



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2023년07월05일
(11) 등록번호 10-2552229
(24) 등록일자 2023년07월03일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B32B 27/30 (2006.01) B32B 27/08 (2006.01)
B32B 27/22 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
C08L 29/00 (2006.01)
- (52) CPC특허분류
B32B 27/306 (2013.01)
B32B 27/08 (2021.01)
- (21) 출원번호 10-2017-7018847
- (22) 출원일자(국제) 2015년12월04일
심사청구일자 2020년12월02일
- (85) 번역문제출일자 2017년07월07일
- (65) 공개번호 10-2017-0093221
- (43) 공개일자 2017년08월14일
- (86) 국제출원번호 PCT/US2015/063907
- (87) 국제공개번호 WO 2016/094220
국제공개일자 2016년06월16일
- (30) 우선권주장
14/563,372 2014년12월08일 미국(US)
14/563,347 2014년12월08일 미국(US)
- (56) 선행기술조사문헌
JP2007008796 A*
KR1020100014178 A*
US5190826 A*
US20130323516 A1*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

- (73) 특허권자
솔루티아인코포레이티드
미합중국 미주리주 세인트 루이스시 매리빌 센터
드라이브 575
- (72) 발명자
루 준
미국 매사추세츠주 01028 이스트 롱메도우 스톤힐
로드 16
파하우디 알다
미국 매사추세츠주 01106 롱메도우 노쓰필드 로드
75
리 조우
미국 매사추세츠주 01532 노쓰보로 리틀 폰드 로
드 59
- (74) 대리인
제일특허법인(유)

전체 청구항 수 : 총 13 항

심사관 : 이지혜

(54) 발명의 명칭 개선된 광학 특성을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지 조성물, 층 및 중간층

(57) 요약

2종 이상의 열가소성 중합체, 및 수지 또는 층 중 적어도 하나의 굴절률을 조절하기 위한 하나 이상의 RI 균형제 (balancing agent)를 포함하는 수지 조성물, 층 및 중간층이 제공된다. 상기 조성물, 층 및 중간층은 내충격성 및 음향 성능과 같은 다른 특성을 유지하면서, 개선된 광학 특성을 나타낸다.

(52) CPC특허분류

B32B 27/22 (2013.01)

C08J 5/18 (2021.05)

C08L 29/00 (2013.01)

B32B 2307/418 (2013.01)

C08L 2205/025 (2013.01)

C08L 2205/03 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지;

상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2 중량% 많거나 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지; 및

1.460 이상의 굴절률을 갖는 가소제

를 포함하는 제 1 수지 층

을 포함하는 중합체 중간층(interlayer)으로서, 이때

상기 제 1 수지 층이, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 0.5 중량% 이상의 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하고,

상기 제 1 수지 층이 1.480 이상의 굴절률을 갖고,

상기 제 1 수지 층의 유리 전이 온도가 26℃ 이상이고,

상기 중간층이, 상기 중간층 내에서 상기 제 1 수지 층과 접촉하는 인접 수지 층을 추가로 포함하고,

상기 인접 수지 층이 또다른 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 가소제를 포함하고,

상기 또다른 폴리(비닐 아세탈) 수지가, 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2 중량% 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖고,

상기 인접 수지 층이 25℃ 미만의 유리 전이 온도를 갖는, 중간층.

청구항 2

제 1 항에 있어서,

상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가, 상기 제 1 및 상기 제 2 수지의 합친 중량을 기준으로 2.5 중량% 이상의 양으로 상기 제 1 수지 층 중에 존재하는, 중간층.

청구항 3

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 수지 층의 적어도 일부의 유리 전이 온도가 25℃ 미만인, 중간층.

청구항 4

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 양이, 상기 제 1 수지 층 중에 존재하는 모든 수지의 총 중량의 50 중량% 이상이고,

상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 각각, 상기 제 1 수지 층의 모든 수지의 총 중량을 기준으로 2.5 중량% 이상의 양으로 상기 제 1 수지 층 중에 존재하고,

상기 제 1 수지 층이 2% 미만의 헤이즈 값을 갖는, 중간층.

청구항 5

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지가 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지 내에 분산되어 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지 내의 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지

의 도메인을 형성하도록 상기 제 1 수지 층 내에 배합된, 중간층.

청구항 6

제 5 항에 있어서,

상기 중간층이 5% 미만의 헤이즈 값을 갖는, 중간층.

청구항 7

제 1 항의 중간층 및 하나 이상의 강성(rigid) 기판을 포함하는 다층 패널.

청구항 8

제 1 항에 있어서,

상기 중간층이, 1.450 미만의 굴절률을 갖는 하나 이상의 추가적인 가소제를 추가로 포함하는, 중간층.

청구항 9

제 5 항에 있어서,

상기 배합 이전에, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 1.492 초과와 1.492 이하의 굴절률을 갖고,

상기 배합 이후에, 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 굴절률과 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 굴절률의 차이의 절대값은 0.010 이하인, 중간층.

청구항 10

제 9 항에 있어서,

상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 1.492 초과와 1.492 이하의 굴절률을 갖고,

상기 배합된 수지가, 상기 배합된 수지 층 중의 수지의 합친 중량을 기준으로 0.5 중량% 이상의 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하고,

상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지가 1.492 미만의 굴절률을 갖는, 중간층.

청구항 11

제 9 항에 있어서,

상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지가, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 및 2-에틸헥산알로 이루어진 군으로부터 선택되는 하나 이상의 알데하이드잔기를 포함하고,

상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 하나 이상의 방향족 알데하이드 잔기를 포함하는, 중간층.

청구항 12

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지와 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 유리 전이 온도 차이가 3°C 이상이고,

상기 중간층이 2% 미만의 헤이즈 값을 갖는, 중간층.

청구항 13

제 1 항에 있어서,

상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지가 15 중량% 이상의 잔류 하이드록실 함량을 갖고,

상기 제1 수지 층의 적어도 일부가 20°C 이하의 유리 전이 온도를 갖는, 중간층.

청구항 14

삭제

청구항 15

삭제

청구항 16

삭제

청구항 17

삭제

청구항 18

삭제

청구항 19

삭제

청구항 20

삭제

청구항 21

삭제

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본원은 중합체 수지, 특히, 중합체 중간층(예컨대, 다층 패널에 사용되는 것)에 사용되기에 적합한 중합체 수지에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 폴리(비닐 부티랄)(PVB)은 흔히, 안전 유리 또는 중합체성 적층체(laminate)와 같은 광-투과 적층체를 포함하는 다층 패널에서 중간층으로서 사용될 수 있는 중합체 시트의 제조에 사용된다. PVB는 또한, 상업 및 주거 용도를 위한 전기를 생산하고 공급하는데 사용되는 패널을 캡슐화하기 위해 광기전 태양 패널에 사용된다.

[0003] 안전 유리는 일반적으로, 2개의 유리 시트들 사이에 위치하는, 하나 이상의 중합체 시트 또는 중간층을 포함하는 투명 적층체를 지칭한다. 안전 유리는 흔히 건축 및 자동차 용도에서 투명 장벽으로서 사용되며, 이의 주된 기능 중 하나는, 상기 유리를 통한 물체의 관통을 허용하지 않으면서 충격 또는 타격으로부터 기인하는 에너지를 흡수하고, 심지어 유리를 파괴하기에 충분한 힘이 적용되는 경우에도 유리를 결합된 채로 유지하는 것이다. 이는, 날카로운 유리 조각의 분산을 방지하여, 밀폐된 공간 내에서 사람 또는 물체에 대한 상해 및 손상을 최소화한다. 안전 유리는 또한, 자외선(UV) 및/또는 적외선(IR) 복사선의 감소와 같은 다른 이점을 제공할 수 있으며, 또한 색상, 텍스처 등의 부가를 통해 윈도우 개구부의 심미적 외관을 개선할 수 있다. 추가적으로, 바람직한 음향 특성을 갖는 안전 유리가 또한 생산되었으며, 이는, 더 조용한 내부 공간을 제공한다.

[0004] 흔히, 목적하는 특성들(예컨대, 음향 성능)의 하나의 세트를 나타내는 중합체는 다른 바람직한 특성(예컨대, 내충격성 또는 강도)은 부족하다. 따라서, 목적하는 특성들의 조합을 달성하기 위해서 다층 중합체 중간층이 사용되었다. 이러한 다층 중간층은, 2개의 외부 "스킨" 층들 사이에 개재된 하나 이상의 내부 "코어" 층을 포함할 수 있다. 흔히, 중간층의 코어 층은, 더 낮은 유리 전이 온도(이는, 중간층의 음향 성능을 개선함)를 갖는 더 연질의 층일 수 있다. 그러나, 이러한 수지 층은 용이하게 가공하고/하거나 운반하기 어려울 수 있기 때문에, 다층 중간층의 스킨 층은 흔히 더 강성이고 더 높은 유리 전이 온도를 가져서, 중간층의 개선된 가공성, 강

성 및 내충격성을 제공한다.

[0005] 그러나, 상이한 특성을 갖는 다양한 층을 사용하는 것은 또한, 중간층 내의 광학 결함을 생성할 수 있다. 예를 들어, 이러한 유형의 다층 중간층에 통상적인 하나의 결함은 반점(mottle)이다. 반점은, 일반적으로 최종 구조에서 불균일한 스팟 또는 텍스처로서 나타나는 광학 왜곡 또는 시각적 결함 형태의 불쾌한 형태이다. 반점은, 연성 층과 강성 층의 계면에서 작은 크기의 표면 변화에 의해 유발되며, 이때 개별적인 층들은 상이한 굴절률을 가진다. 선명도(clarity)는, 중간층 또는 패널 내의 헤이즈 수준을 측정함으로써 결정되는 또다른 중요한 광학 특성이다. 높은 헤이즈는 전형적으로, 상이한 유형의 광학적으로 비상용성인 중합체 및/또는 가소제가 함께 배합되거나 혼합되는 경우에 나타난다. 이러한 혼합물에서, 상기 배합물을 통과하는 광은, 상이한 중합체 물질의 영역을 만날 때 산란되며, 그 결과는, 흐리고 시각적으로 불명료한 외관이다. 높은 선명도의 중합체 및 중간층은 매우 낮은 헤이즈 값을 갖는 것이다.

[0006] 따라서, 다른 특성(예컨대, 내충격성 및 음향 성능)의 희생 없이, 바람직한 광학 특성(예컨대, 감소된 헤이즈 및 반점 및 개선된 선명도)을 갖는 중합체 수지, 수지 층 및 중간층이 필요하다. 이러한 중간층은 단일체형 또는 다층일 수 있으며, 다양한 용도에(예컨대, 안전 유리에 및 중합체 적층체로서)에 사용가능해야 한다.

발명의 내용

[0007] 본 발명의 하나의 실시양태는, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지, 및 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2 중량% 많거나 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 제 1 수지 층을 포함하는 중합체 중간층에 관한 것이며, 이때 상기 제 1 수지 층은, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 0.5 중량% 이상의 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하고, 상기 제 1 수지 층은 1.480 이상의 굴절률을 가진다.

[0008] 본 발명의 또다른 실시양태는, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지, 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2% 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지, 및 1.460 이상의 굴절률을 갖는 하나 이상의 가소제를 포함하는 중합체 수지 조성물에 관한 것이며, 이때 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 총 중량을 기준으로 0.5 중량% 이상의 양으로 상기 수지 조성물 중에 존재하고, 상기 수지 조성물은 5% 이하의 헤이즈 값을 가진다.

[0009] 본 발명의 또다른 실시양태는 중간층의 제조 방법에 관한 것이며, 이때 상기 방법은, 제 1 하이드록실 함량을 갖는 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 조성물, 및 상기 제 1 하이드록실 함량보다 적어도 2% 적은 제 2 하이드록실 함량을 갖는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 조성물을 제공하는 단계; 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 조성물 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 조성물을 배합하여, 배합된 수지 조성물을 형성하는 단계; 상기 배합된 수지 조성물로부터 배합된 수지 층을 형성하는 단계를 포함하고, 이때 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 약 0.5 중량% 이상의 양으로 상기 배합된 수지 층 중에 존재하고, 상기 배합된 수지 층은 1.480 이상의 굴절률을 가진다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0010] 본 발명의 다양한 실시양태에 따른 수지 조성물, 층, 및 중간층은 하나 이상의 열가소성 중합체 및 굴절률(RI) 균형제를 포함할 수 있다. 본원에서 용어 "굴절률 균형제" 또는 "RI 균형제"는, 상기 수지 또는 층 중 적어도 하나의 굴절률을 조절하기 위해 상기 조성물, 층 또는 중간층에 포함되는 임의의 성분 또는 첨가제를 지칭한다. 상기 RI 균형제는 중간층 내의 수지 또는 층 중 적어도 하나의 굴절률을 증가 또는 감소시킬 수 있으며, 이는, RI 균형제가 없이 형성된 동일한 중간층에 비해 중간층의 광학 특성(예컨대, 반점, 헤이즈 및/또는 선명도)을 개선할 수 있다.

[0011] 본원에서 용어 "중합체 수지 조성물" 및 "수지 조성물"은, 하나 이상의 중합체 수지를 포함하는 조성물을 지칭한다. 중합체 조성물은 임의적으로 다른 성분, 예컨대 가소제 및/또는 다른 첨가제를 포함할 수 있다. 본원에서 용어 "중합체 수지 층" 및 "수지 층"은, 임의적으로 하나 이상의 가소제와 조합되어 중합체성 시트로 성형된 하나 이상의 중합체 수지를 지칭한다. 다시, 수지 층은 추가적인 첨가제를 포함할 수 있지만, 이것이 필요한 것은 아니다. 본원에서 용어 "중간층"은, 하나 이상의 강성 기판과 함께 다층 패널을 형성하기에 적합한 단층 또는 다층 중합체 시트를 지칭한다. 용어 "단일-시트" 중간층 및 "단일체형" 중간층은, 하나의 단일 수지 시트로 형성된 중간층을 지칭하며, 용어 "다층" 및 "다층" 중간층은, 공압출되거나 적층되거나(laminated) 달리 서

로 커플링된 2개 이상의 수지 시트를 갖는 중간층을 지칭한다.

- [0012] 본원에 기술된 수지 조성물, 층, 및 중간층은 하나 이상의 열가소성 중합체를 포함할 수 있다. 적합한 열가소성 중합체의 예는, 비제한적으로, 폴리(비닐 아세탈) 수지, 폴리우레탄(PU), 폴리(에틸렌-코-비닐) 아세테이트(EVA), 폴리비닐 클로라이드(PVC), 폴리(비닐클로라이드-코-메타크릴레이트), 폴리에틸렌, 폴리올레핀, 에틸렌 아크릴레이트 에스터 공중합체, 폴리(에틸렌-코-부틸 아크릴레이트), 실리콘 단성중합체, 에폭시 수지, 및 산 공중합체, 예컨대 에틸렌/카복실산 공중합체, 및 상기 열거된 임의의 중합체로부터 유도된 이들의 이오노머, 및 이들의 조합물을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 열가소성 중합체는 폴리(비닐 아세탈) 수지, 폴리비닐 클로라이드 및 폴리우레탄으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있거나, 상기 수지는 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함할 수 있다. 폴리(비닐 아세탈) 수지와 관련하여 본원에 기술되었지만, 상기 중합체 수지 중 하나 이상은, 본 발명의 다양한 실시양태에 따라 후술되는 폴리(비닐 아세탈) 수지와 함께 또는 이를 대신하여 포함될 수 있는 것으로 이해되어야 한다.
- [0013] 본원에 기술된 수지 조성물, 층, 및 중간층이 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 경우, 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지는 임의의 적합한 방법에 따라 제조할 수 있다. 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 산 촉매의 존재 하에 폴리비닐 알코올을 하나 이상의 알데하이드로 아세탈화시켜 제조할 수 있다. 이어서, 생성 수지를 분리하고, 안정화시키고, 공지된 방법(예컨대, 미국 특허 제 2,282,057 호 및 제 2,282,026 호뿐만 아니라 문헌["Vinyl Acetal Polymers," in the Encyclopedia of Polymer Science & Technology, 3rd ed., Volume 8, pages 381-399, by B.E. Wade (2003)]에 기술된 것)에 따라 건조할 수 있다. 생성 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 달리 언급되지 않는 한, ASTM D-1396에 따라 측정시, 약 50 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 약 70 중량% 이상, 약 75 중량% 이상, 약 80 중량% 이상, 약 85 중량% 이상의 총 아세탈화를 가질 수 있다. 폴리(비닐 아세탈) 수지 중의 알데하이드 잔기의 총량은 아세탈 성분으로서 집합적으로 지칭될 수 있으며, 폴리(비닐 아세탈) 수지의 나머지는 잔류 하이드록실 및 잔류 아세테이트 기이고, 이는 하기에 더 자세히 기술될 것이다.
- [0014] 몇몇 실시양태에 따라, 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층은 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함할 수 있으며, 이는, 조성물, 층 또는 중간층의 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 약 0.5 중량% 이상, 약 1 중량% 이상, 약 2 중량% 이상, 약 3 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 또는 약 45 중량% 이상의 양으로 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. 또한, 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 조성물, 층 또는 중간층의 약 10 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 약 50 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 약 70 중량% 이상, 약 80 중량% 이상을 구성할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지 이외의 수지의 양은, 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 약 20 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 5 중량% 이하, 약 2 중량% 이하, 또는 약 1 중량% 이하일 수 있다.
- [0015] 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층은 적어도 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함할 수 있으며, 이들은 각각, 조성물, 층 또는 중간층의 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 약 0.5 중량% 이상, 약 1 중량% 이상, 약 2 중량% 이상, 약 3 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 또는 약 45 중량% 이상의 양으로 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는 함께, 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 상기 조성물, 층 또는 중간층의 약 10 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 약 50 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 약 70 중량% 이상, 또는 약 80 중량% 이상을 구성할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 이외의 수지의 양은, 모든 수지의 합친 중량을 기준으로 약 20 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 5 중량% 이하, 약 2 중량% 이하, 또는 약 1 중량% 이하일 수 있다.
- [0016] 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지는, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 12 중량% 미만의 양으로 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. 예를 들어, 상기 제 1 또는 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 약 0.5 중량% 이상, 약 1 중량% 이상, 약 1.5 중량% 이상, 약 2 중량% 이상, 약 2.5 중량% 이상, 약 3 중량% 이상, 약 3.5 중량% 이상, 약 4 중량% 이상, 약 4.5 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 5.5 중량% 이상, 약 6 중량% 이상, 약 6.5 중량% 이상, 약 7 중량% 이상 및/또는 약 12 중량% 이하, 약 11.5 중량% 이하, 약 11 중량% 이하, 약 10.5 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 9.5 중량% 이하, 약 9 중량% 이하, 약 8.5 중량% 이하, 약 8 중량% 이하, 약 7.5 중량% 이하의 양으로 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지는, 상기

제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 중량을 기준으로 약 0.5 내지 약 12 중량%, 약 1.5 내지 약 11.5 중량%, 약 2 내지 약 11 중량%, 약 2.5 내지 약 10 중량% 범위의 양으로 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다.

