



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I855211 B

(45)公告日：中華民國 113 (2024) 年 09 月 11 日

(21)申請案號：110100567

(22)申請日：中華民國 110 (2021) 年 01 月 07 日

(51)Int. Cl. : C08L29/14 (2006.01)

C08F8/28 (2006.01)

B32B17/10 (2006.01)

(30)優先權：2020/01/15 日本

2020-004421

(71)申請人：日商可樂麗股份有限公司(日本) KURARAY CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：新村卓郎 NIIMURA, TAKURO (JP)；高杉晃央 TAKASUGI, AKIO (JP)；中原淳裕 NAKAHARA, ATSUHIRO (JP)；淺沼芳聰 ASANUMA, YOSHIAKI (JP)

(74)代理人：王彥評；賴碧宏

(56)參考文獻：

CN 110494283A

JP 2011-57737A

JP 2014-189681A

審查人員：吳志明

申請專利範圍項數：6 項 圖式數：1 共 47 頁

(54)名稱

樹脂組成物、樹脂片及層合玻璃

(57)摘要

本發明係關於一種樹脂組成物，其係包含：以構成樹脂之所有單體單元為基準，包含 20 ~ 80 莫耳%之乙烯單元、及 4 ~ 76 莫耳%之乙烯醇單元，縮醛化度為 5 ~ 80 莫耳%之改性乙烯縮醛樹脂；以及強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之樹脂組成物；相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之合計含量為 0.0005 ~ 0.06 質量份。



公告本

I855211

【發明摘要】

【中文發明名稱】

樹脂組成物、樹脂片及層合玻璃

【中文】

本發明係關於一種樹脂組成物，其係包含：以構成樹脂之所有單體單元為基準，包含 20~80 莫耳%之乙烯單元、及 4~76 莫耳%之乙烯醇單元，縮醛化度為 5~80 莫耳%之改性乙烯縮醛樹脂；以及強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之樹脂組成物；相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之合計含量為 0.0005~0.06 質量份。

【指定代表圖】

無。

【代表圖之符號簡單說明】

無。

【特徵化學式】

無。

【發明說明書】

【中文發明名稱】

樹脂組成物、樹脂片及層合玻璃

【技術領域】

【0001】本專利申請案係基於日本專利申請案第2020-004421號(申請日：2020年1月15日)主張巴黎公約之優先權者，並藉由引用至此，將其全部內容併入本說明書中。

本發明係關於樹脂組成物、由該樹脂組成物構成之樹脂片、及將該樹脂片使用作為中間膜而成之層合玻璃。

【先前技術】

【0002】層合玻璃即使受到外部衝擊而破損，玻璃的碎片飛散少且安全，因此作為汽車等車輛的擋風玻璃、側窗玻璃、後窗玻璃、或航空器、建築物等的窗玻璃等廣泛使用。

【0003】作為用於層合玻璃的層合玻璃用中間膜，大多使用乙烯縮丁醛樹脂，一般為摻合液狀塑化劑、接著力調整劑，而調整成形加工性、耐貫通性或對於玻璃之接著性者。藉由液狀塑化劑的摻合，乙烯縮丁醛樹脂軟化，且耐熱性顯著降低。又，在減少液狀塑化劑的摻合量、或未摻合而使用的情況下，雖然耐熱性提升，但成形加工性降低，因此需要提升成形溫度。其結果，得到的板狀成形體係顯著地進行了著色。

【0004】專利文獻 1 係記載一種層合玻璃，其係使

熱硬化性樹脂介於玻璃板之間而一體化，並將此樹脂層熱硬化而成，其中熱硬化性樹脂係於使乙烯-甲基丙烯酸共聚物的分子間以金屬離子鍵結的離子聚合物樹脂中，摻合有機過氧化物及矽烷偶合劑而成(請求項 1)。其係說明此層合玻璃為使用聚乙烯縮丁醛系樹脂作為中間層之改良以往的層合玻璃之耐衝擊性、耐貫通性者，且耐衝擊性、耐貫通性、加工性及透明性優異(段落 0015)

【0005】專利文獻 2 及 3 中記載將經藉由 α -烯烴改性之乙烯縮醛系聚合物使用於層合玻璃之中間膜。

【0006】專利文獻 4 中記載一種改性聚乙烯縮醛樹脂，其中乙烯醇單元為 17~30 莫耳%、縮醛單元為 40~80 莫耳%、乙酸乙烯酯單元為 0.1~25 莫耳%、乙烯單元為 0.5~20 莫耳%、聚乙烯酯單元及/或丙烯醯胺單元為 0.1~15 莫耳%。其係說明此樹脂之接著性、斷線性優異，可利用作為積層電子零件用黏結劑樹脂。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0007】

[專利文獻 1] 特開平 9-30846 號公報

[專利文獻 2] 特開昭 63-79741 號公報

[專利文獻 3] 特開 2004-68013 號公報

[專利文獻 4] 特開 2012-107201 號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0008】然而，專利文獻 1 中記載之離子聚合物樹脂沒有嚴格地調節成形時之溫度條件的話，容易產生白化或接著不良，特別是在熔融成形後冷卻的速度降低的情況下有容易白化的問題。例如，將夾持離子聚合物樹脂的板狀成形體的層合玻璃冷卻的情況下，在冷卻速度慢的中央部中產生白化，且透明性降低。如此一來，使用離子聚合物樹脂的層合玻璃係製造條件的管理嚴格，製造成本高，且工業上量產困難。

【0009】又，專利文獻 2 及 3 中，有需要大量使用塑化劑等，其並未考量且未改善先前指摘的問題點。

【0010】此外，專利文獻 4 中雖記載了可藉由通過酸的縮醛化反應後，藉由鹼將反應生成物中和而製作所記載的改性乙烯縮醛樹脂，但未明白的揭示用以實現高透明性的合適組成及金屬鹽的含量。

【0011】因此，本發明之目的在於提供一種樹脂組成物，其均衡良好地兼具透明性、耐熱性、成形性、及耐水性，特別是透明性優異。

本發明的另一目的是提供一種透明性、耐熱性、成形性、及耐水性優異的層合玻璃用中間膜。

[用以解決課題之手段]

