



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 118176255 A

(43) 申请公布日 2024.06.11

(21) 申请号 202280072802.6

(22) 申请日 2022.08.29

(30) 优先权数据

2021-139822 2021.08.30 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.04.28

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2022/032387 2022.08.29

(87) PCT国际申请的公布数据

W02023/032909 JA 2023.03.09

(71) 申请人 可乐丽欧洲有限责任公司

地址 德国

(72) 发明人 新村卓郎 竹本宪太 中原淳裕

浅沼芳聪

(74) 专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事

务所(普通合伙) 11277

专利代理师 李茂家 闫俊萍

(51) Int.Cl.

C08L 33/02 (2006.01)

C03C 27/12 (2006.01)

C08F 220/06 (2006.01)

C08J 5/18 (2006.01)

C08K 5/05 (2006.01)

C08K 5/20 (2006.01)

权利要求书1页 说明书26页

(54) 发明名称

离聚物树脂组合物、树脂片和夹层玻璃

(57) 摘要

本发明涉及离聚物树脂组合物,其包含离聚物树脂和成分Y,所述离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C),所述成分Y选自由具有羟基和/或酰胺基的化合物、其改性物和它们的混合物组成的组,前述单元(A)和前述单元(B)的总含量以构成前述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%,前述成分Y的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

1. 一种离聚物树脂组合物,其包含离聚物树脂和成分Y,所述离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C),所述成分Y选自由具有羟基和/或酰胺基的化合物、其改性物和它们的混合物组成的组,

所述单元(A)和所述单元(B)的总含量以构成所述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%,

所述成分Y的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

2. 根据权利要求1所述的离聚物树脂组合物,其中,所述离聚物树脂还包含(甲基)丙烯酸酯单元(D),所述单元(A)、所述单元(B)和所述单元(D)的总含量以构成所述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%。

3. 根据权利要求1或2所述的离聚物树脂组合物,其中,所述具有羟基和/或酰胺基的化合物为选自酚系化合物、脂肪酸酰胺、具有羟基或酰胺基的无机物质、以及它们的改性物中的至少1种。

4. 根据权利要求3所述的离聚物树脂组合物,其中,所述酚系化合物及其改性物的总含量为0.01质量ppm以上且100质量ppm以下;

脂肪酸酰胺及其改性物的总含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下;和/或

所述具有羟基和/或酰胺基的无机物质的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

5. 根据权利要求3或4所述的离聚物树脂组合物,其中,所述酚系化合物选自6-叔丁基-2,4-二甲苯酚、4-甲氧基苯酚、1,4-二羟基苯、3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛和2,6-二叔丁基对甲酚;

所述脂肪酸酰胺选自芥酸酰胺、油酸酰胺、硬脂酸酰胺、山嵛酸酰胺、亚乙基双硬脂酸酰胺、亚乙基双癸酸酰胺和亚乙基双油酸酰胺;和/或

所述具有羟基和/或酰胺基的无机物质选自滑石、改性碳酸钙、二氧化硅、改性氧化铝和高岭土。

6. 一种权利要求1~5中任一项所述的离聚物树脂组合物的制造方法,其包括如下工序:

i) 使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物溶解于有机溶剂的工序;

ii) 将所述共聚物皂化的工序;

iii) 将工序ii)中得到的皂化物的至少一部分进行脱金属的工序,

在相对于所述共聚物100质量份为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下的所述成分Y的存在下,进行所述工序i)~iii)中的至少一种工序。

7. 一种树脂片,其具有1层以上的包含权利要求1~5中任一项所述的离聚物树脂组合物的层。

8. 一种夹层玻璃中间膜,其包含权利要求7所述的树脂片。

9. 一种夹层玻璃,其具有两个玻璃板、以及配置在该两个玻璃板之间的权利要求8所述的夹层玻璃中间膜。

离聚物树脂组合物、树脂片和夹层玻璃

技术领域

[0001] 本专利申请针对日本专利申请第2021-139822号(申请日:2021年8月30日)要求巴黎条约的优先权,此处通过参照而将其整体援引至本说明书中。

[0002] 本发明涉及离聚物树脂组合物及其制造方法、包含该离聚物树脂组合物而成的树脂片、包含该树脂片的夹层玻璃中间膜和具有该夹层玻璃中间膜的夹层玻璃。

背景技术

[0003] 作为乙烯-不饱和羧酸共聚物的中和物的离聚物由于透明性以及和玻璃的粘接性优异,因此,被用于夹层玻璃的中间膜(例如专利文献1)。近年来,对夹层玻璃的要求性能变高,对于离聚物树脂而言,也要求无论夹层玻璃的制作条件如何均保持高透明性,着色更少、外观优异等。

[0004] 例如,专利文献2中记载了一种离聚物,其为丙烯酸共聚物的中和产物,所述丙烯酸共聚物包含乙烯的共聚单元、具有3~10个碳原子的第一 α,β -不饱和羧酸的共聚单元、以及具有3~10个碳原子的第二 α,β -不饱和羧酸的衍生物的共聚单元。

[0005] 现有技术文献

[0006] 专利文献

[0007] 专利文献1:美国专利第6432522号说明书

[0008] 专利文献2:日本特表2017-519083号公报

发明内容

[0009] 发明要解决的问题

[0010] 专利文献2中记载了该文献所述的离聚物树脂显示出与以往的离聚物树脂相比得以提高的光学特性(雾度)。然而,根据本发明人等的研究可知:专利文献2那样的离聚物树脂的耐着色性和耐蠕变性不充分,在成形加工时容易着色,在长时间使用时强度容易降低。

[0011] 因此,本发明的目的在于,提供能够形成透明性、耐着色性和耐蠕变性优异的树脂片的离聚物树脂组合物及其制造方法。

[0012] 用于解决问题的方案

[0013] 本发明人等为了解决上述课题而进行了深入研究,结果实现了本发明。即,本发明提供以下的适合方式。

[0014] (1)一种离聚物树脂组合物,其包含离聚物树脂和成分Y,所述离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C),所述成分Y选自自由具有羟基和/或酰胺基的化合物、其改性物和它们的混合物组成的组,

[0015] 前述单元(A)和前述单元(B)的总含量以构成前述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%,

[0016] 前述成分Y的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

[0017] (2)根据(1)所述的离聚物树脂组合物,其中,前述离聚物树脂还包含(甲基)丙烯

酸酯单元(D),前述单元(A)、前述单元(B)和前述单元(D)的总含量以构成前述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%。

[0018] (3)根据(1)或(2)所述的离聚物树脂组合物,其中,前述具有羟基和/或酰胺基的化合物为选自酚系化合物、脂肪酸酰胺、具有羟基或酰胺基的无机物质、以及它们的改性物中的至少1种。

[0019] (4)根据(3)所述的离聚物树脂组合物,其中,前述酚系化合物及其改性物的总含量为0.01质量ppm以上且100质量ppm以下;

[0020] 脂肪酸酰胺及其改性物的总含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下;和/或

[0021] 前述具有羟基和/或酰胺基的无机物质的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

[0022] (5)根据(3)或(4)所述的离聚物树脂组合物,其中,前述酚系化合物选自6-叔丁基-2,4-二甲苯酚、4-甲氧基苯酚、1,4-二羟基苯、3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛和2,6-二叔丁基对甲酚;

[0023] 前述脂肪酸酰胺选自芥酸酰胺、油酸酰胺、硬脂酸酰胺、山嵛酸酰胺、亚乙基双硬脂酸酰胺、亚乙基双癸酸酰胺和亚乙基双油酸酰胺;和/或

[0024] 前述具有羟基和/或酰胺基的无机物质选自滑石、改性碳酸钙、二氧化硅、改性氧化铝和高岭土。

[0025] (6)一种(1)~(5)中任一项所述的离聚物树脂组合物的制造方法,其包括如下工序:

[0026] i)使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物溶解于有机溶剂的工序;

[0027] ii)将前述共聚物皂化的工序;

[0028] iii)将工序ii)中得到的皂化物的至少一部分进行脱金属的工序,

[0029] 在相对于前述共聚物100质量份为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下的前述成分Y的存在下,进行前述工序i)~iii)中的至少1种工序。

[0030] (7)一种树脂片,其具有1层以上的包含(1)~(5)中任一项所述的离聚物树脂组合物的层。

[0031] (8)一种夹层玻璃中间膜,其包含(7)所述的树脂片。

[0032] (9)一种夹层玻璃,其具有两个玻璃板、以及配置在该两个玻璃板之间的(8)所述的夹层玻璃中间膜。

[0033] 发明的效果

[0034] 根据本发明,可提供能够形成透明性、耐着色性和耐蠕变性优异的树脂片的离聚物树脂组合物及其制造方法。

具体实施方式

[0035] 以下,针对本发明的实施方式进行详细说明。需要说明的是,本发明的范围不限于此处说明的实施方式,可以在不超出本发明主旨的范围内进行各种变更。

[0036] (离聚物树脂组合物)

[0037] 本发明的离聚物树脂组合物包含离聚物树脂和成分Y,所述成分Y选自由具有羟基和/或酰胺基的化合物、其改性物和它们的混合物组成的组,离聚物树脂组合物中的前述成

分Y的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

[0038] <成分Y>

[0039] 离聚物树脂若结晶性过高则发生白化,存在透明性降低的倾向,若将包含离聚物树脂而成的树脂片在高温下处理后进行缓冷,则促进该树脂片中包含的离聚物树脂的结晶化,该树脂片的透明性容易降低。因此,在例如通过包括在高温下处理后进行缓冷这一工序的方法而制造的夹层玻璃中,将包含离聚物树脂而成的树脂片用作夹层玻璃中间膜时,有可能损害所得夹层玻璃的设计性和外观。因而,本发明人等针对包含离聚物树脂而成的树脂片的、尤其是缓冷时的透明性进行研究时,惊讶地发现:若向离聚物树脂中添加成分Y,制备前述成分Y的含量为0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的离聚物树脂组合物,则能够由该树脂组合物获得在缓冷时也具有优异透明性的树脂片。通过含有0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的成分Y,从而所得树脂片的透明性、尤其是缓冷时的透明性提高的理由尚不明确,但可推测这是因为:通过离聚物树脂与成分Y的相互作用,成分Y作为离聚物树脂的结晶化抑制剂而发挥作用,在缓冷时离聚物树脂的结晶度也被控制在不会损害透明性的范围。

[0040] 进而,本发明人等意外地发现:由包含离聚物树脂和0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的成分Y的离聚物树脂组合物得到的树脂片具有优异的耐着色性和耐蠕变性。通常,由向离聚物树脂中添加除离聚物树脂之外的成分而成的树脂组合物得到的树脂片存在耐着色性和耐蠕变性降低的倾向,但意外的是:由本发明的离聚物树脂组合物得到的树脂片的耐着色性和耐蠕变性也优异,在热成形加工时等也不易着色,且在长时间使用时也容易维持高强度。

[0041] 另一方面,若离聚物树脂组合物中的成分Y的含量在上述范围外,则存在所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性降低的倾向。若成分Y的含量小于0.01质量ppm,则所得树脂片的透明性、尤其是缓冷时的透明性容易降低,例如,在将所得树脂片用作夹层玻璃中间膜时,有可能损害夹层玻璃的设计性和外观。另外,若成分Y的含量超过2000质量ppm,则所得树脂片的耐着色性容易降低,例如,将所得树脂片用作夹层玻璃中间膜时,有可能损害夹层玻璃的设计性和外观。进而,若成分Y的含量超过2000质量ppm,则所得树脂片的耐蠕变性容易降低,因此,例如将所得树脂片用作夹层玻璃中间膜时,有可能在长时间使用时强度容易降低、损害安全性。