[0017] 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는 임의의 적합한 알데하이드의 잔기를 포함할 수 있고, 몇몇 실시양태에서, 적어도 하나의 C₁ 내지 C₁₀ 알데하이드, 적어도 하나의 C₄ 내지 C₈ 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 적합한 C₄ 내지 C₈ 알데하이드의 예는, 비제한적으로, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 2-메틸발레르알데하이드, n-헥실 알데하이드, 2-에틸헥실 알데하이드, n-옥틸 알데하이드, 및 이들의 조합을 포함할 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는, 상기 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 20 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 약 50 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 또는 약 70 중량% 이상의 적어도 하나의 C₄ 내지 C₈ 알데하이드의 잔기를 포함할 수 있고/있거나, 약 90 중량% 이하, 약 85 중량% 이하, 약 80 중량% 이하, 약 75 중량% 이하, 약 70 중량% 이하, 약 65 중량% 이하의 적어도 하나의 C₄ 내지 C₈ 알데하이드, 또는 약 20 내지 약 90 중량%, 약 30 내지 약 80 중량%, 또는 약 40 내지 약 70 중량% 범위의 적어도 하나의 C₄ 내지 C₈ 알데하이드를 포함할 수 있다. 상기 C₄ 내지 C₈ 알데하이드는 상기 열거된 군으로부터 선택될 수 있거나, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 2-에틸헥실 알데하이드, 및 이들의 조합으로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.

[0018] 다양한 실시양태에서, 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는 폴리(비닐 n-부티랄)(PVB) 수지일 수 있다. 다른 실시양태에서, 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, n-부티르알데하이드 잔기를 주로 포함하는 폴리(비닐 n-부티랄) 수지일 수 있고, 예를 들어, 상기 수지의 모든 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 50 중량% 이하, 약 40 중량% 이하, 약 30 중량% 이하, 약 20 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 5 중량% 이하, 또는 약 2 중량% 이하의, n-부티르알데하이드 이외의 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 PVB 수지인 경우, 상기 수지의 분자량은, 코츠(Cotts) 및 오우아노(Ouano)의 저각 레이저 광 산란(SEC/LALLS) 방법을 사용하여 크기 배제 크로마토그래피로 측정시 약 50,000 Da(Dalton) 이상, 약 70,000 Da 이상, 약 100,000 Da 이상 및/또는 약 600,000 Da 이하, 약 550,000 Da 이하, 약 500,000 이하, 약 450,000 Da 이하, 또는 425,000 Da 이하일 수 있다. 본원에서 용어 "분자량"은, 중량 평균 분자량(M_w)을 지칭한다. 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 분자량은 약 50,000 내지 약 600,000, 약 70,000 내지 약 450,000, 또는 약 100,000 내지 약 425,000 Da 범위일 수 있다.

[0019] 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지와 관련하여 본원에서 일반적으로 기술되었지만, 몇몇 실시양태에서, 제 1 및 제 2 아세탈 잔기를 포함하는 등가의 단일 폴리(비닐 아세탈) 수지가 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 대신하여 유사한 결과를 제공할 수 있음을 이해해야 한다. 본원에서 용어 "폴리(비닐 아세탈) 수지 성분"은, 수지들의 배합물 중에 존재하는 개별적인 폴리(비닐 아세탈) 수지, 또는 단일 폴리(비닐 아세탈) 수지 상에 존재하는 아세탈 잔기를 지칭할 수 있다. 다양한 실시양태에서, 상기 층, 중간층, 또는 배합물 중의 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분 대 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분의 양의 중량비는 약 0.5:99.5 내지 약 99.5:0.5, 약 1:99 내지 99:1, 약 10:90 내지 약 90:10, 약 25:75 내지 약 75:25, 또는 약 40:60 내지 약 60:40 범위일 수 있다.

[0020] 몇몇 실시양태에서, 적어도 하나의 수지 조성물, 층 또는 중간층은 적어도 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 수지 성분은, 물리적으로 혼합되어 수지 배합물을 형성할 수 있는 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함할 수 있고, 상기 수지 배합물은 하나 이상의 가소제 또는 다른 첨가제와 조합되어, 배합된 수지 층 또는 중간층을 제공할 수 있다. 다른 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분은 단일 폴리(비닐 아세탈) 수지 내에서 각각의 제 1 및 제 2 아세탈 잔기로서 존재할 수 있다. 상기 수지 배합물의 경우와 같이, 이러한 단일 "혼성(hybrid)" 폴리(비닐 아세탈) 수지는 임의적으로 가소제와 배합되어, 수지 층 및 중간층에 사용될 수 있다.

[0021] 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 성분이 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 경우, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 및 제 2 수지 중 하나의 수지가 상기 제 1 및 제 2 수지 중 나머지 수지 내에 분산되어 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지 내의 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지의 도메인을 형성할 수 있도록, 배합될 수 있다. 이렇게 배합된 수지는 단일 층 중간층으로서 사용될 수 있거나, 하나 이상의 인접 층과 조합되어 다층 중간층을 형성할 수 있다. 다른 실시양태에서, 상

기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 중간층의 층들 중 하나가 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하고 상기 중간층의 또다른 층이 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하도록, 다층 중간층의 인접 층 중에 존재할 수 있다. 추가적인 층이 또한 상기 층 중 적어도 하나에 인접하여 존재할 수 있다.

[0022] 본 발명의 다양한 실시양태에 따른 수지 조성물, 층, 및 중간층은 하나 이상의 가소제를 추가로 포함할 수 있다. 상기 조성물, 층 또는 중간층 중의 수지(들)의 특정 조성에 따라, 상기 가소제는, 약 5 phr(수지 백부 당 부) 이상, 약 10 phr 이상, 약 15 phr 이상, 약 20 phr 이상, 약 25 phr 이상, 약 30 phr 이상, 약 35 phr 이상, 약 40 phr 이상, 약 45 phr 이상, 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상 및/또는 약 120 phr 이하, 약 110 phr 이하, 약 105 phr 이하, 약 100 phr 이하, 약 95 phr 이하, 약 90 phr 이하, 약 85 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, 또는 약 5 내지 약 120, 약 10 내지 약 110 phr, 약 20 내지 약 90 phr, 또는 약 25 내지 약 75 phr 범위의 양으로 존재할 수 있다. 특정 실시양태는 곧 자세히 논의된다.

[0023] 본원에서 용어 "수지 백부 당 부" 또는 "phr"은, 중량을 기준으로, 수지 100부에 대해 존재하는 가소제의 양을 지칭한다. 예를 들어, 30 g의 가소제가 100 g의 수지에 첨가되는 경우, 가소제는 30 phr의 양으로 존재할 것이다. 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층이 2종 이상의 수지를 포함하는 경우, 가소제의 중량을 존재하는 모든 수지의 합친 양과 비교하여, 수지 백부 당 부를 결정한다. 또한, 층 또는 중간층의 가소제 함량이 본원에 제공되는 경우, 이는, 상기 층 또는 중간층을 제조하는데 사용되는 혼합물 또는 용융물 중의 가소제의 양에 대하여 제공된다.

[0024] 적합한 가소제의 예는, 비제한적으로, 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("3GEH"), 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸부티레이트), 트라이에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("4GEH"), 다이헥실 아디페이트, 다이옥틸 아디페이트, 헥실 사이클로헥실아디페이트, 다이이소노닐 아디페이트, 헵틸노닐 아디페이트, 다이(부톡시에틸) 아디페이트, 및 비스(2-(2-부톡시에톡시)에틸) 아디페이트, 다이부틸 세바케이트, 다이옥틸 세바케이트, 및 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 상기 가소제는 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트) 및 테트라에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있거나, 상기 가소제는 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)를 포함할 수 있다.

[0025] 몇몇 실시양태에 따라, 본원에 기술된 조성물, 층, 및 중간층 중의 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는 상이한 조성을 가질 수 있다. 예를 들어, 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량 및/또는 잔류 아세테이트 함량보다 적어도 약 2 중량%, 적어도 약 3 중량%, 적어도 약 4 중량%, 적어도 약 5 중량%, 적어도 약 6 중량%, 또는 적어도 약 8 중량% 많거나 적은 잔류 하이드록실 함량 및/또는 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 본원에서 용어 "잔류 하이드록실 함량" 및 "잔류 아세테이트 함량"은, 가공이 완료된 후 수지 상에 남아 있는 각각의 하이드록실 기 및 아세테이트 기의 양을 지칭한다. 예를 들어, 폴리(비닐 n-부티랄)은, 폴리비닐 아세테이트를 폴리비닐 알코올로 가수분해시키고, 이어서 상기 폴리비닐 알코올을 n-부티르알데하이드로 아세탈화시켜 폴리(비닐 n-부티랄)을 형성함으로써 제조할 수 있다. 상기 폴리비닐 아세테이트를 가수분해시키는 과정에서, 모든 아세테이트 기가 하이드록실 기로 전환되지는 않으며, 잔류 아세테이트 기는 상기 수지 상에 남게 된다. 유사하게, 상기 폴리비닐 알코올을 아세탈화시키는 과정에서, 모든 하이드록실 기가 아세탈 기로 전환되지는 않으며, 이 또한 상기 수지 상에 잔류 하이드록실 기로 남게 된다. 결과적으로, 대부분의 폴리(비닐 아세탈) 수지는 중합체 쇄의 일부로서 잔류 하이드록실 기(비닐 하이드록실 기로서) 및 잔류 아세테이트 기(비닐 아세테이트 기로서)를 둘 다 포함한다. 잔류 하이드록실 함량 및 잔류 아세테이트 함량은, 달리 언급되지 않는 한, 상기 중합체 수지의 중량을 기준으로 중량%로 표현되고, ASTM D-1396에 따라 측정된다.

[0026] 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 함량 차이는 약 2 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 12 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 또는 약 30 중량% 이상일 수 있다. 본원에서 용어 "상이한 중량%" 또는 "상기 차이는 ~ 중량% 이상이다"는, 하나의 수를 나머지 수로부터 빼서 계산된, 2개의 제시된 중량% 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) 수지보다 2 중량% 적은 잔류 하이드록실 함량을 가진다(14 중량% - 12 중량% = 2 중량%). 본원에서 용어 "상이한"은, 하나의 값이 또 다른 값보다 높거나 낮음을 지칭할 수 있다.

[0027] 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 약 14 중량% 이상, 약 14.5 중량% 이상,

약 15 중량% 이상, 약 15.5 중량% 이상, 약 16 중량% 이상, 약 16.5 중량% 이상, 약 17 중량% 이상, 약 17.5 중량% 이상, 약 18 중량% 이상, 약 18.5 중량% 이상, 약 19 중량% 이상, 약 19.5 중량% 이상 및/또는 약 45 중량% 이하, 약 40 중량% 이하, 약 35 중량% 이하, 약 33 중량% 이하, 약 30 중량% 이하, 약 27 중량% 이하, 약 25 중량% 이하, 약 22 중량% 이하, 약 21.5 중량% 이하, 약 21 중량% 이하, 약 20.5 중량% 이하, 약 20 중량% 이하, 또는 약 14 내지 약 45 중량%, 약 16 내지 약 30 중량%, 약 18 내지 약 25 중량%, 약 18.5 내지 약 20 중량%, 또는 약 19.5 내지 약 21 중량% 범위의 잔류 하이드록실 함량을 가질 수 있다.

[0028] 다른 폴리(비닐 아세탈) 수지는 약 8 중량% 이상, 약 9 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 11 중량% 이상 및/또는 약 16 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 14.5 중량% 이하, 약 13 중량% 이하, 약 11.5 중량% 이하, 약 11 중량% 이하, 약 10.5 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 9.5 중량% 이하, 약 9 중량% 이하, 또는 약 8 내지 약 16 중량%, 약 9 내지 약 15 중량%, 또는 약 9.5 내지 약 14.5 중량% 범위의 잔류 하이드록실 함량을 가질 수 있고, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 함량 차이는 전술된 바와 같이 약 2 중량% 이상이다. 하나 이상의 다른 폴리(비닐 아세탈) 수지가 또한 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있으며, 전술된 범위 내의 잔류 하이드록실 함량을 가질 수 있다. 추가적으로, 하나 이상의 다른 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량은 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량과 동일하거나 상이할 수 있다.

[0029] 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 나머지 수지와 상이한 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 예를 들어, 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 아세테이트 함량 차이는 약 2 중량% 이상, 약 3 중량% 이상, 약 4 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 8 중량% 이상, 약 10 중량% 이상일 수 있다. 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지들 중 하나의 수지는, 전술된 바와 같이 측정시 약 4 중량% 이하, 약 3 중량% 이하, 약 2 중량% 이하, 또는 약 1 중량% 이하의 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 약 5 중량% 이상, 약 8 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 12 중량% 이상, 약 14 중량% 이상, 약 16 중량% 이상, 약 18 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 또는 약 30 중량%의 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 아세테이트 함량 차이는 전술된 범위 이내일 수 있거나, 상기 차이는 약 3 중량% 미만, 약 2 중량% 이하, 약 1 중량% 이하, 또는 약 0.5 중량% 이하일 수 있다. 상기 수지 조성물 또는 중간층 중에 존재하는 추가적인 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 아세테이트 함량과 동일하거나 상이한 잔류 아세테이트 함량을 가질 수 있다.

[0030] 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 함량 차이는 약 2 중량% 미만, 약 1 중량% 이하, 또는 약 0.5 중량% 이하일 수 있고, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 아세테이트 함량 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. 다른 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 아세테이트 함량 차이는 약 3 중량% 미만, 약 2 중량% 이하, 약 1 중량% 이하, 또는 약 0.5 중량% 이하일 수 있으며, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 함량 차이는 약 2 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 12 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 또는 약 30 중량% 이상일 수 있다.

[0031] 다양한 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 및/또는 잔류 아세테이트 함량 차이는, 조성물, 층 또는 중간층에 대한 특정 성능 특성(예컨대, 강도, 내충격성, 내침투성, 가공성, 음향 성능)을 제어하거나 제공하도록 선택될 수 있다. 예를 들어, 일반적으로, 약 16 중량% 초과인 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는 수지 조성물 또는 층에 대한 높은 내충격성, 내침투성 및 강도를 용이하게 할 수 있고, 일반적으로 16 중량% 미만의 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 더 적은 하이드록실 함량 수지는 상기 중간층 또는 배합물의 음향 성능을 개선할 수 있다.

[0032] 더 많거나 적은 잔류 하이드록실 함량 및/또는 잔류 아세테이트 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는 또한, 하나 이상의 가소제와 조합되는 경우, 상이한 양의 가소제를 궁극적으로 포함할 수 있다. 결과적으로, 상이한 조성을 갖는 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지로 형성된 층 또는 도메인은 또한, 단일 수지 층 또는 중간층 내에서 상이한 특성을 가질 수 있다. 이론에 구속되고자 하는 것은 아니지만, 제시된 가소제와 폴리(비닐 아세탈) 수지의 상용성은, 적어도 부분적으로, 상기 중합체의 조성, 특히 이의 잔류 하이드록실 함량에 의존할 수 있는 것으로 생각된다. 전반적으로, 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 유사한 수지에 비해, 제시된 가소제에 대한 더 낮은 상용성(또는 용량)을 나타내는 경향이 있다. 결과적으로, 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 더 적은 잔류

하이드록실 함량을 갖는 유사한 수지보다 덜 가소화되고 더 높은 강성을 나타내는 경향이 있다. 반대로, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 제시된 가소제로 가소화되는 경우, 더 많은 양의 가소제를 혼입하는 경향이 있을 수 있으며, 이는, 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 유사한 수지에 비해 더 낮은 유리 전이 온도를 나타내는 더 연성의 수지 층을 제공할 수 있다. 특정 수지 및 가소제에 따라, 이러한 경향이 역전될 수 있다.

[0033] 상이한 수준의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 2종의 폴리(비닐 아세탈) 수지를 가소제와 배합하는 경우, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 층 또는 도메인 중에 더 많은 가소제가 존재할 수 있거나 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 층 또는 도메인 중에 더 적은 가소제가 존재할 수 있도록, 가소제는 상기 수지 층들 또는 도메인들 사이에 분배될 수 있다. 궁극적으로, 2종의 수지 간에 평형 상태가 달성된다. 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량과 가소제 상용성/용량 간의 상관관계는, 적절한 양의 가소제를 중합체 수지에 첨가하는 것을 용이하게 할 수 있다. 이러한 상관관계는 또한, 가소제가 수지들 사이에서 달리 이동할 경우, 2종 이상의 수지들 간의 가소제 함량 차이를 안정하게 유지하는 것을 돕는다.

[0034] 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 층 또는 중간층은 적어도, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 제 1 가소제를 포함하는 제 1 수지 층; 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 제 2 가소제를 포함하고 상기 제 1 수지 층에 인접한 제 2 수지 층을 포함할 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 가소제는 동일한 유형의 가소제일 수 있거나, 상기 제 1 및 제 2 가소제는 상이할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 가소제 중 적어도 하나는 또한, 하나 이상의 다른 가소제와 동일하거나 상이할 수 있는 2종 이상의 가소제의 배합물일 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지가, 나머지 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2 중량% 많거나 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 경우, 상기 수지 층들 간의 가소제 함량 차이는 약 2 phr 이상, 약 5 phr 이상, 약 8 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 12 phr 이상, 또는 약 15 phr 이상일 수 있다. 대부분의 실시양태에서, 더 적은 하이드록실 함량을 갖는 수지를 포함하는 수지 층은 더 많은 가소제 함량을 가질 수 있다. 상기 수지 층 또는 중간층의 다른 특성을 제어하거나 유지하기 위해, 상기 제 1 및 제 2 수지 층 간의 가소제 함량 차이는 약 40 phr 이하, 약 30 phr 이하, 약 25 phr 이하, 약 20 phr 이하, 또는 약 17 phr 이하일 수 있다. 다른 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 수지 층 간의 가소제 함량 차이는 약 40 phr 이상, 약 50 phr 이상, 약 60 phr 이상, 또는 약 70 phr 이상일 수 있다.

[0035] 결과적으로, 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 다층 중간층의 인접 층에 존재하는 경우, 상기 제 1 및 제 2 수지 층은 상이한 유리 전이 온도를 나타낼 수 있다. 유사하게, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 배합물 중에 존재하는 경우, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지의 도메인은, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지와 상이한 유리 전이 온도를 나타낼 수 있다. 유리 전이 온도 또는 T_g 는, 중합체의 유리질 상태에서 고무질 상태로의 전이를 표시하는 온도이다. 본원에 기술된 수지 및 층의 유리 전이 온도는 동역학적 열 분석(DTMA)으로 결정되었다. DTMA는, 시편의 저장(탄성) 모듈러스(G')(단위: Pa), 손실(점성) 모듈러스(G'')(단위: Pa), 및 $\tan\Delta(G''/G')$ 를, 제시된 진동 주파수 및 온도 스윙 속도에서 온도의 함수로서 측정한다. 이어서, 유리 전이 온도는, 온도 스케일 상의 $\tan\Delta$ 피크의 위치로 결정한다. 본원에 제공된 유리 전이 온도는, 전단 모드 하에 1 Hz의 진동 주파수 및 3°C/min의 온도 스윙 속도에서 결정되었다.

