



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2024-0113532

(43) 공개일자 2024년07월22일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

B32B 7/022 (2019.01) B32B 17/10 (2006.01)

B32B 37/15 (2006.01)

(52) CPC특허분류

B32B 7/022 (2022.08)

B32B 17/10036 (2021.01)

(21) 출원번호 10-2024-7020589

(22) 출원일자(국제) 2022년11월17일

심사청구일자 없음

(85) 번역문제출일자 2024년06월20일

(86) 국제출원번호 PCT/US2022/050188

(87) 국제공개번호 WO 2023/091537

국제공개일자 2023년05월25일

(30) 우선권주장

63/264,399 2021년11월22일 미국(US)

(71) 출원인

솔루티아인코포레이티드

미합중국 미주리주 세인트 루이스시 매리빌 센터
드라이브 575

(72) 발명자

판 더 피버르 스테인 시몬 폴

벨기에 오스트-플란데런 헨트 9000 뷔스 201 로데
루스트라트 1아

크레이텐스 한스 헤르만 마르타

벨기에 이스트 플랜더스 (오브이) 에이클로 9900
조네블룸스트라트 23

(74) 대리인

제일특허법인(유)

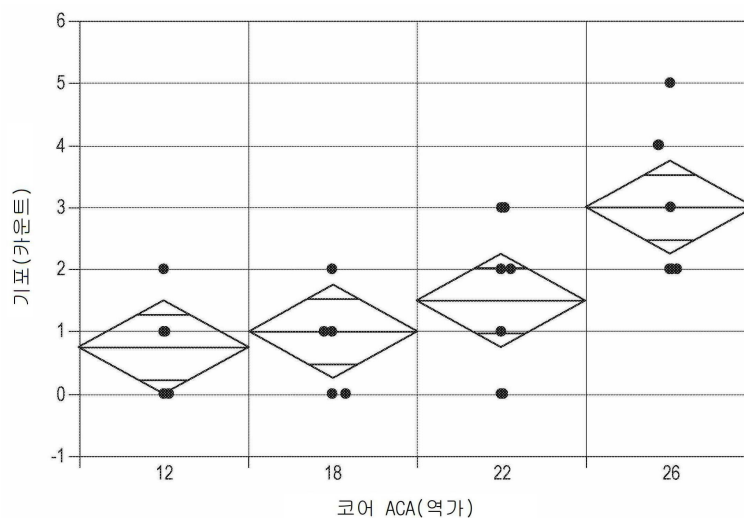
전체 청구항 수 : 총 20 항

(54) 발명의 명칭 옛지 기포가 감소된 중합체 중간층

(57) 요약

광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층이 개시된다. 상기 중합체 중간층은 제1 중합체 층, 제2 중합체 층, 및 제3 중합체 층을 포함한다. 상기 제1 중합체 층은 상기 제2 중합체 층과 제3 중합체 층 사이에 위치한다. 상기 제1 중합체 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.

대표도



(52) CPC특허분류

B32B 17/10568 (2021.01)
B32B 17/10688 (2021.01)
B32B 17/10761 (2021.01)
B32B 17/1088 (2021.01)
B32B 37/153 (2020.08)
B32B 2250/03 (2013.01)
B32B 2250/05 (2013.01)
B32B 2307/102 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층(interlayer)으로서,

상기 중합체 중간층은,

제1 중합체 층;

제2 중합체 층; 및

제3 중합체 층

을 포함하고,

상기 제1 중합체 층은 상기 제2 중합체 층과 상기 제3 중합체 층 사이에 위치하고,

상기 제1 중합체 층은, 약 0.1 내지 15 역가(titer) 범위의 접착 조절제(adhesion control agent)를 포함하는 수지를 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 제1 중합체 층의 수지가 폴리(비닐 부티랄)(PVB)을 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서,

상기 제1 중합체 층내의 접착 조절제가 마그네슘 염을 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제1 중합체 층내의 접착 조절제가 약 0.1 내지 13 역가, 0.1 내지 12 역가, 0.1 내지 11 역가, 0.1 내지 10 역가, 0.1 내지 9 역가, 0.1 내지 8 역가, 0.1 내지 6 역가, 0.1 내지 5 역가, 0.5 내지 15 역가, 0.5 내지 13 역가, 0.5 내지 12 역가, 0.5 내지 11 역가, 0.5 내지 10 역가, 0.5 내지 9 역가, 0.5 내지 8 역가, 0.5 내지 6 역가, 0.5 내지 5 역가, 5 내지 15 역가, 5 내지 13 역가, 5 내지 12 역가, 5 내지 11 역가, 5 내지 10 역가, 5 내지 9 역가, 5 내지 8 역가, 5 내지 6 역가, 8 내지 15 역가, 8 내지 13 역가, 8 내지 12 역가, 8 내지 11 역가, 8 내지 10 역가, 8 내지 9 역가, 10 내지 15 역가, 10 내지 13 역가, 10 내지 12 역가, 10 내지 11 역가, 12 내지 15 역가, 및/또는 12 내지 13 역가 범위인, 중합체 중간층.

청구항 5

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제1 중합체 층이 상기 제2 및 제3 중합체 층보다 더 연질인, 중합체 중간층.

청구항 6

광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층으로서,

상기 중합체 중간층은,

코어 층;

제1 스킨 층; 및

제2 스킨 층

을 포함하고,

상기 코어 층은 상기 제1 스킨 층과 제2 스킨 층 사이에 위치하고,

상기 코어 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 코어 층의 수지가 PVB를 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 8

제6항 또는 제7항에 있어서,

상기 코어 층내의 접착 조절제가 마그네슘 염을 포함하는, 중합체 중간층.

청구항 9

제6항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 코어 층내의 접착 조절제가 약 0.1 내지 13 역가, 0.1 내지 12 역가, 0.1 내지 11 역가, 0.1 내지 10 역가, 0.1 내지 9 역가, 0.1 내지 8 역가, 0.1 내지 6 역가, 0.1 내지 5 역가, 0.5 내지 15 역가, 0.5 내지 13 역가, 0.5 내지 12 역가, 0.5 내지 11 역가, 0.5 내지 10 역가, 0.5 내지 9 역가, 0.5 내지 8 역가, 0.5 내지 6 역가, 0.5 내지 5 역가, 5 내지 15 역가, 5 내지 13 역가, 5 내지 12 역가, 5 내지 11 역가, 5 내지 10 역가, 5 내지 9 역가, 5 내지 8 역가, 5 내지 6 역가, 8 내지 15 역가, 8 내지 13 역가, 8 내지 12 역가, 8 내지 11 역가, 8 내지 10 역가, 8 내지 9 역가, 10 내지 15 역가, 10 내지 13 역가, 10 내지 12 역가, 10 내지 11 역가, 12 내지 15 역가, 및/또는 12 내지 13 역가 범위인, 중합체 중간층.

청구항 10

제1항 내지 제9항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 중합체 중간층이 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층되어(laminated) 적층 유리 패널을 형성할 때, 상기 유리 패널이, 엣지 기포 시험을 사용하여 결정시, 2개 이하의 엣지 기포 또는 1개 이하의 엣지 기포를 포함하고/하거나 엣지 기포를 포함하지 않는, 중합체 중간층.

청구항 11

제1항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 중합체 중간층의 두께가 상기 중합체 중간층의 길이를 따라 일반적으로 일정한, 중합체 중간층.

청구항 12

제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 중합체 중간층의 두께가 상기 중합체 중간층의 길이에 따라 변하여, 상기 중합체 중간층이 쐐기 형상(wedge shape)을 갖게 되는, 중합체 중간층.

청구항 13

제6항 내지 제12항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 코어 층이 상기 제1 및 제2 스킨 중합체 층보다 더 연질인, 중합체 중간층.

청구항 14

광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층을 형성하는 방법으로서,

상기 방법은,

- (a) 제1 중합체 용융물을 압출하여 제1 중합체 층을 형성하는 단계; 및
(b) 제2 중합체 용융물을 압출하여 제2 중합체 층 및 제3 중합체 층을 형성하는 단계
를 포함하고,

상기 단계 (a) 및 (b)의 압출 시, 상기 제1 중합체 층은 상기 제2 중합체 층과 상기 제3 중합체 층 사이에 위치하고,

상기 제1 중합체 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함하는, 방법.

청구항 15

제14항에 있어서,

상기 단계 (a) 및 (b)의 압출은 공압출을 통해 수행되고,

상기 제1 중합체 층의 수지는 PVB를 포함하고,

상기 제1 중합체 층내의 접착 조절제는 마그네슘 염을 포함하는, 방법.

청구항 16

제14항 또는 제15항에 있어서,

상기 제1 중합체 층내의 접착 조절제가 약 0.1 내지 13 역가, 0.1 내지 12 역가, 0.1 내지 11 역가, 0.1 내지 10 역가, 0.1 내지 9 역가, 0.1 내지 8 역가, 0.1 내지 6 역가, 0.1 내지 5 역가, 0.5 내지 15 역가, 0.5 내지 13 역가, 0.5 내지 12 역가, 0.5 내지 11 역가, 0.5 내지 10 역가, 0.5 내지 9 역가, 0.5 내지 8 역가, 0.5 내지 6 역가, 0.5 내지 5 역가, 5 내지 15 역가, 5 내지 13 역가, 5 내지 12 역가, 5 내지 11 역가, 5 내지 10 역가, 5 내지 9 역가, 5 내지 8 역가, 5 내지 6 역가, 8 내지 15 역가, 8 내지 13 역가, 8 내지 12 역가, 8 내지 11 역가, 8 내지 10 역가, 8 내지 9 역가, 10 내지 15 역가, 10 내지 13 역가, 10 내지 12 역가, 10 내지 11 역가, 12 내지 15 역가, 및/또는 12 내지 13 역가 범위인, 방법.

청구항 17

제14항 내지 제16항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 방법이,

- (c) 상기 중합체 중간층을 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층하여 적층 유리 패널을 형성하는 단계
를 추가로 포함하고,

상기 단계 (c)의 적층 시, 상기 적층 유리 패널이, 엠티 기포 시험을 사용하여 결정시, 2개 이하의 엠티 기포 또는 1개 이하의 엠티 기포를 포함하고/하거나, 엠티 기포를 포함하지 않는, 방법.

청구항 18

제14항 내지 제17항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 중합체 중간층의 두께가 상기 중합체 중간층의 길이를 따라 일반적으로 일정한, 방법.

청구항 19

제14항 내지 제18항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 중합체 중간층의 두께가 상기 중합체 중간층의 길이를 따라 변하여, 상기 중합체 중간층이 췌기 형상을 갖게 되는, 방법.

청구항 20

제14항 내지 제19항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 제1 중합체 층이 상기 제2 및 제3 중합체 층보다 더 연질인, 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은, 중합체 중간층(interlayer) 및 중합체 중간층을 포함하는 다중층(multiple layer) 패널 분야에 관한 것이다. 더욱 구체적으로, 본 발명은, 다중 중합체 층을 포함하는 중합체 중간층 분야에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 다중층 패널은, 기재(예컨대, 비제한적으로, 유리, 폴리에스터, 폴리아크릴레이트 또는 폴리카보네이트)의 2개의 시트와 이들 사이에 개재된 하나 이상의 중합체 중간층으로 구성된 패널이다. 접합 다중층 유리 패널(laminated multiple layer glass panel)은 통상적으로 건축용 윈도우 용도, 자동차 및 비행기의 윈도우, 및 광전지 태양광 패널에서 이용된다. 처음 두 용도는 통상적으로 접합 안전 유리(laminated safety glass)로 지칭된다. 접합 안전 유리에서 중간층의 주요 기능은, 유리에 가해지는 충격 또는 힘으로부터 유래하는 에너지를 흡수하고, 힘이 가해져 유리가 파손되는 경우에 조각도 유리의 층들을 결합된 상태로 유지하며, 유리가 날카로운 조각으로 깨지는 것을 방지하는 것이다. 추가적으로, 상기 중간층은 또한 유리에 우선적 방음 등급(preferential sound insulation rating)을 제공하고, UV 및/또는 IR 광 투과율을 감소시키며, 연관된 윈도우의 미적 매력을 향상시킬 수 있다. 예를 들어, 바람직한 음향 특성을 갖는 접합 유리 패널이 생산되어, 더 조용한 내부 공간을 제공하였다.