【0012】本發明者為了解決上述課題專心研討的結果發現藉由以特定比例含有改性乙烯縮醛樹脂與強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之樹脂組成物可解決上述課題，進而完成本發明，其中該改性乙烯縮醛樹脂係以特定範圍具有乙烯單元、乙烯醇單元、及縮醛化度。

【0013】亦即，本發明係提供以下之[1]~[6]者。

[1]一種樹脂組成物，其係包含：以構成樹脂之所有單體單元為基準，包含 20~80 莫耳%之乙烯單元、及 4~76 莫耳%之乙烯醇單元，縮醛化度為 5~80 莫耳%之改性乙烯縮醛樹脂；以及強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之樹脂組成物；其中相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之合計含量為 0.0005~0.06 質量份。

[2]如[1]記載之樹脂組成物，其中改性乙烯縮醛樹脂之含量為 80 質量%以上。

[3]如[1]或[2]記載之樹脂組成物，其中相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，塑化劑之含量為 1 質量份以下。

[4]一種樹脂片，其係由如[1]~[3]中任一項記載之樹脂組成物構成，厚度為 0.10~3.0mm。

[5]一種層合玻璃用中間膜，其係由如[4]記載之樹脂片構成。

[6]一種層合玻璃，其具有 2 個玻璃板，及配置於該 2 個玻璃板之間的如[5]記載之層合玻璃用中間膜。

[發明之效果]

【0014】本發明的樹脂組成物均衡良好地兼具透明性、耐熱性、成形性、耐水性。另外，本發明的樹脂組成物特別是透明性優異。

根據本發明，可提供一種透明性優異之層合玻璃用中間膜。

【圖式簡單說明】**【0015】**

圖 1 係顯示本發明中之縮醛化度(DA1)與縮醛化度(DA2)之關係的圖形。

【實施方式】

[用以實施發明的形態]

【0016】 以下，針對用以實施本發明之適當的形態進行說明。此外，以下所說明的實施形態為表示本發明之一例者，並非藉此狹義地解釋本發明的範圍。

【0017】

<樹脂組成物>

本發明的樹脂組成物包含改性乙烯縮醛樹脂、及強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽，其中相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之合計含量為 0.0005~0.06 質量份。

【0018】

[強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽]

本發明的樹脂組成物包含強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽(以下，也簡稱為「金屬鹽」)，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，其合計含量為 0.0005~0.06 質量份。本發明者們發現於樹脂組成物中相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份而言，以 0.0005~0.06 質量份的比例含有金屬鹽時，所得到的樹脂組成物均衡良好地兼具透明性、耐熱性、成形性及耐水性，特別是透明性優異。

【0019】另一方面，金屬鹽的合計含量於上述範圍外時，樹脂組成物無法均衡良好地兼具透明性、耐熱性、成形性及耐水性，特別是透明性降低的傾向。金屬鹽的合計含量相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份而言，小於 0.0005 質量份時，由於樹脂組成物之結晶性變高，故透明性容易受損，特別是在緩慢冷卻而促使該樹脂組成物的結晶化狀態下的透明性(緩慢冷卻後之透明性)容易降低。又，前述合計含量超過 0.06 質量份時，耐水性容易受損，吸水後之樹脂組成物的透明性容易降低。

【0020】從容易提升透明性，特別是緩慢冷卻後之透明性的觀點來看，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份而言，前述金屬鹽的合計含量為 0.0005 質量份以上，較佳為 0.001 質量份以上，更佳為 0.002 質量份以上，進一步較佳為 0.01 質量份以上，特佳為 0.02 質量份以上。又，從容易提升耐水性，吸水後的透明性的觀點來看，為 0.06 質量份以下，較佳為 0.05 質量份以下，更佳為 0.04 質量份以下。

【0021】本發明的樹脂組成物中所含之強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽的含量可依以下之次序求得。

使用微波分解裝置進行前處理後，藉由感應偶合電漿光發射光譜法(inductively coupled plasma optical emission spectrometry)測定樹脂組成物中之鹼金屬或鹼土類金屬含量。接著，可以從金屬含量、及與金屬陽離子成對之陰離子種類之原子量或分子量，求得樹脂組成

物中之金屬鹽的含量。詳細記載於實施例中。

【0022】使樹脂組成物含有金屬鹽的方法並沒有特別限制，例如：藉由後述之方法製造樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂，並於製造步驟中藉由中和生成並含有金屬鹽。

又，調整樹脂組成物中所含之金屬鹽的含量的方法並沒有特別限制，其可藉由將中和後之改性乙烯縮醛樹脂洗淨的步驟來進行調整，例如，可以以下之順序調整。

首先，將中和後之改性乙烯縮醛樹脂溶解於甲醇中，接著，將甲醇溶液滴至離子交換水中，使樹脂析出。過濾析出之樹脂後，進行水洗。以改變此析出・水洗的次數、時間・溫度，可將改性乙烯縮醛樹脂中之金屬鹽的量調整至特定的範圍。

【0023】本發明的樹脂組成物，除了改性乙烯縮醛樹脂外，還含有強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽。作為強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽，可列舉例如：氯化鈉、硝酸鈉、硫酸鈉、氯化鉀、硝酸鉀、硫酸鉀、氯化鎂、硝酸鎂、硫酸鎂、氯化鈣、硝酸鈣、硫酸鈣等。前述金屬鹽可為單獨被使用，亦可併用 2 種以上。樹脂組成物包含強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽，藉此可容易得到均衡良好地兼具透明性、耐熱性、成形性、耐水性，且與玻璃之接著性優異的樹脂組成物。

【0024】

〔改性乙烯縮醛樹脂〕

以構成樹脂之所有單體單元為基準，本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂包含 20~80 莫耳%之乙烯單元、及 4~76 莫耳%之乙烯醇單元，縮醛化度為 5~80 莫耳%。此外，本發明中，所謂的改性乙烯縮醛樹脂係意指將乙烯-乙烯醇共聚物縮醛化而得之乙烯-乙烯醇共聚物的縮醛化物。