[0036] 상기 제 1 수지 층과 상기 제 2 수지 층의 유리 전이 온도 차이, 또는 배합된 수지 또는 수지 층의 다양한 영역들 간의 유리 전이 온도 차이는 약 3°C 이상, 약 5°C 이상, 약 8°C 이상, 약 10°C 이상, 약 12°C 이상, 약 15°C 이상, 약 18°C 이상, 약 20°C 이상, 약 22°C 이상, 또는 약 25°C 이상일 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 수지 층 중 하나는 약 26°C 이상, 약 28°C 이상, 약 30°C 이상, 약 33°C 이상, 약 35°C 이상 및/또는 약 70°C 이하, 약 65°C 이하, 약 60°C 이하, 약 55°C 이하, 약 50°C 이하, 또는 약 26 내지 약 70°C, 약 30 내지 약 60°C, 또는 약 35 내지 약 50°C의 범위의 유리 전이 온도를 가질 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 층 중 나머지 하나는 25°C 이하, 약 20°C 이하, 약 15°C 이하, 약 10°C 이하, 약 5°C 이하, 약 0°C 이하, 약 -5°C 이하, 또는 약 -10°C 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있다.

[0037] 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가, 하나의 수지의 도메인이 나머지 수지 내에 분산되도록 서로 배합되는 경우, 상기 제 1 및 제 2 수지의 도메인 간에 가소제 함량 및/또는 유리 전이 온도의 차이가 또한 존재할 수 있다. 예를 들어, 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 층 또는 중간층은, 전술된 바와 같이, 더 많거나 적은 가소제 함량의 다양한 도메인 및/또는 더 높거나 낮은 유리 전이 온도를 갖는 도메인을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 층 또는 중간층의 적어도 일부는 약 26°C 이상, 약 28°C 이상, 약 30°C 이상, 약 33°C

이상, 약 35℃ 이상, 및/또는 약 70℃ 이하, 약 65℃ 이하, 약 60℃ 이하, 약 55℃ 이하, 약 50℃ 이하, 또는 약 26 내지 약 70℃, 약 28 내지 약 60℃, 또는 약 35 내지 약 50℃의 범위의 유리 전이 온도를 가질 수 있고/있거나, 상기 수지 층 또는 중간층의 적어도 일부는 25℃ 이하, 약 20℃ 이하, 약 15℃ 이하, 약 10℃ 이하, 약 5℃ 이하, 약 0℃ 이하, 약 -5℃ 이하, 또는 약 -10℃ 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있다.

[0038] 본원에 기술된 하나 이상의 수지 조성물, 층, 및 중간층은 상기 중간층에 특정 특성 또는 특징을 제공하는 다양한 다른 첨가제를 포함할 수 있다. 이러한 첨가제는, 비제한적으로, 염료, 안료, 안정화제, 예컨대 자외선 안정화제, 산화방지제, 블로킹 방지제, 난연제, IR 흡수제 또는 차단제, 예컨대 인듐 주석 옥사이드, 안티몬 주석 옥사이드, 란타넘 헥사보라이드(LaB₆) 및 세슘 텅스텐 옥사이드, 가공 보조제, 흐름 개선 첨가제, 윤활제, 충격 개질제, 핵형성제, 열 안정화제, UV 흡수제, 분산제, 계면활성제, 킬레이트제, 커플링제, 접착제, 프라이머, 보강 첨가제, 및 충전제를 포함할 수 있다.

[0039] 추가적으로, 유리에 대한 시트의 부착성을 제어하기 위해, 다양한 부착 제어제("ACA")를 본 발명의 중간층에 사용할 수 있다. 다양한 실시양태에서, 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재하는 ACA의 양은 약 0.003 phr 이상, 약 0.01 phr 이상, 또는 약 0.025 phr 이상 및/또는 약 0.15 phr 이하, 약 0.10 phr 이하, 또는 약 0.04 phr 이하, 또는 약 0.003 내지 약 0.15 phr, 약 0.01 내지 약 0.10 phr, 또는 약 0.025 내지 약 0.04 phr 범위일 수 있다. 적합한 ACA는, 비제한적으로, 나트륨 아세테이트, 칼륨 아세테이트, 마그네슘 비스(2-에틸 부티레이트), 마그네슘 비스(2-에틸헥사노에이트), 및 이들의 조합뿐만 아니라, 미국 특허 제 5,728,472 호에 개시된 ACA를 포함할 수 있다.

[0040] 또한, 상이한 조성을 갖는 수지 및 상이한 특성을 갖는 가소화된 수지 층은 상이한 굴절률을 나타내는 경향이 있으며, 이는, 생성 층 또는 배합물의 광학 품질을 감소시킬 수 있다. 이론에 구속되지자 하는 것은 아니지만, 이러한 굴절률 차이는, 광이 상이한 수지 층 또는 도메인을 통과하여 상이한 방향으로 굴절되도록 할 수 있으며, 최종 생성물에 헤이즈를 유발할 수 있는 것으로 생각된다. 때로는, 589 nm의 파장 및 25℃에서 ASTM D542에 따라 측정된, 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 또는 층의 굴절률과 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 또는 층의 굴절률의 차이의 절대값이 0.010을 초과할 수 있다. 결과적으로, 상기 조성물, 층, 또는 중간층은 5% 초과 헤이즈 값 및/또는 3 초과 반점 값을 가질 수 있다.

[0041] 그러나, 본 발명의 다양한 실시양태에서, 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 조성물, 층, 및 중간층은 상기 조성물, 층 또는 중간층의 굴절률을 조절하기 위해 적어도 하나의 굴절률(RI) 균형제를 추가로 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 조성물, 층 또는 중간층은 적어도 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 하나 이상의 RI 균형제와 함께 포함할 수 있다. 다른 실시양태에서, 상기 조성물, 층 또는 중간층은 단일 폴리(비닐 아세탈) 수지를 하나 이상의 RI 균형제와 함께 포함할 수 있다. 상기 논의된 바와 같이, RI 균형제는, 하나 이상의 수지 또는 층의 굴절률을 증가시키거나 감소시키는(이는, RI 균형제가 없이 형성된 동일한 중간층에 비해 중간층의 광학 특성을 개선할 수 있음), 수지 또는 수지 배합물, 층 또는 중간층 중에 존재하는 임의의 적합한 제제일 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 배합물, 층 또는 중간층은, RI 균형제의 부재 하에 형성될 경우, 5% 이상의 헤이즈 값을 가질 수 있다.

[0042] RI 균형제는 임의의 적합한 형태일 수 있으며, 하나 이상의 수지와 물리적으로 배합될 수 있거나, 또는 RI 균형제가 중합체쇄 내로 혼입되도록 하나 이상의 수지와 화학적으로 결합되거나 반응될 수 있다. RI 균형제의 예는, 비제한적으로, 액체 RI 첨가제, 고체 RI 첨가제, 및 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나에 존재하는 적어도 하나의 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. RI 균형제뿐만 아니라 이를 포함하는 수지 조성물, 층, 및 중간층의 다양한 실시양태가 하기에 자세히 논의될 것이다.

[0043] RI 균형제는, 폴리(비닐 아세탈) 수지, 수지 층, 또는 중간층의 굴절률을 개질하기에 충분한 양으로 상기 수지, 수지 층, 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. RI 균형제는 또한, 2종의 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 굴절률을 개질하여, 상이한 굴절률을 갖는 2종의 폴리(비닐 아세탈) 수지 층들 간의 굴절률 차이를 최소화하기에 충분한 양으로 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. RI 균형제는 또한, 상기 수지 조성물, 층 또는 중간층 내의 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지와 하나 이상의 가소제의 굴절률 차이를 최소화할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, RI 균형제는, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 층의 굴절률과 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 층의 굴절률의 차이의 절대값을 0.010 이하, 약 0.009 이하, 약 0.008 이하, 약 0.007 이하, 약 0.006 이하, 약 0.005 이하, 약 0.004 이하, 또는 약 0.003 이하로 감소시키기에 충분한 양으로 존재할 수 있다. 다층 중간층이 2개 이상의 수지 층을 포함하는 경우, RI 균형제는 이들 층 중 하나 또는 둘 다에 존재할 수 있고, 몇몇 실시양태에서, 나머지 층들 중 하나 이상에서보다 더 많은 양으로 상기 층들 중 하나에 존재할

수 있다.

[0044] 몇몇 실시양태에서, RI 균형제는, 589 nm의 파장 및 25°C의 온도에서 ASTM D542으로 측정시 1.421 이상의 굴절률을 갖는 하나 이상의 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. RI 균형 알데하이드(이는 본원에서, "고 굴절률 알데하이드" 또는 "고 RI 알데하이드"로도 지칭될 수 있음)는 약 1.425 이상, 약 1.450 이상, 약 1.475 이상, 약 1.500 이상, 약 1.510 이상, 또는 약 1.515 이상 및/또는 약 1.675 이하, 약 1.650 이하, 또는 약 1.625 이하, 또는 약 1.425 내지 약 1.675, 약 1.475 내지 약 1.650, 또는 약 1.515 내지 약 1.625 범위의 굴절률을 가질 수 있다. 고 RI 알데하이드는, 하나 이상의 방향족 고리 또는 기를 포함하는 방향족 알데하이드일 수 있다. 방향족 알데하이드의 예는, 비제한적으로, C₇ 내지 C₃₀ 방향족 알데하이드, C₈ 내지 C₂₅ 방향족 알데하이드, 또는 C₉ 내지 C₂₀ 방향족 알데하이드를 포함할 수 있다. 본 발명의 다양한 실시양태에서 RI 균형제로서 사용될 수 있는 고 RI 알데하이드의 특정 예는 하기 표 1에 열거된다.

[0045] 표 1: 예시적인 고 RI 알데하이드

알데하이드	굴절률
헥실신남알데하이드	1.517
벤즈알데하이드	1.545
신남알데하이드	1.620
4-클로로벤즈알데하이드	1.585
4-t-부틸페닐아세트알데하이드	1.530
2-페닐프로피온알데하이드	1.517
하이드로신남알데하이드	1.523

[0046]

[0047] RI 균형제가 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함하는 경우, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는, 상기 제 1 또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 0.5 중량% 이상, 약 1 중량% 이상, 약 5 중량% 이상, 약 10 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 25 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 35 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 약 45 중량% 이상, 약 50 중량% 이상, 약 55 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 약 65 중량% 이상, 약 70 중량% 이상, 약 75 중량% 이상, 약 80 중량% 이상, 약 85 중량% 이상, 약 90 중량% 이상, 약 95 중량% 이상 및/또는 약 99.5 중량% 이하, 약 99 중량% 이하, 약 97 중량% 이하, 약 95 중량% 이하, 약 90 중량% 이하, 약 85 중량% 이하, 약 80 중량% 이하, 약 75 중량% 이하, 약 70 중량% 이하, 약 65 중량% 이하, 또는 약 60 중량% 이하의 양으로 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는, 상기 제 1 또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 0.5 내지 약 99.5 중량%, 약 10 내지 약 90 중량%, 약 25 내지 약 75 중량%, 또는 약 40 내지 약 60 중량% 범위의 양으로 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다.

[0048] 고 RI 알데하이드 잔기의 양은, 푸리에 변환 적외선 분광법(FT-IR) 및 크기 배제 크로마토그래피(SEC)와 UV 검출의 조합을 사용하여 결정할 수 있다. 특히, FT-IR은 상기 수지의 잔류 하이드록실을 측정하는데 사용되고, SEC는 고 RI 알데하이드 잔기의 양을 결정하는데 사용되고, 임의의 다른 알데하이드 잔기는 차이로서 결정된다. FT-IR 분석은, ATR 샘플링 부속물을 갖는 퍼킨 엘머 스펙트럼(Perkin Elmer Spectrum) 100 FT-IR 분광계(미국 매사추세츠주 왈탐 소재의 퍼킨 엘머(Perkin Elmer)로부터 시판됨)를 사용하여 수행된다. 상기 분석은, 4 cm⁻¹ 해상도에서 8회의 스캔을 사용하여 수행된다. 시험 이전에, 과량의 수분을 제거하기 위해 실온에서 밤새도록 데시케이터 내에서 실리카로 건조된, 다양한 잔류 하이드록실의 몇몇 폴리(비닐 n-부티랄) 샘플로부터 검정(calibration)을 수행한다. 하이드록실 스트레칭 밴드의 피크 최대 파수를 각각의 샘플의 비닐 알코올 몰 함량(이는 ASTM D1396로 사전에 결정됨)과 관련시키고, 결과적인 선형 곡선 피팅을 사용하여, 분석할 샘플의 잔류 하이드록실 몰 함량을 예측한다. 이 값은, 후술되는 바와 같이, SEC 분석을 사용하여 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지의 조성의 결정이 완료된 이후, 계산에 의해 중량%로 전환될 수 있다.

[0049] SEC 분석은, 워터스(Waters) 410 인라인 차등 굴절률 검출기 및 워터스 2998 PDA 인라인 UV 검출기(미국 매사추세츠주 밀포드 소재의 워터스 코퍼레이션(Waters Corporation)으로부터 시판됨)가 구비된 워터스 2695 알리안스

(Alliance) 펌프 및 자동샘플러를, 확장 팩을 갖는 디오넥스 크로멜론(Dionex Chromeleon) v. 6.8 데이터 수집 소프트웨어(미국 캘리포니아주 써니베일 소재의 써모 피셔 사이언티픽(Thermo Fischer Scientific)으로부터 시판됨)와 함께 사용하여 수행하였다. 상기 분석은, 50 μ L의 주입 부피를 갖는 PL Gel Mixed C(5 마이크로) 칼럼 및 Mixed E(3 마이크로) 칼럼을 사용하여 1.0 mL/분의 유속으로 수행한다. 10 내지 15 mL의 안정화된 테트라하이드로퓨란에 0.03 내지 0.09 g의 수지를 용해시키고, 이어서 각각을 0.22 마이크로 PTFE 필터를 통해 여과시켜, 샘플을 제조한다. 크로마토그래피의 초기 검정은, 좁은 분자량 폴리스타이렌 표준물, 및 고 RI 알데하이드 잔기만 포함하는 폴리(비닐 아세탈) 수지를 사용하여 수행하였으며, 후속적으로 샘플을 넓은 분자량 폴리스타이렌(미국 오하이오주 멘토 소재의 아메리칸 폴리머 스탠다드 코퍼레이션(American Polymer Standard Corporation)으로부터 PSBR250K로서 시판됨)으로 검정하였다.

- [0050] 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 단지 하나의 수지만 고 RI 알데하이드 잔기를 포함하고, 다른 실시양태에서는, 상기 수지가 둘 다 상기 잔기를 포함할 수 있다. 고 RI 알데하이드 잔기를 포함하는 수지의 굴절률은 약 1.492 이상, 약 1.495 이상, 약 1.500 이상, 약 1.505 이상, 약 1.510 이상, 또는 약 1.515 이상일 수 있다.
- [0051] 다양한 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 또한, 1.421 미만의 굴절률을 갖는 하나 이상의 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 상기 알데하이드의 예는, 예를 들어, 지방족 알데하이드, 예컨대 상기 논의된 C₄ 내지 C₈ 알데하이드를 포함할 수 있다. 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드는, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 및 2-에틸헥실 알데하이드로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.
- [0052] 상기 잔기가 존재하는 경우, 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 10 중량% 이상, 약 15 중량% 이상, 약 20 중량% 이상, 약 25 중량% 이상, 약 30 중량% 이상, 약 35 중량% 이상, 약 40 중량% 이상, 약 45 중량% 이상, 약 50 중량% 이상, 약 55 중량% 이상, 약 60 중량% 이상, 약 65 중량% 이상, 약 70 중량% 이상, 약 75 중량% 이상, 약 80 중량% 이상, 약 85 중량% 이상, 약 90 중량% 이상, 또는 약 95 중량% 이상 및/또는 약 99 중량% 이하, 약 97 중량% 이하, 약 95 중량% 이하, 약 90 중량% 이하, 약 85 중량% 이하, 약 80 중량% 이하, 약 75 중량% 이하, 약 70 중량% 이하, 약 65 중량% 이하, 또는 약 60 중량% 이하의 상기 알데하이드를 포함할 수 있다.
- [0053] 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드 잔기의 양은, 전술된 FT-IR/SEC 방법을 사용하고, 이어서 하기 수학적 식 1에 따라 계산함으로써 결정된다:
- [0054] [수학적 식 1]
- [0055] 100 중량% - 잔류 하이드록실의 중량%(FT-IR로부터) - 고 RI 알데하이드 잔기의 중량%(SEC로부터) - 잔류 아세테이트의 중량%(FT-IR로부터) = 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드 잔기의 중량%.
- [0056] 상기 제 1 및/또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 제 1 또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 10 내지 약 99 중량%, 약 25 내지 약 75 중량%, 또는 약 40 내지 약 60 중량% 범위의 양으로, 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 상기 수지 중 하나의 굴절률은, 전술된 바와 같이 측정시 약 1.492 미만, 약 1.491 미만, 또는 약 1.490 미만일 수 있다.
- [0057] 몇몇 실시양태에 따라, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 하나의 수지는 고 RI 알데하이드 잔기를 주로 포함하고, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지는 1.421 미만의 굴절률을 갖는 하나 이상의 알데하이드 잔기를 주로 포함한다. 본원에서 용어 "주로"는, 규정된 알데하이드 잔기를 주로 포함하는 폴리(비닐 아세탈) 수지가 상기 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 75 중량% 이상의 규정된 알데하이드 잔기를 포함하도록, 75 중량% 이상을 의미한다. 고 RI 알데하이드 잔기를 주로 포함하는 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 25 중량% 이하, 약 20 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 5 중량% 이하, 약 2 중량% 이하, 또는 약 1 중량% 이하의 양으로, 1.421 미만의 굴절률을 갖는 다른 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다.
- [0058] 유사하게, 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드 잔기를 주로 포함할 수 있는 다른 폴리(비닐 아세탈) 수지는, 상기 수지의 알데하이드 잔기의 총 중량을 기준으로 약 25 중량% 이하, 약 20 중량% 이하, 약 15 중량% 이하, 약 10 중량% 이하, 약 5 중량% 이하, 약 2 중량% 이하, 또는 약 1 중량% 이하의 양으로 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있고, 약 75 중량% 이상, 약 80 중량% 이상, 약 85 중량% 이상, 약 90 중량% 이상, 약 95 중량% 이상, 약 97 중량% 이상, 또는 약 99 중량% 이상의 양으로, 1.421 미만의 굴절률을 갖는 하나 이상의 알데

하이드 잔기를 포함할 수 있다.