[0003] 또한, 접합 유리 패널은, 계기판의 이미지 또는 기타 중요한 정보를 차량 운전자의 눈높이에 맞는 윈드실드(windshield) 상의 위치에 투사하는 헤드업 디스플레이("HUD(heads-up display)") 시스템(헤드업 시스템으로도 지칭됨)이 장착된 차량에 사용되었다. 이러한 디스플레이를 통해 운전자는 대시보드 정보에 시각적으로 접근하면서 향후 이동 경로에 집중하게 된다. 일반적으로, 자동차 또는 항공기의 HUD 시스템은 투사된 이미지를 부분적으로 반사하기 위해 차량 윈드스크린(windscreen)의 내부 표면을 사용한다. 그러나, 차량 윈드스크린의 외부 표면에서 2차 반사가 발생하여, 약한 2차 이미지 또는 "고스트(ghost)" 이미지가 형성된다. 이러한 2개의 반사 이미지는 위치가 오프셋(offset)되어 있기 때문에, 이중 이미지가 종종 관찰되어, 운전자에게 바람직하지 않은 시청 경험(viewing experience)을 유발한다. 균일하고 일정한 두께를 갖는 윈드실드 상에 이미지가 투사되는 경우, 유리의 내측 표면 및 외측 표면에서 반사되는 투사된 이미지의 위치 차이로 인해, 간섭 이중(interfering double) 이미지, 또는 반사 고스트(reflected ghost) 이미지가 생성된다.

[0004] 이러한 이중 이미지 또는 고스트 이미지를 처리하는 한 가지 방법은 내부 유리 시트와 외부 유리 시트를 서로 비스듬한 각도로 배향시키는 것이다. 이는 반사된 이미지의 위치를 단일 지점으로 정렬하고, 이로써 단일 이미지를 생성한다. 전형적으로, 이는, 불균일한 두께를 갖는 적어도 하나의 영역을 포함하는 쐐기형(wedge-shaped) 또는 "테이퍼형(tapered)" 중간층을 사용하여 내부 시트에 대해 외부 시트를 변위시킴으로써(displacing) 수행된다. 다수의 통상적인 테이퍼형 중간층은 전체 HUD 영역에 걸쳐 일정한 쐐기 각도를 포함하지만, 최근에는 HUD 영역에 걸쳐 다중 쐐기 각도를 포함하는 몇몇 중간층이 개발되었다.

[0005] 유리 패널에 대해 요구되는 특성 및 성능 특성을 달성하기 위해, 다중층 또는 다중 중간층을 이용하는 것이 통상적인 관행이었다. 본원에서 용어 "다층(multilayer)" 및 "다중층(multiple layer)"은, 하나 초과인 층을 갖는 중간층을 의미하며, 다층 및 다중층은 상호교환적으로 사용될 수 있다. 상기 다중층 중간층은 전형적으로 적어도 하나의 연질 층 및 적어도 하나의 강성 층을 포함한다. 상기에서 언급된 바와 같이, 2개의 더 경질 또는 더 강성 "스킨" 층들 사이에 개재된 하나의 연질 "코어" 층을 갖는 중간층은 유리 패널에 대한 방음 특성을 갖도록 설계되었다. 반대 구성(즉, 2개의 더 연질 층들 사이에 개재된 하나의 강성 층)을 갖는 중간층은 유리 패널의 충격 성능을 개선하는 것으로 밝혀졌으며, 또한 방음용으로 설계될 수 있다. 그럼에도 불구하고, 연질 "코어" 층은 일반적으로 음향 층(연질 층이 유리하게는 소리 전달을 감소시키기 때문임)으로 지칭되는 반면, 경질 "스킨" 층은 통상적인 층 또는 비-음향 층으로 지칭된다.

[0006] 중간층의 층들은 일반적으로, 중합체 수지(예컨대, 폴리(비닐 부티랄))를 하나 이상의 가소제와 혼합하고, 이 혼합물을 당업자에게 공지된 임의의 적응가능한 공정 또는 방법(예컨대, 비제한적으로, 압출)을 사용하여 시트로 용융 가공함으로써 생성되며, 이때 상기 층들은 공압출 및 적층과 같은 공정에 의해 조합된다. 3층 중간층에서, 코어 층은 스킨 층보다 더 많은 가소제를 포함하여, 상대적으로 더 경질인 스킨 층보다 코어 층이 더 연질일 수 있다. 다른 추가의 성분이, 하기에서 더 자세히 기술되는 바와 같이, 다양한 다른 목적을 위해 임의적으로 첨가될 수 있다. 중간층 시트가 형성된 후, 이는 전형적으로, 하기에서 논의되는 바와 같이, 운송 및 저장

및 다중층 유리 패널에서의 이후의 용도를 위해 수집 및 압연된다(rolled).

[0007] 하기는, 다중층 유리 패널을 중간층과의 조합으로 일반적으로 생산하는 방식에 대한 간단한 설명을 제공한다. 먼저, 다중 매니폴드(manifold) 공압출 장치를 사용하여 다중층 중간층을 공압출할 수 있다. 상기 장치는 중합체 용융물을 각각의 매니폴드로부터 압출 개구를 향해 동시에 압출함으로써 작동한다. 압출 개구에서 다이 립(die lip)의 속성(예를 들어, 온도 및/또는 개구 치수)을 조정함으로써 층의 특성을 변경할 수 있다. 중간층 시트가 일단 형성되면, 중간층 시트를 2개의 유리 기재 사이에 배치하고, 엣지(edge)에서 임의의 과잉의 중간층을 트리밍하여(trimmed) 조립체(assembly)를 제조할 수 있다. 다중 중합체 중간층 시트, 또는 다중층을 갖는 중합체 중간층 시트(또는 이들 둘 다의 조합)를 2개의 유리 기재 내에 배치하여, 다중 중합체 중간층을 갖는 다중층 유리 패널을 생성하는 것은 드문 일이 아니다. 이어서, 당업자에게 공지된 적용가능한 공정 또는 방법을 사용하여, 예를 들어, 닙 롤러, 진공 백 또는 기타 탈기 메커니즘(deairing mechanism)을 통해 조립체로부터 공기를 제거한다. 추가적으로, 중간층을 당업자에게 공지된 임의의 방법을 사용하여 기재에 부분적으로 가압-결합(press-bond)시킨다. 마지막 단계에서, 최종 단일 구조를 형성하기 위해, 이러한 예비 결합을 고온 및 고압 적층 공정, 또는 당업자에게 공지된 임의의 다른 방법(예컨대, 비제한적으로, 오토클레이빙 autoclaving))을 사용하여 더욱 영구적으로 만들 수 있다.

[0008] 다중 중간층(예컨대, 연질 코어 층 및 2개의 더 강성 스킨 층을 갖는 3층 중간층)은 유익한 음향 감쇠 특성을 제공하는 것으로 공지되어 있다. 그러나, 상기 중간층 뿐만 아니라, 상기 중간층을 포함하는 유리 패널은, "기포(bubble)"로서 통상적으로 공지된 광학적 결함이 발달할 수 있다. 특히, 중간층 및/또는 적층형 다중층 유리 패널 구조체의 제조 공정 동안 중간층의 연질 코어에 기포가 통상적으로 나타난다. 흔히, 이러한 기포는, 중간층 및/또는 적층 패널의 엣지 근처에 나타나는 트림(trim) 또는 엣지 기포 형태이다. 구체적으로는, 엣지 기포는, 적층 유리 패널 내부에서, 및 특히, 유리 패널의 유리 시트들의 엣지로부터 약 5 mm 이내에 형성되는 기포이다. 트림 기포는, 유리 패널의 유리 시트의 엣지 너머로 연장되는 중간층의 과잉의 트림 부분에 형성되는 기포이다. 이들 기포의 대부분은 오토클레이브 압력이 해제될 때 가시적이 된다. 기포 카운트(bubble count)와 기포 크기는 오토클레이브의 수분 수준에 따라 달라질 수 있음이 통상적으로 이해된다. 예를 들어, 중합체의 압력이 용해도 압력 미만으로 떨어진 후 코어 층 내부에서 기포 핵형성이 발생할 수 있다. 기포 문제에 기여하는 것으로 공지된 다른 변수는 환경 오염 물질 및 중간층의 유변학적 특성을 포함한다.

[0009] 상기 관점에서, 통상적인 다중 중간층의 다른 광학적, 기계적 및 음향적 특성을 감소시키지 않으면서, 이러한 광학적 결함(즉, 기포) 형성이 억제되는 다중 중간층의 개발이 당분야에서 필요하다. 더욱 구체적으로, 기포(예컨대, 트림 또는 엣지 기포) 형성이 억제되는 적어도 하나의 연질 코어 층 및 하나의 강성 스킨 층을 갖는 다중 중간층의 개발이 당분야에서 필요하다.

발명의 내용

[0010] 본 발명의 하나의 양태는, 광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층에 관한 것이다. 상기 중합체 중간층은 제1 중합체 층, 제2 중합체 층, 및 제3 중합체 층을 포함한다. 상기 제1 중합체 층은 상기 제2 중합체 층과 상기 제3 중합체 층 사이에 위치한다. 상기 제1 중합체 층은, 약 0.1 내지 15 역가(titer) 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.

[0011] 본 발명의 또 다른 양태는, 광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층에 관한 것이다. 상기 중합체 중간층은 코어 층, 제1 스킨 층 및 제2 스킨 층을 포함한다. 상기 코어 층은 상기 제1 스킨 층과 상기 제2 스킨 층 사이에 위치한다. 상기 코어 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.

[0012] 본 발명의 다른 양태는, 광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층을 형성하는 방법에 관한 것이다. 상기 방법은, 제1 중합체 용융물을 압출하여 제1 중합체 층을 형성하는 단계 및 제2 중합체 용융물을 압출하여 제2 중합체 층 및 제3 중합체 층을 형성하는 단계를 포함한다. 압출 단계에서, 상기 제1 중합체 층은 상기 제2 중합체 층과 상기 제3 중합체 층 사이에 위치한다. 상기 제1 중합체 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.

도면의 간단한 설명

[0013] 도 1은, 코어 층에 대향하는 한 쌍의 스킨 층을 갖는 3층을 포함하는 중합체 중간층, 및 상기 중합체 중간층에 대향하는 한 쌍의 유리 플레이트를 포함하는 집합 유리 패널의 개략도이다.

도 2는, 쐐기(wedge) 형상을 갖는 중합체 중간층, 및 상기 중합체 중간층에 대향하는 한 쌍의 유리 플레이트를

포함하는 유리 접합 패널의 또 다른 개략도이다.

도 3은, 중합체 중간층을 포함하는 접합 유리 패널에서 발견되는 기포의 개수를 도시하는 차트이며, 이때 기포의 개수는 중합체 중간층의 코어 층에 포함된 접착 조절제(ACA)의 양을 기준으로 결정된다.