【0025】以構成樹脂之所有單體單元為基準，前述乙烯單元的含量為 20~80 莫耳%，較佳依序為 23 莫耳%以上、26 莫耳%以上、29 莫耳%以上、32 莫耳%以上，更佳為 35 莫耳%以上。乙烯單元的比例為上述之下限以上時，易於提高改性乙烯縮醛樹脂之耐衝擊性。另一方面，乙烯單元的比例小於 20 莫耳%時，改性乙烯縮醛樹脂之耐衝擊性容易降低。又，乙烯單元的含量較佳依序為 74 莫耳%以下、68 莫耳%以下、62 莫耳%以下、56 莫耳%以下，更佳為 50 莫耳%以下，進一步較佳為 45 莫耳%以下。乙烯單元的比例為上述之上限以下時，易於提高耐熱性。乙烯單元的比例超過 80 莫耳%時，耐熱性容易受損。

【0026】以構成樹脂之所有單體單元為基準，前述乙烯醇單元的含量為 4~76 莫耳%，較佳依序為 5 莫耳%以上、8 莫耳%以上、12 莫耳%以上、15 莫耳%以上，更佳為 20 莫耳%以上，進一步較佳為 30 莫耳%以上。乙烯醇單元的比例為上述之下限以上時，易於提高改性乙烯縮醛樹脂的玻璃接著性。另一方面，乙烯醇單元的比例小於 4 莫耳%時，改性乙烯縮醛樹脂之玻璃接著性

容易受損。又，乙烯醇單元的含量較佳依序為 75 莫耳%以下、73 莫耳%以下、71 莫耳%以下、69 莫耳%以下，更佳為 67 莫耳%以下。乙烯醇單元的比例為上述之上限以下時，易於提高透明性。乙烯醇單元的比例超過 76 莫耳%時，玻璃接著性雖然變高，但透明性容易惡化。

【0027】改性乙烯縮醛樹脂，除了前述乙烯單元及前述乙烯醇單元外，還包含經縮醛化之乙烯醇單元(以下，亦稱為「縮醛單元」)。此外，以構成本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的所有單體單元為基準之莫耳%，係以縮醛單元 1 莫耳換算成乙烯醇單元 2 莫耳計算。例如，由乙烯單元 44.0 莫耳、乙烯醇單元 44.8 莫耳及縮醛單元 5.6 莫耳構成之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯單元設為 44.0 莫耳%、乙烯醇單元設為 44.8 莫耳%、縮醛化度設為 20.0 莫耳%。

【0028】本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度為 5~80 莫耳%。縮醛化度較佳依序為 6 莫耳%以上、7 莫耳%以上、8 莫耳%以上、9 莫耳%以上，更佳為 10 莫耳%以上。縮醛化度為上述之下限以上時，可壓低改性乙烯縮醛樹脂之結晶性，而易於提高透明性。另一方面，縮醛化度小於 5 莫耳%時，由於改性乙烯縮醛樹脂結晶性變高，透明性容易惡化。又，縮醛化度較佳依序為 70 莫耳%以下、60 莫耳%以下、50 莫耳%以下、40 莫耳%以下，更佳為 35 莫耳%以下，進一步較佳為 30 莫耳%以下。縮醛化度為上述之上限以下時，易於提高耐熱性、玻璃接著性。另一方面，縮醛化

度超過 80 莫耳 % 時，耐熱性、玻璃接著性容易受損。

【0029】改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度一般而言有 2 個定義。一個定義為乙烯單元以外之構造單元中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。換言之，其係指例如：經縮醛化之乙烯醇單元、未縮醛化之乙烯醇單元、及乙酸乙烯酯單元的總和中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。縮醛化度係設定為未縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例 (l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例 (m)、及經縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例 (k) 時，藉由縮醛化度 (莫耳 %) = $\{ k / (k + l + m) \} \times 100$ 而求得。另一個定義為在亦包含乙烯單元的所有單體單元中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。換言之，係指例如：乙烯單元、經縮醛化之乙烯醇單元、未縮醛化之乙烯醇單元、及乙酸乙烯酯單元的總和中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。縮醛化度係設定為未縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例 (l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例 (m)、經縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例 (k)、及乙烯單元之莫耳比例 (n) 時，藉由縮醛化度 (莫耳 %) = $\{ k / (k + l + m + n) \} \times 100$ 而求得。

【0030】本發明中之縮醛化度定義為前述定義中之前者之乙烯單元以外之構造單元中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。另一方面，後者之縮醛化度係定義為前述定義中亦包含後者之乙烯單元的所有單體單元中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例。亦即，本申請案中之縮醛化度 (DA1)、與縮醛化度 (DA2) 之關係可表示成：使用乙烯單元之莫耳比例 (n)， $DA2 = \{ (100 - n) / 100 \}$

×DA1，例如： $n = 15、25、32、38、44、48、60$ 時之關係係如圖 1 所示。

【0031】本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度係可依以下順序求得。首先，使改性乙烯縮醛樹脂溶解於乙醇中，添加 2N 鹽酸脛胺溶液及鹽酸，於附有冷卻器之水浴中攪拌 4 小時，冷卻後添加氨水中和，接著添加甲醇使之沉澱，藉由進行洗淨、乾燥，得到乙烯乙醇共聚物。接著在 120°C 下使所得到的乙烯乙醇共聚物溶解於 DMSO 中，並冷卻至室溫下後，添加 N,N-二甲基-4-胺基吡啶及乙酸酐，攪拌反應 1 小時，之後，以離子交換水及丙酮使其沉澱，進行洗淨、乾燥，藉以得到乙烯乙酸乙烯酯共聚物。

【0032】將所得到的乙烯乙酸乙烯酯共聚物溶解於 DMSO-d₆(二甲亞砜)，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，由源自乙烯單元及乙酸乙烯酯單元的次甲基質子(1.1~1.9ppm 的波峰)、以及源自乙酸乙烯酯單元的末端甲基質子(2.0ppm 的波峰)之強度比，算出乙烯乙醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)。