[0042] 从容易提高透明性的观点出发,本发明的离聚物树脂组合物中的成分Y的含量优选为0.01质量ppm以上、更优选为0.05质量ppm以上、进一步优选为0.1质量ppm以上、更进一步优选为0.5质量ppm以上。另外,从容易提高耐着色性和耐蠕变性的观点出发,前述成分Y的含量优选为1000质量ppm以下、更优选为200质量ppm以下、进一步优选为100质量ppm以下、更进一步优选为50质量ppm以下、特别优选为10质量ppm以下。离聚物树脂组合物中的成分Y的含量可通过气相色谱法等来求出,例如,可通过实施例记载的方法来计算。

[0043] 成分Y选自由具有羟基和/或酰胺基的化合物、其改性物和它们的混合物组成的组。它们可以单独使用或组合使用2种以上。具有羟基和/或酰胺基的化合物可以为有机化合物,也可以为无机物质,另外,可以具有仅具有羟基和酰胺基中任一者的化合物,也可以为具有两者的化合物。

[0044] 作为具有羟基的有机化合物及其改性物,没有特别限定,可列举出例如酚系化合

物、醇、硅烷醇化合物和它们的改性物等。需要说明的是,作为具有羟基的有机化合物的改性物,可列举出通过具有羟基的有机化合物的多聚体化、氧化和分解等而进行了改性的二聚物、三聚物、四聚物、氧化物和分解物等。只要改性前的有机化合物具有羟基,就包括在本说明书中的“具有羟基的有机化合物的改性物”内。因此,例如作为具有羟基的有机化合物的2,6-二叔丁基对甲酚、1,4-二羟基苯、1,2-二羟基苯的通过上述改性而得到的3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-芪醌、3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-联苯醌、1,4-苯醌、1,2-苯醌等化合物包括在本说明书中的具有羟基的有机化合物的改性物内。这些改性物可以单独使用或组合使用2种以上。

[0045] 作为酚系化合物,可列举出单酚系化合物、双酚系化合物等。作为前述单酚系化合物,可列举出例如6-叔丁基-2,4-二甲苯酚、4-甲氧基苯酚、1,4-二羟基苯、3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛、2,6-二叔丁基对甲酚、2,5-二叔丁基苯酚、单(α -甲基苄基)苯酚、二(α -甲基苄基)苯酚或三(α -甲基苄基)苯酚、氢醌单甲基醚等。作为前述双酚系化合物,可列举出例如2,2'-亚甲基双(4-乙基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-丁叉基双(3-甲基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-硫代双(3-甲基-6-叔丁基苯酚)等。它们可以单独使用或组合使用2种以上。

[0046] 作为前述醇,可列举出鲸蜡醇、硬脂醇等碳原子数16以上的高级醇等。

[0047] 作为硅烷醇化合物,可列举出硅烷醇、甲基硅烷醇、二甲基硅烷醇、三甲基硅烷醇、三乙基硅烷醇、三叔丁氧基硅烷醇、二甲基苯基硅烷醇等。

[0048] 这些之中,从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为酚系化合物及其改性物,更优选为单酚系化合物及其改性物,进一步优选为选自6-叔丁基-2,4-二甲苯酚、4-甲氧基苯酚、1,4-二羟基苯、3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛、2,6-二叔丁基对甲酚中的化合物及其改性物。

[0049] 本发明的一个实施方式中,从耐着色性的观点出发,具有羟基的有机化合物优选为不含三嗪结构和苯并三唑结构的化合物。

[0050] 在离聚物树脂组合物中包含具有羟基的有机化合物及其改性物、优选包含酚系化合物及其改性物的情况下,从容易提高透明性的观点出发,其总含量优选为0.01质量ppm以上、更优选为0.05质量ppm以上、进一步优选为0.1质量ppm以上、进一步优选为0.5质量ppm以上。另外,从容易提高耐着色性和耐蠕变性的观点出发,前述总含量优选为100质量ppm以下、更优选为50质量ppm以下、进一步优选为30质量ppm以下、更进一步优选为20ppm以下、特别优选为10质量ppm以下、更特别优选为5质量ppm以下、进一步特别优选为1质量ppm以下。

[0051] 作为具有酰胺基的有机化合物及其改性物,没有特别限定,可列举出例如脂肪酸酰胺、磷酸酰胺、磺酸酰胺和它们的改性物。需要说明的是,作为具有酰胺基的有机化合物的改性物,可列举出它们的二聚物、三聚物、四聚物、氧化物和分解物等。这些之中,从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为脂肪酸酰胺及其改性物。作为脂肪酸酰胺,没有特别限定,可以为饱和脂肪酸酰胺,也可以为不饱和脂肪酸酰胺,可列举出例如芥酸酰胺、油酸酰胺、硬脂酸酰胺、山嵛酸酰胺、亚乙基双硬脂酸酰胺、亚乙基双癸酸酰胺和亚乙基双油酸酰胺等碳原子数16以上的高级脂肪酸酰胺。它们可以单独使用或组合使用2种以上。

[0052] 这些之中,从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为饱和脂肪酸酰胺,更优选为硬脂酸酰胺、亚乙基双硬脂酸酰胺。

[0053] 在离聚物树脂组合物中包含具有酰胺基的有机化合物及其改性物、优选包含脂肪酸酰胺及其改性物的情况下,从容易提高透明性的观点出发,其总含量优选为0.01质量ppm以上、更优选为0.05质量ppm以上、进一步优选为0.1质量ppm以上、更进一步优选为0.5质量ppm以上、特别优选为1质量ppm以上、更特别优选为10质量ppm以上。另外,从容易提高耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为2000质量ppm以下、更优选为1000质量ppm以下、进一步优选为500质量ppm以下、更进一步优选为100质量ppm以下、特别优选为50质量ppm以下。

[0054] 在本发明中,具有羟基和/或酰胺基的无机物质只要在无机物质的表面具有羟基和/或酰胺基即可,也包括通过表面处理进行改性而被赋予了羟基和/或酰胺基的无机物质。作为无机物质,没有特别限定,可列举出例如滑石、碳酸钙、二氧化硅、氧化铝、高岭土、硫酸钙、硫酸镁、硫酸钡、二氧化硅、氧化硅等。它们可以单独使用或组合使用2种以上。这些无机物质之中,从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为滑石、碳酸钙、二氧化硅、氧化铝、高岭土,另外,具有羟基和/或酰胺基的无机物质优选选自滑石、改性碳酸钙、二氧化硅、改性氧化铝、高岭土,更优选为二氧化硅。

[0055] 作为表面处理,只要能够对无机物质赋予羟基和/或酰胺基就没有特别限定,可以是例如基于二甲基硅油等的有机硅表面处理、基于三甲基甲硅烷基等的表面处理等。

[0056] 本发明的一个实施方式中,从容易提高透明性的观点出发,前述无机物质优选为颗粒状。从容易提高透明性的观点出发,无机颗粒的平均粒径优选为10 μm 以下、更优选为5 μm 以下、进一步优选为3 μm 以下、特别优选为1 μm 以下,另外,可以为0.001 μm 以上。无机颗粒的平均粒径可通过动态光散射法或静态光散射法等进行测定,可通过例如实施例记载的方法进行测定。

[0057] 在离聚物树脂组合物中包含具有羟基和/或酰胺基的无机物质的情况下,从容易提高透明性的观点出发,其总含量优选为0.01质量ppm以上、优选为0.05质量ppm以上、更优选为0.1质量ppm以上、进一步优选为0.5质量ppm以上、更进一步优选为1质量ppm以上、特别优选为10质量ppm以上。另外,从容易提高耐着色性和耐蠕变性的观点出发,优选为2000质量ppm以下、更优选为1000质量ppm以下、进一步优选为500质量ppm以下、更进一步优选为100质量ppm以下、特别优选为50质量ppm以下。

[0058] <离聚物树脂>

[0059] 本发明中的离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C),前述单元(A)和前述单元(B)的总含量以构成前述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%。

[0060] 在本发明中,“单元”是指“源自…的结构单元”,例如(甲基)丙烯酸单元表示源自(甲基)丙烯酸的结构单元,(甲基)丙烯酸中和物单元表示源自(甲基)丙烯酸中和物的结构单元,乙烯单元表示源自乙烯的结构单元。另外,在本说明书中,“(甲基)丙烯酸”表示甲基丙烯酸或丙烯酸。

[0061] 若前述单元(A)和前述单元(B)的总含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计为6~10摩尔%,则容易提高所得树脂片的透明性、尤其是缓冷时的透明性和自立性(例如高温环境下的自立性)。另一方面,若前述总含量小于上述下限值,则在缓冷时容易促进离聚物树脂的结晶化,容易降低所得树脂片在缓冷时的透明性。另外,若前述总含量超过上述上限值,则不易表现出所得树脂片的自立性(例如高温环境下的自立性)。

[0062] 从容易提高所得树脂片的透明性(尤其是缓冷时的透明性)以及与玻璃等基材的粘接性的观点出发,前述总含量为6摩尔%以上、优选为6.5摩尔%以上、更优选为7.0摩尔%以上、进一步优选为7.5摩尔%以上,另外,从容易提高离聚物树脂组合物的自立性和成形加工性的观点出发,为10摩尔%以下、优选为9.9摩尔%以下、更优选为9.5摩尔%以下。

[0063] 前述单元(A)和前述单元(B)的总含量可通过离聚物树脂的制造方法来调整。更具体而言,在以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物作为原料,并通过包括该共聚物的皂化反应工序和脱金属反应工序在内的方法来制造离聚物树脂的情况下,可通过利用前述皂化反应和脱金属化反应将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物中的(甲基)丙烯酸酯单元转化成(甲基)丙烯酸单元(A)和(甲基)丙烯酸中和物单元(B)的各反应的反应度(转换比例)来调整。另外,如美国专利第8399096号中记载的那样,以乙烯和(甲基)丙烯酸作为原料,并将它们聚合来制造离聚物树脂时,可根据要共聚的乙烯与(甲基)丙烯酸的比例来调整。

[0064] 作为构成(甲基)丙烯酸单元(A)的单体的例子,可列举出丙烯酸、甲基丙烯酸,从容易提高耐热性以及玻璃等基材的粘接性的观点出发,优选为甲基丙烯酸。这些(甲基)丙烯酸单元可以单独使用或组合使用2种以上。

[0065] (甲基)丙烯酸单元(A)在离聚物树脂中的含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计,优选为4.5摩尔%以上、更优选为5.0摩尔%以上、进一步优选为5.5摩尔%以上、特别优选为5.8摩尔%以上,且优选为9.0摩尔%以下、更优选为8.5摩尔%以下、进一步优选为8.0摩尔%以下、特别优选为7.5摩尔%以下。若单元(A)的前述含量为上述下限值以上,则容易提高所得树脂片的透明性以及玻璃等基材的粘接性。另外,若为上述上限值以下,则容易提高离聚物树脂组合物的成形加工性。