도 4는, 중합체 중간층에서 발견되는 기포의 개수를 도시하는 또 다른 차트이며, 이때 기포의 개수는 중합체 중간층의 코어 층에 포함된 접착 조절제(ACA)의 양을 기준으로 결정된다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0014] 본 발명의 실시양태는, 다중층 패널 및 다중층 패널의 제조 방법에 관한 것이다. 일반적으로, 다중층 패널은 2개의 유리 시트 또는 다른 적용가능한 기재, 및 이들 사이에 개재된 중합체 중간층 시트 또는 시트들로 구성된다. 다중층 패널은 일반적으로, 2개의 기재 사이에 적어도 하나의 중합체 중간층 시트를 배치하여 조립체를 생성함으로써 제조된다. 도 1은, 한 쌍의 유리 시트(12) 및 이들 사이에 개재된 다층 중간층을 포함하는 다중층 패널(10)을 도시한다. 상기 다층 중간층은, 연질 코어 층(14) 및 연질 코어 층(14)의 양측 상에 위치하는 2개의 상대적으로 더 강성 스킨 층(16)을 포함하는 3개의 개별 중합체 중간층 시트를 갖는 3층 중간층으로 구성된다.
- [0015] 몇몇 실시양태에서, 중간층(예를 들어, 코어 층(14) 및 스킨 층(16))은 중간층의 길이에 대해 일반적으로 일정하거나 균일한 두께를 가질 것이다. 그러나, 대안적인 실시양태에서, 도 2에 도시된 바와 같이, 상기 중간층은 불균일한 두께를 갖는 적어도 하나의 영역을 가질 수 있다. 예를 들어, 코어 층(14) 및 스킨 층(16)으로 구성된 중간층은 쉘기형이어서, 중간층의 두께가 중간층의 길이에 대해 (예를 들어, 선형으로 또는 비선형으로) 변하게 될 수 있다. 몇몇 상기 실시양태에서, 상기 중간층의 두께는 코어 층(14)의 두께 변화로 인해 변할 수 있다(즉, 스킨 층(16)이 일반적으로 일정한 두께를 가짐). 대안적으로, 중간층의 두께는 스킨 층(16)의 두께 변화로 인해 변할 수 있다(즉, 코어 층(14)이 일반적으로 일정한 두께를 가짐). 추가적인 대안에서, 중간층의 두께는 코어 층(14) 및 스킨 층(16) 둘 다의 두께 변화로 인해 변할 수 있다.
- [0016] 본원에서 개시되는 중간층 및 다중층 패널의 보다 포괄적인 이해를 용이하게 하기 위해, 본원에서 사용되는 특정 용어의 의미를 정의할 것이다. 이러한 정의는, 당업자가 이해하는 바와 같이, 이들 용어를 제한하려는 것이 아니라, 특정 용어가 본원에서 사용되는 방식에 대한 더 나은 이해를 단순히 제공하려는 것이다.
- [0017] 본원에서 용어 "중합체 중간층 시트(polymer interlayer sheet)", "중간층(interlayer)", "중합체 층(polymer layer)", 및 "중합체 용융 시트(polymer melt sheet)"는 단일층 시트 또는 다층 중간층을 나타낼 수 있다. "단일층 시트(single-layer sheet)"는, 명칭에서 알 수 있는 바와 같이, 하나의 층으로 압출된 단일 중합체 층이다. 반면에, 다층 중간층은 다중층, 예를 들어 개별적으로 압출된 층들, 공압출된 층들, 또는 개별적으로 압출된 층과 공압출된 층의 임의의 조합을 포함할 수 있다. 따라서, 다층 중간층은, 예를 들어, 함께 조합된 2개 이상의 단일층 시트("복수층 시트(plural-layer sheet)"); 함께 공압출된 2개 이상의 층("공압출 시트(co-extruded sheet)"); 함께 조합된 2개 이상의 공압출 시트; 적어도 하나의 단일층 시트와 적어도 하나의 공압출 시트의 조합; 및 적어도 하나의 복수층 시트와 적어도 하나의 공압출 시트의 조합을 포함할 수 있다. 본 발명의 다양한 실시양태에서, 다층 중간층은, 서로 직접 접촉하여 위치하는 적어도 2개의 중합체 층(예를 들어, 단일층 또는 공압출된 다중층)을 포함하며, 여기서 각각의 층은 중합체 수지를 포함한다. 본원에서 용어 "수지(resin)"는, 공정(예를 들어, 하기에서 더 자세히 논의되는 것)으로부터 제거되는 중합체 성분(예를 들어, PVB)을 지칭한다. 일반적으로, 가소제(예를 들어, 하기에서 더 자세히 논의되는 것)를 수지에 첨가하여 가소화된 중합체를 제공한다. 추가적으로, 하기에서 추가로 논의되는 바와 같이, 수지는, 중합체와 가소제에 더하여, 다른 성분(예를 들어, 아세테이트, 염 및 알코올)을 가질 수 있다.
- [0018] 또한, 폴리(비닐 부티랄)("PVB") 중간층은 본원에서 흔히 중합체 중간층의 중합체 수지로서 구체적으로 논의되지만, PVB 중간층 외에도 다른 열가소성 중간층이 사용될 수 있음을 이해해야 한다는 점에 유의해야 한다. 고려되는 중합체는, 비제한적으로, 폴리우레탄, 폴리비닐 클로라이드, 폴리(에틸렌 비닐 아세테이트) 및 이들의 조합물을 포함한다. 이들 중합체는 단독으로 또는 다른 중합체와의 조합으로 이용될 수 있다. 따라서, 본원에서 PVB 중간층에 대해 범위, 값 및/또는 방법(예를 들어, 가소제 성분 백분율, 두께 및 특성-향상 첨가제)이 제공되는 경우, 이러한 범위, 값 및/또는 방법은 또한, 적용가능한 경우, 본원에서 개시되는 다른 중합체 및 중합체 블렌드에도 적용되거나, 당업자에게 공지된 바와 같이, 다른 물질에도 적용되도록 변경될 수 있음이 이해되어야 한다.
- [0019] 본원에서 용어 "분자량"은 중량 평균 분자량(M_w)을 지칭한다. PVB 수지의 분자량은 약 50,000 내지 약 600,000,

약 70,000 내지 약 450,000, 또는 약 100,000 내지 약 425,000 달톤 범위일 수 있다.

- [0020] PVB 수지는, 공지된 수성 또는 용매 아세탈화 공정에 의해, 폴리비닐 알코올("PVOH")을 산 촉매의 존재 하에 부티르알데하이드와 반응시키고, 수지를 분리하고, 안정화시키고, 건조시킴으로써 제조될 수 있다. 이러한 아세탈화 공정은, 예를 들어, 미국 특허 제2,282,057호 및 제2,282,026호 및 문헌[Wade, B. (2016), "Vinyl Acetal Polymers", *Encyclopedia of Polymer Science and Technology*, pp. 1-22 (John Wiley & Sons, Inc.)]에 개시되어 있으며, 이들 특허 및 문헌의 전체 개시내용을 본원에 참고로 인용한다.
- [0021] 본원에서 일반적으로 "폴리(비닐 아세탈)" 또는 "폴리(비닐 부티랄)"로 지칭되는 본원에 기술된 수지는, 전술된 바와 같이, 임의의 적합한 알데하이드, 예컨대, 비제한적으로, 이소부티르알데하이드의 잔기를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지는 적어도 하나의 C_1 내지 C_{10} 알데하이드, 또는 적어도 하나의 C_4 내지 C_8 알데하이드의 잔기를 포함할 수 있다. 적합한 C_4 내지 C_8 알데하이드의 예는, 비제한적으로, n-부티르알데하이드, 이소부티르알데하이드, 2-메틸발레르알데하이드, n-헥실 알데하이드, 2-에틸헥실 알데하이드, n-옥틸 알데하이드, 및 이들의 조합물을 포함할 수 있다.
- [0022] 다수의 실시양태에서, 가소제가 상기 중합체 수지에 첨가되어 중합체 층 또는 중간층을 형성한다. 일반적으로 중합체 수지에 가소제가 첨가되어, 생성된 중합체 중간층의 가요성 및 내구성을 증가시킨다. 가소제는 중합체쇄들 사이에서 이들 사이에 함입되어 이들 사이를 벌리고(spacing)("자유 부피" 증가) 이에 따라 중합체 수지의 유리 전이 온도(T_g)를 크게 낮추어 물질이 더 연질이 되게 하는 기능을 한다. 이와 관련하여, 중간층에서 가소제의 양은 유리 전이 온도(T_g)에 영향을 미치도록 조정될 수 있다. 유리 전이 온도(T_g)는, 중간층의 유리 상태에서 고무 상태로의 전환을 나타내는 온도이다. 일반적으로, 가소제 담지량(loading)이 높을수록 T_g 가 낮아질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 예를 들어, 상기 중간층이 음향 3층인 경우, 내부 코어 층(즉, 연질 층)은 약 20℃ 미만의 유리 전이 온도를 갖고, 외부 스킨 층(예컨대, 강성 층)은 약 25℃ 초과와 유리 전이 온도를 가질 것이다.
- [0023] 고려되는 가소제는, 비제한적으로, 다염기산의 에스터, 다가 알코올, 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸부티레이트), 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("3-GEH"로서 공지됨), 트라이에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 다이헥실 아디페이트, 다이옥틸 아디페이트, 헥실 사이클로헥실아디페이트; 헥틸 및 노닐 아디페이트, 다이이소노닐 아디페이트, 헥틸노닐 아디페이트, 다이부틸세바케이트, 및 중합체성 가소제(예컨대, 오일-개질된 세바스산 알키드)의 혼합물; 포스페이트와 아디페이트의 혼합물; 및 이들의 혼합물 및 조합물을 포함한다. 3-GEH가 특히 바람직하다. 적합한 가소제의 다른 예는, 비제한적으로, 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 포함한다.
- [0024] 다른 적합한 가소제는 2개 이상의 별개의 가소제(예컨대, 비제한적으로, 전술된 가소제)의 블렌드를 포함할 수 있다. 또 다른 적합한 가소제, 또는 가소제들의 블렌드는, 방향족 그룹, 예를 들어 폴리아디페이트, 에폭사이드, 프탈레이트, 테레프탈레이트, 벤조에이트, 톨루에이트, 멜리테이트 및 기타 특수 가소제로부터 형성될 수 있다. 다른 예는, 비제한적으로, 다이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 트라이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 폴리프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 이소데실 벤조에이트, 2-에틸헥실 벤조에이트, 다이에틸렌 글리콜 벤조에이트, 프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 2,2,4-트라이메틸-1,3-펜탄다이올 다이벤조에이트, 2,2,4-트라이메틸-1,3-펜탄다이올 벤조에이트 이소부티레이트, 1,3-부탄다이올 다이벤조에이트, 다이에틸렌 글리콜 다이-o-톨루에이트, 트라이에틸렌 글리콜 다이-o-톨루에이트, 다이프로필렌 글리콜 다이-o-톨루에이트, 1,2-옥틸다이벤조에이트, 트라이-2-에틸헥실 트라이멜리테이트, 다이-2-에틸헥실 테레프탈레이트, 비스페놀 A 비스(2-에틸헥사노에이트), 에톡실화된 노닐페놀, 및 이들의 혼합물을 포함한다. 몇몇 실시양태에서, 가소제는 다이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 트라이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 및 이들의 조합물로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0025] 일반적으로, 본 발명의 중합체 중간층의 가소제 함량은, 중량당 중량 기준으로, 수지 100부당 부("phr")로 측정된다. 예를 들어, 30 g의 가소제를 100 g의 중합체 수지에 첨가하는 경우, 생성되는 가소화된 중합체의 가소제 함량은 30 phr이 될 것이다. 중합체 층의 가소제 함량이 본원에 제공되는 경우, 특정 층의 가소제 함량은, 특정 층을 생성하는 데 사용되는 용융물 중 가소제의 phr을 참조하여 결정된다. 몇몇 실시양태에서, 고 강성 중간층은, 약 35 phr 미만 및 약 30 phr 미만의 가소제 함량을 갖는 층을 포함한다.
- [0026] 본 발명의 몇몇 실시양태에 따르면, 본원에서 기술되는 적어도 하나의 중합체 층은 약 20 phr 이상, 약 25 phr

이상, 약 30 phr 이상, 약 35 phr 이상, 약 38 phr 이상, 약 40 phr 이상, 약 45 phr 이상, 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상, 약 65 phr 이상, 약 67 phr 이상, 약 70 phr 이상, 또는 약 75 phr 이상의 하나 이상의 가소제의 총 가소제 함량을 가질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중합체 층은 또한 약 100 phr 이하, 약 85 phr 이하, 80 phr 이하, 약 75 phr 이하, 약 70 phr 이하, 약 65 phr 이하, 약 60 phr 이하, 약 55 phr 이하, 약 50 phr 이하, 약 45 phr 이하, 약 40 phr 이하, 약 38 phr 이하, 약 35 phr 이하, 또는 약 30 phr 이하의 하나 이상의 가소제를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 적어도 하나의 중합체 층의 총 가소제 함량은 약 20 내지 약 40 phr, 약 20 내지 약 38 phr, 또는 약 25 내지 약 35 phr의 범위일 수 있다. 다른 실시양태에서, 적어도 하나의 중합체 층의 총 가소제 함량은 약 38 내지 약 90 phr, 약 40 내지 약 85 phr, 또는 약 50 내지 약 70 phr의 범위일 수 있다.