【0033】相對於構成改性乙烯縮醛樹脂的全部單體單元之乙醇單元之莫耳比例(l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)及縮醛化的乙醇單元之莫耳比例(k)係將該改性乙烯縮醛樹脂溶解於 DMSO-d₆(二甲亞砜)，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，使用源自乙烯單元、乙醇單元及

乙烯酯單元的次甲基質子(1.0~1.8ppm 的波峰)、以及源自縮醛單元的末端甲基質子(0.8~1.0ppm 的波峰)之強度比與乙烯乙醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)算出。

【0034】 改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度係使用所求出的乙烯醇單元之莫耳比例(1)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)及縮醛化的乙烯醇單元之莫耳比例(k)，藉由縮醛化度(莫耳%)= $\{k/(k+1+m)\} \times 100$ 而求出。

【0035】 又，就其它方法而言，係在 120°C 下使縮醛化反應前之乙烯乙醇共聚物溶解於 DMSO 中，並冷卻至室溫下後，添加 N,N-二甲基-4-胺基吡啶及乙酸酐，攪拌反應 1 小時，之後，以離子交換水及丙酮使其沉澱，進行洗淨、乾燥，藉以得到乙烯乙酸乙烯酯共聚物。

【0036】 將所得到的乙烯乙酸乙烯酯共聚物溶解於 DMSO-d₆(二甲亞砜)，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，由源自乙烯單元及乙酸乙烯酯單元的次甲基質子(1.1~1.9ppm 的波峰)、以及源自乙酸乙烯酯單元的末端甲基質子(2.0ppm 的波峰)之強度比，算出乙烯乙醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)。此外，由於乙烯單元不會受到縮醛化反應之影響，故乙烯乙醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)係與縮醛化反應後所得到之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯單元之莫耳比例(n)相等。

【0037】 相對於構成改性乙烯縮醛樹脂的全部單體

單元之乙烯醇單元之莫耳比例(l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)及縮醛化的乙烯醇單元之莫耳比例(k)係將該改性乙烯縮醛樹脂溶解於 DMSO-d₆(二甲亞砜)，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，使用源自乙烯單元、乙烯醇單元及乙烯酯單元的次甲基質子(1.0~1.8ppm 的波峰)、以及源自縮醛單元的末端甲基質子(0.8~1.0ppm 的波峰)之強度比與乙烯乙醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)算出。

【0038】 改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度亦可使用所求出的乙烯醇單元之莫耳比例(l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)及縮醛化的乙烯醇單元之莫耳比例(k)，藉由縮醛化度(莫耳%)= $\{k/(k+l+m)\} \times 100$ 而求出。

【0039】 就另外的其它方法而言，根據 JIS K6728：1977 記載之方法，藉由滴定分別求得未縮醛化之乙烯醇單元的質量比例(l₀)、乙酸乙烯酯單元的質量比例(m₀)及經縮醛化之乙烯醇單元的質量比例(k₀)，並根據 $n_0 = 1 - l_0 - m_0 - k_0$ 求得乙烯單元的質量比例(n₀)，計算此等未縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例(l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)經縮醛化之乙烯醇單元之莫耳比例(k)，並藉由縮醛化度(莫耳%)= $\{k/(l+m+k)\} \times 100$ 而求出。

【0040】

〔改性乙烯縮醛樹脂之製造方法〕

本發明中之改性乙烯縮醛樹脂係可在酸性觸媒之存在下，使經共聚合乙烯的乙烯醇樹脂(以下稱為乙烯乙

烯醇共聚物)與醛進行縮醛化反應而製造。

【 0041 】

(乙 烯 乙 烯 醇 共 聚 物)

作為乙 烯 乙 烯 醇 共 聚 物 ， 可 列 舉 例 如 ： 藉 由 共 聚 合 乙 烯 與 乙 烯 酯 系 單 體 ， 且 將 得 到 的 共 聚 物 進 行 皂 化 而 得 者 。 作 為 共 聚 合 乙 烯 與 乙 烯 酯 系 單 體 的 方 法 ， 可 應 用 溶 液 聚 合 法 、 總 體 聚 合 (bulk polymerization)、 懸 浮 聚 合 法 、 乳 化 聚 合 法 等 以 往 周 知 的 方 法 。 作 為 聚 合 起 始 劑 ， 因 應 聚 合 方 法 ， 可 適 當 選 擇 偶 氮 系 起 始 劑 、 過 氧 化 物 系 起 始 劑 、 氧 化 還 原 系 起 始 劑 等 。 皂 化 反 應 可 應 用 以 往 周 知 之 使 用 鹼 觸 媒 或 酸 觸 媒 的 醇 解 、 水 解 等 ， 其 中 ， 將 甲 醇 作 為 溶 劑 ， 使 用 苛 性 鈉 (NaOH)觸 媒 的 皂 化 反 應 為 簡 便 。

【 0042 】 乙 烯 乙 烯 醇 共 聚 物 的 乙 烯 單 元 較 佳 為 20～80 莫 耳 % ， 更 佳 為 29～62 莫 耳 % ， 進 一 步 較 佳 為 35～50 莫 耳 % 。 藉 由 滿 足 此 範 圍 ， 可 將 前 述 之 改 性 乙 烯 縮 醛 樹 脂 的 乙 烯 單 元 調 整 至 適 當 的 範 圍 。

【 0043 】 作 為 成 為 乙 烯 乙 烯 醇 共 聚 物 之 原 料 的 乙 烯 酯 系 單 體 ， 可 列 舉 例 如 ： 甲 酸 乙 烯 酯 、 乙 酸 乙 烯 酯 、 丙 酸 乙 烯 酯 、 丁 酸 乙 烯 酯 、 異 丁 酸 乙 烯 酯 、 三 甲 基 乙 酸 乙 烯 酯 、 新 癸 酸 乙 烯 酯 (vinyl versatate)、 己 酸 乙 烯 酯 、 辛 酸 乙 烯 酯 、 月 桂 酸 乙 烯 酯 、 棕 櫚 酸 乙 烯 酯 、 硬 脂 酸 乙 烯 酯 、 油 酸 乙 烯 酯 、 安 息 香 酸 乙 烯 酯 等 ， 較 佳 為 乙 酸 乙 烯 酯 。