[0066] (甲基)丙烯酸中和物是指将(甲基)丙烯酸的氢离子用金属离子置换而得到的物质。作为(甲基)丙烯酸中和物单元(B),优选为前述(甲基)丙烯酸单元(A)的中和物单元。作为前述金属离子的例子,可列举出锂、钠、钾等1价金属的离子;镁、钙、锌、铝、钛等多价金属的离子。这种金属离子可以单独使用,也可以组合使用2种以上。例如,可以将1种以上的1价金属离子与1种以上的2价金属离子加以组合。

[0067] (甲基)丙烯酸中和物单元(B)在离聚物树脂中的含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计,优选为0.65摩尔%以上、更优选为1.0摩尔%以上、进一步优选为1.5摩尔%以上、特别优选为1.7摩尔%以上,且优选为3.0摩尔%以下、更优选为2.7摩尔%以下、进一步优选为2.6摩尔%以下、特别优选为2.5摩尔%以下。若单元(B)的含量为上述下限值以上,则容易提高透明性和自立性(弹性模量),若为上述上限值以下,则容易抑制成形加工时的熔融粘度的上升。

[0068] 在以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物作为原料,并通过包括该共聚物的皂化反应工序和脱金属反应工序在内的方法来制造离聚物树脂的情况下,前述单元(A)和前述单元(B)的各含量可通过利用前述皂化反应和脱金属反应将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物中的(甲基)丙烯酸酯单元转换成(甲基)丙烯酸单元(A)和(甲基)丙烯酸中和物单元(B)的各反应中的反应度来调整。

[0069] 乙烯单元(C)的含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计,优选为80摩尔%以上、更优选为85摩尔%以上、进一步优选为88摩尔%以上,且优选为94摩尔%以下、

更优选为91摩尔%以下。若乙烯单元(C)的含量为上述下限值以上,则容易提高机械强度、尤其是耐冲击性和成形加工性,另外,若为上述上限值以下,则容易抑制离聚物树脂的结晶化,容易提高所得树脂片的透明性(尤其是缓冷时的透明性)。

[0070] 本发明中的离聚物树脂在包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C)的基础上,从更容易提高透明性的观点出发,优选还包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)。

[0071] 在离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的情况下,从容易提高透明性(尤其是缓冷时的透明性)的观点出发,前述单元(A)、前述单元(B)和前述单元(D)的总含量以构成前述离聚物树脂的全部结构单元作为基准计优选为6~10摩尔%。在离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的情况下,若前述单元(A)、前述单元(B)和前述单元(D)的总含量为上述范围内,则容易提高所得树脂片的透明性、尤其是缓冷时的透明性和自立性(例如高温环境下的自立性)。

[0072] 在离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的情况下,从容易提高所得树脂片的透明性(尤其是缓冷时的透明性)以及与玻璃等基材的粘接性的观点出发,前述单元(A)、前述单元(B)和前述单元(D)的前述总含量为6摩尔%以上、优选为6.5摩尔%以上、更优选为7.0摩尔%以上、进一步优选为7.5摩尔%以上,另外,从容易提高自立性和成形加工性的观点出发,为10摩尔%以下、优选为9.9摩尔%以下、更优选为9.5摩尔%以下。

[0073] 前述单元(A)、前述单元(B)和前述单元(D)的总含量可根据离聚物树脂的原料来调整。更具体而言,以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物作为原料,通过包括该共聚物的皂化反应工序和脱金属反应工序在内的方法来制造离聚物树脂的情况下,可根据作为离聚物树脂原料的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物的(甲基)丙烯酸酯改性量来调整。另外,如美国专利第8399096号中记载的那样,以乙烯和(甲基)丙烯酸作为原料,将它们聚合来制造离聚物树脂时,可根据要共聚的乙烯与(甲基)丙烯酸的比例来调整。

[0074] 作为构成(甲基)丙烯酸酯单元(D)的单体的例子,可列举出(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯、(甲基)丙烯酸仲丁酯、(甲基)丙烯酸叔丁酯、(甲基)丙烯酸戊酯、(甲基)丙烯酸异戊酯、(甲基)丙烯酸正己酯、(甲基)丙烯酸环己酯、(甲基)丙烯酸2-乙基己酯、(甲基)丙烯酸十五烷基酯、(甲基)丙烯酸十二烷基酯、(甲基)丙烯酸异冰片酯、(甲基)丙烯酸苯酯、(甲基)丙烯酸苄酯、(甲基)丙烯酸苯氧基乙酯、(甲基)丙烯酸2-羟基乙酯、(甲基)丙烯酸2-甲氧基乙酯、(甲基)丙烯酸缩水甘油酯、(甲基)丙烯酸烯丙酯等。

[0075] 这些之中,从容易提高透明性和耐热性的观点出发,前述单体优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯、(甲基)丙烯酸仲丁酯、(甲基)丙烯酸叔丁酯,单体更优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯,单体进一步优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯,单体特别优选为(甲基)丙烯酸甲酯。这些(甲基)丙烯酸酯可以单独使用或组合使用2种以上。

[0076] 在离聚物树脂包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的情况下,(甲基)丙烯酸酯单元(D)在离聚物树脂中的含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计,优选为0.01摩尔%以

上、更优选为0.05摩尔%以上、进一步优选为0.08摩尔%以上,且优选为1.0摩尔%以下、更优选为0.7摩尔%以下、进一步优选为0.5摩尔%以下。若单元(D)的含量为上述下限值以上且上述上限值以下,则容易提高所得树脂片的透明性。

[0077] 在以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物作为原料,并通过包括该共聚物的皂化反应工序和脱金属反应工序在内的方法来制造离聚物树脂的情况下,(甲基)丙烯酸酯单元(D)的含量可通过将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物中的(甲基)丙烯酸酯单元(D)转换成(甲基)丙烯酸单元(A)的前述皂化反应的反应度来调整。

[0078] 离聚物树脂可以包含除(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C)、以及根据情况而包含的(甲基)丙烯酸酯单元(D)之外的其它单体单元。作为其它单体单元的例子,可列举出除(甲基)丙烯酸单元(A)之外的羧酸单元(A1)、除(甲基)丙烯酸中和物单元(B)之外的羧酸中和物单元(B1)等。

[0079] 作为构成前述羧酸单元(A1)的单体的例子,可列举出衣康酸、马来酸酐、马来酸单甲酯、马来酸单乙酯等,优选为马来酸单甲酯、马来酸单乙酯。作为构成前述羧酸中和物单元(B1)的单体的例子,可列举出前述羧酸单元(A1)的中和物单元等。需要说明的是,羧酸中和物是将羧酸的氢离子用金属离子置换而得到的物质。作为前述金属离子,可列举出与上述(甲基)丙烯酸中和物单元(B)中的金属离子相同的金属离子,该金属离子可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0080] 这些其它单体单元可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0081] 在离聚物树脂包含上述其它单体单元的情况下,其总含量、例如(A1)和(B1)的总含量只要在不损害本发明效果的范围内适当选择即可,例如,以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准计,优选为5摩尔%以下、更优选为3摩尔%以下、进一步优选为1摩尔%以下,且优选为0.01摩尔%以上、更优选为0.1摩尔%以上。

[0082] 离聚物树脂中的(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和乙烯单元(C)、以及包含时的(甲基)丙烯酸酯单元(D)和其它单体单元(例如单元(A1)和单元(B1))的各含量可通过首先利用热分解气相色谱法鉴定离聚物树脂中的单体单元,接着使用核磁共振分光法(NMR)和元素分析来求出。更具体而言,可通过实施例记载的方法来求出。另外,也可以通过将上述分析方法与IR和/或拉曼分析加以组合的方法来求出。在这些分析之前,优选通过再沉淀法、索氏萃取法预先去除除离聚物树脂之外的成分。

[0083] 从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性、耐蠕变性的观点出发,离聚物树脂的含量相对于离聚物树脂组合物的总质量优选为90质量份以上、更优选为95质量份以上、进一步优选为98质量份以上、更进一步优选为99质量份以上,且优选小于100质量份、更优选为99.99质量份以下。

[0084] 本发明的一个实施方式中,离聚物树脂的每1000个碳的支化度没有特别限制,优选为5~30、更优选为6~20。对于前述支化度,例如,通过将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物作为原料、包括该共聚物的皂化反应工序及脱金属化反应工序的方法来制造离聚物树脂的情况下,可以通过合成作为原料的乙烯-(甲基)丙烯酸酯时的聚合温度来调整。每1000个碳的支化度可以用固体NMR以宽带偶极去耦/魔角旋转(DD/MAS)法进行测定。

[0085] 本发明的一个实施方式中,从耐热性和耐热分解性的观点出发,离聚物树脂的熔点优选50°C以上、更优选60°C以上、进一步优选80°C以上。另外,从制作夹层玻璃时容易体

现与玻璃的粘接力的观点出发,所述熔点优选200°C以下、更优选180°C以下、进一步优选150°C以下。前述熔点可以基于JIS K7121:2012而测定。具体而言,用差示扫描量热计(DSC),在冷却速度-10°C/分钟、升温速度10°C/分钟的条件下进行测定,可以由第2次升温的熔融峰的峰顶温度求出。

[0086] 本发明的一个实施方式中,离聚物树脂的熔解热优选0J/g以上且25J/g以下。前述熔解热可以基于JIS K7122:2012而测定。具体而言,用差示扫描量热计(DSC),在冷却速度-10°C/分钟、升温速度10°C/分钟的条件下进行测定,可以由第2次升温时的熔融峰的面积算出。

[0087] 本发明的一个实施方式中,依据JIS K7210、在190°C、2.16Kg的条件下测定的离聚物树脂的熔体流动速率(MFR)优选0.1g/10分钟以上、更优选0.3g/10分钟以上、进一步优选0.7g/10分钟以上、进一步更优选1.0g/10分钟以上、特别优选1.5g/10分钟以上,优选50g/10分钟以下、更优选30g/10分钟以下、特别优选10g/10分钟以下。离聚物树脂的MFR如果为上述下限值以上且上限值以下,则抑制了热所导致的劣化的成形加工容易进行,容易得到耐贯通性优异的树脂片。

[0088] 离聚物树脂的熔点、熔解热和MFR可以根据离聚物树脂的分子量、以及离聚物树脂的(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)、和乙烯单元(C)、以及根据情况包含的(甲基)丙烯酸酯单元(D)的含量而调整。

[0089] 离聚物树脂的制造方法没有特别限定,可列举出例如下述方法等:包括以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)作为原料将其皂化的工序(皂化工序)、以及将所得皂化物的至少一部分进行脱金属的工序(脱金属工序)的方法;以及包括以乙烯和(甲基)丙烯酸作为原料将它们共聚的工序(共聚工序)、以及将所得共聚物部分中和的工序(部分中和工序)的方法。

[0090] 以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)作为原料的前述方法中的皂化工序和脱金属工序可以与后述(离聚物树脂组合物的制造方法)一项中记载的皂化工序和脱金属工序相同。

[0091] 以乙烯和(甲基)丙烯酸作为原料的前述方法可以参照美国专利第8399096号说明书中的树脂的制造方法。

[0092] 本发明的一个实施方式中,离聚物树脂优选通过以乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)作为原料的前述方法来制造,更优选通过后述(离聚物树脂组合物的制造方法)一项中记载的方法来制造。