[0027] 상기 중간층이 다중층 중간층을 포함하는 경우, 상기 중간층 내의 2개 이상의 중합체 층은 실질적으로 동일한 가소제 함량을 가질 수 있고/있거나, 중합체 층들 중 적어도 하나는 다른 중합체 층들 중 하나 이상과 다른 가소제 함량을 가질 수 있다. 상기 중간층이, 상이한 가소제 함량을 갖는 2개 이상의 중합체 층을 포함하는 경우, 이들 2개의 층은 서로 인접할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 인접한 중합체 층들 간의 가소제 함량의 차이는 약 1 phr 이상, 약 2 phr 이상, 약 5 phr 이상, 약 7 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 20 phr 이상, 약 30 phr 이상, 약 35 phr 이상 및/또는 약 80 phr 이하, 약 55 phr 이하, 약 50 이하, 약 45 phr 이하, 또는 약 1 내지 약 60 phr, 약 10 내지 약 50 phr, 또는 약 30 내지 45 phr 이하일 수 있다. 3개 이상의 층이 상기 중간층 내에 존재하는 경우, 상기 중간층의 중합체 층들 중 적어도 2개는, 예를 들어, 서로 10 phr 이내, 5 phr 이내, 2 phr 이내, 또는 1 phr 이내의 유사한 가소제 함량을 가지면서, 상기 중합체 층들 중 적어도 2개는 상기 범위에 따라 서로 상이한 가소제 함량을 가질 수 있다.

[0028] 몇몇 실시양태에서, 본원에서 기술되는 적어도 하나의 중합체 층 또는 중간층은, 예를 들어, 상기에 열거된 2개 이상의 가소제를 비롯하여 2개 이상의 가소제의 블렌드를 포함할 수 있다. 상기 중합체 층이 2개 이상의 가소제를 포함하는 경우, 중합체 층의 총 가소제 함량 및 인접한 중합체 층들 간의 총 가소제 함량의 차이는 상기 범위 중 하나 이상에 속할 수 있다. 상기 중간층이 다중층 중간층인 경우, 상기 중합체 층들 중 하나 이상은 2개 이상의 가소제를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층이 다중층 중간층인 경우, 가소제들의 블렌드를 포함하는 중합체 층들 중 적어도 하나는, 통상적인 가소화된 중합체 층의 유리 전이 온도보다 더 높은 유리 전이 온도를 가질 수 있다. 이는, 몇몇 경우, 예를 들어, 다중층 중간층의 외부 "스킨" 층으로 사용될 수 있는 층에 추가적인 강성을 제공할 수 있다.

[0029] 가소제에 더하여, 접착 조절제("ACA")도 상기 중합체 중간층을 형성하기 위한 중합체 수지에 첨가될 수 있는 것으로 또한 고려된다. ACA는 일반적으로, 적층 패널 형성시 유리 패널에 대한 중간층의 접착력을 변경 및/또는 개선하는 기능을 한다. 고려되는 ACA는, 비제한적으로, 마그네슘 카르복실레이트/염을 포함한다. 또한, 고려되는 ACA는, 미국 특허 5,728,472에 개시된 ACA, 예를 들어 잔류 나트륨 아세테이트, 칼륨 아세테이트 및/또는 마그네슘 비스(2-에틸 부티레이트)를 포함하며, 상기 특허 전체를 본원에 참고로 인용한다.

[0030] 다른 첨가제가 상기 중간층에 혼입되어, 최종 제품에서 이의 성능을 향상시키고 중간층에 특정한 추가적인 특성을 부여할 수 있다. 이러한 첨가제는, 비제한적으로, 특히, 당업자에게 공지된 다른 많은 첨가제들 중에서, 염료, 안료, 안정화제(예를 들어, 자외선 안정화제), 산화방지제, 블로킹 방지제, 난연제, IR 흡수제 또는 차단제(예를 들어, 인듐 주석 산화물, 안티몬 주석 산화물, 란타넘 옥붕화물(LaB₆) 및 세슘 텅스텐 산화물), 가공 보조제, 유동성 향상 첨가제, 윤활제, 충격 개질제, 핵형성제, 열 안정화제, UV 흡수제, UV 안정화제, 분산제, 계면활성제, 킬레이트제, 커플링제, 접착제, 프라이머, 강화 첨가제, 및 충전제를 포함한다.

[0031] 본 발명의 중합체 중간층의 중합체 수지 성분을 기술하는 데 사용되는 하나의 매개변수는 잔류 하이드록실 함량(비닐 하이드록실 함량 또는 폴리(비닐 알코올)("PVOH") 함량으로서)이다. 잔류 하이드록실 함량은, 가공이 완결된 후 중합체의 쉘 상에 측부 기로 남아 있는 하이드록실 기의 양을 지칭한다. 예를 들어, PVB는, 폴리(비닐 아세테이트)를 폴리(비닐 알코올)로 가수분해한 다음 폴리(비닐 알코올)을 부티르알데하이드와 반응시켜 PVB를 형성함으로써 제조될 수 있다. 폴리(비닐 아세테이트)를 가수분해하는 공정에서, 전형적으로 모든 아세테이트 측부 기가 하이드록실 기로 전환되는 것은 아니다. 또한, 부티르알데하이드와의 반응이 전형적으로 모든 하이드록실 기를 아세탈 기로 전환시키지는 않을 것이다. 결과적으로, 임의의 완성된 PVB에서, 전형적으로 잔류 아세테이트 기(예를 들어, 비닐 아세테이트 기) 및 잔류 하이드록실 기(예를 들어, 비닐 하이드록실 기)가 중합체 쉘 상에 측부 기로서 존재할 것이다. 일반적으로, 중합체의 잔류 하이드록실 함량은, 중합체 제조 공정의 다른 많은 변수들 중에서도, 반응 시간 및 반응물 농도를 제어함으로써 조절될 수 있다. 본원에서 매개변수로서 이용

되는 경우, 잔류 하이드록실 함량은 ASTM D-1396에 따라 중량% 기준으로 측정된다.

- [0032] 다양한 실시양태에서, 폴리(비닐 부티랄) 수지는 PVOH로서 계산시 약 8 내지 약 35 중량 퍼센트(중량%)의 잔류 하이드록실 기, PVOH로서 계산시 약 13 내지 약 30 중량%의 잔류 하이드록실 기, PVOH로서 계산시 약 8 내지 약 22 중량%의 잔류 하이드록실 기, 또는 PVOH로서 계산시 약 15 내지 약 22 중량%의 잔류 하이드록실 기를 포함하며, 본원에서 개시되는 몇몇 고 강성 중간층의 경우, 하나 이상의 층에 대해, 폴리(비닐 부티랄) 수지는 PVOH로서 계산시 약 19 중량% 초과와 잔류 하이드록실 기, PVOH로서 계산시 약 20 중량% 초과와 잔류 하이드록실 기, PVOH로서 계산시 약 20.4 중량% 초과와 잔류 하이드록실 기, 및 PVOH로서 계산시 약 21 중량% 초과와 잔류 하이드록실 기를 포함한다.
- [0033] 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층의 적어도 하나의 중합체 층에 사용되는 폴리(비닐 부티랄) 수지는, 전술된 바와 같이 측정시, 약 18 중량% 이상, 약 18.5 중량% 이상, 약 18.7 중량% 이상, 약 19 중량% 이상, 약 19.5 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 20.5 중량% 이상, 약 21 중량% 이상, 약 21.5 중량% 이상, 약 22 중량% 이상, 또는 약 22.5 중량% 이상 및/또는 약 30 중량% 이하, 약 29 중량% 이하, 약 28 중량% 이하, 약 27 중량% 이하, 약 26 중량% 이하, 약 25 중량% 이하, 약 24 중량% 이하, 약 23 중량% 이하, 또는 약 22 중량% 이하의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함할 수 있다.
- [0034] 추가적으로, 본원에서 기술되는 중간층 내의 하나 이상의 다른 중합체 층은, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 다른 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함할 수 있다. 예를 들어, 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층의 적어도 하나의 중합체 층은, 전술된 바와 같이 측정시, 약 8 중량% 이상, 약 8.5 중량% 이상, 약 9 중량% 이상, 약 9.5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 10.5 중량% 이상, 약 11 중량% 이상, 약 11.5 중량% 이상, 약 12 중량% 이상, 또는 약 13 중량% 이상 및/또는 약 16 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 14 중량% 이하, 약 13.5 중량% 이하, 약 13 중량% 이하, 약 12 중량% 이하, 또는 약 11.5 중량% 이하의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함할 수 있다.
- [0035] 상기 중간층이 2개 이상의 중합체 층을 포함하는 경우, 이들 층은, 실질적으로 동일한 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함할 수 있거나, 또는 각각의 층의 폴리(비닐 부티랄) 수지의 잔류 하이드록실 함량은 서로 상이할 수 있다. 2개 이상의 층이, 실질적으로 동일한 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함하는 경우, 각각의 층의 폴리(비닐 부티랄) 수지의 잔류 하이드록실 함량 간의 차이는 약 2 중량% 미만, 약 1 중량% 미만, 또는 약 0.5 중량% 미만일 수 있다. 본원에서 용어 "상이한 중량%(weight percent different)" 및 "... 간의 차이는 적어도 ... 중량%이다(the difference between ... is at least ... weight percent)"는, 하나의 수치를 다른 수치로부터 차감하여 계산시, 2개의 제시된 중량 백분율 간의 차이를 지칭한다. 예를 들어, 12 중량%의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 14 중량%의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지와 2 중량%(14 중량% - 12 중량% = 2 중량%) 상이한 잔류 하이드록실 함량을 가진다. 본원에서 용어 "상이한(different)"은 다른 값보다 더 높거나 더 낮은 값을 지칭할 수 있다. 달리 명시되지 않는 한, 본원에서 모든 "차이(differences)"는 차이의 수치 값을 지칭하는 것이며, 수치를 차감하는 순서로 인한 해당 값의 특정 부호를 지칭하는 것이 아니다. 따라서, 달리 명시되지 않는 한, 본원의 모든 "차이"는 두 수치 간의 차이의 절대값을 지칭한다.
- [0036] 상기 2개 이상의 층이, 상이한 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄) 수지를 포함하는 경우, 폴리(비닐 부티랄) 수지의 잔류 하이드록실 함량 간의 차이는, 전술된 바와 같이 측정시, 약 2 이상, 약 3 이상, 약 4 이상, 약 5 이상, 약 6 이상, 약 7 이상, 약 8 이상, 약 9 이상, 약 10 이상, 약 12 이상, 또는 약 15 중량% 이상일 수 있다.
- [0037] 상기 수지는 또한, 폴리비닐 에스터(예컨대, 아세테이트)로서 계산시, 35 중량% 미만의 잔류 에스터 기, 30 중량% 미만, 25 중량% 미만, 15 중량% 미만, 13 중량% 미만, 11 중량% 미만, 9 중량% 미만, 7 중량% 미만, 5 중량% 미만, 또는 1 중량% 미만의 잔류 에스터 기를 포함할 수 있고, 잔량은 아세탈, 바람직하게는 부티르알데하이드 아세탈이지만, 임의적으로, 미량의 다른 아세탈 기, 예를 들어, 2-에틸 헥산알 기를 포함할 수 있다(예를 들어, 미국 특허 제5,137,954호를 참조하며, 이의 전체 개시내용을 본원에 참고로 인용함). 수지의 잔류 아세테이트 함량은 또한 ASTM D-1396에 따라 측정될 수도 있다.
- [0038] 몇몇 실시양태에서, 전술된 바와 같이, 상기 중간층의 중합체 층들 중 하나 이상은 폴리(비닐 아세탈) 수치로부터 형성될 수 있다. 이러한 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 전술된 바와 같이 측정시, 약 1 중량% 이상, 약 3 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 또는 약 7 중량% 이상 및/또는 약 15 중량% 이하, 약 12 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 또는 약 8 중량% 이하의 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 상기 중간층이 다중층 중간층을 포함하는

