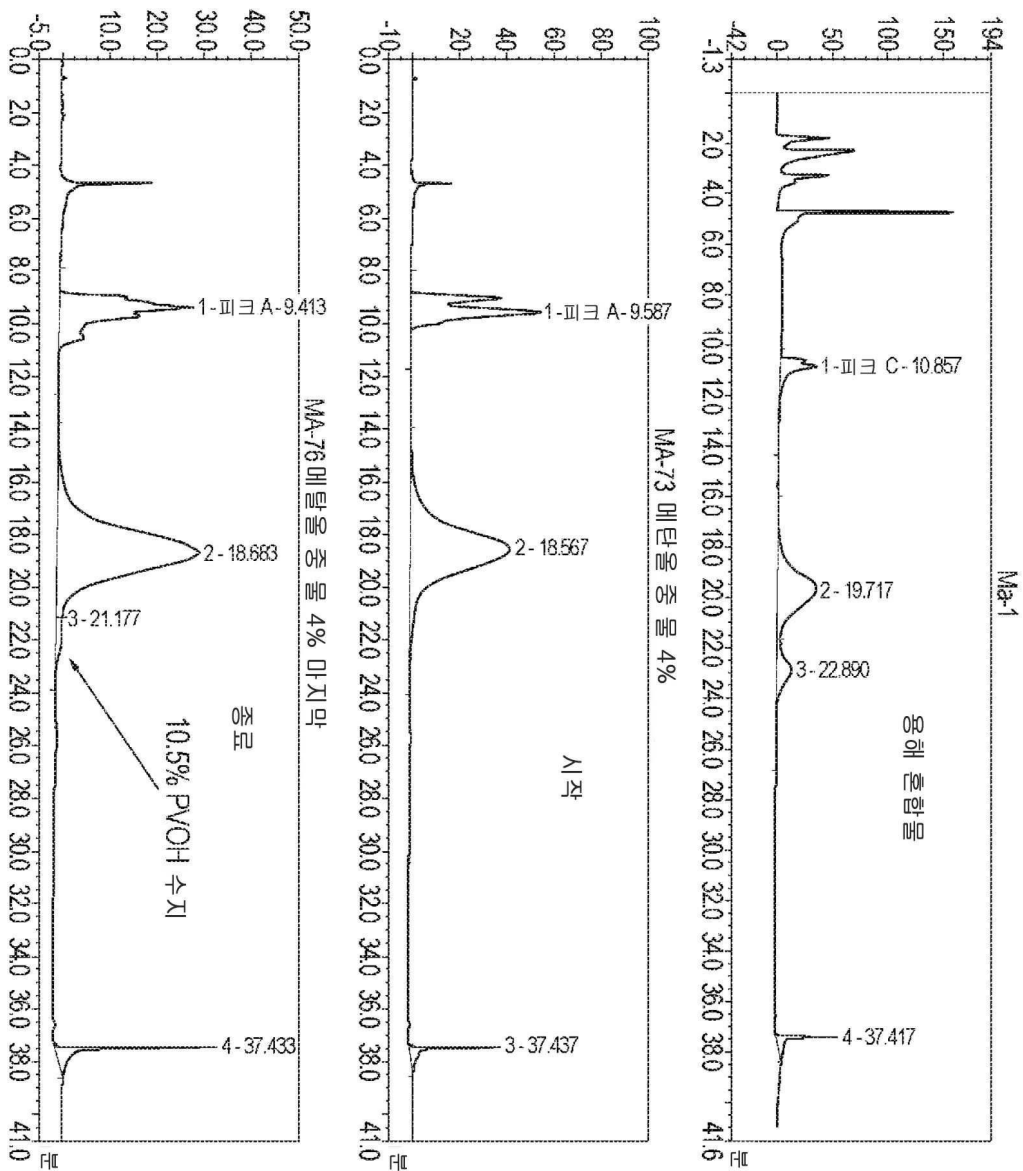
도면4



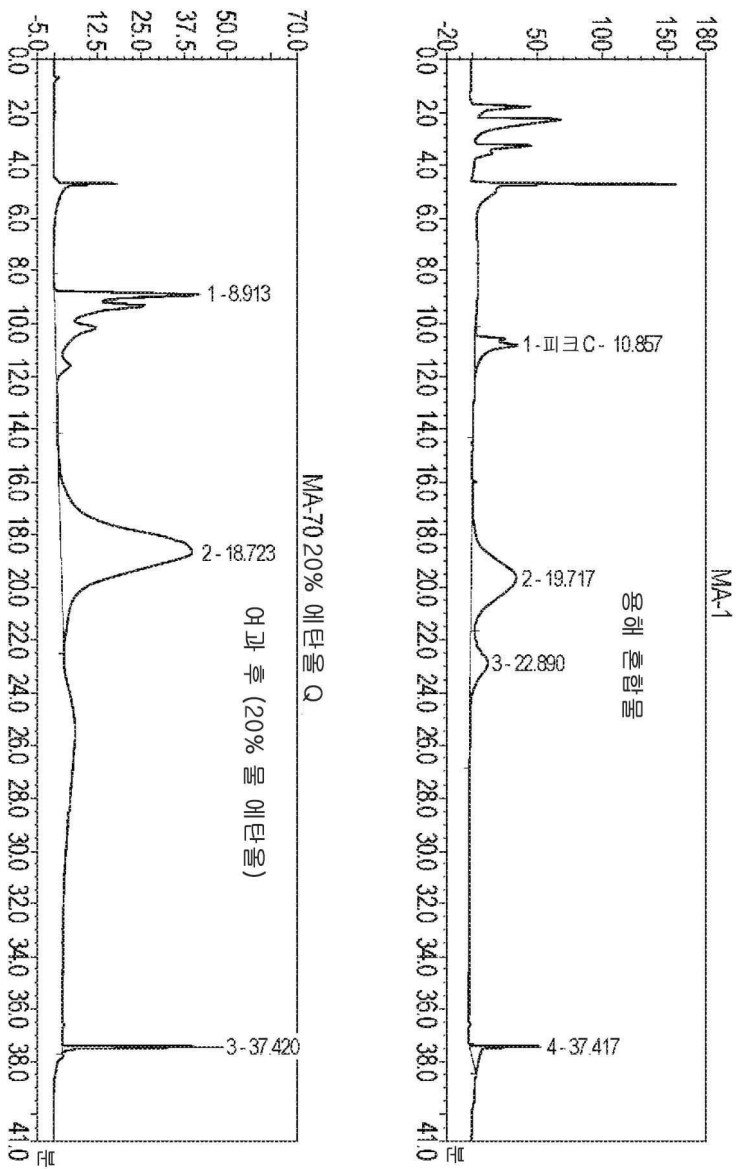