[0093] 本发明的离聚物树脂组合物中,在包含离聚物树脂和成分Y的基础上,根据需要还可以还包含添加剂。作为添加剂,可列举出除属于前述成分Y的化合物之外的添加剂,例如紫外线吸收剂、防老剂、抗氧化剂、抗热劣化剂、光稳定剂、抗胶粘剂、润滑剂、脱模剂、高分子加工助剂、抗静电剂、阻燃剂、染料颜料、有机色素、消光剂、荧光体等。这些添加剂之中,优选为紫外线吸收剂、防老剂、抗氧化剂、抗热劣化剂、光稳定剂、抗胶粘剂、润滑剂、脱模剂、高分子加工助剂、有机色素。这些添加剂可以单独使用或组合使用2种以上。

[0094] 各种添加剂的含量可以在不损害本发明效果的范围内适当选择,各种添加剂的总含量相对于树脂组合物的总质量优选为7质量%以下、更优选为5质量%以下、进一步优选为4质量%以下。

[0095] 本发明的一个适合实施方式中,由本发明的树脂组合物得到的树脂片显示出与后述(树脂片)一项中记载的本发明的树脂片的雾度、缓冷雾度、吸水雾度、黄色度、长时间松弛弹性模量、50°C下的储能模量相同的值。因此,本发明的离聚物树脂组合物能够形成具有优异的透明性、耐着色性、耐蠕变性和自立性的树脂片。

[0096] (离聚物树脂组合物的制造方法)

[0097] 本发明的离聚物树脂组合物的制造方法没有特别限定,可通过例如下述方法来制造,所述方法包括如下工序:

[0098] i) 使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶解于有机溶剂的工序(溶解工序);

[0099] ii) 将前述共聚物皂化的工序(皂化工序);

[0100] iii) 将工序ii)中得到的皂化物的至少一部分进行脱金属的工序(脱金属工序),

[0101] 在相对于前述共聚物100质量份为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下的前述成分Y的存在下,进行前述工序i)~iii)中的至少1种工序。需要说明的是,在本说明书中,也将工序i)称为溶解工序,将工序ii)称为皂化工序,且将工序iii)称为脱金属工序。

[0102] 本发明的方法中,通过工序ii)和iii)中的皂化和脱金属,将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)中的(甲基)丙烯酸酯单元的全部或部分转换成(甲基)丙烯酸单元和(甲基)丙烯酸中和物单元,由此得到包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)、乙烯单元(C)且根据情况而包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的离聚物树脂,进而,通过在上述范围内的量的成分Y的存在下进行前述工序i)~iii)中的至少1种工序,从而得到包含前述离聚物树脂和本发明中的上述含量、例如0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的量的成分Y的本发明的离聚物树脂组合物。

[0103] 本发明的方法可以是通过工序ii)和iii)中的皂化反应和脱金属反应将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物中的(甲基)丙烯酸酯单元的全部或部分转换成(甲基)丙烯酸单元和(甲基)丙烯酸中和物单元的方法(以下也称为方法(1)),也可以是通过在工序ii)和iii)之后包括进一步将所得脱金属化物中和的中和工序在内的方法,将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物中的(甲基)丙烯酸酯单元的全部或部分转换成(甲基)丙烯酸单元和(甲基)丙烯酸中和物单元的方法(以下也称为方法(2))。

[0104] 前述方法(1)中,具体而言,通过利用碱将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物皂化,从而将(甲基)丙烯酸酯单元的全部或部分转换成(甲基)丙烯酸中和物单元,得到作为皂化物的乙烯-(甲基)丙烯酸酯-(甲基)丙烯酸中和物共聚物或乙烯-(甲基)丙烯酸中和物共聚物,接着,通过利用酸将所得皂化物中的(甲基)丙烯酸中和物单元的一部分进行脱金属,转换成(甲基)丙烯酸单元,从而得到包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)、乙烯单元(C)且根据情况而包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的离聚物树脂。

[0105] 前述方法(2)中,具体而言,将通过在前述方法(1)中利用碱将乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物皂化而得到的皂化物中的(甲基)丙烯酸中和物单元全部用酸进行脱金属,转换成(甲基)丙烯酸单元,得到乙烯-(甲基)丙烯酸共聚物,接着,将所得脱金属化物中的(甲基)丙烯酸单元的一部分用金属离子中和,转换成(甲基)丙烯酸中和物单元,由此得到包含(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)、乙烯单元(C)且根据情况而包含(甲基)丙烯酸酯单元(D)的离聚物树脂。

[0106] 前述方法(1)和方法(2)之中,从减少反应次数、提高离聚物树脂的制造效率

的观点出发,优选通过方法(1)来制造离聚物树脂。

[0107] 本发明的方法中,通过在相对于前述共聚物(X)100质量份为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下的成分Y的存在下进行前述工序i)~iii)中的至少1种工序,从而得到包含离聚物树脂和上述含量、例如0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的成分Y的本发明的离聚物树脂组合物。

[0108] 通过在工序i)~iii)中的至少1种工序中存在上述范围内的量的成分Y,从而能够在工序ii)中的皂化反应和/或工序iii)中的脱金属反应的反应体系内存在上述范围内的量的成分Y。由此存在下述倾向:容易得到在离聚物树脂中以分子水平均匀分散有成分Y的离聚物树脂组合物,成分Y与离聚物树脂的相互作用变大。因此,在本发明的一个实施方式中,与通过除本发明的方法之外的方法、例如边利用双螺杆挤出机等施加剪切应力边在将离聚物树脂熔融混炼时添加成分Y而得到的离聚物树脂组合物相比,通过本发明的方法而得到的离聚物树脂组合物容易提高成分Y的分散性。因此,通过本发明的方法而得到的离聚物树脂组合物容易形成具有优异的透明性、耐着色性和耐蠕变性的树脂片。

[0109] 本发明的一个实施方式中,从容易将所得离聚物树脂组合物中的成分Y的含量调整至本发明的上述范围内、例如0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的观点出发,至少工序iii)中的成分Y的存在量相对于乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)100质量份优选为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下。

[0110] 本发明中,在工序i)~iii)之中的至少1个工序中存在成分Y的方法没有特别限定,可以是例如在工序i)~iii)中的至少1个工序中添加成分Y的方法等。本发明的一个实施方式中,为了在工序i)~iii)中的至少1个工序、优选至少在工序iii)中存在上述范围内的成分Y,优选在工序i)~iii)中的至少1个工序中添加成分Y。工序i)~iii)中的至少1个工序中的成分Y的添加量相对于乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)100质量份优选为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下,工序i)~iii)中的成分Y的总添加量相对于乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)100质量份更优选为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下。由此,容易将所得离聚物树脂组合物中的成分Y的含量调整至本发明中的上述范围内、例如0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下。

[0111] 在本发明中,从容易将所得离聚物树脂组合物中的成分Y的含量调整至本发明的上述范围内、例如0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的观点出发,工序i)~iii)中的至少1个工序中的成分Y的存在量或成分Y的总添加量相对于前述共聚物(X)100质量份可以为 1.0×10^{-6} 质量份以上且1.0质量份以下。前述成分Y的存在量相对于前述共聚物(X)100质量份优选为 1.0×10^{-5} 质量份以上、更优选为 5.0×10^{-5} 质量份以上、进一步优选为 1.0×10^{-4} 质量份以上,且优选为0.8质量份以下、更优选为0.5质量份以下、进一步优选为0.3质量份以下、特别优选为0.2质量份以下。

[0112] 工序i)是使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶解于有机溶剂而得到乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶液的工序。

[0113] 作为构成乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)中的(甲基)丙烯酸酯单元的单体的例子,可列举出(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯、(甲基)丙烯酸仲丁酯、(甲基)丙烯酸叔丁酯、(甲基)丙烯酸戊酯、(甲基)丙烯酸异戊酯、(甲基)丙烯酸正己酯、(甲基)丙烯酸环

己酯、(甲基)丙烯酸2-乙基己酯、(甲基)丙烯酸十五烷基酯、(甲基)丙烯酸十二烷基酯、(甲基)丙烯酸异冰片酯、(甲基)丙烯酸苯酯、(甲基)丙烯酸苜酯、(甲基)丙烯酸苯氧基乙酯、(甲基)丙烯酸2-羟基乙酯、(甲基)丙烯酸2-甲氧基乙酯、(甲基)丙烯酸缩水甘油酯、(甲基)丙烯酸烯丙酯等。这些之中,单体优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯、(甲基)丙烯酸仲丁酯、(甲基)丙烯酸叔丁酯,单体更优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯,单体进一步优选为(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯,特别优选为(甲基)丙烯酸甲酯。这些(甲基)丙烯酸酯可以单独使用或组合使用2种以上。

[0114] 作为乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的具体例,可列举出乙烯-丙烯酸甲酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物、乙烯-丙烯酸乙酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸乙酯共聚物、乙烯-丙烯酸正丙酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸正丙酯共聚物、乙烯-丙烯酸异丙酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸异丙酯共聚物、乙烯-丙烯酸正丁酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸正丁酯共聚物、乙烯-丙烯酸仲丁酯共聚物、乙烯-甲基丙烯酸仲丁酯共聚物等。

[0115] 作为这些共聚物,可以使用市售品,可以使用通过US2013/0274424、日本特开2006-233059或日本特开2007-84743中记载的高温高压自由基聚合法而合成的物质。作为前述市售品,可列举出例如住友化学公司制的“ACRYFT”(注册商标)WK307、WH401F;日本聚乙烯公司制的“Rexpearl”(注册商标)A4250等。

[0116] 本发明的一个实施方式中,按照JIS K7210并利用190°C、2.16Kg的条件而测得的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的熔体流动速率(MFR)优选为5g/10分钟以上、更优选为10g/10分钟以上、进一步优选为50g/10分钟以上、更进一步优选为100g/10分钟以上,且优选为400g/10分钟以下、更优选为350g/10分钟以下、进一步优选为300g/10分钟以下、更进一步优选为250g/10分钟以下。若乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的MFR为上述下限值以上且上述上限值以下,则容易提高所得离聚物树脂的成形加工性和强度。乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的MFR可根据聚合度和(甲基)丙烯酸酯单元的含量来调整。前述MFR可通过例如实施例中记载的方法进行测定。

[0117] 从容易提高所得离聚物树脂的成形加工性和强度的观点出发,乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的重均分子量优选为15,000g/摩尔以上、更优选为20,000g/摩尔以上、进一步优选为30,000g/摩尔以上,且优选为200,000g/摩尔以下、更优选为100,000g/摩尔以下。另外,从相同的观点出发,乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的数均分子量优选为5,000g/摩尔以上、更优选为10,000g/摩尔以上、进一步优选为15,000g/摩尔以上,且优选为100,000g/摩尔以下、更优选为50,000g/摩尔以下。前述重均分子量和数均分子量可根据聚合时的聚合引发剂和/或链转移剂的量来调整。这些乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的分子量(重均分子量和数均分子量)可使用柱(3根串联的TSKgel GMH_{HR}-H(20)HT)和1,2,4-三氯苯溶剂,在柱温度为140°C的条件下按照聚苯乙烯换算进行测定。

[0118] 乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的每1000个碳的支化度没有特别限定,优选为5~30、更优选为6~20。前述支化度可根据将前述共聚物(X)聚合时的聚合温度来调整。前述支化度可通过使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物溶解于氘代邻二氯苯,并利用¹³C-NMR的反转门控去耦法来测定。