경우, 2개 이상의 중합체 층은, 실질적으로 동일한 잔류 아세테이트 함량을 갖는 수지를 포함할 수 있거나, 다양한 층의 하나 이상의 수지는 실질적으로 상이한 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 2개 이상의 수지의 잔류 아세테이트 함량이 실질적으로 동일한 경우, 잔류 아세테이트 함량의 차이는, 예를 들어 약 3 중량% 미만, 약 2 중량% 미만, 약 1 중량% 미만, 또는 약 0.5 중량% 미만일 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 다중층 중간층 중 2개 이상의 폴리(비닐 부티랄) 수지들 간의 잔류 아세테이트 함량의 차이는 약 3 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 8 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 또는 약 30 중량% 이상일 수 있다. 이러한 수지가 다중층 중간층에 이용되는 경우, 상이한 잔류 아세테이트 함량을 갖는 수지들이 인접한 중합체 층에 위치할 수 있다. 상기 다중층 중간층이, 예를 들어 내부 "코어" 층을 둘러싸거나 이를 끼워 넣는 한 쌍의 외부 "스킨" 층을 포함하는 3층 중간층인 경우, 예를 들어, 상기 코어 층은 더 높거나 더 낮은 잔류 아세테이트 함량을 갖는 수지를 포함할 수 있다. 동시에, 상기 내부 코어 층의 수지는, 상기 외부 스킨 층의 잔류 하이드록실 함량보다 높거나 낮고 이전에 제공된 범위 중 하나 이상에 속하는 잔류 하이드록실 함량을 가질 수 있다.

[0039] 더 높거나 더 낮은 잔류 하이드록실 함량 및/또는 잔류 아세테이트 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지들은 또한, 적어도 하나의 가소제와 조합될 때, 궁극적으로 상이한 양의 가소제를 포함할 수 있다. 결과적으로, 상이한 조성을 갖는 제1 및 제2 폴리(비닐 아세탈) 수지로 형성된 층 또는 도메인은 또한 단일 중합체 층 또는 중간층 내에서 상이한 특성을 가질 수 있다. 특히, 제시된 유형의 가소제에 대해, 중합체에서의 가소제의 상용성은 중합체의 하이드록실 함량에 의해 대개 결정된다. 더 높은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 중합체는 전형적으로 가소제 상용성 또는 용량의 감소와 상관관계가 있다. 반대로, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 중합체는 전형적으로 가소제 상용성 또는 용량을 증가시킬 것이다. 결과적으로, 더 높은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 유사한 수지보다 덜 가소화되고 더 높은 강성을 나타내는 경향이 있다. 반대로, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 제시된 가소제로 가소화될 때, 더 많은 양의 가소제를 포함하는 경향이 있으며, 이는, 더 높은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 유사한 수지보다 더 낮은 유리 전이 온도를 나타내는 더 연질 중합체 층을 제공할 수 있다. 특정 수지와 가소제에 따라, 이러한 경향은 바뀔 수 있다.

[0040] 상이한 수준의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 2개의 폴리(비닐 아세탈) 수지가 가소제와 블렌딩되는 경우, 가소제는 중합체 층들 사이 또는 도메인들 사이에 분배되어, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 층 또는 영역에는 더 많은 가소제가 존재하게 될 수 있고, 더 높은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 층 또는 영역에는 더 적은 가소제가 존재하게 될 수 있다. 궁극적으로, 이들 두 수지 간에 평형 상태가 달성된다. 일반적으로, 중합체의 잔류 하이드록실 함량과 가소제 상용성/용량 간의 이러한 상관관계는, 중합체 수지에 적절한 양의 가소제가 첨가되고 다중층 중간층들 내에서의 가소제 함량의 차이가 안정적으로 유지되도록 조작되고 이용될 수 있다. 이러한 상관관계는 또한, 가소제가 둘 이상의 수지들 사이에서 달리 이동하는 경우, 이들 수지 간의 가소제 함량 차이를 안정적으로 유지하는 데 도움이 된다.

[0041] 중간층 내에서의 가소제 이동의 결과로서, 적어도 하나의 중합체 층의 유리 전이 온도는, 단독으로 측정시 또는 다중층 중간층의 일부로서 측정시 다를 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층은, 상기 중간층의 외부에, 약 33℃ 이상, 약 34℃ 이상, 약 35℃ 이상, 약 36℃ 이상, 약 37℃ 이상, 약 37℃ 이상, 38℃ 이상, 약 39℃ 이상, 약 40℃ 이상, 약 41℃ 이상, 약 42℃ 이상, 약 43℃ 이상, 약 44℃ 이상, 약 45℃, 또는 약 46℃ 이상의 유리 전이 온도를 갖는 적어도 하나의 중합체 층을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 층은, 상기 중합체 층 내에서, 약 34℃ 이상, 약 35℃ 이상, 약 36℃ 이상, 약 37℃ 이상, 약 38℃ 이상, 약 39℃ 이상, 약 40℃ 이상, 약 41℃ 이상, 약 42℃ 이상, 약 43℃ 이상, 약 44℃ 이상, 약 45℃ 이상, 약 46℃ 이상, 또는 약 47℃ 이상의 유리 전이 온도를 가질 수 있다.

[0042] 동일한 또는 다른 실시양태에서, 상기 다중층 중간층의 적어도 하나의 다른 중합체 층은 30℃ 미만의 유리 전이 온도를 가질 수 있고, 상기 중간층이 소정의 중간층의 일부가 아닐 때 측정시, 예를 들어 약 25℃ 이하, 약 20℃ 이하, 약 15℃ 이하, 약 10℃ 이하, 약 9℃ 이하, 약 8℃ 이하, 약 7℃ 이하, 약 6℃ 이하, 약 5℃ 이하, 약 4℃ 이하, 약 3℃ 이하, 약 2℃ 이하, 약 1℃ 이하, 약 0℃ 이하, 약 -1℃ 이하, 약 -2℃ 이하, 또는 약 -5℃ 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있다. 동일한 중합체 층은, 상기 중간층의 외부에서 측정시, 약 25℃ 이하, 약 20℃ 이하, 약 15℃ 이하, 약 10℃ 이하, 약 9℃ 이하, 약 8℃ 이하, 약 7℃ 이하, 약 6℃ 이하, 약 5℃ 이하, 약 4℃ 이하, 약 3℃ 이하, 약 2℃ 이하, 약 1℃ 이하, 또는 약 0℃ 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있다.

[0043] 몇몇 실시양태에 따르면, 2개의 중합체 층, 전형적으로는 상기 중간층 내에서 인접한 중합체 층들의 유리 전이 온도 간의 차이는 적어도 약 5℃, 적어도 약 10℃, 적어도 약 15℃, 적어도 약 20℃, 적어도 약 25℃, 적어도

약 30℃, 적어도 약 35℃, 적어도 약 40℃, 또는 적어도 약 45℃일 수 있고, 다른 실시양태에서, 2개 이상의 중합체 층들은 서로 약 5℃ 이내, 약 3℃ 이내, 약 2℃ 이내, 또는 약 1℃ 이내의 유리 전이 온도를 가질 수 있다. 일반적으로, 더 낮은 유리 전이 온도 층은 중간층 내에서 더 높은 유리 전이 온도 층 또는 층들보다 더 낮은 강성을 가지며, 최종 중간층 구성에서 더 높은 유리 전이 온도 중합체 층들 사이에 위치할 수 있다.

[0044] 예를 들어, 본 발명의 몇몇 실시양태에서, 연질 층의 증가된 음향 감쇠 특성은 강성/경질 층의 기계적 강도와 조합되어 다중층 중간층을 생성한다. 이러한 실시양태에서, 중앙 연질 층은 2개의 강성/경질 외부 층 사이에 개재된다. (강성)/(연질)/(강성)의 이러한 구성은, 쉽게 취급될 수 있고 통상적인 적층 방법에 사용될 수 있으며 상대적으로 얇고 가벼운 층으로 구성될 수 있는 다중 중간층을 생성한다. 상기 연질 층은 일반적으로, 더 낮은 잔류 하이드록실 함량(예를 들어, 16 중량% 이하, 15 중량% 이하, 또는 12 중량% 이하, 또는 임의의 상기 개시된 범위), 더 높은 가소제 함량(예를 들어, 약 48 phr 이상 또는 약 70 phr 이상, 또는 임의의 상기 개시된 범위) 및/또는 더 낮은 유리 전이 온도(예를 들어, 30℃ 미만, 또는 10℃ 미만, 또는 임의의 상기 개시된 범위)를 특징으로 한다.

[0045] 본원에서 기술되는 중합체 중간층 시트는, 다중층 패널(예를 들어, 유리 라미네이트)에 사용될 수 있는 중합체 중간층 시트를 제조하는 당업자에게 공지된 임의의 적합한 공정에 의해 제조될 수 있는 것으로 고려된다. 예를 들어, 상기 중합체 중간층 시트는 용액 캐스팅(solution casting), 압축 성형, 사출 성형, 용융 압출, 용융 취입(melt blowing), 또는 당업자에게 공지된 중합체 중간층 시트의 생산 및 제조를 위한 임의의 다른 절차를 통해 형성될 수 있는 것으로 고려된다. 또한, 다중 중합체 중간층이 이용되는 실시양태에서, 이러한 다중 중합체 중간층은 공압출, 취입 필름, 딥 코팅, 용액 코팅, 블레이드, 패들, 에어-나이프, 인쇄, 분말 코팅, 분무 코팅, 또는 당업자에게 공지된 다른 공정을 통해 형성될 수 있는 것으로 고려된다. 당업자에게 공지된 중합체 중간층 시트의 모든 제조 방법이, 본원에서 기술되는 중합체 중간층 시트를 제조하기 위한 가능한 방법으로 고려되지만, 본 발명은 압출 및/또는 공압출 공정을 통해 제조되는 중합체 중간층 시트에 초점을 맞출 것이다. 본 발명의 최종 다중층 유리 패널 라미네이트는 당분야에 공지된 공정을 사용하여 형성될 수 있다.