도면5



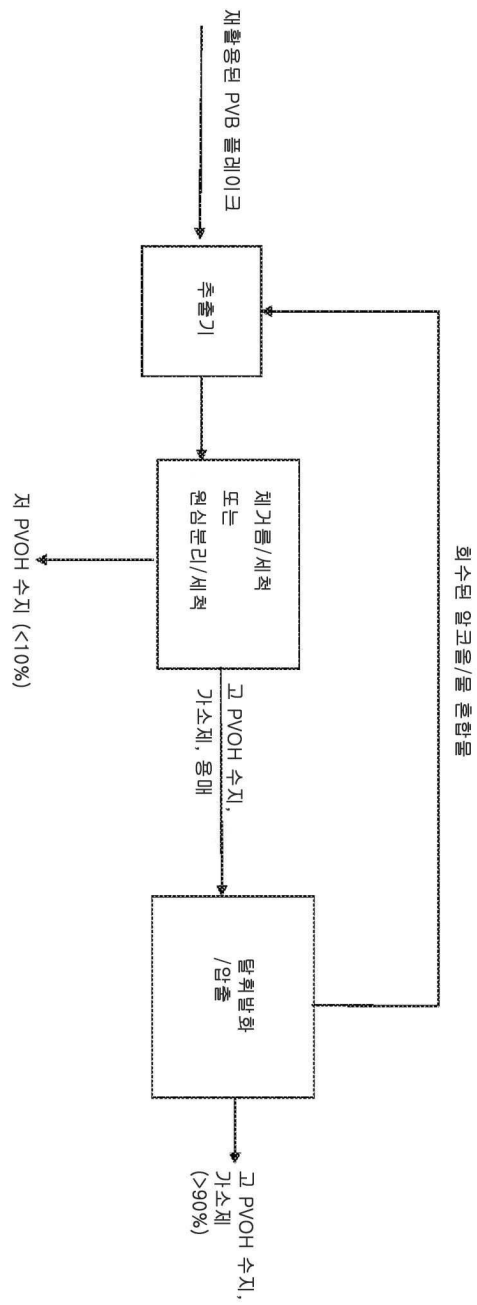
도면6