[0119] 作为使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶解的有机溶剂,只要是能够将前述共聚物(X)溶解的溶剂就没有特别限定,可列举出例如四氢呋喃、二噁烷等醚类;氯仿、二氯苯等含卤素的溶剂;甲基丁基酮等碳原子数为6以上的酮类;己烷等烃化合物;乙酸乙酯、乙酸甲酯等乙酸酯类;烃化合物与甲醇、乙醇、1-丙醇、2-丙醇、1-丁醇等醇类的混合溶剂;苯、甲苯、二甲苯、乙基苯等芳香族化合物;芳香族化合物与醇类的混合溶剂等。这些溶剂可以单独使用或组合使用2种以上。这些之中,从溶解性以及所得离聚物树脂组合物和溶剂的回收性的观点出发,优选为芳香族化合物、芳香族化合物与醇类的混合溶剂,更优选为芳香族化合物。

[0120] 通过工序i)而得到的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶液中的前述共聚物(X)的含量优选为5质量%以上、更优选为10质量%以上、进一步优选为20质量%以上,且优选为80质量%以下、更优选为60质量%以下、进一步优选为40质量%以下。若该溶液中的共聚物(X)的含量为上述上限以下,则容易提高工序通过性或控制反应,另外,若为上述下限以上,则生产率容易变高。

[0121] 在工序i)中,使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶解于有机溶剂时的温度没有特别限定,从乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的溶解性的观点出发,优选为30°C以上、更优选为40°C以上、进一步优选为50°C以上、特别优选为55°C以上。该温度的上限优选为120°C以下、更优选为100°C以下、进一步优选为80°C以下。

[0122] 工序i)可以在空气中进行,也可以在氮气、氩气等非活性气体中进行。另外,工序i)可以在常压下、加压下或减压下中的任一者下进行,优选在加压下进行。

[0123] 工序ii)是将通过工序i)而得到的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶液中的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)皂化而得到前述共聚物(X)的皂化物的工序。

[0124] 共聚物(X)的皂化可通过向乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶液中添加碱来进行,作为皂化中使用的碱的例子,可列举出氢氧化钠、氢氧化钾、氢氧化钙等强碱,从在溶剂中的溶解性和经济性的观点出发,优选为氢氧化钠、氢氧化钾。

[0125] 碱的添加量相对于例如乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的(甲基)丙烯酸酯单元100摩尔份优选为100~300摩尔份、更优选为120~250摩尔份、进一步优选为150~200摩尔份。

[0126] 作为皂化中使用的溶剂的例子,可列举出与在工序i)中使乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)溶解的有机溶剂相同的溶剂。这些之中,从皂化反应前后的树脂溶解性的观点出发,溶剂优选为烃化合物与醇类的混合溶剂、芳香族化合物与醇类的混合溶剂,溶剂更优选为甲苯等芳香族化合物与甲醇等醇类的混合溶剂。前述混合溶剂中的烃化合物或芳香族化合物与醇类的比例根据所使用的各溶剂的种类进行适当选择即可,例如,烃化合物或芳香族化合物与醇类的质量比例(烃化合物或芳香族化合物/醇类)可以为50/50~90/10。

[0127] 作为进行上述皂化反应时的温度,从其反应性和乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的溶解性的观点出发,优选为50°C以上、更优选为60°C以上、进一步优选为70°C以上、特别优选为80°C以上。该温度的上限优选为180°C以下、更优选为150°C以下、进一步优选为120°C以下。

[0128] 上述皂化反应可以在空气中进行,也可以在氮气、氩气等非活性气体中进行。另外,上述皂化反应可以在常压下、加压下或减压下中的任一者下进行,优选在加压下进行。

[0129] 工序iii)是将通过工序ii)的皂化而得到的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的皂化物的至少一部分进行脱金属的工序。

[0130] 前述皂化物的脱金属化可利用酸来进行。作为脱金属化反应中使用的酸,可列举出例如乙酸等弱酸;盐酸、硝酸、硫酸、甲苯磺酸等强酸。这些之中,从容易清洗去除由皂化反应中使用的碱和脱金属化反应中使用的酸生成的盐的观点出发,优选为强酸,更优选为盐酸、硝酸、硫酸等无机酸。

[0131] 作为脱金属化反应中使用的溶剂的例子,可以选择与在工序ii)中用于皂化反应的溶剂相同的溶剂。

[0132] 为了将(甲基)丙烯酸中和物单元(B)调节至任意值,酸的添加量可根据强碱的添加量来选择适合量。

[0133] 从容易降低反应溶液的粘度的观点出发,进行上述脱金属化时的温度优选为20°C以上、更优选为30°C以上、进一步优选为40°C以上,且优选为180°C以下、更优选为150°C以下、进一步优选为120°C以下、特别优选为100°C以下。

[0134] 上述脱金属化与上述皂化反应同样地,可以在空气中进行,也可以在氮气、氩气等非活性气体中进行。另外,上述脱金属化可以在常压下、加压下或减压下中的任一者下进行,优选在加压下进行。

[0135] 通过上述方法(2)来进行乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)中的(甲基)丙烯酸酯单元的全部或部分向(甲基)丙烯酸单元和(甲基)丙烯酸中和物单元的转换时,可以还包括在工序iii)之后利用金属离子将(甲基)丙烯酸单元的一部分中和的中和工序。

[0136] 在上述方法(2)的中和工序中,将(甲基)丙烯酸单元的一部分中和而转换成(甲基)丙烯酸中和物单元时使用的中和剂只要是含有金属离子的离子性化合物就没有特别限定。作为前述金属离子的例子,可列举出锂、钾、钠等碱金属离子;镁、钙等碱土金属离子;锌、镍、铁、钛等过渡金属离子;铝离子等。例如,在金属离子为钠阳离子的情况下,作为中和剂的例子,可列举出氢氧化钠、乙酸钠、碳酸氢钠等。另外,可以将含有(甲基)丙烯酸钠单元的离聚物树脂等聚合物也用作中和剂。

[0137] 在前述工序iii)后或者在前述工序iii)后还包括中和工序的情况下,通过在中和工序后从反应混合物中分离精制出所得反应液中的反应产物、即包含粗离聚物树脂和成分Y的粗离聚物树脂组合物,从而能够得到本发明的离聚物树脂组合物。进行分离精制的分离精制工序可通过惯用方法、例如过滤、清洗、浓缩、再沉淀、重结晶、硅胶柱层析等分离手段来进行。

[0138] 本发明的一个实施方式中,从容易清洗去除由皂化反应中使用的碱和脱金属化反应中使用的酸副产的盐的观点出发,前述分离精制工序优选通过向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加不良溶剂而使粒状树脂组合物析出,接着,将析出的粒状树脂组合物用清洗液清洗来进行。

[0139] 前述粗离聚物树脂组合物的溶液可通过在脱金属工序或脱金属工序后的中和工序后使所得粗离聚物树脂组合物溶解于溶剂来制备,也可以在脱金属工序或脱金属工序后的中和工序后将所得反应液用作粗离聚物树脂组合物的溶液。

[0140] 作为粗离聚物树脂组合物的溶液中的溶剂,只要是能够将粗离聚物树脂或粗离聚物树脂组合物溶解的溶剂就没有特别限定,可例示出与上述皂化反应中使用的溶剂相同的

溶剂。其中,从粗离聚物树脂或粗离聚物树脂组合物的溶解性的观点出发,优选为甲苯等芳香族化合物与甲醇等醇类的混合溶剂。前述混合溶剂中的芳香族化合物与醇类的比例只要根据所使用的各溶剂的种类来适当选择即可,例如,芳香族化合物与醇类的质量比例(芳香族化合物/醇类)可以为50/50~90/10、优选为65/35~85/15。

[0141] 从容易获得粒径小的粒状树脂组合物、容易去除所副产的盐的观点出发,粗离聚物树脂组合物的溶液中的粗离聚物树脂的浓度优选为30质量%以下、更优选为15质量%以下,且优选为1质量%以上、更优选为5质量%以上。

[0142] 从容易抑制所析出的粒状树脂组合物的聚集或胶粘、容易去除所副产的盐的观点出发,粗离聚物树脂组合物的溶液的温度优选为离聚物树脂的熔点以下、更优选为60°C以下、进一步优选为50°C以下。另外,从粗离聚物树脂组合物的溶液流动性的观点出发,前述温度更优选为25°C以上、进一步优选为30°C以上。

[0143] 作为向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加的不良溶剂,只要是与粗离聚物树脂组合物的溶液混合且离聚物树脂不发生溶解的溶剂就没有特别限定,可列举出例如甲醇、乙醇、1-丙醇、2-丙醇、1-丁醇等醇类;水;丙酮、甲乙酮等酮类;乙酸甲酯、乙酸乙酯等酯类;二甲基醚、二乙基醚、四氢呋喃等醚类;正己烷、环己烷、庚烷等烃化合物等。它们可以单独使用,也可以组合使用2种以上。这些之中,从因沸点低而容易将离聚物树脂干燥且容易去除粒状树脂中的副产盐的观点出发,前述不良溶剂优选为甲醇、2-丙醇等醇类、水和它们的混合溶剂,更优选为甲醇等醇类。

[0144] 不良溶剂的添加量可以根据粗离聚物树脂组合物的溶液浓度进行适当选择。例如,不良溶剂的添加量相对于粗离聚物树脂组合物的溶液100质量份优选为30质量份以上、更优选为60质量份以上、特别优选为100质量份以上。不良溶剂的添加量的上限值没有特别限定,不良溶剂的添加量的上限值相对于粗离聚物树脂组合物的溶液100质量份通常为1000质量份以下。

[0145] 向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加不良溶剂的方法没有特别限定,例如,可以向粗离聚物树脂组合物的溶液中一并添加不良溶剂,也可以通过滴加等分多次来添加。粒状树脂组合物的粒径容易变小,由此,容易提高所副产的盐的去除性,其结果,容易提高由所得离聚物树脂组合物形成的树脂片的透明性,从该观点出发,不良溶剂的添加优选在较短时间内进行,更优选一并添加。在分多次添加不良溶剂的情况下,不良溶剂的添加优选在1小时以内、更优选在30分钟以内、进一步优选在10分钟以内完成。

[0146] 优选的是:在向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加不良溶剂后,将粗离聚物树脂组合物的溶液与不良溶剂的混合液进行搅拌。搅拌速度没有特别限定,搅拌速度越快,则越容易获得粒径小的粒状颗粒。搅拌时间没有特别限定,例如,只要搅拌至粒状树脂组合物发生析出从而粗离聚物树脂组合物的溶液与不良溶剂的混合液呈现浆料状为止即可,具体而言,优选为1秒钟以上且3小时以下、更优选为10秒钟以上且1小时以下、进一步优选为1分钟以上且30分钟以下。

[0147] 从通过增大粒状树脂组合物的比表面积而容易去除粒状树脂组合物中的副产盐的观点出发,另外,从容易将所得离聚物树脂组合物中的成分Y的含量调整至0.01质量ppm以上且2000质量ppm以下的观点出发,向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加不良溶剂而使其析出的粒状树脂组合物的峰顶粒径为700 μm 以下、优选为650 μm 以下、更优选为600 μm 以

下、进一步优选为550 μm 以下。另外,从容易提高粒状树脂组合物的过滤性、容易提高离聚物树脂组合物的制造效率的观点出发,优选为50 μm 以上、更优选为70 μm 以上、优选为80 μm 以上。