- [0059] 몇몇 실시양태에서, 상기 조성물 중의 고 RI 알데하이드 잔기를 주로 포함하는 수지 대 다른 수지(들)의 비는 적어도 약 1:99, 적어도 약 5:95, 적어도 약 10:90, 적어도 약 20:80, 적어도 약 25:75, 적어도 약 30:70, 적어도 약 40:60 및/또는 약 99 이하:1, 약 95 이하:5, 약 90 이하:10, 약 85 이하:15, 약 75 이하:25, 약 70 이하:30, 또는 약 60 이하:40, 또는 약 1:99 내지 99:1, 약 10:90 내지 약 90:10, 약 25:75 내지 75:25, 또는 약 40:60 내지 60:40 범위일 수 있다.
- [0060] 다른 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 적어도 하나의 수지는 고 RI 알데하이드 및 1.421 미만의 굴절률을 갖는 하나 이상의 알데하이드 잔기를 포함하여, 고 RI 알데하이드 잔기 및 저 RI 알데하이드 잔기를 둘 다 포함하는 "혼성" 수지를 형성한다. 상기 실시양태에 따르면, 상기 혼성 수지에서, 고 RI 알데하이드 잔기 및 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드 잔기의 양뿐만 아니라 서로에 대한 중량 비는, 상기 수지 배합물에 대해 전술된 것과 동일한 범위 이내일 수 있다. 상기 제 1 또는 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지가 고 RI 알데하이드 잔기 및 더 낮은 RI 알데하이드 잔기를 둘 다 포함하는 경우, 상기 2개의 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 나머지 수지는 또한 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 다르게는, 상기 2개의 수지 중 나머지 수지는, 상기 수지가 약 10 중량% 미만, 약 5 중량% 미만, 약 2 중량% 미만, 또는 약 1 중량% 미만의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함하고 나머지는 1.421 미만의 굴절률을 갖는 알데하이드(예를 들어, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 2-에틸헥실 알데하이드, 및 이들의 조합으로부터 선택되는 알데하이드) 잔기가 되도록, 고 RI 알데하이드 잔기를 약간 포함하거나 포함하지 않을 수 있다.
- [0061] 상기 중간층이 다층 중간층인 경우, 이는, 적어도 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지를 갖는 하나 이상의 수지 층, 및 적어도 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 또다른 수지 층을 포함할 수 있으며, 이때 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량과 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량의 차이는 2 중량% 이상이다. 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지들 중 하나 또는 둘 다는 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있고, 상기 수지 층 중 하나는 나머지 층보다 약 0.002 이상, 약 0.003 이상, 약 0.004 이상 및/또는 약 0.010 이하, 약 0.009 이하, 약 0.008 이하, 또는 약 0.007 이하, 또는 약 0.002 내지 약 0.010, 약 0.003 내지 약 0.009, 또는 약 0.004 내지 약 0.007 범위로 높거나 낮은 굴절률을 가질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층이 3개 이상의 수지 층을 포함하는 경우, 최내측 수지 층이 더 높은 굴절률을 가질 수 있으며, 다른 실시양태에서는, 외측 수지 층들 중 하나 또는 둘 다의 굴절률이 더 높을 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 중 단지 하나의 수지가 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 다른 실시양태에서, 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지 둘 다가 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있지만, 상기 수지는 여전히 전술된 범위 내의 굴절률 차이를 나타낼 수 있다.
- [0062] 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지들 중 하나 또는 둘 다는 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 잔기를 포함하는 폴리(비닐 아세탈) 수지가, 예를 들어 15 중량% 이하의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 경우, 상기 수지를 포함하는 수지 층은 20°C 미만, 약 15°C 이하, 약 10°C 이하, 약 5°C 이하, 약 0°C 이하, 약 -5°C 이하, 또는 약 -10°C 이하의 유리 전이 온도 및 약 1.465 이상, 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 또는 약 1.490 이상의 굴절률을 가질 수 있으며, 이들은 각각 전술된 바와 같이 측정된다. 본 발명의 다양한 실시양태에 따라, 상기 층의 가소제 함량은 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상, 약 65 phr 이상 및/또는 약 120 phr 이하, 약 110 phr 이하, 약 90 phr 이하, 약 85 phr 이하, 약 80 phr 이하, 또는 약 75 phr, 또는 약 50 내지 약 120 phr, 약 55 내지 약 110 phr, 약 60 내지 약 90 phr, 또는 약 65 내지 약 75 phr 범위일 수 있다.
- [0063] 상기 논의된 다층 중간층에서 고 RI 알데하이드 잔기를 갖는 수지가, 예를 들어 16 중량% 초과와 잔류 하이드록실 함량을 갖는 경우, 상기 수지를 포함하는 수지 층은 약 26°C 이상, 약 30°C 이상, 약 33°C 이상, 또는 약 35°C 이상의 유리 전이 온도, 및 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 또는 약 1.490 이상의 굴절률을 가질 수 있으며, 이들은 각각 전술된 바와 같이 측정된다. 몇몇 실시양태에 따라, 상기 층의 가소제 함량은 50 phr 미만, 약 45 phr 이하, 약 40 phr 이하, 약 30 phr 이하, 약 20 phr 이하일 수 있다.
- [0064] 본 발명의 다양한 실시양태에 따라, RI 균형제는 액체 RI 균형제를 포함할 수 있다. 본원에서 용어 "액체 RI 균형제"는, 25°C 및 1 atm의 표준 조건에서 액체인 RI 균형제를 지칭한다. 몇몇 실시양태에서, 액체 RI 균형제는, 예를 들어 고 RI 가소제일 수 있다. 본원에서 용어 "고 RI 가소제"는, 전술된 바와 같이 측정시 1.460 이상의 굴절률을 갖는 가소제를 지칭한다. RI 균형제로서 사용하기에 적합한 고 RI 가소제는, 상기 논의된 바와 같이 측정시 약 1.470 이상, 약 1.480 이상, 약 1.490 이상, 약 1.500 이상, 약 1.510 이상, 약 1.520 이상 및

/또는 약 1.600 이하, 약 1.575 이하, 또는 약 1.550 이상의 굴절률을 가질 수 있다. 고 RI 가소제의 굴절률은 약 1.460 내지 약 1.600, 약 1.470 내지 약 1.575, 약 1.480 내지 약 1.550, 또는 약 1.490 내지 약 1.525 범위일 수 있다.

[0065] 고 RI 가소제의 유형 또는 부류의 예는, 비제한적으로, 폴리아디페이트(RI: 약 1.460 내지 약 1.485); 에폭사이드, 에컨대 에폭사이드화된 대두유(RI: 약 1.460 내지 약 1.480); 프탈레이트 및 테레프탈레이트(RI: 약 1.480 내지 약 1.540); 벤조에이트 및 톨루에이트(RI: 약 1.480 내지 약 1.550); 및 기타 특수 가소제(RI: 약 1.490 내지 약 1.520)를 포함할 수 있다. 적합한 RI 가소제의 특정 예는, 비제한적으로, 다이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 트라이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 폴리프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 이소데실 벤조에이트, 2-에틸헥실 벤조에이트, 다이에틸렌 글리콜 벤조에이트, 부톡시에틸 벤조에이트, 부톡시에톡시에틸 벤조에이트, 부톡시에톡시에톡시에틸 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-옥틸 다이벤조에이트, 트라이-2-에틸헥실 트라이멜리테이트, 다이-2-에틸헥실 테레프탈레이트, 비스페놀 A 비스(2-에틸헥사노에이트), 다이-(부톡시에틸) 테레프탈레이트, 다이-(부톡시에톡시에틸) 테레프탈레이트, 및 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 고 RI 가소제는 다이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트 및 트라이프로필렌 글리콜 다이벤조에이트, 및/또는 2,2,4-트라이메틸-1,3-펜탄다이올 다이벤조에이트로부터 선택될 수 있다.

[0066] 상기 수치 층 또는 중간층이 고 RI 가소제를 포함하는 경우, 상기 가소제는 단독으로 상기 층 중에 존재할 수 있거나, 하나 이상의 추가적인 가소제와 함께 배합될 수 있다. 기타 가소제(들)은 또한 고 RI 가소제를 포함할 수 있거나, 하나 이상의 가소제는, 1.460 미만의 굴절률을 갖는 더 낮은 RI 가소제일 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 더 낮은 RI 가소제는 약 1.450 미만, 약 1.445 미만, 또는 약 1.442 미만의 굴절률을 가질 수 있고, 상기 열거된 군으로부터 선택될 수 있다. 2종 이상의 가소제들의 혼합물이 RI 균형제로서 사용되는 경우, 상기 혼합물은 하나 이상의 상기 범위 내의 굴절률을 가질 수 있다.

[0067] 고 RI 가소제는, 다층 중간층에 RI 균형제로서 사용되는 경우, 상기 수치 층들 중 2개 이상에 상이한 양으로 존재할 수 있다. 유사하게, 고 RI 가소제는, 수치 조성물 또는 배합된 수치 층에 RI 균형제로서 사용되는 경우, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 수치 층 또는 도메인이 더 많은 양의 고 RI 가소제를 가질 수 있도록, 전술된 바와 같이 분배될 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 수치 층 또는 중간층 중 하나 이상의 층 또는 이의 일부는 RI 균형제로서의 고 RI 가소제를 약 5 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 15 phr 이상, 약 20 phr 이상, 약 25 phr 이상, 약 30 phr 이상, 약 35 phr 및/또는 약 50 phr 미만, 약 45 phr 이하, 또는 약 40 phr 이하의 양으로 포함할 수 있다. 고 RI 가소제는 약 5 내지 약 50 phr, 약 10 내지 약 45 phr, 또는 약 20 내지 약 40 phr 범위의 양으로 상기 수치 층 또는 중간층에 존재할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 하나 이상의 다른 층 또는 이의 일부는 고 RI 가소제를 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상, 약 65 phr 이상, 약 70 phr 이상 및/또는 약 120 phr 이하, 약 110 phr 이하, 약 100 phr 이하, 약 90 phr 이하, 또는 약 75 phr 이하, 또는 약 50 내지 약 120 phr, 약 55 내지 약 110 phr, 약 60 내지 약 90 phr, 또는 약 65 내지 약 75 phr 범위의 양으로 포함할 수 있다. 상기 양은, 상기 조성물 중에 존재하는 임의의 다른 가소제(예컨대, 1.460 미만의 굴절률을 갖는 가소제)를 포함할 수 있거나, 고 RI 가소제만 포함할 수 있다.

[0068] 고 RI 가소제가 다층 중간층에 RI 균형제로서 사용되는 경우, 상기 중간층은, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지를 갖는 하나 이상의 수치 층 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 또다른 수치 층을 포함할 수 있으며, 이때 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지와 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량 차이는 2 중량% 이상이다. 상기 수치 층 중 적어도 하나는, 상기 수치 층의 굴절률과 또다른 수치 층의 굴절률의 차이의 절대값이 0.010 이하가 되도록 하기에 충분한 양으로 고 RI 가소제를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층이 3개 이상의 수치 층을 포함하는 경우, 최내측 수치 층이 더 높은 굴절률을 가질 수 있으며, 다른 실시양태에서는, 외측 수치 층들 중 하나 또는 둘 다의 굴절률이 더 높을 수 있다.

[0069] 고 RI 가소제가, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 수치 층 중에 포함되는 경우, 전술된 바와 같이 측정시, 상기 수치 층의 적어도 일부는 25°C 이하, 약 20°C 이하, 약 15°C 이하, 약 10°C 이하, 약 5°C 이하, 약 0°C 이하, 약 -5°C 이하, 또는 약 -10°C 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있고, 상기 층은 약 1.465 이상, 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 또는 약 1.490 이상의 굴절률을 가질 수 있다. 상기 층의 가소제 함량은, 몇몇 실시양태에서, 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상 및/또는 약 120 phr 이하, 약 110 phr 이하, 약 90 phr 이하, 약 85 phr 이하,

약 80 phr 이하, 또는 약 75 phr 이하, 또는 약 50 내지 약 120 phr, 약 55 내지 약 110 phr, 약 60 내지 약 90 phr, 또는 약 60 내지 약 75 phr 범위일 수 있다.

[0070] 고 RI 가소제가, 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 수지 층 중에 존재하는 경우, 전술된 바와 같이 측정시, 상기 층의 적어도 일부는 약 26°C 이상, 약 30°C 이상, 약 33°C 이상, 또는 약 35°C 이상의 유리 전이 온도를 가질 수 있고, 상기 층은 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 또는 약 1.490 이상의 굴절률을 가질 수 있다. 상기 층의 가소제 함량은, 몇몇 실시양태에 따라, 50 phr 미만, 약 45 phr 이하, 약 40 phr 이하, 약 30 phr 이하, 또는 약 20 phr 이하일 수 있다.

[0071] 본 발명의 다양한 실시양태에 따라, RI 균형제는, 상기 층 또는 상기 중간층의 하나 이상의 층 또는 이의 일부에 존재하는 고체 RI 첨가제일 수 있다. 본원에서 용어 "고체 RI 첨가제"는, 폴리(비닐 아세탈) 수지, 수지 층, 또는 중간층의 굴절률을 조절하는데 사용되고 25°C 및 1 atm의 주위 조건에서 고체인 첨가제를 지칭한다. 다양한 실시양태에서, 고체 RI 첨가제는 약 27°C 이상, 약 30°C 이상, 약 35°C 이상, 약 40°C 이상, 약 45°C 이상, 약 50°C 이상, 약 55°C 이상, 약 60°C 이상, 약 75°C 이상, 약 80°C 이상, 약 85°C 이상, 약 90°C 이상, 약 95°C 이상, 또는 약 100°C 이상의 용점을 가질 수 있다. 고체 RI 첨가제는, 수지 배합물, 층 또는 중간층에 사용되는 경우, 상기 제 1 및 제 2 수지 층 간의 굴절률 차이의 절대값이 약 0.010 이하가 되도록 하기에 충분한 양으로 존재할 수 있다. 고체 RI 첨가제의 부재 하에 동일한 수지 층 내로 배합되는 경우, 상기 제 1 및 제 2 수지 층 간의 굴절률 차이는 0.010 초과일 수 있다.

[0072] 몇몇 실시양태에서, 고체 RI 첨가제는 하나 이상의 수지 층 또는 중간층의 굴절률을 증가시키기 위한 고 RI 고체 첨가제일 수 있다. 고 RI 고체 첨가제의 굴절률은, 전술된 바와 같이 측정시 약 1.460 이상, 약 1.465 이상, 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 약 1.490 이상, 약 1.495 이상, 약 1.500 이상, 약 1.505 이상, 약 1.510 이상, 약 1.525 이상, 약 1.550 이상, 약 1.575 이상, 또는 약 1.600 이상일 수 있다. 다른 실시양태에서, 고체 RI 첨가제는 하나 이상의 수지 또는 수지 층의 굴절률을 감소시키기 위한 RI 저하 고체 첨가제일 수 있다. RI 저하 고체 첨가제는, 전술된 바와 같이 측정시 1.460 미만, 약 1.455 이하, 약 1.450 이하, 약 1.445 이하, 또는 약 1.440 이하의 굴절률을 가질 수 있다. 고체 RI 첨가제는, 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지의 굴절률보다 약 0.005 이상, 약 0.010 이상, 약 0.050 이상, 또는 약 0.10 이상 및/또는 약 0.50 이하, 약 0.35 이하, 또는 약 0.20 이하로 높거나 낮은 굴절률을 가질 수 있다. 고체 RI 첨가제와 상기 폴리(비닐 아세탈) 수지의 굴절률 차이는 약 0.005 내지 약 0.50, 약 0.010 내지 약 0.35, 또는 약 0.050 내지 약 0.35 범위일 수 있다.

[0073] 다양한 실시양태에서, 고체 RI 첨가제는, 첨가제 및 층 또는 중간층의 특정 유형에 따라, 약 0.5 phr 이상, 약 1 phr 이상, 약 1.5 phr 이상, 약 2 phr 이상, 또는 약 5 phr 이상의 양으로 수지 조성물 또는 중간층 중에 존재할 수 있다. 고체 RI 첨가제는, 고 RI 첨가제이던 RI 저하 첨가제이던, 수지 조성물 또는 층 중의 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지와 물리적으로 혼합되거나 배합된 물리적 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있거나, 상기 첨가제는, 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지의 주쇄 내로 혼입되거나 이와 반응할 수 있는 반응성 고체 RI 첨가제일 수 있다.

[0074] 고체 RI 첨가제는 하나 이상의 저 RI 가소제와 조합으로 사용될 수 있다. 저 RI 가소제의 예는, 비제한적으로, 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("3GEH"), 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸부티레이트), 트라이에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이헥타노에이트, 테트라에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("4GEH"), 다이헥실 아디페이트, 다이옥틸 아디페이트, 헥실 사이클로헥실아디페이트, 다이이소노닐 아디페이트, 헥틸노닐 아디페이트, 다이(부톡시에틸) 아디페이트, 비스(2-(2-부톡시에톡시)에틸) 아디페이트, 다이부틸 세바케이트, 다이옥틸 세바케이트, 및 이들의 혼합물을 포함할 수 있다. 상기 가소제는 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트) 및 테트라에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있거나, 상기 가소제는 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)를 포함할 수 있다. 고체 RI 첨가제는 또한, 전술된 하나 이상의 고 RI 가소제와 조합으로 사용될 수 있다.

[0075] 고체 RI 첨가제가 물리적 고체 RI 첨가제인 경우, 이는 중간층 중의 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지 또는 층과 조합될 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 물리적 고체 RI 첨가제는 약 1 phr 이상, 약 2 phr 이상, 약 3 phr 이상, 약 5 phr 이상, 약 8 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 12 phr 이상, 약 15 phr 이상, 또는 약 20 phr 이상 및/또는 약 60 phr 이하, 약 55 phr 이하, 약 50 phr 이하, 약 45 phr 이하, 약 40 phr 이하, 약 35 phr 이하, 약 30 phr 이하, 약 25 phr 이하, 약 20 phr 이하, 또는 약 15 phr 이하, 또는 약 1 내지 약 60 phr, 약 5 내지 약 50 phr, 또는 약 10 내지 약 45 phr 범위의 양으로 하나 이상의 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다.

적합한 물리적 고체 고 RI 첨가제의 예는, 비제한적으로, 폴리아디페이트, 2500 미만의 분자량을 갖는 폴리스타이렌, 에폭사이드, 프탈산 에스터, 벤조산 에스터, 무기 옥사이드, 예를 들어, 지르코늄 옥사이드, 및 이들의 조합을 포함할 수 있다. 물리적 고체 RI 저하 첨가제는, 할로겐화된 첨가제 및 규소-함유 첨가제로 이루어진 군으로부터 선택될 수 있다.

[0076] 물리적 고체 RI 첨가제는, 다층 중간층에 사용되는 경우, 하나 이상의 다른 층보다 더 많은 양으로 상기 수지 층 중 하나에 존재할 수 있다. 상기 수지 층 중 하나에 존재하는 물리적 고체 RI 첨가제의 양과 또다른 층(예를 들어, 인접 층)에 존재하는 물리적 고체 RI 첨가제의 양과의 차이는 약 2 phr 이상, 약 5 phr 이상, 약 8 phr 이상, 약 10 phr 이상 및/또는 약 30 phr 이하, 약 25 phr 이하, 또는 약 20 phr 이하일 수 있거나, 약 2 내지 약 30 phr, 약 5 내지 약 25 phr, 또는 약 10 내지 약 20 phr 범위일 수 있다. 몇몇 실시양태에 따라, 상기 층 중 적어도 하나는 약 1 phr 이상, 약 5 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 15 phr 이상 및/또는 약 60 phr 이하, 약 55 phr 이하, 약 50 phr 이하, 약 45 phr 이하의 물리적 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있거나, 물리적 고체 RI 첨가제가 약 1 내지 약 60, 약 10 내지 약 50 phr, 또는 약 15 내지 약 45 phr 범위의 양으로 존재할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 물리적 고체 RI 첨가제는 약 5 phr 이상, 약 10 phr 이상, 약 15 phr 이상, 약 20 phr 이상 및/또는 약 60 phr 이하, 약 55 phr 이하, 약 50 phr 이하, 또는 약 5 내지 약 60 phr, 약 15 내지 약 55 phr, 또는 약 20 내지 약 50 phr 범위의 양으로 하나 이상의 층에 존재할 수 있다.