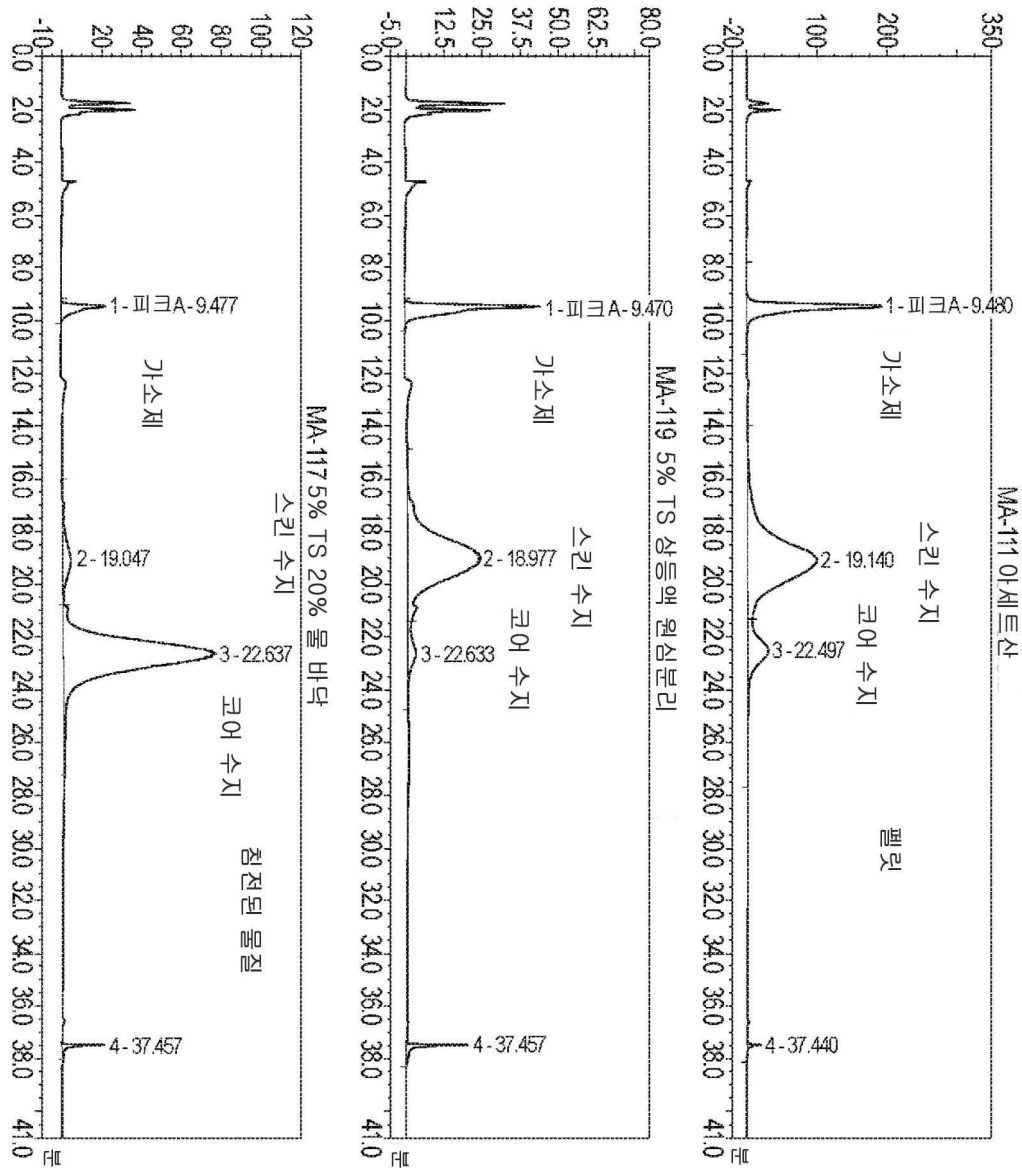
도면7



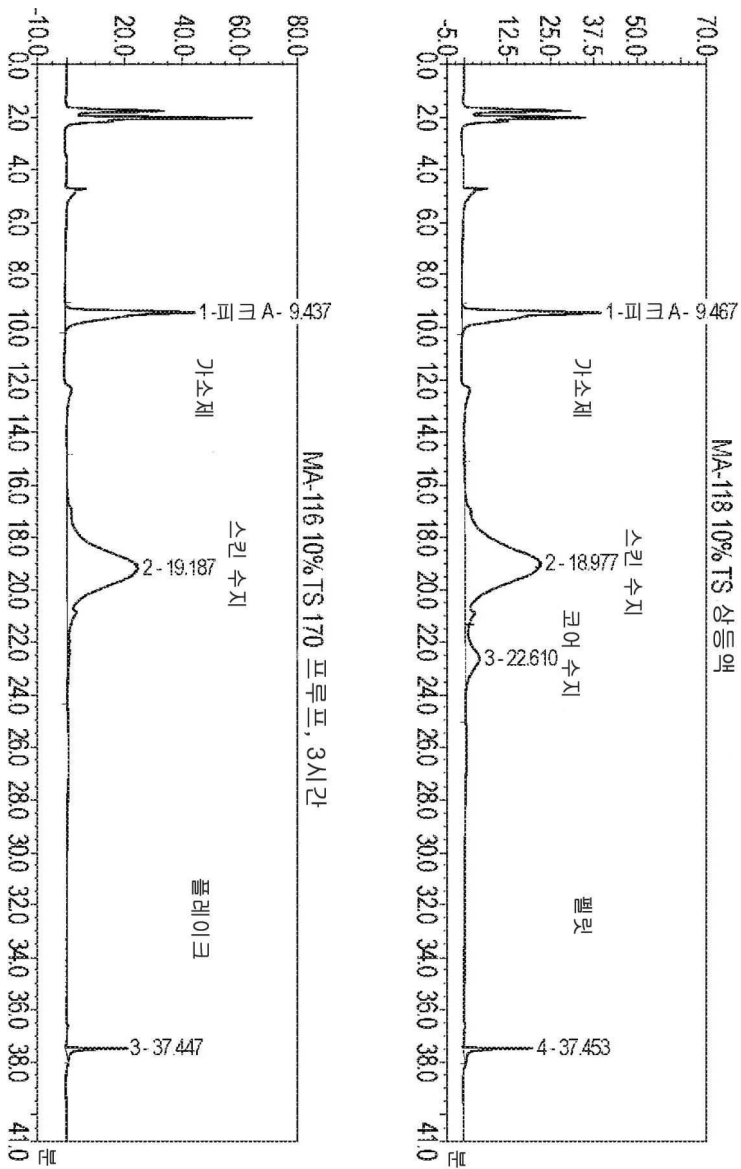