【 0044 】 乙 烯 乙 烯 醇 共 聚 物 的 皂 化 度 並 沒 有 特 別 限

定，但較佳為 95 莫耳%以上，更佳為 98 莫耳%以上，進一步較佳為 99 莫耳%以上，最佳為 99.9 莫耳%以上。

【0045】 乙烯乙烯醇共聚物的乙烯醇單元較佳為 20 ~ 80 莫耳%，更佳為 38 ~ 71 莫耳%，進一步較佳為 50 ~ 65 莫耳%。藉由滿足此範圍，可將前述之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯醇單元調整至適當的範圍。

【0046】 乙烯乙烯醇共聚物之於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 較佳為 1 ~ 30g/10min，更佳為 2 ~ 20g/10min，進一步較佳為 3 ~ 10g/10min。藉由滿足此範圍，可將後述之改性乙烯縮醛樹脂的 MFR 調整至適當的範圍。

【0047】

(縮醛化反應)

作為本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的製造方法並沒有特別限制，但可適合使用周知的製造法製造。可列舉例如：在酸性條件下於乙烯乙烯醇共聚物溶液中添加醛；於直接於溶液狀態或反應途中使共聚物析出成粒子狀的分散液狀態下進行縮醛化反應的方法；或在酸性條件下於乙烯乙烯醇共聚物分散液中添加醛，於反應途中使分散的共聚物溶解之溶液狀態下進行縮醛化反應的方法等。

【0048】 用以製造改性乙烯縮醛樹脂的溶媒，並沒有特別限制，但可列舉例如：水、醇類、二甲亞砷、水與醇類的混合溶媒等。

【0049】 作為用以縮醛化反應之觸媒，較佳為有機酸及無機酸的強酸。可列舉例如：對甲苯磺酸、硝酸、

硫酸、鹽酸等。此等觸媒可單獨被使用，亦可併用 2 種以上。特別是較佳使用鹽酸、硫酸、硝酸等之無機酸，因彼等反應後容易洗淨。

【0050】作為使用於縮醛化反應的醛並沒有特別限定，但可使用例如：甲醛、乙醛、丙醛、丁醛、己醛、苯甲醛、異丁醛、2-乙基己醛、2-甲基丁醛、三甲基乙醛、2-甲基戊醛、2,2-二甲基丁醛、2-乙基丁醛、3,5,5-三甲基己醛等，就耐熱性、光學特性之觀點而言，較佳為丁醛、苯甲醛、異丁醛。又，此等醛可單獨被使用，亦可併用 2 種以上。

【0051】將縮醛化反應後所得之反應生成物以鹼中和後，藉由水洗、去除溶媒，得到作為目的之改性乙烯縮醛樹脂。

作為反應生成物中和用之鹼，較佳為具有鹼金屬或鹼土類金屬之鹼，可列舉例如：氫氧化鈉、氫氧化鉀、碳酸鈉、碳酸氫鈉、碳酸鉀等。此等鹼可單獨被使用，亦可併用 2 種以上。

【0052】本發明的樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂之於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 依序較佳為 0.1 ~ 100g/10min、1 ~ 50g/10min、2 ~ 30g/10min、3 ~ 20g/10min。於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 小於 0.1g/10min 時，於成形加工時適當的成形溫度範圍中無法得到充分的加工性(流動性)，而有提高成形溫度的需要，結果所得到的成形體有變得容易著色的傾向。於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 超過 100g/10min 時，於成形

加工時適當的成形溫度範圍中無法得到充分的熔融張力，容易產生製膜安定性、成形體的表面狀態惡化等的問題的傾向。

【0053】相對於本發明的樹脂組成物，改性乙烯縮醛樹脂的含量較佳為 80 質量%以上，更佳為 90 質量%以上，進一步較佳為 95 質量%以上。又，亦可為 99 質量%以上。

【0054】本發明的樹脂組成物，除了改性乙烯縮醛樹脂之外，亦可任意含有其它的熱塑性樹脂。作為前述其它的熱塑性樹脂並沒有特別限定，但可列舉例如：(甲基)丙烯酸系樹脂、聚乙烯縮丁醛系樹脂、離子聚合物系樹脂等。

【0055】樹脂組成物包含前述其它的熱塑性樹脂的情況下，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，其含量較佳為 20 質量份以下，更佳為 15 質量份以下，進一步較佳為 10 質量份以下。樹脂組成物中其它的熱塑性樹脂的含量超過 20 質量份時，透明性、對玻璃等之基材的接著性有容易降低的傾向。

【0056】本發明的樹脂組成物，因應需要亦可進一步含有塑化劑、抗氧化劑、紫外線吸收劑、接著性改良劑、抗黏結劑 (antiblocking agent)、矽烷偶合劑、顏料、染料、機能性無機化合物等添加劑。又，也可因應需要萃取塑化劑或各種添加劑，或是進行洗淨，藉以暫時使此等之塑化劑、添加劑的含量減低之後，再度添加塑化劑或各種添加劑等。

【0057】樹脂組成物包含前述添加劑的情況下，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，其合計含量較佳為 20 質量份以下，更佳為 15 質量份以下，進一步較佳為 10 質量份以下，最佳為 5 質量份以下。各種添加劑的含量超過 20 質量份時，有容易產生無法充分得到於高溫條件下之自立性(耐熱性)、及作為層合玻璃用中間膜長期使用時滲出等之問題的傾向。

【0058】特別是，塑化劑因其性質而於高溫條件下的自立性(耐熱性)、耐水性降低的效果高，故相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，其含量較佳為 1 質量份以下(包含 0 質量份)，更佳為 0.5 質量份以下(包含 0 質量份)，進一步較佳為 0.1 質量份以下(包含 0 質量份)。本發明的樹脂組成物即使不含塑化劑(0 質量份)或塑化劑的含量為少量(例如 1 質量份以下)，成形性亦優異。