[0077] 상기 다층 중간층이 3개 이상의 수지 층을 포함하고 고체 RI 첨가제가 고체 고 RI 첨가제인 경우, 내부 또는 코어 층(들)은 외부 또는 스킨 층보다 더 많은 양의 물리적 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있다. 그러나, 고체 RI 첨가제가 고체 RI 저하 첨가제인 경우, 외부 스킨 층은 내부 코어 층보다 더 많은 양의 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있다. 상기 코어 층은, 상기 중간층에 존재하는 물리적 고체 RI 첨가제의 총량의 약 30% 이상, 약 40% 이상, 약 50% 이상, 약 60% 이상, 약 70% 이상, 또는 약 80% 이상을 포함할 수 있다.

[0078] 고체 RI 첨가제가 반응성 고체 RI 첨가제인 경우, 이는, 첨가제의 적어도 일부가 중합체 쇄 내로 혼입되도록 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지와 반응할 수 있다. 반응성 RI 첨가제는 방향족 첨가제일 수 있고, 몇몇 실시양태에서, 프탈산 무수물 및 페닐알콕시실란, 예를 들어, 다이페닐다이메톡시실란을 포함할 수 있다.

[0079] 몇몇 실시양태에서, 반응성 RI 첨가제는, 상기 다층 중간층의 하나 이상의 다른 층에 존재하는 것보다 더 많은 양으로 상기 다층 중간층의 하나의 층에 존재할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 이는 하나 이상의 수지 층에 부재하거나 실질적으로 부재할 수 있다. 예를 들어, 상기 중간층이, 3개 이상의 수지 층을 포함하는 다층 중간층인 경우, 내부 코어 층은 약 0.5 phr 이상, 약 1 phr 이상, 약 1.5 phr 이상, 약 2 phr 이상, 약 2.5 phr 이상, 약 3 phr 이상 및/또는 약 50 phr 이하, 약 30 phr 이하, 약 20 phr 이하, 약 15 phr 이하, 약 12 phr 이하, 약 10 phr 이하, 또는 약 8 phr 이하, 또는 약 0.5 내지 약 20 phr, 약 1 내지 약 12 phr, 또는 약 2 내지 약 8 phr 범위의 양으로 하나 이상의 반응성 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있다. 외부 스킨 층(들)은 약 10 phr 이하, 약 5 phr 이하, 약 2 phr 이하, 약 1 phr 이하, 또는 약 0.5 phr 이하의 반응성 고체 RI 첨가제를 포함할 수 있다. 코어 층은 상기 중간층에 존재하는 반응성 RI 첨가제의 총량의 약 65% 이상, 약 75% 이상, 약 85% 이상, 약 95% 이상, 또는 약 99%를 포함할 수 있다.

[0080] 고체 RI 첨가제가 다층 중간층에 RI 균형제로서 사용되는 경우, 상기 중간층은, 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 하나 이상의 수지 층 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 또다른 수지 층을 포함할 수 있으며, 이때 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지와 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 잔류 하이드록실 함량 차이는 2 중량% 이상이다. 상기 수지 층 중 적어도 하나는, 상기 제 1 수지 층의 굴절률과 상기 제 2 수지 층의 굴절률의 차이의 절대값이 0.010 이하가 되도록 하기에 충분한 양으로 고 RI 첨가제를 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 중간층이 3개 이상의 수지 층을 포함하는 경우, 최내측 수지 층이 더 높은 굴절률을 가질 수 있고, 다른 실시양태에서는, 외부 수지 층들 중 하나 또는 둘 다의 굴절률이 더 높을 수 있다.

[0081] 고체 RI 첨가제가, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 수지 층에 포함되는 경우, 상기 수지 층은 25°C 이하, 약 20°C 이하, 약 15°C 이하, 약 10°C 이하, 약 5°C 이하, 약 0°C 이하, 약 -5°C 이하, 또는 약 -10°C 이하의 유리 전이 온도, 및 약 1.465 이상, 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 약 1.495 이상, 또는 약 1.500 이상의 굴절률을 가질 수 있고, 이들은 각각 전술된 바와 같이 측정된다. 상기 층의 가소제 함량은, 몇몇 실시양태에서, 약 50 phr 이상, 약 55 phr 이상, 약 60 phr 이상, 약 65 phr 이상 및/또는 약 120 phr 이하, 약 110 phr 이하, 약 90 phr 이하, 약 85 phr 이하, 약 80 phr 이하, 또는 약 75 phr 이하, 또는 약 50 내지 약 120 phr, 약 55 내지 약 110 phr, 약 60 내지 약 90 phr, 약 65 내지 약 75 phr 범위일 수 있다.

- [0082] 고체 RI 첨가제가, 더 많은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 수지 층에 존재하는 경우, 상기 층은 약 26°C 이상, 약 30°C 이상, 약 33°C 이상, 또는 약 35°C 이상의 유리 전이 온도를 가질 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 층은 약 1.470 이상, 약 1.475 이상, 약 1.480 이상, 약 1.485 이상, 약 1.490 이상, 약 1.500 이상, 또는 약 1.510 이상의 굴절률을 가질 수 있다. 상기 층의 가소제 함량은, 몇몇 실시양태에 따라, 50 phr 미만, 약 45 phr 이하, 약 40 phr 이하, 약 30 phr 이하, 또는 약 20 phr 이하일 수 있다.
- [0083] 2종 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 RI 균형체를 포함하도록 본 발명의 다양한 실시양태에 따라 배합된 수지 조성물, 층, 및 중간층은, 내충격성 및 음향 성능과 같은 다른 특성을 희생하지 않고 개선된 광학 특성을 나타낼 수 있다. 상기 논의된 바와 같이, 상기 수지의 특성 또는 조성(예컨대, 잔류 하이드록실 함량, 잔류 아세테이트 함량, 또는 알데하이드 잔기)의 차이로 인해, RI 균형체 없이 배합된 동일한 수지의 동일한 배합물은 감소된 광학 성능을 갖는 조성물, 층, 및 중간층을 제공할 수 있다.
- [0084] 선명도는 본원에 기술된 조성물, 층, 및 중간층의 광학 성능을 기술하는데 사용되는 하나의 매개변수이며, 헤이즈 값 또는 %를 측정함으로써 결정될 수 있다. 헤이즈 값은, 입사광 대비, 샘플에 의해 산란된 광의 정량화를 나타내는 것이다. 몇몇 실시양태에서, 본원에 기술된 수지 배합물, 층, 및 중간층은, 2°의 관측기 각도에서 광원 C를 사용하여 ASTM D1003-13-절차 B에 따라 측정시 5% 미만, 약 4% 미만, 약 3% 미만, 약 2% 미만, 약 1% 미만, 또는 약 0.5% 미만의 헤이즈 값을 가질 수 있다. 이 시험은, 각각 2.3 mm의 두께를 갖는 2개의 투명 유리 시트들(미국 펜실베이니아 소재의 피츠버그 글래스 워크스(Pittsburgh Glass Works)로부터 시판됨) 사이에 적층된, 0.76 mm의 두께를 갖는 중합체 샘플에 대해, 분광 광도계, 예컨대 헌터랩 울트라스캔(Hunterlab UltraScan) XE 장치(미국 버지니아주 레스턴 소재의 헌터 어소시에이츠(Hunter Associates)로부터 시판됨)를 사용하여 수행된다.
- [0085] 추가적으로, 본원에 기술된 수지 층 및 중간층은 3 이하, 2 이하, 또는 1 이하의 반점 값을 가질 수 있다. 반점은, 텍스처 또는 입자성으로서 검출되는 광학 품질의 또다른 척도이다. 반점은, 그 수준이 너무 높거나 너무 심각해서 불쾌한 시각적 외관을 유발하는 시각적 결함이다. 반점은, 시험 적층체에 대한 그림자사진 투시(shadowgraph projection)를, 1 내지 4 범위의 반점 값의 시리즈 또는 크기를 나타내는 표준 적층체 그림자사진의 세트와 나란히 정성 비교하여 평가되고 분류되며, 이때 "1"은 적은 반점(즉, 적은 수의 교란점(disruption))의 표준을 나타내고, "4"는 많은 반점(즉, 많은 수의 교란점)의 표준을 나타낸다. 많은 반점은 일반적으로, 특히 자동차 및 건축 용도에서 불쾌한 것으로 간주된다. 임의적으로, 0의 반점(반점 없음)을 갖는 단일 층 중간층을 갖는 모델 적층체는, 상기 표준 세트의 크기보다 작은(예컨대, 1의 등급보다 더 낮은) 반점 등급을 가진 시험 적층체에서의 평가를 용이하게 하는데 이용된다. 0-반점 적층체와 유사한 그림자사진 투시를 나타내는 시험 적층체는 0의 반점 등급을 갖는 것으로 평가된다. 상기 시험 적층체는, 각각 2.3 mm의 두께를 갖는 2개의 투명 유리 시트들(미국 펜실베이니아 소재의 피츠버그 글래스 워크스, 및 중간층으로 제조된다. 상기 중간층은 전형적으로 약 35 내지 40 마이크론의 랜덤 표면 조도(R_z) 및 0.76 내지 0.86 mm의 두께를 가진다.
- [0086] 본원에서 제시되는 반점 값은, 크세논 아크 램프, 샘플 홀더, 투사 스크린 및 디지털 카메라를 포함하는 투명 반점 분석기(Clear Mottle Analyzer, CMA)를 사용하여 결정하였다. 크세논 아크 램프를 사용하여, 적층된 샘플의 그림자사진을 스크린 상에 투사하였으며, 카메라는 결과적인 그림자사진의 이미지를 캡처하도록 구성되었다. 이어서, 상기 이미지를 컴퓨터 이미지화 소프트웨어를 사용하여 디지털 분석하고, 사전에 캡처된 표준 샘플의 이미지와 비교하여, 샘플의 반점을 결정하였다. CMA를 사용하여 반점을 측정하는 방법은, 미국 특허 출원 공개 제 2012/0133764 호에 자세히 기술되어 있다.
- [0087] 광학 성능을 결정하는데 사용되는 또다른 매개변수는, 2°의 관측기 각도에서 광원 C를 사용하여 ASTM D1003의 절차 B에 따라, 분광 광도계, 예컨대 헌터랩 울트라스캔 EX 장치를 사용하여 측정되는 투명도(transparency) 또는 시각적 투과율(% T_{vis})이다. 본원에서 제공되는 값은, 약 0.76 mm 두께의 중간층 및 2.3 mm 두께의 투명 유리(미국 펜실베이니아 소재의 피츠버그 글래스 워크스로부터 시판됨)를 갖는 유리 적층체 샘플을 분석함으로써 수득되었다. 몇몇 실시양태에서, 본 발명의 수지 층 및 중간 층은 약 70% 이상, 약 75% 이상, 약 80% 이상, 약 81% 이상, 약 82% 이상, 약 83% 이상, 약 84% 이상, 약 85% 이상, 약 85.5% 이상, 약 86% 이상, 약 86.5% 이상, 약 87% 이상, 약 87.5% 이상, 약 88% 이상, 또는 약 88.5% 이상의 시각적 투과율%를 가질 수 있다. 더욱 구체적으로, 본 발명의 수지 층 및 중간 층은, ACA, UV 안정화제 및 산화방지제의 첨가제만 함유하는 중간층의 경우 85% 초과 % T_{vis} 를 갖고, 추가적인 첨가제(예컨대, 전술된 바와 같은 안료, IR 흡수제 또는 또는 차단체)를 함유하

는 중간층의 경우에는 80% 초과 $\%T_{vis}$ 를 가진다. 높은 수준의 안료 및/또는 염료를 함유하는 중합체 중간층은, 예를 들어 대량 착색된 중합체 중간층에서, 필요한 경우, 더 낮은 $\%T_{vis}$ 값을 가질 수 있다.

[0088] 상기 범위 내의 하나 이상의 광학 특성을 나타내는 것에 더하여, 본원에 기술된 수치 층 및 중간층은 또한 바람직한 범위 내의 음향 특성을 나타낼 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 논의된 바와 같이, 수치 층 또는 중간층의 적어도 일부는 25°C 이하, 약 20°C 이하, 약 15°C 이하, 약 10°C 이하, 약 5°C 이하, 약 0°C 이하, 약 -5°C 이하, 또는 약 -10°C 이하의 유리 전이 온도를 가질 수 있으며, 이는, 상기 층 또는 중간층의 음향 성능을 촉진시킬 수 있다. 동시에, 상기 층 또는 중간층의 적어도 일부는 약 26°C 이상, 약 30°C 이상, 또는 약 35°C 이상의 유리 전이 온도를 가질 수 있으며, 이는, 내충격 특성 및 강도를 용이하게 할 수 있다.

[0089] 몇몇 실시양태에서, 본 발명에 따른 수치 층 또는 중간층은 약 0.70 이상의 $\tan\Delta$ 값을 가질 수 있다. $\tan\Delta$ 는, 동역학적 열 분석(DMTA)에 의해 측정된 시편의 손실 모듈러스(G'')(단위: Pa) 대 저장 모듈러스(G')(단위: Pa)의 비이다. DMTA는, 전단 모드 하에 1 Hz의 진동 주파수 및 3°C/min의 온도 스윙을 사용하여 수행된다. 유리 전이 온도에서의 G''/G' 곡선의 피크 값이 $\tan\Delta$ 값이다. 본 발명의 다양한 실시양태에 따라 기술되는 바와 같은 수치 층 또는 중간층은 약 1.0 이상, 약 1.05 이상, 약 1.10 이상, 약 1.25 이상, 약 1.50 이상, 약 1.75 이상, 약 2.0 이상, 또는 약 2.25 이상의 $\tan\Delta$ 를 가질 수 있다.

[0090] 추가적으로, 상기 수치 층 및 중간층은 약 0.10 이상, 약 0.15 이상, 약 0.17 이상, 약 0.20 이상, 약 0.25 이상, 약 0.27 이상, 약 0.30 이상, 약 0.33 이상, 또는 약 0.35 이상의 감쇠 손실 인자 또는 손실 인자를 가질 수 있다. 손실 인자는, ISO 표준 16940에 기술된 바와 같은 기계적 임피던스 측정법(Mechanical Impedance Measurement)으로 측정된다. 중합체 샘플을, 각각 2.3 mm의 두께를 갖는 2개의 투명 유리 시트 사이에 적층하여, 25 mm의 폭 및 300 mm의 길이를 갖도록 제조한다. 이어서, 적층된 샘플을, 진동 진탕기(브뤼엘 앤 키에르 (Bruel and Kjaer, 네델란드 내뮴 소재)로부터 시판됨)를 사용하여 중심점에서 여기시키고, 임피던스 헤드(브뤼엘 앤 키에르)를 사용하여, 막대를 여기시켜 진동시키는데 필요한 힘 및 진동의 속도를 측정한다. 결과적인 전달 함수를 내셔널 인스트루먼트즈(National Instruments) 데이터 수집 및 분석 시스템 상에 기록하고, 제 1 진동 모드에서의 손실 인자를, 반전력(half power) 방법을 이용하여 계산하였다. 몇몇 실시양태에서, RI 균형제가 고 RI 가소제인 경우, 상기 층 또는 중간층은 20°C에서 0.25 초과, 0.27 초과, 0.30 초과, 또는 0.35 초과 $\tan\Delta$ 손실 인자를 가질 수 있고, 다른 실시양태에서, RI 균형제가 고 RI 첨가제 또는 하나 이상의 고 RI 알데하이드 잔기인 경우, 상기 층 또는 중간층은 20°C에서 약 0.10 이상, 약 0.15 이상, 약 0.20 이상, 약 0.25 이상, 또는 약 0.30 이상의 손실 인자를 가질 수 있다.

[0091] 상기 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수치 및 상기 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 2개의 별개의 수지의 수치 배합물과 유사하게, 2개 이상의 별개의 수치 층 또는 중간층을 배합하면, 흔히, 예상치 못한 특성 및 성능 속성을 갖는 새로운 수치 층(들) 또는 중간층(들)을 제공할 수 있다. 예를 들어, 더 적은 잔류 하이드록실 함량 및 더 낮은 유리 전이 온도를 갖는 수치 층 또는 중간층을, 더 많은 잔류 하이드록실 함량 및 더 높은 유리 전이 온도를 갖는 또다른 수치 층 또는 중간층과 배합하면, 더 낮은 유리 전이 온도(이는, 상기 층의 음향 성능을 개선함)의 연성 도메인 및 더 높은 유리 전이 온도(이는, 상기 수치 층 또는 중간층에 개선된 가공성, 강도 및 내충격성을 제공함)를 갖는 강성 도메인을 갖는 새로운 수치 층 또는 중간층을 제공할 수 있다. 다른 예는, 단일 시트 중간층과 다층 중간층을 배합하는 것, 2개의 다층 중간층을 배합하는 것, 또는 하나의 다층 중간층을 또다른 다층 중간층의 수치 층 내로 배합하는 것을 포함한다. 본질적으로, 2종의 물질을 배합함으로써 유발되는 효과는 또한, 물질의 함량에 따라 2종 이상의 수치, 가소제 및 다른 첨가제를 배합함으로써 달성될 수 있다. 본원에서 "배합물 수치 물질" 또는 "배합물 물질"은, 또다른 수치 조성물, 수치 층 또는 중간층 내로 배합되는 수치 조성물, 수치 층 또는 중간층을 지칭한다. 2개의 수치 층 또는 2개의 중간층을 배합하는데 있어서, 배합되는 2종의 물질 중 적어도 하나는 본 발명의 수치 층 또는 중간층을 포함할 수 있다. 다른 실시양태에서, 이들 물질은 둘 다 본 발명의 수치 층 또는 중간층을 포함할 수 있다.

[0092] 몇몇 실시양태에 따라, 본원에 기술된 수치 조성물, 층, 또는 중간층의 적어도 일부는 또다른 수치, 층, 또는 중간층을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 조성물, 층 또는 중간층의 총량의 약 0.5% 이상, 약 1% 이상, 약 5% 이상, 약 10% 이상, 약 15% 이상, 약 20% 이상, 약 25% 이상, 약 30% 이상, 또는 약 50% 이상이 배합물 수치 물질로부터 유래할 수 있다.