도면8



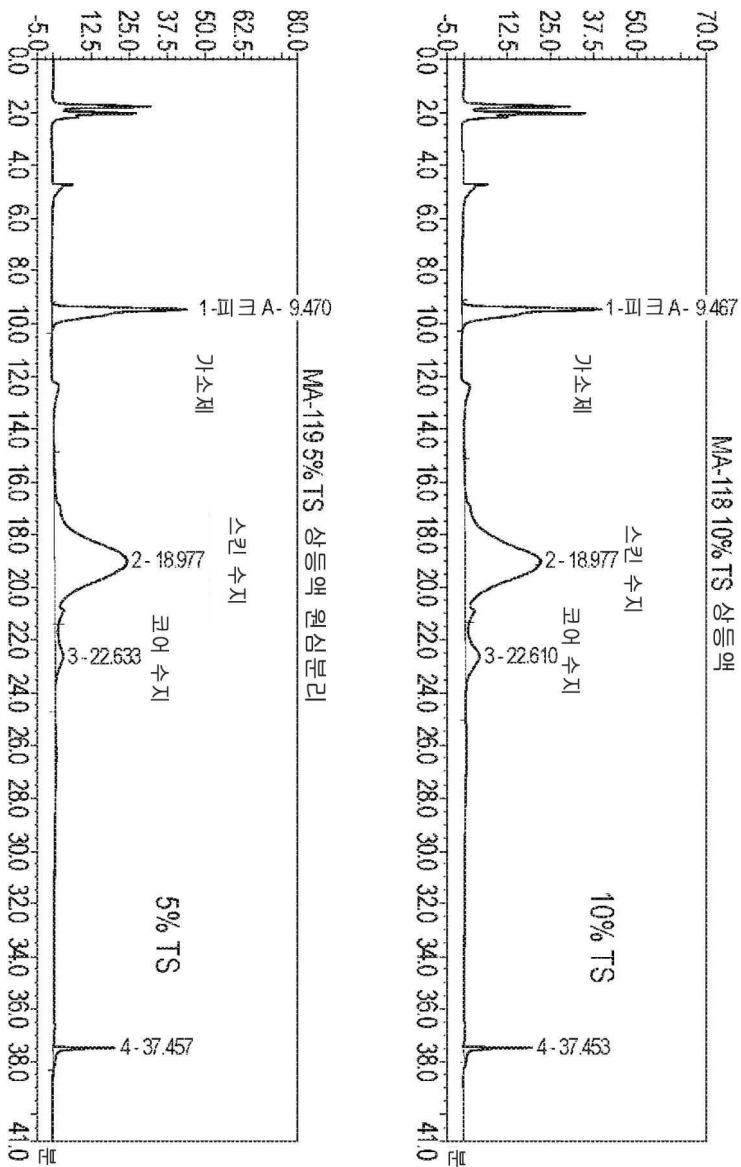
도면9