[0148] 向粗离聚物树脂组合物的溶液中添加不良溶剂而使其析出的粒状树脂组合物的峰顶粒径可根据粗离聚物树脂组合物的溶液的浓度和温度来调整。具体而言,若降低粗离聚物树脂组合物的溶液的浓度和/或温度,则能够减小所析出的粒状树脂组合物的峰顶粒径,若提高粗离聚物树脂组合物的溶液的浓度和/或温度,则能够增大所析出的粒状树脂组合物的峰顶粒径。另外,粒状树脂组合物的峰顶粒径也可根据不良溶剂的添加方法以及粗离聚物树脂组合物的溶液与不良溶剂的混合液的搅拌速度来调整。

[0149] 作为清洗所析出的粒状树脂组合物的清洗液,只要是离聚物树脂或离聚物树脂组合物的不溶解的溶剂就没有特别限定。作为优选清洗液的例子,可列举出甲醇、乙醇、1-丙醇、2-异丙醇等醇类;水;丙酮、甲乙酮等酮类;乙酸甲酯、乙酸乙酯等酯类;二甲基醚、二乙基醚、四氢呋喃等醚类。它们可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0150] 这些清洗液之中,从容易去除副产盐的观点出发,优选为醇类、水和它们的混合液。进而,从通过使清洗液的比重小于粒状树脂组合物而增大清洗液与粒状树脂组合物的接触面积、由此容易提高副产盐的去除性的观点,容易将清洗后得到的离聚物树脂组合物中的成分Y的含量调整至上述范围内的观点,容易将清洗后得到的离聚物树脂组合物干燥的观点出发,更优选的清洗液为水与醇类的混合液。从容易干燥以及与水的相容性高的方面出发,醇类优选为甲醇、乙醇,更优选为甲醇。

[0151] 水与醇类的混合液中的水与醇类的比例(水/醇类(质量%))优选为20/80~80/20、更优选为30/70~70/30。

[0152] 作为用清洗液清洗粒状树脂组合物的方法的例子,可列举出下述方法:从析出有粒状树脂组合物的粒状树脂组合物的分散液中滤取粒状树脂组合物,将滤取的粒状树脂组合物与清洗液混合后,进行脱液。更具体而言,可列举出下述方法:将从前述粒状树脂组合物的分散液中滤取的粒状树脂组合物与清洗液混合后,从清洗液中滤取粒状树脂组合物(以下也称为清洗工序(a)),接着,将滤取的粒状树脂组合物与新清洗液混合后,从清洗液中滤取粒状树脂组合物(以下也称为清洗工序(b)),由此进行清洗。从容易去除粒状树脂组合物中包含的副产盐的观点和离聚物树脂的制造效率的观点出发,关于粒状树脂组合物的清洗,在间歇工艺的情况下,例如优选在1次清洗工序(a)后进行1~10次的清洗工序(b),1次清洗工序(a)后的清洗工序(b)的次数更优选为1~6次、进一步优选为1~4次。

[0153] 每1次清洗工序中的前述清洗液的用量可根据所清洗的粒状树脂组合物的量来适当选择。例如,每1次清洗工序中的前述清洗液的用量相对于干燥时的粒状树脂组合物的100质量份优选为100质量份~2000质量份、更优选为200质量份~1000质量份、进一步优选为300质量份~700质量份。

[0154] 通过用清洗液清洗粒状树脂组合物而得到的离聚物树脂组合物根据需要可以进行干燥。作为干燥温度,优选为离聚物树脂的熔点以下、更优选为80 $^{\circ}\text{C}$ 以下。

[0155] 为了提高保存、搬运或成形时的方便性,本发明的离聚物树脂组合物可以制成粒料等形态。在将离聚物树脂组合物制成粒料的情况下,可通过例如将利用熔融挤出法而得到的股线进行切割来获得。从容易使来自挤出机的排出稳定化的观点出发,利用熔融挤出

法进行粒料化时的熔融挤出时的离聚物树脂组合物的温度优选为150°C以上、更优选为170°C以上。另外,从抑制离聚物树脂发生热分解而劣化的观点出发,前述温度优选为250°C以下、更优选为230°C以下。本发明中的离聚物树脂和离聚物树脂组合物的耐热分解性高,因此,在这样地利用熔融挤出法来制成粒料时,不易引起离聚物树脂发生热分解而产生黑色异物等问题。

[0156] (树脂片)

[0157] 本发明还包括包含本发明的离聚物树脂组合物而成的树脂片。本发明的树脂片具有1层以上的包含本发明的离聚物树脂组合物而成的层(以下也称为层(x))。

[0158] 本发明的树脂片可以仅由层(x)构成,也可以为包含至少1层层(x)的层叠体。作为前述层叠体,没有特别限定,可列举出例如包含2层以上的层(x)的层叠体、包含1层以上的层(x)和1层以上的其它层的层叠体等。在层(x)或其它层为多个层的情况下,构成各层的树脂或树脂组合物可以相同也可以不同。

[0159] 作为前述其它层,可例示出包含公知树脂的层。作为该树脂,可以使用例如聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚氨酯、聚四氟乙烯、丙烯酸类树脂、聚酰胺、聚缩醛、聚碳酸酯、聚酯之中的聚对苯二甲酸乙二醇酯、聚对苯二甲酸丁二醇酯、环状聚烯烃、聚苯硫醚、聚四氟乙烯、聚砜、聚醚砜、聚芳酯、液晶聚合物、聚酰亚胺、热塑性弹性体等。另外,其它层根据需要也可以含有1种以上的前述添加剂、以及增塑剂、抗粘连剂、颜料、染料、隔热材料(例如具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)、功能性无机化合物等添加剂。

[0160] 本发明的一个实施方式中,从将树脂片与基材进行热压接时的脱泡性优异的观点出发,本发明的树脂片优选在表面具有熔体破裂、压花等,利用现有公知的方法而具有凹凸结构。熔体破裂和压花的形状可以适当选择现有公知的形状。

[0161] 本发明的树脂片中的1个层(x)的厚度优选为0.1mm以上、更优选为0.2mm以上、进一步优选为0.3mm以上、特别优选为0.4mm以上,且优选为5mm以下、更优选为4mm以下、进一步优选为2mm以下、特别优选为1mm以下。在树脂片中的层(x)为多个层的情况下,树脂片中的多个层(x)的1层厚度可以相同也可以不同。

[0162] 本发明的树脂片的厚度优选为0.1mm以上、更优选为0.2mm以上、进一步优选为0.3mm以上、更进一步优选为0.4mm以上、尤其优选为0.5mm以上、尤其更优选为0.6mm以上、尤其进一步优选为0.7mm以上、特别优选为0.75mm以上,且优选为20mm以下、更优选为15mm以下、进一步优选为10mm以下、更进一步优选为5mm以下、尤其优选为4mm以下、尤其更优选为2mm以下、尤其进一步优选为1mm以下。

[0163] 树脂片的厚度使用现有公知的方法、例如接触式或非接触式的厚度计等来测定。树脂片可以是卷取成卷状的状态,也可以是1片1片的单片状态。

[0164] 本发明的树脂片具有优异的透明性。本发明的树脂片的雾度优选为2.0%以下、更优选为1.5%以下、进一步优选为1.0%以下。雾度越小则树脂片的透明性越高,因此,下限值没有特别限定,例如可以为0.01%。需要说明的是,树脂片的雾度例如使用雾度计并按照JIS K7136:2000进行测定。

[0165] 本发明的树脂片在缓冷时的透明性也优异。缓冷时的透明性可根据缓冷时的雾度(缓冷雾度)来评价。本发明的树脂片的缓冷雾度优选为5.0%以下、更优选为4.5%以下、进

一步优选为4.0%以下、更进一步优选为3.0%以下、特别优选为2.5%以下。雾度越小则树脂片的透明性越会提高,因此,下限值没有特别限定,例如可以为0.01%以上。缓冷雾度如下求出:制作具有树脂片作为中间膜的夹层玻璃,针对将该夹层玻璃加热至140°C后,以0.1°C/分钟的速度从140°C缓冷至23°C后的雾度,利用雾度计并按照JIS K7136:2000进行测定,例如,可利用实施例中记载的方法来求出。

[0166] 本发明的树脂片在高湿条件下也具有优异的透明性,树脂片在高湿条件下的透明性可根据该树脂片在吸水状态下的雾度(吸水雾度)来评价。本发明的树脂片的吸水雾度优选为9.0%以下、更优选为5.0%以下、进一步优选为3.0%以下。吸水雾度越小,则树脂片在吸水状态下的透明性越高,因此,下限值没有特别限定,例如可以为0.01%以上。需要说明的是,吸水雾度可如下测定:例如,将树脂片在浸渍于23°C离子交换水的状态下保持300小时,从离子交换水中取出,拭去附着于表面的水分,将由此得到的树脂片作为试验片,使用雾度计并按照JIS K7136:2000进行测定。

[0167] 本发明的树脂片的耐着色性优异,在成形加工时也不易发生着色。从容易提高耐着色性的观点出发,本发明的树脂片的黄色度(YI)优选为3.0以下、更优选为2.0以下、进一步优选为1.5以下、特别优选为1.0以下。黄色度(YI)越小则树脂片的耐着色性越会提高,因此,下限值没有特别限定,例如,可以为0以上。需要说明的是,黄色度(YI)可使用测色色差计并按照JIS Z8722进行测定,例如,可利用实施例中记载的方法进行测定。

[0168] 本发明的树脂片的耐蠕变性优异,因此,将本发明的树脂片用作夹层玻璃中间膜时,即便长时间使用其强度也不易降低,因此,容易确保安全性。树脂片的耐蠕变性可根据经过长时间后的松弛弹性模量(长时间松弛弹性模量)、例如在50°C下制作主曲线时的 2.6×10^6 秒后(约1个月后)的松弛弹性模量来评价。在本发明的一个实施方式中,从容易提高树脂片的耐蠕变性的观点出发,在50°C下制作主曲线时的 2.6×10^6 秒后(约1个月后)的松弛弹性模量优选为0.3MPa以上、更优选为0.4MPa以上、进一步优选为0.5MPa以上。另外,从树脂片的处理性的观点出发,前述松弛弹性模量可以为5.0MPa以下,优选为2.5以下。需要说明的是,上述松弛弹性模量可根据基准温度为50°C的合成曲线(称为主曲线)来求出,例如,可利用实施例中记载的方法来求出,所述主曲线是将树脂片在23°C、50%RH的气氛下静置1星期以上后,使用动态粘弹性测定装置并根据动态粘弹性测定和时间-温度换算法则而得到的。

[0169] 本发明的树脂片在高温环境下的自立性优异。高温环境下的自立性可利用50°C下的储能模量来评价。从容易表现出高温环境下(例如50°C左右)的优异自立性的观点出发,本发明的树脂片的前述储能模量优选为20MPa以上、更优选为30MPa以上、进一步优选为40MPa以上、特别优选为50MPa以上。前述储能模量的上限值没有特别限定,可以为1000MPa。需要说明的是,树脂片在50°C下的储能模量(E')可利用动态粘弹性测定来测定。