[0093] 흔히, 상기 배합물 수치 물질 중의 수치 및 가소제의 유형 및/또는 양이, 제조되고 상기 배합물 수치 물질이 첨가되는 수치 또는 가소제의 유형 및/또는 양과 실질적으로 상이한 경우에는, 상기 배합물 수치 물질을 포함하는 결과적인 수치 조성물, 층 또는 중간층의 선명도 또는 헤이즈로 결정되는 바와 같은 광학 성능에 부정적인 영향

을 줄 수 있다. 본 발명의 실시양태에 따라, 더 많은 수준의 배합물 수지 물질을 포함하는 수지 층 및 중간층은, 상기 논의된 하나 이상의 RI 균형제를 사용함으로써 제조될 수 있다.

[0094] RI 균형제가 고 RI 가소제를 포함하는 경우, 최종 조성물, 층 또는 중간층의 선명도 감소 또는 헤이즈 증가 없이, 더 많은 양의 배합물 수지 물질을 본원에 기술된 수지 조성물, 층 또는 중간층의 제조 공정에 첨가할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 배합물 물질을 포함하는 조성물은 제 1 폴리(비닐 아세탈) 수지 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함할 수 있고, 이때 상기 수지들 중 하나의 수지는, 나머지 수지의 잔류 하이드록실 함량보다 적어도 2 중량% 적은 잔류 하이드록실 함량을 가진다. 상기 조성물은, 1.460 이상의 굴절률을 갖는 하나 이상의 고 RI 가소제를 추가로 포함할 수 있고, 몇몇 실시양태에서, 상기 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재하는 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지의 합친 양 중 3% 초과는 배합물 조성물, 층 또는 중간층으로부터 기인한 것일 수 있다. 상기 제 1 및 제 2 폴리(비닐 아세탈) 수지 간의 잔류 하이드록실 함량 차이에도 불구하고, 0.5 중량% 초과 배합물 수지 물질을 포함하는 조성물은 약 5 이하, 약 4 이하, 약 3 이하, 약 2 이하, 또는 약 1 이하, 또는 약 0.5 이하의 헤이즈 값을 가질 수 있다.

[0095] 배합물 수지 조성물과 함께 RI 균형제로서 사용되는 고 RI 가소제는 전술된 범위 중 하나 이상 내의 굴절률을 가질 수 있다. 고 RI 가소제는 상기 조성물, 층 또는 중간층의 제조 도중에 상기 배합물 물질과 함께 첨가될 수 있고/있거나, 고 RI 가소제의 적어도 일부는 상기 공정에 첨가되는 상기 배합물 수지 물질 중에 존재할 수 있다. 추가적으로, 하나 이상의 다른 가소제가 또한, 배합될 수지 물질 및/또는 제조될 수지 조성물, 층 또는 중간층(예를 들어, 전술된 바와 같이 측정시, 약 1.450 미만, 약 1.445 미만, 또는 약 1.442 미만의 굴절률을 갖는 것) 중에 존재할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 하나 이상의 추가적인 고 RI 가소제가 또한, 상기 배합물 물질 중에 및/또는 상기 물질이 배합될 수지 조성물, 층 또는 중간층 중에 존재할 수 있다.

[0096] 전술된 바와 같은 배합된 수지 물질을 포함하는 수지 조성물을 사용하여, 본 발명의 다양한 실시양태에 따른 층 및 중간층을 형성할 수 있다. 예를 들어, 배합물 수지 물질을 포함하는 수지 조성물을 사용하여 단일 단일체형(monolithic) 중간층을 형성할 수 있거나, 또는 이를 사용하여 다층 중간층의 하나 이상의 층을 형성할 수 있다. 추가적인 가소제는, 다양한 층 및 중간층에 사용되는 경우, 상기 수지 층 또는 중간층 중에 존재하는 가소제의 총량이 전술된 범위 이내일 수 있도록 첨가될 수 있다. 유사하게, 배합물 수지 물질을 포함하는 조성물로부터 형성된 수지 층 및 중간층의 유리 전이 온도 및 굴절률은 또한 전술된 범위 이내일 수 있다. 추가적으로, 배합된 물질을 포함하는 조성물로부터 형성된 수지 층 및 중간층은 또한, 전술된 바와 같은 음향 특성을 나타낼 수 있고, 후술되는 임의의 용도에 포함될 수 있다.

[0097] 몇몇 실시양태에 따라, 본원에 기술된 수지 조성물, 층, 또는 중간층의 적어도 일부는 하나 이상의 재활용(recycled) 수지 물질, 예를 들어, 재활용 층 또는 중간층을 포함할 수 있다. 본원에서 용어 "재활용"은, 생산 라인으로부터 제거되고 후속적으로 생산 라인으로 재순환됨을 의미한다. 흔히, 재활용 물질을 이용하는 것은, 선명도 또는 헤이즈로 결정되는 바와 같은, 최종 조성물, 층 또는 중간층의 광학 성능에 부정적인 영향을 미칠 수 있으며, 그 이유는, 배합되거나 조합되는 물질들의 상이한 조성 및 특성 때문이다. 그러나, 몇몇 실시양태에서, 본원에 기술된 층 또는 중간층은 적어도 하나의 재활용 수지 물질을 포함하면서, 본원에 기술된 것과 동일한 광학 및/또는 음향 특성을 여전히 나타낼 수 있다. 재활용 수지 물질의 유형 및/또는 양은 전술된 범위 중 하나 이상 내에 들 수 있으며, 상기 층 또는 중간층은 하나 이상의 RI 균형제를 추가로 포함할 수 있다. 추가적으로, 재활용 수지 물질을 포함하는 상기 수지 층 및 중간층은 후술되는 하나 이상의 범위 내의 광학 및/또는 음향 성능을 가질 수 있다.

[0098] 전술된 수지 조성물, 층, 및 중간층은 임의의 적합한 방법에 따라 제조할 수 있다. 다양한 실시양태에서, 상기 조성물, 층, 및 중간층의 제조 방법은, 2종 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지를 제공하는 단계, 하나 이상의 수지를 RI 균형제, 및 임의적으로, 하나 이상의 가소제 또는 다른 첨가제와 배합하여 배합된 조성물을 형성하는 단계, 및 상기 배합된 조성물로부터 층을 형성하는 단계를 포함할 수 있다.

[0099] 몇몇 실시양태에서, 상기 방법의 초기 단계에 제공되는 수지는 하나 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지 형태일 수 있고, 다른 실시양태에서는, 하나 이상의 수지 전구체가 또한 제공될 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 2종 이상의 폴리(비닐 아세탈) 수지가 물리적으로 배합되는 경우, 2종의 수지를 배합하는 것은 용융 배합을 포함할 수 있고, 이는, 약 140°C 이상, 약 150°C 이상, 약 180°C 이상, 약 200°C 이상, 또는 약 250°C 이상의 온도에서 수행될 수 있다. 다른 실시양태에서, 제공되는 폴리(비닐 아세탈) 수지 성분이 수지 전구체를 포함하는 경우, 상기 배합 단계는, 2종 이상의 알데하이드를 폴리비닐 알코올과 반응시켜, 2개 이상의 알데하이드 잔기를 갖는 단일 폴리(비닐 아세탈) 수지를 제공하는 것을 포함할 수 있다. 추가적으로, 상기 배합 단계의 일부는, 하나 이

상의 상기 수지를 전술된 바와 같은 하나 이상의 가소제 및/또는 하나 이상의 RI 균형제와 배합하는 것을 포함할 수 있다.

[0100] 이어서, 결과적인 배합된 수지로 임의의 적합한 방법에 따라 하나 이상의 수지 층을 형성할 수 있다. 중합체 층 및 중간층을 형성하는 예시적인 방법은, 비제한적으로, 용액 캐스팅, 압축 성형, 사출 성형, 용융 압출, 용융 취입, 및 이들의 조합을 포함할 수 있다. 2개 이상의 수지 층을 포함하는 다층 중간층을 또한, 임의의 적합한 방법, 예를 들어, 공압출, 취입된 필름, 용융 취입, 침지 코팅, 용액 코팅, 블레이드, 패들, 에어-나이프 (air-knife), 인쇄, 분말 코팅, 분무 코팅, 및 이들의 조합에 따라 제조할 수 있다. 본 발명의 다양한 실시양태에서, 상기 층 또는 중간층을 압출 또는 공압출로 형성할 수 있다. 압출 공정에서, 하나 이상의 열가소성 중합체, 가소제, 및 임의적으로, 하나 이상의 첨가제(예컨대, 전술된 바와 같은 하나 이상의 RI 균형제)를 예비-혼합하여, 압출 장치 내로 공급할 수 있다. 다른 첨가제, 예컨대 ACA, 착색제, 및 UV 억제제(이들은 액체, 분말 또는 펠릿 형태일 수 있음)를 또한 사용할 수 있으며, 이들을 압출 장치에 도입하기 이전에 상기 열가소성 중합체 또는 가소제 내로 혼합할 수 있다. 상기 첨가제는 상기 중합체 수지 및 연장으로서 중합체 시트 내로 혼입되어, 중합체 층 또는 중간층의 특정 특성 및 최종 다층 유리 패널 또는 다른 최종 생성물의 성능을 개선할 수 있다.

[0101] 다양한 실시양태에서, 상기 층 또는 중간층의 두께 또는 게이지는 약 10 mil 이상, 약 15 mil 이상, 약 20 mil 이상 및/또는 약 100 mil 이하, 약 90 mil 이하, 약 60 mil 이하, 약 50 mil 이하, 또는 약 35 mil 이하일 수 있거나, 약 10 내지 약 100 mil, 약 15 내지 약 60 mil, 또는 약 20 내지 약 35 mil 범위일 수 있다. mm로서, 상기 중합체 층 또는 중간층의 두께는 약 0.25 mm 이상, 약 0.38 mm 이상, 약 0.51 mm 이상 및/또는 약 2.54 mm 이하, 약 2.29 mm 이하, 약 1.52 mm 이하, 또는 약 0.89 mm 이하, 또는 약 0.25 내지 약 2.54 mm, 약 0.38 내지 약 1.52 mm, 또는 약 0.51 내지 약 0.89 mm 범위일 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 수지 층 또는 중간층은, 상기 시트의 길이 또는 최장 치수 및/또는 폭 또는 제 2 최장 치수를 따라 실질적으로 동일한 두께를 갖는 편평한 중합체 층을 포함할 수 있고, 다른 실시양태에서, 다층 중간층의 하나 이상의 층은, 상기 중간층의 두께가 상기 시트의 길이 및/또는 폭을 따라 변하도록, 상기 층 또는 중간층의 하나의 모서리가 나머지 하나보다 더 큰 두께를 갖도록, 예를 들어 췌기형일 수 있거나 췌기형 프로파일을 가질 수 있다. 상기 중간층이 다층 중간층인 경우, 상기 중간층의 층들 중 하나 이상, 2개 이상, 또는 3개 이상은 췌기형일 수 있다. 상기 중간층이 단일체형 중간층인 경우, 상기 중합체 시트는 편평하거나 췌기형일 수 있다. 췌기형 중간층은, 예를 들어, 자동차 및 항공기 용도에서 천정형 디스플레이(heads-up-display, HUD) 패널에 유용할 수 있다.

[0102] 본 발명의 실시양태에 따른 수지 조성물, 층, 및 중간층은, 수지 층 또는 중간층 및 하나 이상의 강성 기판을 포함하는 다층 패널에 사용될 수 있다. 임의의 적합한 강성 기판이 사용될 수 있고, 몇몇 실시양태에서, 이는 유리, 폴리카보네이트, 2축 배향된 PET, 코폴리에스터, 아크릴, 및 이들의 조합으로 이루어진 균으로부터 선택될 수 있다. 상기 강성 기판이 유리를 포함하는 경우, 상기 유리는, 상기 열거된 균으로부터 선택될 수 있다. 상기 강성 기판이 중합체성 물질을 포함하는 경우, 상기 중합체성 물질은 경질 코트 표면 층을 포함하거나 포함하지 않을 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 다층 패널은 한 쌍의 강성 기판 및 이들 사이에 배치된 상기 수지 중간층을 포함한다. 상기 패널은 다양한 최종 용도 적용, 예를 들어 자동차 방풍유리 및 윈도우, 항공기 방풍유리 및 윈도우, 다양한 운송 용도(예컨대, 해양 용도, 철도 용도 등)를 위한 패널, 건축 구조 패널, 예를 들면 윈도우, 도어, 계단, 보도, 벨러스터, 장식용 구조 패널, 내후성 패널, 예를 들면 허리케인 유리 또는 토네이도 유리, 방탄 패널 및 다른 유사한 용도에 사용될 수 있다.

[0103] 상기 수지 층 또는 중간층을 2개의 강성 기판(예컨대, 유리) 사이에 적층하는 경우, 이러한 공정은 적어도 하기 단계를 포함할 수 있다: (1) 상기 2개의 기판 및 상기 중간층을 조립하는 단계; (2) IR 복사열 또는 대류 장치를 통해 제 1의 짧은 기간 동안 상기 조립체를 가열하는 단계; (3) 제 1 탈기를 위해 상기 조립체를 프레스 닙 롤 내로 통과시키는 단계; (4) 상기 조립체를 짧은 기간 동안 약 60°C 내지 약 120°C로 가열함으로써, 상기 조립체에 충분한 일시적 부착력을 제공하여, 상기 중간층의 모서리를 밀봉하는 단계; (5) 상기 조립체를 제 2 프레스 닙 롤 내로 통과시켜 상기 중간층의 모서리를 추가로 밀봉하고, 추가의 취급을 허용하는 단계; 및 (6) 상기 조립체를 135°C 내지 150°C의 온도 및 150 psig 내지 200 psig의 압력에서 약 30 내지 90분 동안 고압가온하는(autoclaving) 단계. 상기 중간층-유리 계면을 탈기시키기 위한 다른 방법은, 몇몇 실시양태에 따라 기술된 바와 같이, 상기 단계 (2) 내지 (5)에서의 진공 백 및 진공 고리 공정을 포함하며, 또한 이 둘 모두를 사용하여, 본원에 기술된 바와 같은 본 발명의 중간층을 형성할 수 있다.

[0104] 몇몇 실시양태에서, 상기 다층 패널은, 상기 층 또는 중간층 상에 배치되어, "2층"으로 지칭되는 다층 패널을 형성하는 하나 이상의 중합체 필름을 포함할 수 있다. 몇몇 실시양태에서, 상기 2층에 사용되는 중간층은 다층

중간층을 포함할 수 있고, 다른 실시양태에서는, 단일체형 중간층이 사용될 수 있다. 본원에 기술된 바와 같은 다층 패널에 중합체 필름을 사용하면, 최종 패널의 광학 특성을 개선할 수 있고, 다른 성능(예컨대, 적외선 흡수)의 개선도 제공할 수 있다. 중합체 필름은, 상기 필름 단독으로는 필요한 내침투성 및 유리 보유 특성을 제공하지 못한다는 면에서 중합체 층 또는 중간층과 다르다. 상기 중합체 필름은 또한 상기 시트보다 더 박형일 수 있고, 0.001 내지 0.25 mm 범위의 두께를 가질 수 있다. 폴리(에틸렌 테레프탈레이트)("PET")는 상기 중합체 필름을 형성하는데 사용되는 물질의 하나의 예이다.

[0105] 하기 실시예는, 당업자가 본 발명을 구성하고 사용하도록 교시하기 위한 본 발명의 예시로 의도되며, 어떠한 방식으로도 본 발명의 범주를 제한하는 것으로 의도되지 않는다.

[0106] **실시예**

[0107] 하기 실시예는, 다양한 폴리(비닐 아세탈) 수지를 포함하는 몇몇 수지 조성물, 층, 및 중간층의 제조를 기술하는 것이다. 후술되는 바와 같이, 다수의 상기 조성물, 층, 및 중간층에 대해 수행되는 몇몇 시험을 사용하여, 비교용 물질 및 본 발명의 물질의 음향 및 광학 특성을 평가하였다.

[0108] 실시예 1 : 고 굴절률 폴리(비닐 아세탈) 수지의 제조

[0109] 몇몇 비교용 폴리(비닐 아세탈) 수지(하기 표 2에서 비교용 수지 CR-1 내지 CR-12로 지칭됨)를, 폴리비닐 알코올을 하나 이상의 알데하이드(예를 들면, n-부티르알데하이드(nBuCHO; RI = 1.377), 이소-부티르알데하이드(iBuCHO; RI = 1.374), 및 2-에틸헥실 알데하이드(2EHCHO; RI = 1.414))로 아세탈화시켜 제조하였다. 생성 수지의 조성을, 상기 자세히 기술된 ASTM D1396 또는 FT-IR/SEC 방법을 사용하여 측정하였다. 몇몇 상기 수지의 굴절률 및 유리 전이 온도(T_g)를 또한 전술된 방법에 따라 측정하였으며, 그 결과를 하기 표 2에 제시한다.

[0110] 표 2: 몇몇 비교용 폴리(비닐 아세탈) 수지의 특성

수지	잔류 하이드록실 (중량%)	잔류 아세테이트 (중량%)	잔류 폴리비닐 nBuCHO (중량%)	잔류 폴리비닐 iBuCHO (중량%)	잔류 폴리비닐 2EHCHO (중량%)	수지 굴절률 (중량%)
CR-1	21	1	78	-	-	1.491
CR-2	19	1	80	-	-	1.490
CR-3	19	1	46	-	34	1.489
CR-4	16	1	83	-	-	1.488
CR-5	15	1	39	-	45	1.487
CR-6	13	1	86	-	-	1.486
CR-7	12	18	70	-	-	1.481
CR-8	12	12	76	-	-	nd
CR-9	12	10	78	-	-	1.483
CR-10	11	1	88	-	-	1.485
CR-11	12	1	-	88	-	nd
CR-12	13	1	-	86	-	nd

nd = 측정안함

[0111]

[0112] 추가적으로, 본 발명의 몇몇 실시양태에 따른 몇몇 폴리(비닐 아세탈) 수지를 또한 유사한 방식으로 제조하였다. 이러한 본 발명의 수지(표 3에서, 개시된 수지 DR-1 내지 DR-21로서 지칭됨)는, 폴리비닐 알코올을 n-부티르알데하이드와 다양한 고 굴절률 알데하이드(예컨대, 벤즈알데하이드(BzCHO RI = 1.545), 신남알데하이드(CCHO; RI = 1.620), 4-클로로벤즈알데하이드(4-CIBzCHO; RI = 1.5850), 2-페닐프로피온알데하이드(2PHPrCHO; RI = 1.517), 및 하이드로신남알데하이드(HCCHO; RI = 1.523))의 혼합물로 아세탈화시켜 제조하였다. 몇몇 본 개시내용의 수지의 굴절률을 또한 결정하였으며, 그 결과를 하기 표 3에 요약한다

[0113] 표 3: 본 개시내용의 수지의 특성

DR	잔류 하이드록실 (중량%)	잔류 아세타이드 (중량%)	알데하이드 성분(중량%)	HCCHO/ BuCHO (mol/mol)		CCHO/ BuCHO (mol/mol)		2PhPrCHO/ BuCHO (mol/mol)		BzCHO/ BuCHO (mol/mol)		4ClBzCHO / BuCHO (mol/mol)		HCCHO / iBuCHO		수지 굴절률 (nD25)
				5/95	10/90	15/85	20/80	25/75	50/50	100/0	10/90	25/75	50/50	100/0	25/75	
DR-1	11	1	88	5/95	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.496	
DR-2	11	1	88	10/90	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.500	
DR-3	11	1	88	15/85	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.504	
DR-4	11	1	88	20/80	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.510	
DR-5	11	1	88	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.511	
DR-6	11	1	88	50/50	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.528	
DR-7	11	1	88	100/0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.552	
DR-8	19	1	80	10/90	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-9	19	1	80	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-10	19	1	80	50/50	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-11	19	1	80	100/0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-12	12	18	70	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-13	12	10	78	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	nd	
DR-14	17	1	82	-	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1.507	
DR-15	15	1	84	-	-	25/75	-	-	-	-	-	-	-	-	1.505	
DR-16	14	1	85	-	-	-	25/75	-	-	-	-	-	-	-	1.503	
DR-17	18	1	81	-	-	-	-	25/75	-	-	-	-	-	-	1.507	
DR-18	14	1	85	-	-	-	-	-	25/75	-	-	-	-	-	1.501	
DR-19	20	1	79	-	-	-	-	-	-	-	-	25/75	-	-	1.507	
DR-20	14	1	85	-	-	-	-	-	-	-	-	-	25/75	-	1.509	
DR-21	11	1	88	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	25/75	nd	

nd = 측정안함

[0114]

[0115]

상기 표 2 및 3에 도시된 바와 같이, 하나 이상의 고 굴절률 알데하이드 잔기를 포함하는 폴리비닐 아세탈 수지 (예컨대, 상기 열거된 것)는, n-부티르알데하이드, 이소-부티르알데하이드, 및 2-에틸헥실 알데하이드와 같은 알데하이드 잔기를 포함하는 수지에 비해 더 높은 굴절률을 나타내는 경향이 있다.