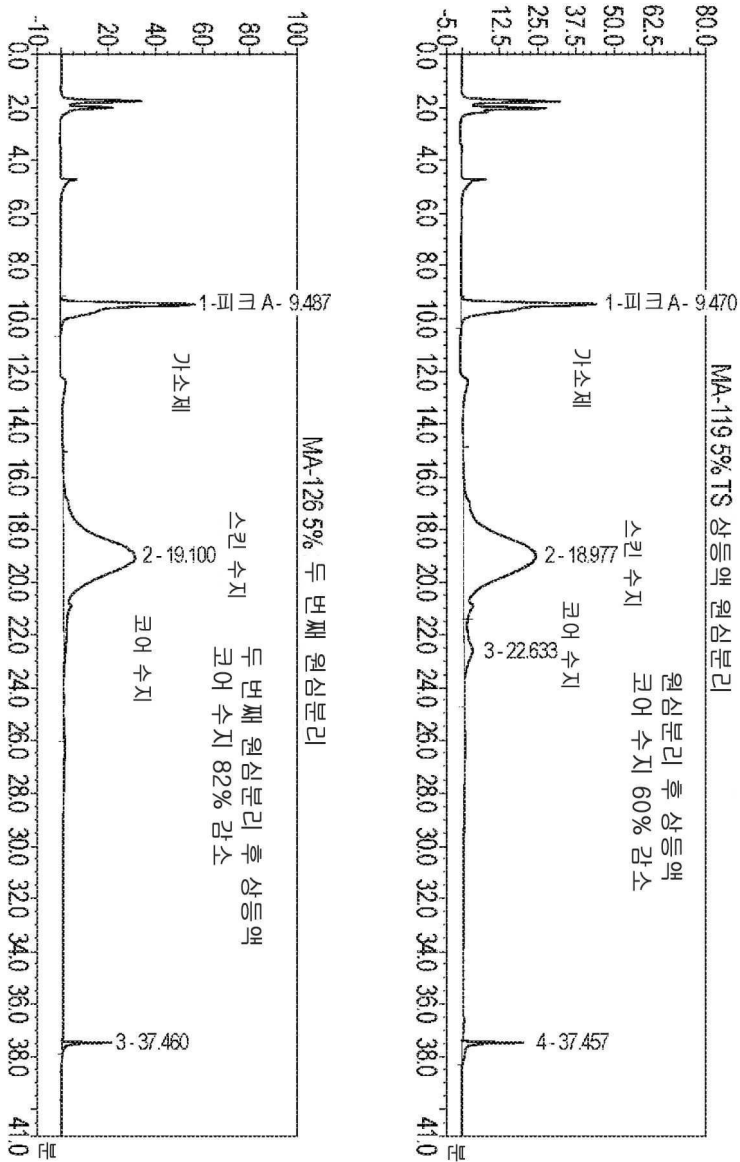
도면10



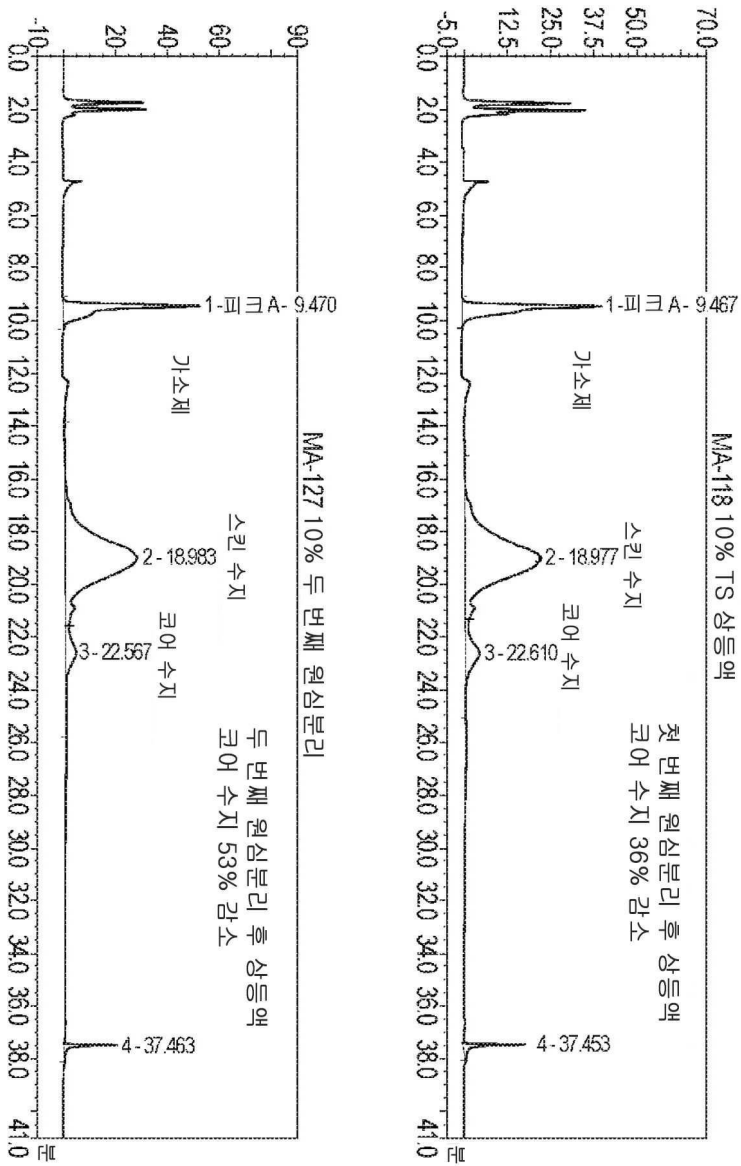