【0059】所使用的塑化劑並沒有特別限制，但可使用例如一元羧酸酯系、多元羧酸酯系等之羧酸酯系塑化劑；磷酸酯系塑化劑、有機亞磷酸酯系塑化劑等，此外亦可使用羧酸聚酯系、碳酸聚酯系、聚伸烷二醇系等之高分子塑化劑、蓖麻油等之羥基羧酸與多元醇之酯化合物。

【0060】作為一元羧酸酯系塑化劑，可列舉例如：藉由丁酸、異丁酸、戊酸、己酸、2-乙基己酸、庚酸、辛酸、月桂酸等之一元羧酸，與乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、聚乙二醇、甘油等之多元醇之縮合反應而得之化合物，例示具體的化合物時，可列舉三乙

二 醇 二 (2-乙 基 己 酸 酯)、三 乙 二 醇 二 異 丁 酸 酯、三 乙 二 醇 二 (2-己 酸 酯)、三 乙 二 醇 二 (2-乙 基 丁 酸 酯)、三 乙 二 醇 二 月 桂 酸 酯、乙 二 醇 二 (2-乙 基 己 酸 酯)、二 乙 二 醇 二 (2-乙 基 己 酸 酯)、四 乙 二 醇 二 (2-乙 基 己 酸 酯)、四 乙 二 醇 二 庚 酸 酯、PEG # 400 二 (2-乙 基 己 酸 酯)、三 乙 二 醇 單 (2-乙 基 己 酸 酯)、甘 油 三 (2-乙 基 己 酸 酯)等。於 此 所 謂 的 PEG # 400 係 表 示 平 均 分 子 量 為 350 以 上、450 以 下 之 聚 乙 二 醇。

【0061】作為多元羧酸酯系塑化劑，可列舉例如：藉由己二酸、琥珀酸、壬二酸、癸二酸、酞酸、異酞酸、對酞酸、偏苯三甲酸等之多元羧酸、與甲醇、乙醇、丁醇、己醇、2-乙基丁醇、庚醇、辛醇、2-乙基己醇、癸醇、十二烷醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、苄基醇等之碳數 1~12 的醇之縮合反應所得到之化合物。例示具體的化合物時，可列舉己二酸二己酯、己二酸二-2-乙基己酯、己二酸二庚酯、己二酸二辛酯、己二酸二(丁氧基乙酯)、己二酸二(丁氧基乙氧基乙酯)、己二酸單(2-乙基己酯)、酞酸二丁酯、酞酸二己酯、酞酸二(2-乙基丁酯)、酞酸辛酯、酞酸二(2-乙基己酯)、酞酸苄基丁酯、酞酸二十二烷酯等。

【0062】作為磷酸酯系塑化劑、以及有機亞磷酸酯系塑化劑，可列舉例如：藉由磷酸或亞磷酸，與甲醇、乙醇、丁醇、己醇、2-乙基丁醇、庚醇、辛醇、2-乙基己醇、癸醇、十二烷醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、苄基醇等之碳數 1~12 的醇之縮合反應所得到

之化合物。例示具體的化合物時，可列舉磷酸三甲酯、磷酸三乙酯、磷酸三丙酯、磷酸三丁酯、磷酸三(2-乙基己酯)、磷酸三(丁氧基乙酯)、亞磷酸三(2-乙基己酯)等。

【0063】作為羧酸聚酯系之高分子塑化劑，可列舉例如：將草酸、丙二酸、琥珀酸、己二酸、辛二酸、癸二酸、十二烷二酸、1,2-環己二甲酸、1,3-環己二甲酸、1,4-環己二甲酸等之多元羧酸，與乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,2-丁二醇、1,3-丁二醇、1,4-丁二醇、1,2-戊二醇、1,5-戊二醇、2,4-戊二醇、1,2-己二醇、1,6-己二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基-2,4-戊二醇、1,2-庚二醇、1,7-庚二醇、1,2-辛二醇、1,8-辛二醇、1,2-壬二醇、1,9-壬二醇、2-甲基-1,8-辛二醇、1,2-癸二醇、1,10-癸二醇、1,2-十二烷二醇、1,12-十二烷二醇、1,2-環己二醇、1,3-環己二醇、1,4-環己二醇、1,2-雙(羥甲基)環己烷、1,3-雙(羥甲基)環己烷、1,4-雙(羥甲基)環己烷等之多元醇交互共聚而得之羧酸聚酯，亦可為將 ϵ -己內酯等之內酯化合物開環聚合而得之羧酸聚酯。此等羧酸聚酯之末端構造可為例如羥基、羧基，又，亦可為使末端羥基、末端羧基與 1 元羧酸或者 1 元醇反應而呈酯鍵者。

【0064】作為碳酸聚酯系之高分子塑化劑，可列舉例如：將乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,2-丁二醇、1,3-丁二醇、1,4-丁二醇、1,2-戊二醇、1,5-戊二醇、2,4-戊二醇、

1,2-己二醇、1,6-己二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基-2,4-戊二醇、1,2-庚二醇、1,7-庚二醇、1,2-辛二醇、1,8-辛二醇、1,2-壬二醇、1,9-壬二醇、2-甲基-1,8-辛二醇、1,2-癸二醇、1,10-癸二醇、1,2-十二烷二醇、1,12-十二烷二醇、1,2-環己二醇、1,3-環己二醇、1,4-環己二醇、1,2-雙(羥甲基)環己烷、1,3-雙(羥甲基)環己烷、1,4-雙(羥甲基)環己烷等之多元醇，與碳酸二甲酯、碳酸二乙酯等之碳酸酯藉由酯交換反應進行交互共聚而得之碳酸聚酯。此等碳酸聚酯化合物之末端構造亦可為碳酸酯基、或羥基等。

【0065】作為聚伸烷二醇系之高分子塑化劑，可列舉例如使用一元醇、多元醇、一元羧酸及多元羧酸作為起始劑使環氧乙烷、環氧丙烷、環氧丁烷等之環氧烷開環聚合而得之聚合物。