[0116]

실시예 2: 고 굴절률 수지 중간층의 제조

[0117]

몇몇 비교용 및 본 개시내용의 중간층을, 상기 표 2에 열거된 몇몇 비교용 수지 및 상기 표 3에 열거된 몇몇 본 개시내용의 수지를 다양한 양의 가소제 트라이에틸렌 글리콜 비스(2-에틸헥사노에이트)(3GEH)와 혼합하고 용융-배합하여 제조하였다. 각각의 생성 중간층(비교용 중간층 CL-1 내지 CL-14 및 본 개시내용의 중간층 DL-1 내지 DL-26으로 지칭됨)의 조성, 굴절률, 및 유리 전이 온도를 전술된 바와 같이 측정하였으며, 그 결과를 하기 표 4 및 5에 요약한다.

[0118] 표 4: 몇몇 비교용 중간층의 특성

중간층	수지	가소제 (phr)	굴절률 (nD25)	T _g (°C)
CL-1	CR-1	34	1.478	36
CL-2	CR-2	38	1.477	30
CL-3	CR-3	38	1.475	28
CL-4	CR-4	50	1.472	17
CL-5	CR-4	30	1.477	30
CL-6	CR-5	75	1.468	6
CL-7	CR-6	75	1.467	2
CL-8	CR-7	75	1.464	-4
CL-9	CR-8	75	1.466	-3
CL-10	CR-9	75	1.465	-3
CL-11	CR-10	75	1.466	-2
CL-12	CR-10	50	1.47	12
CL-13	CR-11	75	nd	nd
CL-14	CR-12	75	nd	nd

nd = 측정안함

[0119]

[0120] 표 5: 몇몇 본 개시내용의 중간층의 특성

중간층	수지	가소제 함량 (phr)	시트 굴절률 (nD25)	T _g (°C)
DL-1	DR-1	75	1.473	1
DL-2	DR-1	50	1.479	12
DL-3	DR-2	75	1.475	0
DL-4	DR-3	75	1.477	0
DL-5	DR-4	75	1.480	1
DL-6	DR-5	75	1.482	1
DL-7	DR-6	75	1.490	2
DL-8	DR-7	75	1.506	3
DL-9	DR-14	75	1.480	12
DL-10	DR-15	75	1.478	11
DL-11	DR-16	75	1.477	7
DL-12	DR-17	75	1.480	22
DL-13	DR-18	75	1.476	12
DL-14	DR-19	75	1.480	17
DL-15	DR-20	75	1.479	12
DL-16	DR-12	75	nd	nd
DL-17	DR-13	75	nd	nd
DL-18	DR-21	75	nd	nd
DL-19	DR-8	38	1.477	30
DL-20	DR-9	38	1.487	nd
DL-21	DR-10	38	1.501	nd
DL-22	DR-11	38	1.525	nd
DL-23	DR-5	38	nd	nd
DL-24	DR-5	50	1.488	nd
DL-25	DR-5	60	1.484	2
DL-26	DR-7	38	nd	nd

nd = 측정안함

[0121]

[0122]

상기 표 4 및 5에 도시된 바와 같이, 표 3으로부터의 더 높은 굴절률의 본 개시내용의 수지를 사용하는 본 개시내용의 중간층은, 더 낮은 굴절률 수지(예컨대 표 2에 열거된 비교용 수지)로 배합된 비교용 중간층보다 더 높은 굴절률을 나타낸다. 추가적으로, 본 개시내용의 중간층 DL-1 및 DL-2 및 DL-6 및 DL-23 내지 DL-25의 비교로 도시되는 바와 같이, 중간층을 형성하는데 사용되는 가소제의 양은 상기 층의 유리 전이 온도 및 굴절률 둘다에 영향을 미치지만, 모든 수지에 대해 반드시 동일한 정도인 것은 아니다. 예를 들어, DL-1(75 phr 3GEH; 본 개시내용의 수지 1) 및 DL-2(50 phr 3GEH; 본 개시내용의 수지 1)의 비교로 도시되는 바와 같이, 가소제의 양을 약 33% 감소시키면, 상기 중간층의 유리 전이 온도가 11°C(1°C에서 12°C로) 증가하지만, 굴절률은 단지 0.006(1.473에서 1.479로) 증가한다. 그러나, DL-25(60 phr 3GEH; 본 개시내용의 수지 5) 및 DL-6(75 phr의 3GEH; 본 개시내용의 수지 5)의 비교로 도시되는 바와 같이, 상기 수지에 의해 형성되는 층 중의 가소제 함량을 감소시키면, 유리 전이 온도가 단지 1°C(1°C에서 2°C로) 증가하고, 굴절률은 0.004(1.484에서 1.488로) 증가한다.

[0123]

실시예 3: 고 굴절률 수지를 사용한 중간층의 제조

[0124]

상기 실시예 2에서 형성되고 각각 상기 표 4 및 5에 요약된 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 중간층을 사용하여, 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 다층 중간층을 제조하였다. 각각의 다층 중간층은, 28 mil의 총 두께를 갖는 한 쌍의 외부 "스킨" 층에 개재된, 더 적은 잔류 하이드록실 함량의 수지로 일반적으로 형성된 5 mil의 두께의 내부 "코어" 층을 포함한다. 상기 중간층의 조성 및 몇몇 특성, 예컨대 굴절률, 유리 전이 온도, 반점, 및 손실 인자를 전술된 바와 같이 측정하였으며, 비교용 다층 중간층(CI-1 내지 CI-16) 및 본 개시내용의 다층 중간층(DI-1 내지 DI-29)에 대한 결과를 하기 표 6 및 7에 요약한다.

[0125]

표 6: 몇몇 비교용 다층 중간층의 특성

중간층	수지 층		T _g (°C)		HCCHO/		굴절률		Δ 굴절률 (스킨-코어)	중간층의 굴절률 (nD25)	반점	20 °C에서의 손실 인자
	스킨 1	코어	스킨 2	스킨 1	코어	스킨 2	스킨 1	스킨 2				
CI-1	CL-2	CL-7	CL-2	30	2	30	1.477	1.467	1.477	1.475	4	0.29
CI-2	CL-2	CL-11	CL-2	30	-2	30	1.477	1.466	1.477	1.475	5	0.33
CI-3	CL-2	CL-8	CL-2	30	-4	30	1.477	1.464	1.477	1.475	5	nd
CI-4	CL-1	CL-9	CL-1	36	-3	36	1.478	1.466	1.478	1.477	5	nd
CI-5	CL-1	CL-8	CL-1	36	-4	36	1.478	1.464	1.478	nd	5	0.36
CI-6	CL-2	CL-9	CL-2	30	-3	30	1.477	1.466	1.477	nd	5	nd
CI-7	CL-1	CL-11	CL-1	36	-2	36	1.478	1.466	1.478	1.477	5	0.35
CI-8	CL-2	CL-10	CL-2	30	-3	30	1.477	1.465	1.477	nd	5	0.31
CI-9	CL-1	CL-7	CL-1	36	2	36	1.478	1.467	1.478	nd	5	nd
CI-10	CL-1	CL-10	CL-1	36	-3	36	1.478	1.465	1.478	nd	5	nd
CI-11	CL-2	CL-13	CL-2	30	nd	30	nd	nd	nd	nd	> 5	nd
CI-12	CL-2	CL-14	CL-2	30	nd	30	nd	nd	nd	nd	> 5	nd
CI-13	CL-1	CL-13	CL-1	36	nd	36	nd	nd	nd	nd	> 5	nd
CI-14	CL-1	CL-14	CL-1	36	nd	36	nd	nd	nd	nd	> 5	nd
CI-15	CL-2	DL-7	CL-2	30	2	30	1.477	1.490	1.477	-0.013	> 5	nd
CI-16	CL-2	DL-8	CL-2	30	3	30	1.477	1.506	1.477	-0.029	> 5	nd

nd = 측정안함

[0126]

[0127]

표 7: 몇몇 본 개시내용의 다중 중간층의 특성

중간층	수지 층		T _g (°C)		HCCHO/ 글질물 (nD25)		Δ 글질물 (스킨-코어)		중간층의 글질물	반점		
	스킨 1	스킨 2	스킨 1	스킨 2	스킨 1	스킨 2	스킨 1	스킨 2				
D1-1	DL-1	CL-2	30	30	1	30	1.477	1.473	1.477	0.004	1.476	1
D1-2	DL-4	CL-2	30	30	0	30	1.477	1.477	1.477	0.000	1.477	1
D1-3	DL-6	CL-5	30	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	1.478	nd
D1-4	DL-6	CL-2	30	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	nd	< 1
D1-5	DL-6	CL-1	36	36	1	36	1.478	1.482	1.478	-0.004	nd	< 1
D1-6	DL-3	CL-2	30	30	0	30	1.477	1.475	1.477	0.002	nd	< 1
D1-7	DL-5	CL-2	30	30	1	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	< 1
D1-8	DL-6	CL-1	30	30	1	36	1.477	1.482	1.478	-0.005	nd	< 1
D1-9	DL-6	CL-5	30	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	nd	< 1
D1-10	DL-16	CL-2	30	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	< 1
D1-11	DL-17	CL-2	30	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	< 1
D1-12	DL-16	CL-1	36	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	< 1
D1-13	DL-17	CL-1	36	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	< 1
D1-14	DL-18	CL-2	30	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	< 1
D1-15	DL-18	CL-1	36	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	< 1

nd = 측정안함

[0128]

[0129] 표 7(계속): 몇몇 본 개시내용의 다층 중간층의 특성

중간층	수지 층		T _g (°C)		굴절률 (nD25)				굴절률 (스킨-코어)	중간층의 굴절률	반점	
	스킨 1	코어	스킨 2	스킨 1	스킨 2	스킨 1	스킨 2	코어				
												스킨 1
DI-16	DL-19	DL-24	DL-19	30	1	30	1.477	1.488	1.477	-0.005	1.478	< 1
DI-17	CL-2	DL-9	CL-2	30	12	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	< 1
DI-18	CL-2	DL-10	CL-2	30	11	30	1.477	1.478	1.477	-0.001	nd	< 1
DI-19	CL-2	DL-11	CL-2	30	7	30	1.477	1.477	1.477	0.000	nd	< 1
DI-20	CL-2	DL-12	CL-2	30	22	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	< 1
DI-21	CL-2	DL-13	CL-2	30	12	30	1.477	1.476	1.477	0.001	nd	< 1
DI-22	CL-2	DL-14	CL-2	30	17	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	< 1
DI-23	CL-2	DL-15	CL-2	30	12	30	1.477	1.479	1.477	-0.002	nd	< 1
DI-24	DL-20	DL-7	DL-20	nd	2	nd	1.487	1.490	1.487	-0.003	nd	< 1
DI-25	DL-21	DL-7	DL-21	nd	2	nd	1.501	1.490	1.501	-0.011	nd	> 5
DI-26	DL-22	DL-7	DL-22	nd	2	nd	1.525	1.490	1.525	-0.035	nd	> 5
DI-27	DL-20	DL-8	DL-20	nd	3	nd	1.487	1.506	1.487	-0.009	nd	3
DI-28	DL-21	DL-8	DL-21	nd	3	nd	1.501	1.506	1.501	-0.005	nd	< 1
DI-29	DL-22	DL-8	DL-22	nd	3	nd	1.525	1.506	1.525	-0.019	nd	> 5

[0130]

[0131] 상기 표 6에 도시된 바와 같이, 0.010 이상의 굴절률 차이를 갖는 스킨 및 코어 층으로부터 형성된 중간층은, 5 초과인 반점 값으로 제시되는 바와 같은 광학 결함을 나타냈다. 그러나, 표 7에 도시된 바와 같이, 0.010 미만의 굴절률 차이를 갖는 스킨 및 코어 층은, 1 이하의 낮은 반점 값을 나타냈다. 추가적으로, 표 7에 도시된 바와 같이, 이러한 낮은 반점 값은, 인접 층들 간의 굴절률 차이의 절대값이 0.010 미만인 한, 스킨 층보다 더 높거나 낮은 굴절률을 갖는 코어 층을 갖는 중간층에 의해 달성가능하였다. 또한, 표 7에 도시된 바와 같이, 고 RI 알테하이드 잔기 및 0.010 초과인 굴절률 차이를 둘 다 갖는 스킨 및 코어 층으로부터 형성된 중간층은 5 초과인 반점 값을 나타냈다.

[0132] 실시예 4: 다층 중간층의 안정성

[0133] 상기 실시예 1 내지 3에 기술된 바와 같이 제조된 2개의 비교용 다층 중간층(CI-2 및 CI-7) 및 2개의 본 개시내용의 다층 중간층(DI-4 및 DI-5)을 시험하여, 시간에 따른 중간층의 상대적 안정성을 결정하였다. 순(net) 가소제 이동은, 초기 시간(t=0)에서 및 상기 층이 평형에 도달한 이후의 각각의 층의 유리 전이 온도를 비교함으로써 측정하였다. 그 결과를 하기 표 8에 요약한다.

[0134] 표 8: 예시적인 비교용 및 본 개시내용의 중간층의 순 가소제 이동 및 특성

중간층	t=0에서의 T _g (°C)		평형에서의 T _g (°C)		Δ T _g (°C)		Δ 굴절률 (스킨- 코어)	반점
	스킨	코어	스킨	코어	스킨	코어		
	T _g	T _g	T _g	T _g	Δ T _g	Δ T _g		
CI-2	36	4.2	36	4.6	0.0	0.4	0.011	> 5
DI-4	36	1.4	36.4	1.4	0.4	0.0	-0.005	< 1
CI-7	42.5	2.2	42.5	1.4	0.0	-0.8	0.012	> 5
DI-5	40.9	0.2	41.7	-1.8	0.8	-2.0	-0.004	< 1

[0135]

[0136]

본 개시내용의 중간층 DI-4는, 평형에서 상기 중간층의 스킨 및 코어 층 둘 다의 유리 전이 온도의 최소 변화를 나타내었다. 이는, 각각의 중간층 CI-2, CI-7, 및 DI-4의 스킨 및 코어 층 사이에서 소량의 가소제의 이동을 나타낸다. 비교용 중간층 CI-2 및 CI-7은 비교적 안정하지만, 이들 둘 다 5 초과의 반점 값을 나타냈으며, 이는, 대부분의 광학 용도에서 허용가능하지 않은 것일 것이다. 반대로, 본 개시내용의 중간층 DI-4가 나타내는 반점 값은 1 미만이었다.

[0137]

평형에서, 본 개시내용의 중간층 DI-5가 나타내는 유리 전이 온도의 약간의 감소는, 소량의 가소제가 스킨 층으로부터 코어 층으로 이동했음을 나타내는 것이다. 이러한 이동은, 스킨 층에 더 적은 양의 가소제를 사용하거나, 코어에 더 많은 양의 가소제를 사용함으로써 완화될 수 있다. 그렇다 할지라도, 본 개시내용의 중간층 DI-5의 코어 층과 스킨 층의 굴절률은 단지 0.004 차이였고, 결과적으로, 상기 중간층은 또한 1 미만의 반점 값을 나타냈다.

[0138]

실시예 5: 배합된 폴리(비닐 아세탈) 수지

[0139]

상기 실시예 1에 기술된 바와 같이 제조된 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 수지를 38 phr의 3GEH 가소제와 함께 혼합하고 용융-배합하여, 비교용 배합된 층(CBL-16 및 CBL-17) 및 본 개시내용의 배합된 층(DBL-27 및 DBL-28)을 제조하였다. 하기 표 9에 열거된 비교용 수지 층 CL-2 및 CL-15은, 각각 비교용 수지 CR-2 및 CR-10, 및 38 phr의 3GEH가 배합되고, 본 개시내용의 수지 층 DL-27 및 DL-28은 각각, 본 개시내용의 수지 DR-3 및 DR-5, 및 38 phr의 3GEH가 배합되었다. 각각의 배합된 수지 중간층에 대한 헤이즈 및 시각적 투과율(%T_{vis})를 헤이즈 및 시각적 투과율과 함께 측정하였다. 그 결과를 하기 표 9에 제시한다.

[0140]

표 9: 몇몇 수지 층의 헤이즈 및 시각적 투과율

중간층	위치				특성		
	CR-2 (중량%)	CR-10 (중량%)	DR-3 (중량%)	DR-5 (중량%)	가소제 함량 (phr)	헤이즈 (%)	% T _{vis}
CL-2	100	-	-	-	38	0.5	87.7
CL-15	-	100	-	-	38	0.5	87.8
CBL-16	96	4	-	-	38	2.1	84.3
CBL-17	89	11	-	-	38	14.7	80.2
DBL-27	96	-	4	-	38	0.8	87.8
DBL-28	89	-	-	11	38	0.6	87.8
DL-27	-	-	100	-	38	0.5	87.7
DL-28	-	-	-	100	38	0.5	87.8

[0141]

[0142]

상기 표 9에 도시된 바와 같이, 비교용 수지 CR-2 및 CR-10으로부터 형성된 비교용 배합된 중간층 CBL-16 및 CBL-17은, 비교용 수지 CR-2(비교용 층 CL-2) 또는 CR-10(비교용 중간층 CL-15)의 단일 수지 층보다 더 높은 헤이즈 값 및 더 낮은 시각적 투과율을 나타냈다. 반대로, 비교용 수지 CR-2 및 고 굴절률의 본 개시내용의 수지 (층 DBL-27에는 수지 DR-3 또는 층 DBL-28에는 수지 DR-5)의 배합물로부터 형성된 본 개시내용의 배합된 중

간층 DBL-27 및 DBL-28은, 비교용 수지 CR-2가 단독으로 배합된 비교용 중간층 CL-2와 실질적으로 동일한 헤이즈 및 시각적 투과율%를 나타냈다.