[0046] 압출 공정에서, 전술된 임의의 수지 및 가소제를 비롯한 열가소성 수지 및 가소제는 일반적으로는 사전-혼합되어 압출기 장치에 공급된다. 착색제 및 UV 억제제(액체, 분말, 또는 펠릿 형태)와 같은 첨가제가 사용될 수 있으며, 압출기 장치에 도달하기 전에 열가소성 수지 또는 가소제 내로 혼합될 수 있다. 이러한 첨가제는 열가소성 중합체 수지 내로 혼입될 수 있고, 생성된 중합체 중간층 시트의 연신에 의해, 중합체 중간층 시트의 특정 특성 및 최종 다중층 유리 패널 제품에서의 이의 성능을 향상시킨다.

[0047] 압출기 장치에서, 전술된 임의의 수지, 가소제 및 기타 첨가제를 비롯한 열가소성 원료 및 가소제의 입자는 추가로 혼합되고 용융되어, 일반적으로 온도 및 조성이 균일한 용융물을 생성한다. 본 발명의 실시양태는, 약 200℃가 되는 용융 온도를 제공할 수 있다. 용융물이 압출기 장치의 단부에 도달하면, 용융물은 압출기 다이 내로 분사된다. 압출기 다이는, 최종 중합체 중간층 시트 제품에 이의 프로파일을 제공하는 압출기 장치의 구성요소이다. 다이는 일반적으로, 수직 치수보다 실질적으로 더 큰 하나의 치수를 갖는 립(lip)에 의해 정의된 개구를 가질 것이다. 일반적으로, 다이는, 다이에서 나오는 원통형 프로파일로부터 제품의 단부 프로파일 형상으로 용융물이 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 프로파일을 갖는 물체를 생성하는 데 사용되는 공정이다. 이는, 최종 제품을 위한 목적하는 단면을 갖는 다이를 통해 물질을 밀거나 당김으로써 달성된다.

[0048] 몇몇 실시양태에서, 공압출 공정이 사용될 수 있다. 공압출은 중합체 물질의 다중층을 동시에 압출하는 공정이다. 일반적으로, 이러한 유형의 압출은 2개 이상의 압출기를 사용하여, 상이한 점도 또는 기타 특성을 갖는 다양한 열가소성 용융물의 일정 부피 처리량(steady volume throughput)을 용융시키고 이를 공압출 다이를 통해 목적하는 최종 형태로 전달한다. 예를 들어, 본 발명의 다중층 중간층(예를 들어, 3층 중간층의 형태)은 바람직하게는, 제1 다이 매니폴드, 제2 다이 매니폴드, 및 제3 다이 매니폴드를 포함하는 다중 매니폴드 공압출 장치를 사용하여 공압출될 수 있다. 공압출 장치는, 중합체 용융물들을 각각의 매니폴드로부터 다이를 통해 개구 밖으로 동시에 압출함으로써 작동할 수 있고, 이때 다중층 중간층은 3개의 개별 중합체 층의 복합체로서 압출된다. 상기 중합체 용융물은 다이를 통해 유동하여, 코어 층이 스킨 층들 사이에 위치되도록 함으로써, 스킨 층들 사이에 개재된 코어 층을 갖는 3층 중간층을 제공할 수 있다. 다이 개구는 상기 개구의 양측에 위치하는 한 쌍의 립을 포함할 수 있다. 중합체 용융물의 위치 방향을 고려하면, 스킨 층은 립과 접촉할 수 있다. 그 립에도 불구하고, 다이 개구에 위치하는 다이 립들 사이의 거리를 조정함으로써 중간층 두께를 변경할 수 있다.

- [0049] 공압출 공정에서 압출 다이를 떠나는 다중 중합체 층의 두께는 일반적으로 압출 다이를 통한 용융물의 상대 속도 조정과 개별 다이 립의 크기에 의해 제어될 수 있다. 몇몇 실시양태에 따르면, 다중층 중간층의 총 두께는 약 13 mil 이상, 약 20 mil 이상, 약 25 mil 이상, 약 27 mil 이상, 약 30 mil 이상, 또는 약 31 mil 이상 및/또는 약 75 mil 이하, 약 70 mil 이하, 약 65 mil 이하, 또는 약 60 mil 이하일 수 있거나, 또는 약 13 내지 약 75 mil, 약 25 내지 약 70 mil, 또는 약 30 내지 60 mil 범위일 수 있다. 상기 중간층이 2개 이상의 중합체 층을 포함하는 경우, 각각의 층은 약 2 mil 이상, 약 3 mil 이상, 약 4 mil 이상, 약 5 mil 이상, 약 6 mil 이상, 약 7 mil 이상, 약 8 mil 이상, 약 9 mil 이상, 약 10 mil 이상 및/또는 약 50 mil 이하, 약 40 mil 이하, 약 30 mil 이하, 약 20 mil 이하, 약 17 mil 이하, 약 15 mil 이하, 약 13 mil 이하, 약 12 mil 이하, 약 10 mil 이하, 또는 약 9 mil 이하의 두께를 가질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 각각의 층은 대략 동일한 두께를 가질 수 있고, 다른 실시양태에서는, 하나 이상의 층이 상기 중간층 내의 하나 이상의 다른 층과 상이한 두께를 가질 수 있다.
- [0050] 상기 중간층이 3개 이상의 중합체 층을 포함하는 몇몇 실시양태에서, 내부 층 중 하나 이상은 다른 외부 층과 비교하였을 때 상대적으로 얇을 수 있다. 예를 들어, 상기 다중층 중간층이 3층 중간층인 몇몇 실시양태에서, 가장 내부의 층은 약 12 mil 이하, 약 10 mil 이하, 약 9 mil 이하, 약 8 mil 이하, 약 7 mil 이하, 약 6 mil 이하, 또는 약 5 mil 이하의 두께를 가질 수 있거나, 또는 약 2 내지 약 12 mil, 약 3 내지 약 10 mil, 또는 약 4 내지 약 9 mil 범위의 두께를 가질 수 있다. 동일한 또는 다른 실시양태에서, 각각의 외부 층의 두께는 약 4 mil 이상, 약 5 mil 이상, 약 6 mil 이상, 또는 약 7 mil 및/또는 약 15 mil 이하, 약 13 mil 이하, 약 12 mil 이하, 약 10 mil 이하, 약 9 mil 이하, 또는 약 8 mil 이하일 수 있거나, 또는 약 2 내지 약 15 mil, 약 3 내지 약 13 mil, 또는 약 4 내지 약 10 mil 범위일 수 있다. 상기 중간층이 2개의 외부 층을 포함하는 경우, 이러한 층은 약 9 mil 이상, 약 13 mil 이상, 약 15 mil 이상, 약 16 mil 이상, 약 18 mil 이상, 약 20 mil 이상, 약 23 mil 이상, 약 25 mil 이상, 약 26 mil 이상, 약 28 mil 이상, 또는 약 30 mil 이상, 및/또는 약 73 mil 이하, 약 60 mil 이하, 약 50 mil 이하, 약 45 mil 이하, 약 40 mil 이하, 또는 약 35 mil 이하, 또는 약 9 내지 약 70 mil, 약 13 내지 약 40 mil, 또는 약 25 내지 약 35 mil 범위의 합친 두께를 가질 수 있다.
- [0051] 몇몇 실시양태에 따르면, 상기 다중층 중간층에서 외부 층들 중 하나의 두께 대 내부 층들 중 하나의 두께의 비는 적어도 약 1.4:1, 적어도 약 1.5:1, 적어도 약 1.8:1, 적어도 약 2:1, 적어도 약 2.5:1, 적어도 약 2.75:1, 적어도 약 3:1, 적어도 약 3.25:1, 적어도 약 3.5:1, 적어도 약 3.75:1, 또는 적어도 약 4:1일 수 있다. 상기 중간층이, 한 쌍의 외부 스킨 층 사이에 위치하는 내부 코어 층을 갖는 3층 중간층인 경우, 스킨 층들 중 하나의 두께 대 코어 층의 두께의 비는 상기 범위 중 하나 이상 내에 들 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 외부 층들의 합친 두께 대 내부 층의 두께의 비는 적어도 약 2.25:1, 적어도 약 2.4:1, 적어도 약 2.5:1, 적어도 약 2.8:1, 적어도 약 3:1, 적어도 약 3.5:1, 적어도 약 4:1, 적어도 약 4.5:1, 적어도 약 5:1, 적어도 약 5.5:1, 적어도 약 6:1, 적어도 약 6.5:1, 또는 적어도 약 7:1 및/또는 약 30 이하:1, 약 20 이하:1, 약 15 이하:1, 약 10 이하:1, 약 9 이하:1, 또는 약 8 이하:1일 수 있다.
- [0052] 본원에서 기술되는 다중층 중간층은, 시트의 길이 또는 최장 치수, 및/또는 폭 또는 제2 최장 치수를 따라 실질적으로 동일한 두께를 갖는 일반적으로 평평한 중간층을 포함할 수 있다. 그러나, 몇몇 실시양태에서, 본 발명의 다중층 중간층은, 썬기형 프로파일을 갖는 적어도 하나의 테이퍼형 구역을 포함하는 테이퍼형 또는 썬기형 중간층일 수 있다. 테이퍼형 중간층은 시트의 길이 및/또는 폭의 적어도 일부를 따라 두께 프로파일이 변해서, 예를 들어, 상기 중간층의 적어도 하나의 엣지는 다른 것보다 더 큰 두께를 갖게 된다. 상기 중간층이 테이퍼형 중간층인 경우, 개별 수지 층들 중 적어도 1개, 적어도 2개, 적어도 3개, 또는 그 이상은 적어도 하나의 테이퍼형 구역을 포함할 수 있다. 테이퍼형 중간층은, 예를 들어, 자동차 및 항공기 용도의 헤드업 디스플레이(HUD) 패널에 특히 유용할 수 있다.
- [0053] 상기 관점에서, 본 발명의 실시양태는, 광학적 결함 형성이 억제되는 중합체 중간층을 포함한다. 상기 중합체 중간층은 코어 층, 제1 스킨 층 및 제2 스킨 층을 포함할 수 있다. 상기 코어 층은 일반적으로, 상기 스킨 층들이 상기 코어 층을 끼워 넣도록 상기 제1 스킨 층과 상기 제2 스킨 층 사이에 위치될 것이다. 특히, 상기 코어 층은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 점착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.
- [0054] 유익하게도, 이러한 실시양태에서, 상기 중합체 중간층은 선행 기술의 중합체 중간층보다 더 적은 기포 형성을 가질 것이다. 예를 들어, 상기 중합체 중간층은 2개 이하의 기포 또는 1개 이하의 기포를 가질 수 있고/있거나, 상기 중합체 중간층 전체에 걸쳐 기포가 형성되지 않을 수 있다. 몇몇 특정 실시양태에서, 상기 중합체 중간층은 2개 이하의 엣지 기포 또는 1개 이하의 엣지 기포를 가질 수 있고/있거나, 상기 중합체 중간층 전체에 걸쳐 엣지 기포가 형성되지 않을 수 있다(예를 들어, 적층 유리 패널을 형성하기 위해 한 쌍의 유리 시트 사이에 적

층되는 경우). 특히, 본 발명의 중합체 중간층을 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층하여 적층 유리 패널을 형성하는 경우, 상기 유리 패널은, 상기 유리 패널에 형성된 기포를 갖지 않을 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 유리 패널은 2개 이하의 기포 또는 1개 이하의 기포를 가질 수 있다. 몇몇 특정 실시양태에서, 상기 적층 유리 패널은 2개 이하의 엠티 기포 또는 1개 이하의 엠티 기포를 가질 수 있고/있거나, 엠티 기포를 갖지 않을 수 있다. 엠티 기포의 존재 여부를 결정하는 방법은 하기 실시예 1에서 더 자세히 설명된다.