[0170] 在制造夹层玻璃时不易发泡的观点出发,本发明的树脂片优选含水量少。树脂片的含水量优选为1质量%以下、更优选为0.5质量%以下、进一步优选为0.02质量%以下、特别优选为0.01质量%以下。前述含量可利用电量滴定法来测定。

[0171] 本发明的一个实施方式中,从容易提高所得树脂片的透明性、耐着色性和耐蠕变性的观点出发,本发明的树脂片中包含的本发明的离聚物树脂组合物的含量相对于该树脂片的质量优选为90质量%以上、更优选为93质量%以上、进一步优选为95质量%以上、更进

一步优选为98质量%以上,且优选为100质量%以下。

[0172] (树脂片的制造方法)

[0173] 本发明的树脂片的制造方法没有特别限定。例如,在将本发明的离聚物树脂组合物均匀混炼后,可利用挤出法、压延法、加压法、溶液流延法、熔融流延法、吹胀法等公知的制膜方法来制造层(x)。层(x)可以单独用作树脂片。另外,根据需要可以通过加压成形等使2层以上的层(x)或者1层以上的层(x)与1层以上的其它层进行层叠而制成层叠树脂片,也可以通过共挤出法将2层以上的层(x)或者1层以上的层(x)与1层以上的其它层进行成形而制成层叠树脂片。在层(x)或其它层为多个层的情况下,构成各层的树脂组合物可以相同也可以不同。

[0174] 在公知的制膜方法之中,适合采取使用挤出机来制造树脂片的方法。从容易使来自挤出机的树脂排出稳定化、容易降低机械故障的观点出发,挤出时的树脂温度优选为150℃以上、更优选为170℃以上。从容易降低树脂的分解以及与分解相伴的树脂劣化的观点出发,挤出时的树脂温度优选为250℃以下、更优选为230℃以下。另外,为了高效去除挥发性物质,优选通过减压从挤出机的通风口去除挥发性物质。

[0175] (夹层玻璃中间膜和夹层玻璃)

[0176] 本发明的树脂片可适合地用作夹层玻璃中间膜(也简称为中间膜)。因此,本发明包括包含本发明树脂片的夹层玻璃中间膜。另外,本发明还包括具有两个玻璃板和配置在该两个玻璃板之间的本发明的夹层玻璃中间膜的夹层玻璃。本发明的夹层玻璃具有包含前述树脂片的夹层玻璃中间膜,因此,可以具有优异的透明性。

[0177] 作为与本发明的中间膜层叠的玻璃板,例如除浮法平板玻璃、抛光平板玻璃、压花玻璃、夹丝平板玻璃、热射线吸收平板玻璃等无机玻璃之外,还可以使用聚甲基丙烯酸甲酯、聚碳酸酯等现有公知的有机玻璃等。它们可以为无色或有色中的任一种。它们可以使用1种,也可以组合使用2种以上。另外,1片玻璃板的厚度优选为100mm以下,2片玻璃板的厚度可以相同也可以不同。

[0178] 将本发明的树脂片夹持于2片玻璃而成的夹层玻璃可利用现有公知的方法来制造。可列举出例如使用真空层压机装置的方法、使用真空袋的方法、使用真空环的方法、使用轧辊的方法等。另外,还可列举出在利用上述方法进行临时压接后,投入至高压釜并进行主粘接的方法。

[0179] 在使用真空层压机装置的情况下,通过在例如 $1 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-1}$ MPa的减压下且在60~200℃、尤其在80~160℃下将玻璃板、中间膜和任选层(例如粘接性树脂层等)进行层压,从而能够制造夹层玻璃。使用真空袋或真空环的方法记载于例如欧州专利第1235683号说明书,可通过在约 $2 \times 10^{-2} \sim 3 \times 10^{-2}$ MPa左右的压力下且在100~160℃下将玻璃板、中间膜和任选层进行层压来制造夹层玻璃。

[0180] 作为使用轧辊的制造方法的例子,可列举出下述方法:将玻璃板、中间膜和任选层进行层叠,在中间膜的流动起始温度以下的温度下利用辊进行脱气后,进而,在接近流动起始温度的温度下进行压接。具体而言,可列举出例如在利用红外线加热器等加热至30~70℃后,利用辊进行脱气,进而在加热至50~120℃后,利用辊使其压接。

[0181] 在使用上述方法使其压接后,投入至高压釜并进一步进行压接时,高压釜工序的运转条件可根据夹层玻璃的厚度、构成来适当选择,例如优选在0.5~1.5MPa的压力下且在

100~160°C下处理0.5~3小时。

[0182] 本发明的离聚物树脂组合物和由该树脂组合物得到的树脂片具有高透明性以及对于玻璃的高粘接性,因此,本发明的夹层玻璃的透明性优异。在本发明的一个实施方式中,本发明的夹层玻璃的雾度优选为1.0%以下、更优选为0.8%以下、进一步优选为0.5%以下。雾度越小则夹层玻璃的透明性越高,因此,下限值没有特别限定,例如可以为0.01%。需要说明的是,夹层玻璃的雾度使用雾度计并按照JIS K7136:2000进行测定。

[0183] 本发明的夹层玻璃在缓冷时的透明性也优异。缓冷时的透明性可根据缓冷时的雾度(缓冷雾度)来评价。本发明的夹层玻璃的缓冷雾度优选为5.0%以下、更优选为4.5%以下、进一步优选为4.0%以下、更进一步优选为3.0%以下、特别优选为2.5%以下。雾度越小则夹层玻璃的透明性越高,因此,下限值没有特别限定,例如可以为0.01%以上。夹层玻璃的缓冷雾度可如下求出:针对将夹层玻璃加热至140°C后,以0.1°C/分钟的速度从140°C缓冷至23°C后的雾度,使用雾度计并按照JIS K7136:2000进行测定,例如,可利用实施例中记载的方法来求出。

[0184] 本发明的夹层玻璃的着色少,优选尽可能无色。本发明的夹层玻璃的黄色度(YI)优选为3.0以下、更优选为2.0以下、进一步优选为1.5以下、特别优选为1.0以下,且优选为0以上。需要说明的是,黄色度(YI)可使用测色色差计并按照JIS Z8722进行测定。

[0185] 如上所述那样,包含本发明的离聚物树脂组合物而成的树脂片作为夹层玻璃中间膜是有用的。从对于玻璃等基材的粘接性、透明性、耐着色性、耐蠕变性、自立性优异的观点出发,该夹层玻璃中间膜特别优选作为结构材料用(正面用)夹层玻璃的中间膜。另外,不限于结构材料用夹层玻璃的中间膜,也适合作为汽车用前挡风玻璃、汽车用侧面玻璃、汽车用顶棚、汽车用后视镜玻璃、平视显示器用玻璃、其它汽车等移动体、用于外壁和屋顶的层压体、面板、门、窗、墙壁、屋顶、顶棚、隔音墙、显示窗、阳台、栏杆壁等建筑物、会议室的格挡玻璃构件、太阳能电池等各种用途中的夹层玻璃用中间膜,但不限于这些用途。

[0186] 实施例

[0187] 以下,通过实施例和比较例来具体说明本发明,但本发明不限于下述实施例。

[0188] (原料树脂和离聚物树脂的单体单元的含量)

[0189] (原料树脂)

[0190] 使在实施例和比较例中用作原料的乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物溶解于氘代甲苯或氘代THF,利用¹H-NMR(400MHz、日本电子公司制)对组成进行定量。

[0191] (离聚物树脂)

[0192] 针对实施例和比较例中得到的离聚物树脂,如下那样操作,进行该离聚物树脂中的(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)、乙烯单元(C)和(甲基)丙烯酸酯单元(D)的含量分析。

[0193] 将实施例和比较例中得到的离聚物树脂分别溶解于脱水甲苯/脱水乙酸(75/25质量%)的混合溶剂,在100°C下使其反应2小时后,使其在丙酮/水(80/20质量%)的混合溶剂中发生再沉淀,由此将(甲基)丙烯酸中和物单元(B)转化成(甲基)丙烯酸单元(A)。将所得树脂用充分水清洗后,进行干燥,针对干燥树脂,进行下述(1)~(3)。

[0194] (1)通过热分解GC-MS来分析构成树脂的单体单元的成分。

[0195] (2)按照JIS K0070-1992来测定树脂的酸值。

[0196] (3) 使用氘代甲苯与氘代甲醇的混合溶剂,进行树脂的¹H-NMR (400MHz、日本电子公司制)测定。

[0197] (4) 另外,对实施例和比较例中得到的离聚物树脂分别实施基于硝酸的微波分解前处理后,利用ICP发光分析(Thermo Fisher Scientific公司制、“iCAP6500Duo”),鉴定(甲基)丙烯酸中和物单元(B)的金属离子的种类和量。

[0198] 根据上述(1)来鉴定(甲基)丙烯酸酯单元(D)和(甲基)丙烯酸单元(A)的种类和结构。根据该信息以及上述(2)和(3)的信息,计算乙烯单元(C)/(甲基)丙烯酸酯单元(D)/((甲基)丙烯酸单元(A)与(甲基)丙烯酸中和物单元(B)的合计)的比率。进而,根据上述(4)的信息来计算乙烯单元(C)/(甲基)丙烯酸酯单元(D)/(甲基)丙烯酸单元(A)/(甲基)丙烯酸中和物单元(B)的比率。

[0199] (离聚物树脂组合物中的成分Y的含量)

[0200] (具有羟基或酰胺基的有机化合物及其改性物的含量)

[0201] 向通过实施例和比较例而得到的离聚物树脂组合物100g中添加甲苯/正丁醇/丙二醇(75/15/10体积%)的混合溶剂900g,在100°C下加热搅拌2小时后,使其在甲醇1000g中发生再沉淀。使用旋转蒸发器,在80°C下从所得滤液中完全去除溶剂。将所得浓缩物用甲醇稀释,利用气相色谱法对所得稀释液进行分析,根据所得峰面积比来进行树脂组合物中包含的各成分的定量。

[0202] (具有羟基或酰胺基的无机物质的含量)

[0203] 向通过实施例和比较例而得到的离聚物树脂组合物10g中添加脱水甲苯/脱水乙酸(75/25质量%)的混合溶剂990g,在100°C下使其反应2小时。其后,使用膜滤器(孔径为0.45μm)对反应液进行加压过滤,将滤取的固体成分在60°C下真空干燥8小时以上,去除含有溶剂。根据所得干燥固体分量,对无机物质进行定量。

[0204] (无机物质的平均粒径)

[0205] 关于具有羟基和/或酰胺基的无机物质的平均粒径,使用激光衍射/散射式粒径分布测定装置(株式会社堀场制作所制、商品名:LA-950),测定所析出的粒状树脂的粒径分布。对横轴标绘粒径(μm),对纵轴标绘频率(%),将根据由此得到的图得到的模式体系(众数粒径)作为平均粒径。

[0206] (缓冷时的透明性(缓冷雾度))

[0207] 将通过实施例和比较例而得到的树脂片夹持于厚度2.7mm的2片浮法玻璃,使用真空层压机(NISSHINBO MECHATRONICS公司制、1522N),在100°C下在真空层压机内减压1分钟,在保持减压度和温度的同时以30kPa加压5分钟,得到临时粘接体。将所得临时粘接体投入至高压釜中,在140°C、1.2MPa下处理30分钟,得到尺寸为30cm见方的夹层玻璃。