[0143] 따라서, 본 발명의 고 굴절률 수지를 비교용 중간층에 첨가하는 것은 생성 중간층의 광학 품질을 감소시키지 않는다.

[0144] 실시예 6: 고 굴절률 첨가제를 갖는 중간층의 제조

[0145] 몇몇 폴리(비닐 아세탈) 수지를, 폴리비닐 알코올을 n-부티르알데하이드로 아세탈화시킴으로써 제조하였다. 상이한 잔류 하이드록실 함량을 수지들을 다양한 양의 3GEH 가소제와 용융-배합하여, 다층 중간층의 다양한 층을 제조하는데 사용하였다. 각각의 중간층은, 각각 14 mil 두께의 2개의 외부 "스킨" 층 사이에 개재된, 5 mil 두께의 내부 "코어" 층을 가졌다. 코어 층을 제조하는데 사용되는 폴리(비닐 부티랄) 수지는 11 중량%의 하이드록실 함량을 가졌고, 스킨 층에 사용되는 수지는 19 중량%의 하이드록실 함량을 가졌다. 이들 수지는 둘 다 약 2 중량%의 잔류 아세테이트 함량을 가졌다.

[0146] 비교용 중간층 CI-17 내지 CI-19를, 3GEH(이는, 다양한 양으로 코어 및 스킨 층에 존재함)로 가소화된 수지 층으로 제조하였다. 3GEH에 더하여, 본 개시내용의 중간층 DI-30 내지 DI-38은 또한, 다양한 양의 2종의 상이한 고 굴절률 첨가제, 즉, 벤조플렉스(상표명) 2-45(다이에틸렌글리콜 다이벤조에이트; 미국 테네시주 킹스포트 소재의 이스트만 케미칼 캄파니(Eastman Chemical Company)로부터 시판됨)(첨가제 A-1)(이는, 28°C의 융점 및 1.542의 굴절률을 가짐); 및 벤조플렉스(상표명) 352(1,4-사이클로헥산 다이메탄올 다이벤조에이트; 이스트만 케미칼 캄파니로부터 시판됨)(첨가제 A-2)(이는, 118°C의 융점 및 1.554의 굴절률을 가짐)를 포함하였다. 비교용 중간층 CI-17 내지 CI-19 및 본 개시내용의 중간층 DI-30 내지 DI-38의 각각의 층의 굴절률 및 유리 전이 온도를 측정하였으며, 그 결과를 하기 표 10에 요약한다.

[0147] 표 10: 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 중간층의 특성

중간층	스킨층					코어층					RI	Tg (°C)	Δ 굴절률 (스킨-코어)
	가스제 함량(P) (phr)	고 RI 첨가제 (A) 유형	고 RI 첨가제 (A) (phr)	총 A+P	RI	Tg (°C)	가스제 함량(P) (phr)	고 RI 첨가제 (A) 유형	고 RI 첨가제 (A) (phr)	총 A+P			
CI-17	40	-	-	-	1.476	30	65.0	-	-	-	1.467	2.9	0.008
CI-18	40	-	-	-	1.476	30	75.0	-	-	-	1.466	-2.0	0.010
CI-19	40	-	-	-	1.476	30	85.0	-	-	-	1.465	-3.1	0.011
DI-30	20	A-1	20	40	1.492	29	32.5	A-1	32.5	65	1.488	4.2	0.004
DI-31	20	A-1	20	40	1.492	29	37.5	A-1	37.5	75	1.488	-0.6	0.004
DI-32	20	A-1	20	40	1.489	29	42.5	A-1	42.5	85	1.488	-3.3	0.004
DI-33	17.2	A-1	22.8	40	1.496	30	22.8	A-1	42.2	65	1.494	5.2	0.002
DI-34	17.2	A-1	22.8	40	1.496	30	26.2	A-1	48.8	75	1.494	2.4	0.002
DI-35	17.2	A-1	22.8	40	1.496	30	29.8	A-1	55.2	85	1.494	-2.1	0.002
DI-36	20	A-2	20	40	1.493	34	27.5	A-2	27.5	55	1.490	15.9	0.003
DI-37	20	A-2	20	40	1.493	34	35.0	A-2	35.0	70	1.490	8.4	0.003
DI-38	20	A-2	20	40	1.493	34	42.5	A-2	42.5	85	1.491	1.8	0.002

[0148]

[0149] 상기 표 10에 도시된 바와 같이, 3GEH 가스제만 포함하는 중간층의 코어 층의 가스제 함량을 증가시키면 상기 층의 유리 전이 온도가 감소하였으며, 이는 궁극적으로, 상기 층의 음향 성능을 개선할 것이다. 그러나, 상기 증가는 또한, 스킨 층과 코어 층의 굴절률 차이를 넓혀서, 상기 중간층의 광학 품질을 감소시켰다. 표 10에서, 본 개시내용의 중간층 DI-30 내지 DI-38의 비교로 도시되는 바와 같이, 추가적인 고 굴절률 첨가제가 배합된 코어 층의 굴절률은, 가스제 부하량이 증가함에 따라 상당히 일정하게 유지되었으며, 여전히 유리 전이 온도의 유사한 감소를 나타냈다. 그 결과는, 거의 동일한 굴절률을 갖는 코어 및 스킨 층을 갖는 중간층이었으며, 이는 광학 결함(예컨대, 반점)이 상당히 감소하였다. 동시에, 코어 층은 또한 충분히 낮은 유리 전이 온도를 나타내었으며, 이는, 상기 수지가 또한 음향 특성을 가짐을 나타내는 것이다.

[0150] 실시예 7: 반응성 고 굴절률 첨가제를 갖는 코어 층의 제조

[0151] 다층 중간층의 내부 코어 층을 모의시험하는데 사용되는 몇몇 수지 층을, 11 중량%의 잔류 하이드록실 함량 및 약 2 중량%의 잔류 아세테이트 함량을 갖는 폴리(비닐 n-부티랄) 수지를 다양한 양의 3GEH 가스제와 용융-배합함으로써 제조하였다. 비교용 층 CL-16은 75 phr의 3GEH를 포함하였으며, 본 개시내용의 층 DL-29 내지 DL-31은, 3GEH 및 반응성 고 굴절률 첨가제(반응성 고 RI 첨가제)의 다양한 혼합물과 배합되었다. 본 개시내용의 층 DL-29 및 DL-30에 사용된 반응성 고 RI 첨가제(첨가제 A)는 다이페닐다이메톡시실란(미국 펜실베이니아주 모리

스빌 소재의 겔레스트 인코포레이티드(Gelvest, Inc.)로부터 SID4535.0로 시판됨), 및 본 개시내용의 층 DL-31에 사용된 반응성 고 RI 첨가제(첨가제 B)는 프탈산 무수물(미국 미주리주 세인트 루이스 소재의 시그마 알드리치 캄파니(Sigma Aldrich Co.)로부터 시판됨)이었다. 비교용 층 CL-16 및 각각의 본 개시내용의 층 DL-29 내지 DL-31의 굴절률을 측정하였으며, 그 결과를 하기 표 11에 제시한다.

[0152] 표 11: 비교용 및 본 개시내용의 코어 수지 층의 굴절률

수지 층	가소제 함량 (phr)	첨가제 A 함량 (phr)	첨가제 B 함량 (phr)	굴절률 (nD25)
CL-16	75	-	-	1.466
DL-29	72	3	-	1.468
DL-30	72	6	-	1.470
DL-31	72	-	3	1.470

[0153] 상기 표 11에 도시된 바와 같이, 3GEH를 하나 이상의 반응성 고 굴절률 첨가제와 조합으로 사용하여 제조된 수지 층은, 3GEH만 배합된 수지 층보다 더 높은 굴절률을 가졌다. 결과적으로, 본 개시내용의 층 DL-29 내지 DL-31은, 다층 중간층에서 내부 코어 층으로서 사용되는 경우, 폴리(비닐 n-부티랄)로 형성된 스킨 층의 굴절률 (RI=1.477)에 더 근접하게 배치되는 굴절률을 가졌다. 결과적으로, 본 개시내용의 층 DL-29 내지 DL-31이 코어 층으로서 형성된 다층 중간층은, 비교용 층 CL-16이 내부 코어 층으로서 형성된 다층 중간층보다 더 적은 광학 결함을 나타냈다.

[0154] 실시예 8: 고 굴절률 가소제를 갖는 수지 배합물을 갖는 다양한 중간층

[0155] 2종의 폴리(비닐 n-부티랄) 수지(R-1 및 R-2)를 상기 실시예 1에서 기술된 절차에 따라 제조하였다. 수지 R-1은 19 중량%의 잔류 하이드록실 함량을 가졌고, 수지 R-2는 11 중량%의 잔류 하이드록실 함량을 가졌다. 이들 수지는 둘 다 2 중량%의 잔류 아세테이트 함량을 가졌다. 다양한 배합 비율을 모의시험하기 위해, 다양한 양의 수지 R-1 및 R-2를 포함하는 몇몇 수지 배합물을 제조하였다. 이 배합물을, 3GEH(가소제 P-1; RI = 1.442), 다이옥틸 프탈레이트(가소제 P-2; RI = 1.485), 30 중량% 3GEH와 70 중량%의 벤조플렉스(등록상표) 2088(이는, 미국 테네시주 킹스포트 소재의 이스트만 케미칼 캄파니로부터 시판됨)의 배합물(가소제 P-3; RI = 1.506), 및 노닐페닐 테트라에틸렌 글리콜(가소제 P-4; RI = 1.500)로부터 선택되는 38 phr의 가소제와 조합하였다. 이어서, 결과적인 가소화된 수지를, 상기 수지 및 가소제를 둘 다 포함하는 단일 시트로 성형하였다. 각각의 시트의 굴절률, 헤이즈, 및 시각적 투과율%를 결정하였으며, 그 결과를 하기 표 12에 제시한다.

[0157]

표 12: 몇몇 수지 배합물의 투시

수지 A (중량%)	수지 B (중량%)	가소제 P-1				가소제 P-2				가소제 P-3				가소제 P-4			
		중간층의 RI	헤이즈 (%)	T _{vis} (%)													
100	0	1.477	0.4	88.5	1.494	0.4	88.5	1.495	0.3	88.4	1.493	0.3	88.4	1.493	0.3	88.5	
98.9	1.1	1.477	0.6	87.9	1.494	0.4	88.6	1.495	0.3	88.8	1.493	0.3	88.8	1.493	0.3	88.7	
97.8	2.2	1.476	1.2	87.1	1.498	0.3	88.4	1.495	0.3	88.7	1.493	0.2	88.7	1.493	0.2	88.7	
95.6	4.4	1.477	1.9	84.6	1.495	0.4	88.4	1.495	0.3	88.6	1.492	0.4	88.6	1.492	0.4	88.5	
91.2	8.8	1.476	5.4	81.7	1.495	0.5	88.3	1.495	0.4	88.5	1.493	0.3	88.5	1.493	0.3	88.6	
88.9	11.1	1.476	12.9	80.6	1.494	0.6	88.2	1.495	0.4	88.2	1.492	0.4	88.2	1.492	0.4	88.2	

[0158]

[0159]

상기 표 12에 도시된 바와 같이, 가소제 P-1이 배합된 수지 층은, 더 적은 하이드록실 함량 수지 R-2의 양이 증가함에 따라 실질적으로 일정한 굴절률을 유지하였지만, 많은 수준의 R-2를 갖는 수지 배합물의 광학 특성은 R-2의 양이 증가될수록 악화되었다. 예를 들어, 표 12에 도시된 바와 같이, 1.1% 초과인 수지 R-2를 포함하는 배합물의 헤이즈는 증가하였으며, 상기 배합물의 시각적 투과율은 88.5%에서 81.7%로 감소하였다.

[0160]

반대로, 더 높은 굴절률의 가소제 P-2 내지 P-4로 가소화된 2.2% 초과인 수지 R-2를 포함하는 수지 배합물은 각각, 더 적은 양의 수지 R-2를 갖는 배합물과 실질적으로 동일한 헤이즈 값 및 시각적 투과율을 나타냈다. 따라서, 더 높은 굴절률의 가소제(예컨대, 가소제 P-2 내지 P-4)를 사용하는 수지 배합물은, 최종 배합물의 광학 특성에 부정적인 영향을 주지 않고, 더 많은 양의 더 적은 하이드록실 함량 수지를 허용할 수 있는 것으로 결론 지을 수 있다.

[0161]

실시예 9: 고 굴절률 가소제를 포함하는 폴리(비닐 부티랄) 층

[0162]

몇몇 폴리(비닐 n-부티랄) 층을, 3종의 상이한 폴리(비닐 n-부티랄) 수지(PVB-1 내지 PVB-3)를 상이한 유형 및 양의 가소제와 합치고, 용융-배합하여 제조하였다. 각각의 상기 수지 PVB-1 내지 PVB-3는 11 내지 20.4 중량%

범위의 상이한 잔류 하이드록실 함량을 가졌고, 이들 3종의 수지는 모두 1 중량%의 잔류 비닐 아세테이트 함량을 가졌다. 비교용 층 CL-17 내지 CL-19는 다양한 양의 트라이에틸렌 글리콜 다이-(2-에틸헥사노에이트)("3GEH"; RI=1.442)와 배합되었으며, 본 개시내용의 층 DL-32 내지 DL-37은 3GEH와 벤조플렉스(상표명) 354(미국 테네시주 킹스포트 소재의 이스트만 케미칼 캄파니로부터 시판됨)(RI=1.53)의 혼합물을 포함하였다. 각각의 층의 굴절률을 측정하였으며, 그 결과를 하기 표 13에 요약한다.

[0163] 표 13: 다양한 가소제를 갖는 몇몇 폴리(비닐) 부티랄 층

수지 층	잔류 가소제 함량					총 가소제 함량 (phr)	굴절률 (nD25)
	하이드록실 함량 (중량%)	3GEH 함량 (phr)	벤조플렉스 (상표명) 354 (phr)	3GEH 대 벤조플렉스 (상표명) 의 비	3GEH 대 벤조플렉스 (상표명) 의 비		
CL-17	19	38	-	-	-	38	1.477
CL-18	19	38	-	-	-	38	1.477
CL-19	11	75	-	-	-	38	1.466
DL-32	20.4	30.1	12.9	30/70	30/70	43	1.484
DL-33	20.4	25.8	17.2	40/60	40/60	43	1.485
DL-34	20.4	21.5	21.5	50/50	50/50	43	1.488
DL-35	11	59.5	25.5	30/70	30/70	85	1.479
DL-36	11	51	34	40/60	40/60	85	1.481
DL-37	11	42.5	42.5	50/50	50/50	85	1.486

[0164]

상기 표 13에 도시된 바와 같이, 고 굴절률 가소제를 포함하는 수지 층은, 저 굴절률 가소제만 포함하는 수지 층에 비해 더 높은 굴절률을 나타냈다.

[0165]

실시예 10: 고 굴절률 첨가제를 갖는 중간층의 제조

[0166]

실시예 9에서 제조되고 상기 표 13에 요약된 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 중간층을 사용하여, 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 다층 중간층을 제조하였다. 각각의 다층 중간층은, 각각 14 mil 두께의 한쌍의 외부 "스킨" 층에 개재된, 더 적은 잔류 하이드록실 함량을 갖는 수지로부터 형성된 5 mil 두께의 내부 "코어" 층을 포함하였다. 상기 다층 중간층의 조성 및 몇몇 특성, 예컨대 총 가소제 함량, 굴절률, 유리 전이 온도, 반점, 및 손실 인자를 전술된 바와 같이 측정하였으며, 비교용 다층 중간층 CI-20 및 CI-21 및 본 개시내용의 다층 중간층 DI-39 내지 DI-41에 대한 결과를 하기 표 14에 요약한다.

[0167]

[0168] 표 14. 몇몇 비교용 및 본 개시내용의 중간층의 특성

중간층 번호	스킨 층		스킨 층 2	총 가소제 함량 (phr)	Δ 굴절률 (스킨-코어)	굴절률 (nD25)	T _g (°C)		반점	20°C에서의 손실 인자
	층 1	코어 층					스킨 층 1	스킨 층 2		
CI-20	CL-17	CL-18	CL-17	38	0.000	1.477	30	-	0	0.02
CI-21	CL-17	CL-19	CL-17	42.5	0.011	1.475	35	3	5	0.32
DI-39	DL-32	DL-35	DL-32	48	0.005	1.484	38.8	2.6	0.4	0.41
DI-40	DL-33	DL-36	DL-33	48	0.004	1.486	39.6	4.7	0.4	0.39
DI-41	DL-34	DL-37	DL-34	48	0.002	1.488	40.9	8.7	0.4	0.33

[0169]

상기 표 14에 도시된 바와 같이, 0.010 초과의 굴절률 차이를 갖는 스킨 및 코어 층으로부터 형성된 중간층은, 5의 반점 값으로 제시되는 바와 같이, 더 많은 광학 결함을 나타냈다. 추가적으로, 고 굴절률 가소제를 사용한 본 개시내용의 중간층 DI-39 내지 DI-41은, 1.460 미만의 굴절률을 갖는 가소제만 사용한 비교용 중간층 CI-20 및 CI-21에 비해 더 높은 총 굴절률을 나타냈다.

[0170]

본 발명이, 특정 실시양태(현재 바람직한 실시양태로 생각되는 것들 포함)의 기술과 함께 개시되었지만, 본원의 상세한 설명은 예시적인 것으로 의도되며, 본원의 범주를 제한하는 것으로 이해되어서는 안된다. 당업자가 이해하는 바와 같이, 본원에 자세히 기술된 실시양태 이외의 실시양태도 본 발명에 포함된다. 본 발명의 진의 및

[0171]

범주로부터 벗어나지 않고도, 기술된 실시양태의 개질 및 변형을 수행할 수 있다.

[0172]

또한, 본 발명의 임의의 단일 성분에 대해 제시된 임의의 범위, 값 또는 특성이, 양립가능한 경우, 본원의 임의의 다른 성분에 대해 제시된 임의의 범위, 값 또는 특성과 상호교환적으로 사용되어, 본원 전체에 걸쳐 제시된 바와 같은 각각의 성분의 정의된 값을 갖는 실시양태를 형성할 수 있음이 이해될 것이다. 예를 들어, 본원의 범주 이내이지만 열거하기에는 번거로운 수많은 순열을 형성하는, 제시된 임의의 범위의 가소체를 포함하는 것에 더하여, 제시된 임의의 범위의 잔류 하이드록실 함량을 갖는 폴리(비닐 부티랄)를 포함하는 중간층이 형성될 수 있다. 또한, 종 또는 범주로 제공되는 범위(예컨대, 프탈레이트 또는 벤조에이트)는 또한, 달리 언급되지 않는 한, 상기 종 내의 화학종 또는 상기 카테고리 내의 일원(예컨대, 다이옥틸 테레프탈레이트)에 적용될 수 있다.