[0055] 상기 중간층 및/또는 적층 패널 내의 기포 감소를 촉진하기 위해, 상기 중간층의 코어 층은 약 0.1 내지 15 역가, 0.1 내지 13 역가, 0.1 내지 12 역가, 0.1 내지 11 역가, 0.1 내지 10 역가, 0.1 내지 9 역가, 0.1 내지 8 역가, 0.1 내지 6 역가, 0.1 내지 5 역가, 0.5 내지 18 역가, 0.5 내지 15 역가, 0.5 내지 13 역가, 0.5 내지 12 역가, 0.5 내지 11 역가, 0.5 내지 10 역가, 0.5 내지 9 역가, 0.5 내지 8 역가, 0.5 내지 6 역가, 0.5 내지 5 역가, 5 내지 18 역가, 5 내지 15 역가, 5 내지 13 역가, 5 내지 12 역가, 5 내지 11 역가, 5 내지 10 역가, 5 내지 9 역가, 5 내지 8 역가, 5 내지 6 역가, 8 내지 18 역가, 8 내지 15 역가, 8 내지 13 역가, 8 내지 12 역가, 8 내지 11 역가, 8 내지 10 역가, 8 내지 9 역가, 10 내지 18 역가, 10 내지 15 역가, 10 내지 13 역가, 10 내지 12 역가, 10 내지 11 역가, 12 내지 18 역가, 12 내지 15 역가, 12 내지 13 역가, 13 내지 18 역가, 및/또는 13 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함할 수 있다. 특정 실시양태에서, 상기 제1 중합체 층내의 접착 조절제는 마그네슘 염을 포함한다. 본 명세서에 "1 역가의 ACA"는, 수지 1g당 1×10^{-7} 몰의 접착 조절제(ACA)(예컨대, 마그네슘 염)를 의미하는 것으로 정의된다.

[0056] 광학적 결함(예를 들어, 기포) 형성이 억제되는 전술된 중합체 중간층은, 제1 중합체 용융물을 압출하여 코어 층을 형성하고 제2 중합체 용융물을 압출하여 제1 및 제2 스킨 층을 형성함으로써 형성될 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제1 중합체 용융물은 제1 압출기(예를 들어, 코어 압출기)에 의해 공급될 것이고, 상기 제2 중합체 용융물은 제2 압출기(예를 들어, 스킨 압출기)에 의해 공급될 것이며, 이어서 2개의 스트림으로 분할되어 스킨 층을 형성할 것이다. 그럼에도 불구하고, 상기 코어 층과 상기 스킨 층은 일반적으로, 상기 코어 층이 상기 제1 스킨 층과 상기 제2 스킨 층 사이에 위치하도록 공급될 것이다. 특히, 상기 코어 층을 형성하는 제1 중합체 용융물은, 약 0.1 내지 15 역가 범위의 접착 조절제를 포함하는 수지를 포함한다.

[0057] 따라서, 상기 중합체 중간층은 종래 기술의 중합체 중간층보다 더 적은 기포 형성을 가질 것이다. 예를 들어, 상기 중합체 중간층은 2개 이하의 기포 또는 1개 이하의 기포를 가질 수 있고/있거나, 상기 중합체 중간층 전체에 걸쳐 기포가 형성되지 않을 수 있다. 몇몇 특정 실시양태에서, 상기 중합체 중간층은 2개 이하의 엠티 기포 또는 1개 이하의 엠티 기포를 가질 수 있고/있거나, 상기 중합체 중간층 전체에 걸쳐 엠티 기포가 형성되지 않을 수 있다(예를 들어, 상기 중간층이 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층되어 적층 유리 패널을 형성하는 경우).

[0058] 또한, 실시양태들은, 광학적 결함이 감소된 적층 유리 패널의 형성 방법을 추가적으로 포함할 수 있다. 상기 방법은, 전술된 중합체 중간층을 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층하여 적층 유리 패널을 형성하는 단계를 포함할 수 있다. 상기 유리 패널은, 특정 실시양태에서, 상기 유리 패널 내에 형성된 기포(예를 들어, 엠티 기포 또는 트립 기포)를 갖지 않을 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 유리 패널은, 상기 유리 패널 내에 형성된 2개 이하의 기포(예를 들어, 엠티 기포 또는 트립 기포) 또는 1개 이하의 기포(예를 들어, 엠티 기포 또는 트립 기포)를 가질 수 있다. 몇몇 특정 실시양태에서, 상기 적층 유리 패널은 2개 이하의 엠티 기포 또는 1개 이하의 엠티 기포를 갖고/갖거나, 엠티 기포를 갖지 않을 수 있다.

[0059] 실시예

[0060] 실시예 1

[0061] 하기에서 더 자세히 기술되는 바와 같이, 적층 유리 패널의 4개의 세트를 형성하였다. 각각의 유리 패널은 한 쌍의 유리 시트 사이에 개재된 중합체 중간층을 포함하였으며, 각각의 중합체 중간층은 한 쌍의 스킨 층 사이에 개재된 코어 층을 포함하였다. 각각의 세트는, 적용가능 코어 층에 특정 양의 접착 조절제(ACA)를 포함하는 8개의 유리 패널을 포함하였다. 특히, 코어 층에 26 역가의 ACA를 갖는 8개의 적층 유리 패널의 제1 세트를 형성하였다. 코어 층에 22 역가의 ACA를 갖는 8개의 적층 유리 패널의 제2 세트를 형성하였다. 코어 층에 18 역가의 ACA를 갖는 8개의 적층 유리 패널의 제3 세트를 형성하였다. 코어 층에 12 역가의 ACA를 갖는 8개의 적층 유리 패널의 제4 세트를 형성하였다. 1 역가는, 약 1.37 ppm의 마그네슘 염에 해당한다. 하기 표 1에 제시되는 바와 같이, 각각의 유리 패널에서 확인된 기포의 개수를 계수하였다.

[0062] 더욱 구체적으로, 각각의 중합체 중간층을 공압출을 통해 PVB로 형성하였다. 코어 층에 포함된 ACA의 양은, 위의 단락에서 논의된 바와 같았다. 중합체 중간층이 형성되면, 상기 중간층을 40°C 및 25% 상대 습도(RH)에서 4

시간 동안 조건화(conditioning)하였다. 이후에, 상기 중합체 중간층을 한 쌍의 유리 시트 사이에 적층하여, 각각의 생성된 적층 유리 패널이 측정시 일반적으로 15 cm × 15 cm의 정사각형이 되도록 하였다. 이어서, 상기 적층 유리 패널을 다음 조건에 따라 오토클레이빙(autoclaving)하였다. 먼저, 상기 접합 유리 패널을, 대기압 및 약 20℃ 온도의 오토클레이브에 삽입하였다. 나머지 오토클레이브 공정 동안, 약 1분에 걸쳐, 상기 오토클레이브의 내부 압력을 13 bar로 증가시켰다. 오토클레이브 압력에 도달하면, 온도를 6℃/분의 속도로 143℃까지 증가시켰다. 온도를 143℃에서 20분 동안 유지하였으며, 이 시점에서, 45℃의 종료 온도에 도달할 때까지 압력을 분당 4.5℃의 속도로 감소시켰다. 이 시점에서, 압력을 다시 대기압으로 낮추어 오토클레이브 과정을 종료하였다. 적층 유리 패널을 실온에서 1시간 동안 냉각시키고, 이어서 100℃ 오븐에 16시간 동안 두었다.

[0063]

이후에, 각각의 접합 유리 패널의 기포를 계수하였다. 구체적으로, 엿지 기포 시험을 사용하여, 상기 유리 패널의 4개의 엿지 각각에 존재하는 엿지 기포 개수를 계수하였다. 상기 시험에 따라, 엿지 기포의 개수를 각각의 접합 유리 패널에 대해 육안으로 계수하였다. 엿지 기포는, 유리 패널의 엿지에 인접하여 유리 패널 내에 형성된 기포이다. 구체적으로, 본원에 사용된 바와 같이, 엿지 기포는, 유리 패널 및/또는 중합체 중간층 내에서, 유리 패널 및/또는 중합체 중간층의 엿지로부터 약 5 mm 이내에 형성되는 기포이다. 엿지 기포는 일반적으로, 수십 분의 1 mm 내지 약 1 mm의 직경을 갖는 원형이다. 엿지 기포 시험의 결과를 하기 표 1에 제시하며, 이는 각각의 유리 패널에 대해 계수된 엿지 기포 개수를 보여준다.

표 1

코어 ACA (역가)	26	26	26	26	26	26	26	26	22	22	22	22	22	22	22	22
코어 ACA Mg (ppm)	36	36	36	36	36	36	36	36	30	30	30	30	30	30	30	30
기포 (카운트)	4	5	4	2	2	2	3	2	2	2	1	0	0	3	1	3
코어 ACA (역가)	18	18	18	18	18	18	18	18	12	12	12	12	12	12	12	12
코어 ACA Mg (ppm)	25	25	25	25	25	25	25	25	16	16	16	16	16	16	16	16
기포 (카운트)	1	2	0	2	1	0	1	1	0	1	1	2	0	0	2	0

[0064]

[0065]

상기 표 1의 데이터에 의해 예시되는 바와 같이, 유리 패널에서 확인된 기포의 개수는, 중합체 중간층의 코어 층에 포함된 ACA의 양에 일반적으로 비례하는 것으로 나타났다. 더욱 일반적으로, 더 낮은 ACA 수준은 엿지 기포가 더 적거나 없는 것에 대응하는 것으로 밝혀졌다. 예를 들어, 적층 유리 패널들(각각, 관련 코어 층 내에서 26 역가의 ACA 양을 가짐)의 제1 세트는 유리 패널당 평균 3.0개의 엿지 기포를 갖는 것으로 밝혀졌다. 적층 유리 패널들(각각, 관련 코어 층 내에서 22 역가의 ACA 양을 가짐)의 제2 세트는 유리 패널당 평균 1.5개의 엿지 기포를 갖는 것으로 밝혀졌다. 적층 유리 패널들(각각, 관련 코어 층 내에서 18 역가의 ACA 양을 가짐)의 제3 세트는 유리 패널당 평균 1.0개의 엿지 기포를 갖는 것으로 밝혀졌다. 마지막으로, 적층 유리 패널들(각각, 관련 코어 층 내에서 12 역가의 ACA 양을 가짐)의 제4 세트는 유리 패널당 평균 0.75개의 엿지 기포를 갖는 것으로 밝혀졌다. 도 3은, 표 1의 데이터를 차트 형태로 도시하는 것이다. 특정 접합 유리 패널 세트에 대해, 각각의 데이터 세트와 관련된 다이아몬드를 사용하여, 엿지 기포의 평균 개수(즉, 다이아몬드 중앙을 가로질러 연장되는 중앙선을 통해)와 95% 신뢰 구간(즉, 다이아몬드의 위쪽 및 아래쪽 부분을 가로질러 연장되는 위쪽 및 아래쪽 라인을 통해)을 예시한다.

[0066]

중간층 코어 층 및/또는 적층 유리 패널에서 확인된 기포의 개수에 대한 중간층 코어 층의 ACA 양의 이러한 비례성을 발견한 것은 예상치 못한 일이었다. 그 이유는, 전술된 바와 같이, 적층 패널의 층들 간의 접착을 용이하게 하기 위해서는 ACA를 적층 패널에 사용하는 것이 통상적으로 바람직하기 때문이다. 따라서, 이전에는 중간층에서 ACA를 줄이는 것이 바람직하지 않은 것으로 생각되었다. 그러나, 본 발명의 실시태양에 따라 형성된 중간층 및/또는 유리 패널은 예상치 못하게 감소된 기포를 가지면서도, 필요한 접착 특성을 유지하는 것으로 밝혀

졌다.