【0066】此等塑化劑中，較佳為一元羧酸酯系塑化劑及羧酸聚酯系之高分子塑化劑。一元羧酸酯系塑化劑中，特別是較佳為三乙二醇二(2-乙基己酸酯)。

【0067】本發明中，此等之塑化劑可單獨使用，亦可併用2種以上。

【0068】又，本發明的樹脂組成物亦可含有抗氧化劑。作為所使用的抗氧化劑，可列舉例如：酚系抗氧化劑、磷系抗氧化劑、硫系抗氧化劑等，此等之中，較佳為酚系抗氧化劑，特佳為烷基取代酚系抗氧化劑。

【0069】作為酚系抗氧化劑之例，有丙烯酸 2-三級丁基-6-(3-三級丁基-2-羥基-5-甲基苄基)-4-甲基苯酯或

丙烯酸 2,4-二-三級戊基-6-(1-(3,5-二-三級戊基-2-羥基苯基)乙基)苯酯等之丙烯酸酯系化合物；2,6-二-三級丁基-4-甲酚、2,6-二-三級丁基-4-乙酚、3-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苯基)丙酸十八烷酯、2,2'-亞甲基-雙(4-甲基-6-三級丁酚)、4,4'-亞丁基-雙(4-甲基-6-三級丁酚)、4,4'-亞丁基-雙(6-三級丁基-間甲酚)、4,4'-硫雙(3-甲基-6-三級丁酚)、雙(3-環己基-2-羥基-5-甲基苯基)甲烷、3,9-雙(2-(3-(3-三級丁基-4-羥基-5-甲基苯基)丙醯氧基)-1,1-二甲基乙基)-2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷、1,1,3-參(2-甲基-4-羥基-5-三級丁基苯基)丁烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-參(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)苯、肆(亞甲基-3-(3',5'-二-三級丁基-4'-羥基苯基)丙酸酯)甲烷或三乙二醇雙(3-(3-三級丁基-4-羥基-5-甲基苯基)丙酸酯)等之烷基取代酚系化合物；6-(4-羥基-3,5-二-三級丁基苯胺基)-2,4-雙-辛硫基-1,3,5-三吡、6-(4-羥基-3,5-二甲基苯胺基)-2,4-雙-辛硫基-1,3,5-三吡、6-(4-羥基-3-甲基-5-三級丁基苯胺基)-2,4-雙-辛硫基-1,3,5-三吡或 2-辛硫基-4,6-雙-(3,5-二-三級丁基-4-氧基苯胺基)-1,3,5-三吡等之含三吡基之酚系化合物等。

【0070】作為磷系抗氧化劑，有例如：亞磷酸三苯酯、亞磷酸二苯基異癸酯、亞磷酸苯基二異癸酯、亞磷酸參(壬苯基)酯、亞磷酸參(二壬苯基)酯、亞磷酸參(2-三級丁基-4-甲基苯基)酯、亞磷酸參(環己基苯基)酯、亞磷酸 2,2-亞甲基雙(4,6-二-三級丁基苯基)酯辛酯、9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲-10-氧化物(9,10-Dihydro-9-

oxa-10-phosphaphenanthrene-10-oxide)、10-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)-9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲-10-氧化物或10-癸氧基-9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲等之單亞磷酸酯系化合物；4,4'-亞丁基-雙(3-甲基-6-三級丁基苯基-二-十三烷基亞磷酸酯)、4,4'-亞異丙基-雙(苯基-二-烷基(C12~C15)亞磷酸酯)、4,4'-亞異丙基-雙(二苯基單烷基(C12~C15)亞磷酸酯)、1,1,3-參(2-甲基-4-二-十三烷基亞磷酸酯-5-三級丁基苯基)丁烷或肆(2,4-二-三級丁基苯基)-4,4'-伸聯苯基亞磷酸酯等之二亞磷酸酯系化合物等。此等之中較佳為單亞磷酸酯系化合物

【0071】作為硫系抗氧化劑，有例如，二月桂基3,3'-硫代二丙酸酯、二硬脂基3,3'-硫代二丙酸酯、月桂基硬脂基3,3'-硫代二丙酸酯、新戊四醇肆-(β-月桂基-硫代丙酸酯)、3,9-雙(2-十二硫基乙基)-2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷等。

【0072】此等之抗氧化劑可單獨、或者組合2種以上使用。相對於改性乙烯縮醛樹脂100質量份，抗氧化劑之摻合量較佳為0.001~5質量份，更佳為0.01~1質量份。此等之抗氧化劑亦可於製造本發明的樹脂組成物時添加。又，作為其它添加方法，亦可於本發明之樹脂片成形時添加於樹脂組成物中。

【0073】又，本發明的樹脂組成物亦可含有紫外線吸收劑。作為所使用的抗紫外線劑，可列舉2-(5-甲基-2-羥苯基)苯并三唑、2-[2-羥基-3,5-雙(α,α'-二甲基苄基)苯基]-2H-苯并三唑、2-(3,5-二-三級丁基-2-羥苯基)

苯并三唑、2-(3-三級丁基-5-甲基-2-羥苯基)-5-氯苯并三唑、2-(3,5-二-三級丁基-5-甲基-2-羥苯基)-5-氯苯并三唑、2-(3,5-二-三級戊基-2-羥苯基)苯并三唑或2-(2'-羥基-5'-三級辛基苯基)苯并三唑等苯并三唑系紫外線吸收劑；苯甲酸(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)酯、癸二酸雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)酯、2-(3,5-二-三級丁基-4-羥基苄基)-2-正丁基丙二酸雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)酯或4-(3-(3,5-二-三級丁基-4-羥苯基)丙醯氧基)-1-(2-(3-(3,5-二-三級丁基-4-羥苯基)丙醯氧基)乙基)-2,2,6,6-四甲基哌啶等受阻胺系紫外線吸收劑；3,5-二-三級丁基-4-羥基苯甲酸-2,4-二-三級丁基苯酯或3,5-二-三級丁基-4-羥基苯甲酸十六烷酯等苯甲酸酯系紫外線吸收劑等。相對於改性乙烯縮醛樹脂100質量份，此等之紫外線吸收劑之添加量較佳為0.001~5質量份，更佳為0.01~1質量份之範圍。又，此等之紫外線吸收劑可組合2種以上使用。此等之紫外線吸收劑亦可於製造本發明的樹脂組成物時添加。又，作為其它添加方法，亦可於本發明之樹脂片成形時添加於改性乙烯縮醛樹脂中。