도면11



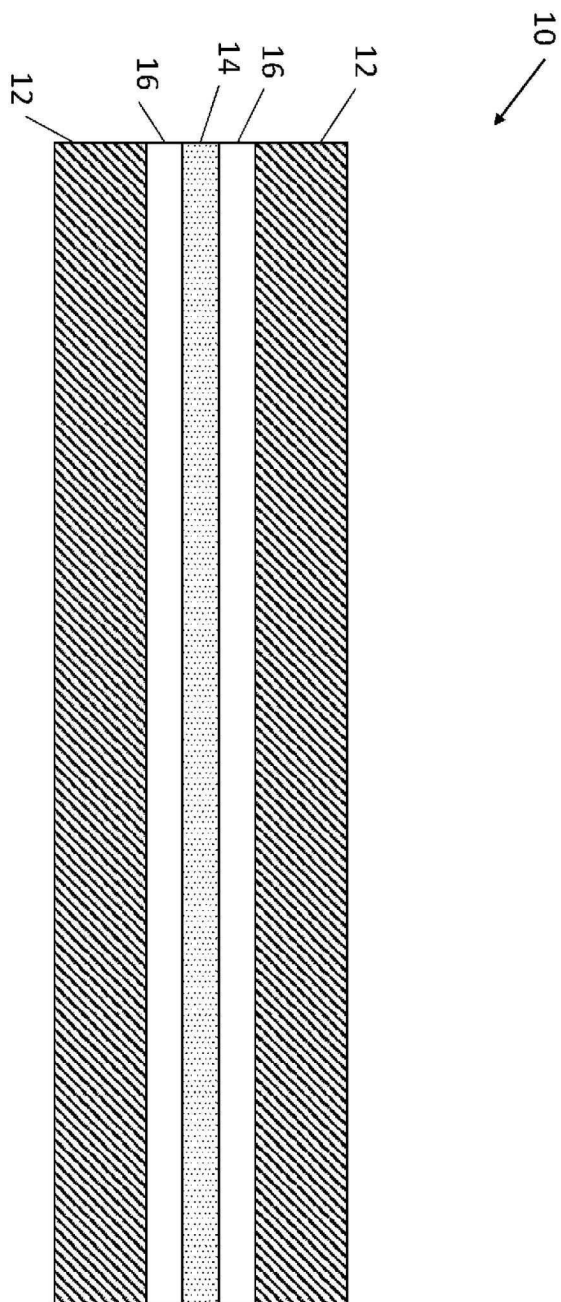
도면12



도면13



도면14



도면15