실시예 2

본 발명의 실시양태에 따라 복수의 중합체 중간층을 형성하였다. 각각의 중합체 중간층을, 한 쌍의 스킨 층 사이에 개재된 코어 층을 포함하는 3층으로 형성하였다. 도 4의 도면에 의해 예시되는 바와 같이, 상기 중합체 중간층은 이의 각각의 코어 층에 다양한 양의 접착 조절제(ACA)를 포함하였다(도 4에서는, 하기에서 논의되는 11개의 ACA 수준에 대한 개별 데이터 포인트를 표시하기 위해 몇몇 포인트가 왼쪽 또는 오른쪽으로 균일하게 이동되었음에 유의한다). 더욱 구체적으로, 11개의 그룹의 중합체 중간층을 형성하였으며, 이때 각각의 그룹은 상기 그룹으로부터의 중합체 중간층의 각각의 코어 층에 0.1, 6.0, 9.0, 10.0, 11.0, 12.0, 13.0, 15.0, 18.0, 22.0 및 23.0 역가의 ACA를 가졌다. 각각의 상기 중합체 중간층을 고압 및 열에 노출시킨 후, 상기 중합체 중간층에 형성된 기포의 개수를 측정하였다. 각각의 중합체 중간층 그룹에 대한 기포의 평균 개수와 표준 편차(ACA 수준 기준)를 하기 표 2에 제공한다.

표 2

코어 ACA (역가)	0.1	6.0	9.0	10.0	11.0	12.0	13.0	15.0	18.0	22.0	23.0
코어 ACA Mg (ppm)	0.1	8.2	12.3	13.7	15.1	16.4	17.8	20.6	24.7	30.1	31.5
기포 카운트 (평균)	0.1	0.0	0.1	0.5	0.3	0.0	0.2	1.6	2.2	3.0	3.8
기포 카운트 (표준 편차)	0.3	0.0	0.3	0.6	0.8	0.2	0.7	1.3	2.3	3.4	5.5

상기 표 2 및 도 4의 데이터에 의해 예시되는 바와 같이, 본 실시예의 중합체 중간층에서 결정된 기포의 개수는 일반적으로 상기 중합체 중간층의 코어 층에 포함된 ACA의 양에 비례하는 것으로 밝혀졌다. 더욱 일반적으로, 더 낮은 ACA 수준은 더 적은 기포에 대응하는 것으로 밝혀졌다.

또한, 본 실시예로부터의 중합체 중간층의 개별 그룹을 정성적 카테고리에 할당하였으며, 이때 상기 카테고리는 본 발명의 발명자에 의해 개발된 것이다. 특히, 3.0 이상의 평균 기포 카운트를 갖는 중합체 중간층의 그룹은 "허용불가능한" 품질인 것으로 간주되었는데, 그 이유는, 이렇게 많은 개수의 기포는 상당한 광학적 결함을 갖는 중합체 중간층을 제공하기 때문이다. 3.0개 미만의 평균 기포 카운트를 갖는 중합체 중간층의 그룹은 "허용가능한" 품질인 것으로 간주되었는데, 그 이유는, 이러한 개수의 기포는 허용가능한 또는 용인가능한 광학적 결함을 갖는 중합체 중간층을 제공하기 때문이다. 또한, 2.0 미만의 평균 기포 개수를 갖는 중합체 중간층의 그룹은 "탁월한" 품질인 것으로 간주되었다.

상기 내용, 상기 표 2 및 도 4를 고려하면, 22.0 및 23.0 역가의 ACA를 함유하는 중합체 중간층들의 그룹 둘 다는 평균적으로 허용불가능한 개수의 기포를 가짐에 유의한다. 대조적으로, 0.1, 6.0, 9.0, 10.0, 11.0, 12.0, 13.0 및 15.0 역가의 ACA를 함유하는 중합체 중간층들의 그룹은 각각 평균적으로 허용가능한 개수의 기포를 가졌다. 또한, 0.1, 6.0, 9.0, 10.0, 11.0, 12.0, 13.0 및 15.0 역가의 ACA를 포함하는 중합체 중간층의 그룹은 각각 탁월한 품질인 것으로 확인되었다.

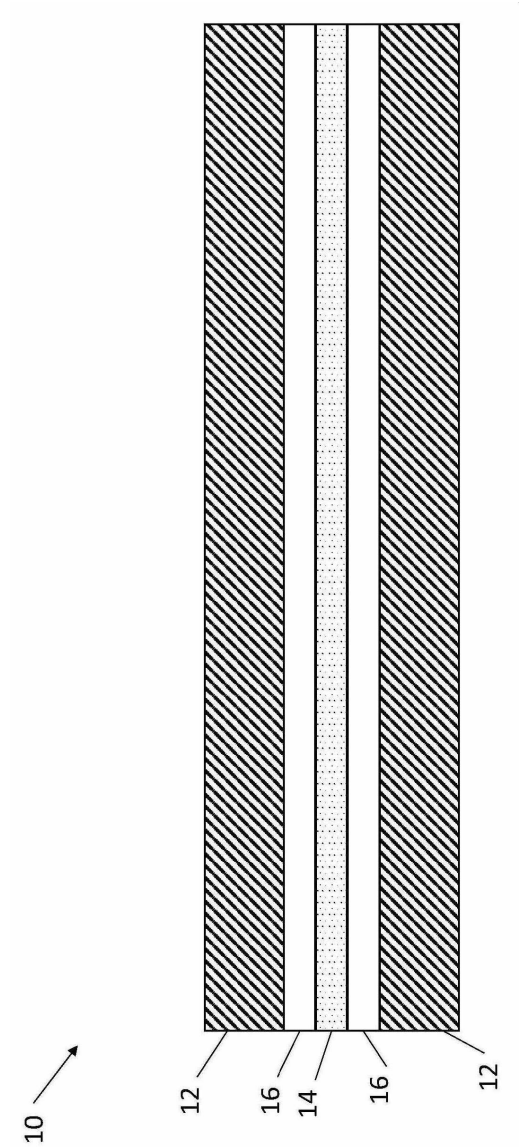
본 발명이, 바람직한 실시양태라고 현재 여겨지는 것들을 비롯하여 특정 실시양태의 설명과 함께 개시되었지만, 이러한 상세한 설명은 예시를 위한 것으로 의도되며, 본 발명의 범위를 제한하는 것으로 이해되어서는 안 된다. 당업자가 이해하는 바와 같이, 본원에서 상세히 기술된 것 이외의 다른 실시양태도 본 발명에 포함된다. 본 발명의 진의 및 범위를 벗어나지 않고도, 기술된 실시양태의 수정 및 변형이 이루어질 수 있다.

또한, 본 발명의 임의의 단일 구성요소에 대해 제공되는 임의의 범위, 값, 또는 특성은, 양립가능한 경우, 본 발명의 임의의 다른 구성요소에 대해 제공되는 범위, 값 또는 특성과 상호교환적으로 사용되어, 본원 전반에 걸쳐 제공되는 바와 같이, 각각의 구성요소에 대해 정의된 값을 갖는 실시양태를 형성할 수 있음이 추가로 이해될 것이다. 예를 들어, 본 발명의 범위 이내이지만 열거하기에는 번거로울 수 있는 많은 순열을 형성하기 위해, 적

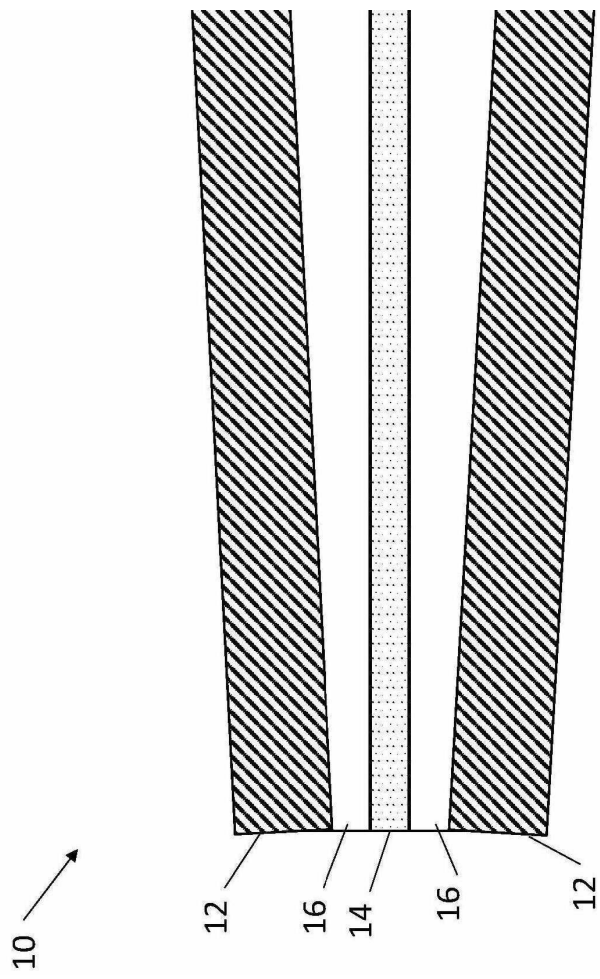
절한 경우, 잔류 하이드록실 함량에 대해 제시된 임의의 범위에 더하여 제시된 임의의 범위의 가소제 함량을 포함하는 중합체 층을 형성할 수 있다.

도면

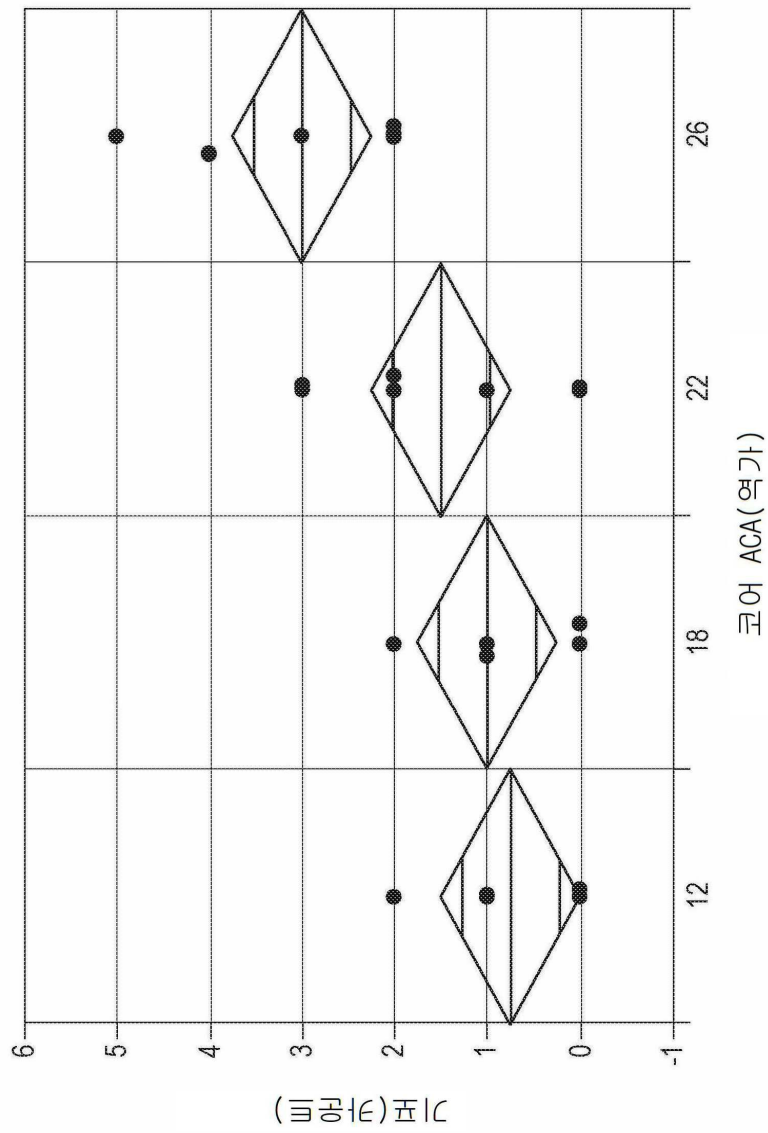
도면1



도면2



도면3



도면4