[0208] 将利用上述方法而得到的夹层玻璃加热至140°C后,以0.1°C/分钟的速度缓冷至23°C。使用雾度计HZ-1(Suga Test Instruments公司制),按照JIS K7136:2000来测定缓冷操作后的夹层玻璃的雾度。

[0209] (耐着色性(YI))

[0210] 使用日本电色工业公司制的测色色差计“ZE-2000”(商品名),按照JIS Z8722来测定实施例和比较例中得到的树脂片。将根据所得值并按照JIS K7373而算出的黄色度的值设为黄色指数(YI)。

[0211] (耐蠕变性)

[0212] 将实施例和比较例中得到的树脂片在23°C、50%RH的气氛下静置1星期以上后,切出纵40mm×横5mm的试验片,使用UBM公司制的动态粘弹性测定装置,根据动态粘弹性测定和时间-温度换算法则得到基准温度为50°C的合成曲线(主曲线),根据该曲线来求出长时间松弛弹性模量,将其值作为耐蠕变性的指标。

[0213] 动态粘弹性测定按照基于JIS K 0129:2005的方法,在温度为50~100°C、频率为0.1、0.5、1、5、10、50、100Hz的条件下进行拉伸测定,根据所得储能模量的测定结果,使用温度时间换算法则,将基准温度设为50°C来制作主曲线,读取频率为 4.0×10^{-7} Hz时的储能模量($E'(t_1)$)和频率为 2.0×10^{-7} Hz时的损耗弹性模量($E''(t_2)$),将泊松比固定为0.5,利用下述式(A)来求出50°C、 2.6×10^6 秒后的松弛弹性模量 $G(t)$ 。

[0214] $G(t) = E'(t_1)/3 - 0.4 \times E''(t_2)/3 \dots (A)$

[0215] 需要说明的是,这一系列计算使用UBM公司制的动态粘弹性测定装置所附带的计算软件“RheoStation”(UBM公司)来进行。

[0216] (原料树脂)

[0217] 在实施例和比较例中,将作为离聚物树脂的原料而使用的各乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物(X)的甲基丙烯酸甲酯(MMA)改性量或丙烯酸乙酯(EA)改性量和熔体流动速率(MFR)示于表1。

[0218] 例如,作为EMMA1,可以使用住友化学公司制的“ACRYFT”(注册商标)WH401F,作为EEA1,可以使用日本聚乙烯公司制的“Rexpear1”(注册商标)A4250。需要说明的是,实施例和比较例中使用的原料树脂的MFR的测定如下进行:将各树脂在料筒内进行熔融,在190°C、2.16kg的载荷条件下,从设置于料筒底部的标称孔径为2.095mm的模具挤出,测定每10分钟挤出的树脂量(g/10分钟)。

[0219] [表1]

	MMA 或 EA 改性量		MFR
	质量%	摩尔%	g/10 分钟
EMMA1	20	6.5	20
EMMA2	25	8.5	7
EMMA3	25	8.5	150
EMMA4	18	5.8	7
EEA1	25	8.5	5

[0221] (实施例1)

[0222] (离聚物树脂组合物)

[0223] 向反应槽中导入100质量份的表1中的EMMA2,向其中添加甲苯233质量份和3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛0.002质量份,在0.02MPa的加压下以60°C进行搅拌,使EMMA2溶解。向所得溶液中添加氢氧化钠的甲醇溶液(20质量%)100质量份,在100°C下搅拌4小时,将

EMMA2皂化,将甲基丙烯酸甲酯单元的一部分转化成甲基丙烯酸钠单元。接着,将该溶液冷却至50°C后,向反应液中添加盐酸(20质量%) 83质量份,在50°C下搅拌1小时,将甲基丙烯酸钠单元的一部分转化成甲基丙烯酸,得到包含粗离聚物树脂和3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛的粗离聚物树脂组合物的溶液。

[0224] 向所得溶液中以粗离聚物树脂浓度成为10质量%的方式添加甲苯/甲醇(75/25质量%)的混合溶剂,将该溶液稀释。接着,将所得粗离聚物树脂组合物的稀释溶液调整至34°C后,向前述稀释溶液中添加相对于粗离聚物树脂组合物的溶液100质量份为430质量份的34°C甲醇,使粒状树脂组合物发生析出。接着,将所得粒状树脂组合物滤取后,将滤取的粒状树脂组合物100质量份与水/甲醇(50/50质量%)的混合溶剂600质量份混合。将通过前述混合而得到的浆料在40°C下搅拌1小时,其后,在室温下滤取粒状树脂组合物。利用水/甲醇的混合溶剂进一步进行3次粒状树脂组合物的清洗,得到经清洗的粒状离聚物树脂组合物。将所得粒状离聚物树脂组合物真空干燥8小时以上后,使用间歇式熔融混炼机,在210°C、转速90rpm、3分钟的条件下进行熔融混炼,得到离聚物树脂组合物。

[0225] (树脂片)

[0226] 将所得离聚物树脂组合物的熔融混炼物在210°C的加热下、4.9MPa(50kgf/cm²)的压力下压缩成形5分钟,得到厚度为0.8mm的树脂片。

[0227] (实施例2)

[0228] 使用EMMA3来代替EMMA2,添加硬脂酸酰胺0.005质量份来代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0229] (实施例3)

[0230] 使用EMMA3来代替EMMA2,添加平均粒径为0.04 μ m的二氧化硅(日本AEROSIL公司制的AEROSIL200)0.02质量份来代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0231] (实施例4)

[0232] 使用EMMA3来代替EMMA2,代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,不在使EMMA3发生溶解的工序(溶解工序)中添加,而是在刚刚添加氢氧化钠的甲醇溶液(20质量%)100质量份后(皂化工序)添加6-叔丁基-2,4-二甲苯酚0.003质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0233] (实施例5)

[0234] 使用EEA1来代替EMMA2,不在溶解工序中添加,而是在刚刚添加盐酸(20质量%)83质量份后(脱金属工序)添加3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛0.004质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0235] (实施例6)

[0236] 使用EMMA1来代替EMMA2,添加2,6-二叔丁基对甲酚0.008质量份来代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,将氢氧化钠的甲醇溶液(20质量%)的添加量变更为80质量份,将盐酸(20质量%)的添加量变更为66质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0237] (实施例7)

[0238] 使用EMMA3来代替EMMA2,添加亚乙基双硬脂酸酰胺0.02质量份来代替3,5-二叔丁

基-4-羟基苯甲醛,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0239] (实施例8)

[0240] 使用EMMA3来代替EMMA2,代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,不在溶解工序中添加,而是在脱金属工序中添加3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-芪醌0.0003质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0241] (实施例9)

[0242] 使用EMMA3来代替EMMA2,代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,不在溶解工序中添加,而是在脱金属工序中添加1,4-苯醌0.0005质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0243] (实施例10)

[0244] 使用EMMA3来代替EMMA2,代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,不在溶解工序中添加,而是在脱金属工序中添加3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-联苯醌0.0002质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0245] (比较例1)

[0246] 不添加2,6-二叔丁基-对甲酚,除此之外,与实施例6同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0247] (比较例2)

[0248] 将3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛的添加量设为0.35质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0249] (比较例3)

[0250] 代替6-叔丁基-2,4-二甲苯酚,在刚刚添加氢氧化钠的甲醇溶液(20质量%)100质量份后添加4-甲氧基苯酚0.4质量份,除此之外,与实施例4同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0251] (比较例4)

[0252] 使用EMMA4来代替EMMA2,添加平均粒径为0.1 μm 的滑石0.008质量份来代替3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛,将氢氧化钠的甲醇溶液(20质量%)的添加量变更为72质量份,将盐酸(20质量%)的添加量变更为59质量份,除此之外,与实施例1同样操作,得到离聚物树脂组合物和树脂片。

[0253] 按照上述方法,评价实施例和比较例中得到的树脂片在缓冷时的透明性、耐着色性和耐蠕变性。将其结果示于表2。另外,按照上述方法,分析实施例和比较例中得到的离聚物树脂组合物。将其结果示于表2。表2中的单元(A)、单元(B)和单元(C)分别表示(甲基)丙烯酸单元(A)、(甲基)丙烯酸中和物单元(B)和(甲基)丙烯酸酯单元(D),各单元的含量以构成离聚物树脂的全部结构单元作为基准。

[0254] [表1]

[0255]

	制造方法				高聚物树脂组合物						评价结果		
	原料树脂	添加工序	成分Y		高聚物树脂						透明性 缓冷雾度	耐着色性 YI	耐蠕变性 长时间松弛弹性模量
			种类*	添加量 质量份	高聚物树脂的组成 (各单元的含量)								
					单元(A) mol%	单元(B) mol%	单元(D) mol%	(A)+(B)+(D) mol%		成分Y 含量 质量 ppm			
实施例1	EMMA2	溶解	A	0.002	6.7	1.7	0.1	8.5	A		9	1.0	0.4
实施例2	EMMA3	溶解	B	0.005	6.7	1.7	0.1	8.5	B	30	1.2	0.3	0.48
实施例3	EMMA3	溶解	C	0.020	6.7	1.7	0.1	8.5	C	90	0.9	0.5	0.35
实施例4	EMMA3	皂化	D	0.003	6.7	1.7	0.1	8.5	D	15	1.5	0.5	0.51
实施例5	EEA1	脱金属	A	0.004	6.7	1.7	0.1	8.5	A	26	1.3	0.6	1.2
实施例6	EMMA1	溶解	E	0.008	5.0	1.3	0.2	6.5	E	53	2.7	0.3	1.0
实施例7	EMMA3	溶解	F	0.020	6.7	1.7	0.1	8.5	F	80	1.1	0.2	0.65
实施例8	EMMA3	脱金属	G	0.0003	6.7	1.7	0.1	8.5	G	1	1.3	0.3	0.44
实施例9	EMMA3	脱金属	H	0.0005	6.7	1.7	0.1	8.5	H	3	1.4	0.3	0.45
实施例10	EMMA3	脱金属	I	0.0002	6.7	1.7	0.1	8.5	I	1	1.2	0.3	0.46
比较例1	EMMA1	-	-	-	5.0	1.3	0.2	6.5	-	0	5.3	0.3	1.1
比较例2	EMMA2	溶解	A	0.350	6.7	1.7	0.1	8.5	A	2100	0.9	2.5	0.20
比较例3	EMMA3	皂化	J	0.400	6.7	1.7	0.1	8.5	J	2400	0.8	3.1	0.16
比较例4	EMMA4	溶解	K	0.008	4.5	1.2	0.1	5.8	K	60	7.5	0.3	1.3

*A: 3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲醛
 B: 硬脂酸酐
 C: 二氧化硅
 D: 6-叔丁基-2,4-二甲苯酚
 E: 2,6-二叔丁基对甲酚
 F: 亚乙基双硬脂酸酐
 G: 3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-芪醌
 H: 1,4-苯醌
 I: 3,3',5,5'-四叔丁基-4,4'-联苯醌
 J: 4-甲氧基苯酚
 K: 滑石

[0256] 如表2所示那样,可确认:由实施例中得到的离聚物树脂组合物形成的树脂片与由比较例中得到的离聚物树脂组合物形成的树脂片相比,熔融混炼后的着色少,缓冷时的透

明性优异,耐蠕变性优异。因此,本发明的离聚物树脂组合合物能够形成透明性、耐着色性和耐蠕变性优异的树脂片。