【0074】又，本發明的樹脂組成物亦可含有接著性改良劑。作為所使用之接著性改良劑，可使用例如：國際公開第03/033583號(特開2005-505670號公報)中所揭示作為抗附著劑者，較佳使用有機酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽，其中尤以乙酸鉀及/或乙酸鎂等為佳。接著性改良劑之最適當的添加量，因使用的添加劑而異，而且也因得到的模組、使用層合玻璃的位置而異，但得

到的樹脂片對玻璃之接著力，在 Pummel 試驗 (Pummel test；記載於國際公開第 03/033583 號等)中，一般而言，較佳為調整成 3~10 的方式，特別是需要高耐貫通性時，較佳為調整為 3~6，需要高抗玻璃飛散性時，較佳為調整為 7~10。需要高抗玻璃飛散性的情況下，不添加接著性改良劑亦是有用的方法。

【0075】又，本發明的樹脂組成物亦可含有矽烷偶合劑。作為所使用的矽烷偶合劑，可列舉例如：3-環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷 (3-glycidoxypropyl trimethoxy silane)、3-環氧丙氧基丙基二乙氧基矽烷、N-(2-胺乙基)-3-胺丙基三甲氧基矽烷、N-(2-胺乙基)-3-胺丙基二乙氧基矽烷、N-(2-胺乙基)-3-胺丙基二乙氧基矽烷等。

【0076】此等之矽烷偶合劑可單獨使用 1 種、或者組合 2 種以上使用。相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，矽烷偶合劑的摻合量較佳為 0.001~5 質量份，更佳為 0.01~1 質量份。此等之矽烷偶合劑亦可於製造本發明的樹脂組成物時添加。又，作為其它添加方法，亦可於本發明之樹脂片成形時添加於樹脂組成物中。

【0077】本發明的樹脂組成物之於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 依序較佳為 0.1~100g/10min、1~50g/10min、2~30g/10min、3~20g/10min。於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR 小於 0.1g/10min 時，於成形加工時適當的成形溫度範圍中無法得到充分的加工性(流動性)，而有提高成形溫度的需要，結果所得到的成形體有變得容易著色的傾向。於 190°C、2.16kg 荷重的 MFR

超過 100g/10min 時，於成形加工時適當的成形溫度範圍中無法得到充分的熔融張力，容易產生製膜安定性、成形體的表面狀態惡化等的問題的傾向。

【0078】

(樹脂片)

本發明的樹脂片係由前述樹脂組成物構成，其厚度較佳為 0.10 ~ 3.0mm。樹脂片的厚度更佳為 0.40 ~ 2.8mm，進一步較佳為 0.70 ~ 2.6mm。樹脂片比 0.10mm 更薄的情況下有難以滿足層合玻璃的耐貫通性能的傾向，比 3.0mm 更厚的情況下樹脂片本身之成本變高，又積層步驟的循環時間亦有變長的傾向。樹脂片亦可直接使用單一成形者，使用重疊 2 枚以上成形者並調整成所期望之厚度。

【0079】 為了防止樹脂片彼此接著，及為了提高於積層步驟之除氣性，本發明的樹脂片較佳係於表面設置凹凸。作為設置凹凸的方法，可使用以往周知的方法，可列舉例如：藉由調整擠製條件而設置熔體破裂構造的方法、於擠製而成之樹脂片上賦予浮雕構造的方法等。浮雕的深度、形狀亦可使用以往周知者。

【0080】 製造樹脂片的方法並沒有特別限制，可使用周知的方法。具體而言，只要藉由擠製成形、壓機成形、吹氣成形、射出成形、溶液流延法等將樹脂組成物成形為薄片狀即可。特別是較佳為將樹脂組成物供給至擠製機，進行混練、熔融，自模具取出，並以牽引機牽引而成形為板狀的方法。擠製時的樹脂溫度較佳為 170

~ 250°C，更佳為 180~240°C，進一步較佳為 190~230°C。若樹脂溫度變得過高則改性乙烯縮醛樹脂引起分解，且揮發性物質的含量變多。反之，若溫度過低，則揮發性物質的含量仍然變多。為了有效率地去除揮發性物質，較佳為自擠製機的排氣口藉由減壓而去除揮發性物質。

【0081】由本發明的樹脂組成物構成之樹脂片於測定溫度 50°C、頻率 1Hz 的條件之儲存模數(E')較佳為 20~1,000MPa，更佳為 30~900MPa，進一步較佳為 40~800MPa。儲存模數(E')為前述範圍時，自立性變得更優良。本發明中，儲存模數(E')係根據實施例中所記載的方法測定。

【0082】本發明之由樹脂組成物構成之樹脂片的耐貫通性較佳為後述的落錘式衝擊試驗中之貫通能量為 11J 以上，更佳為 13J 以上，進一步較佳為 15J 以上。樹脂片的耐貫通性小於 11J 時，將該樹脂片作為中間膜使用的層合玻璃之耐貫通性無法得到充分的值，有使用變得困難的傾向。

【0083】由本發明的樹脂組成物構成之樹脂片之吸水前的霧度，較佳為 2.0%以下，更佳為 1.6%以下，進一步較佳為 1.2%以下。又，因前述霧度越小透明性越高，故下限值並沒有特別限制，例如亦可為 0.01%以上。此外，前述吸水前的霧度係可以例如實施例中所記載的方法測定。

【0084】由本發明的樹脂組成物構成之樹脂片之吸

水後的霧度，較佳為 3.0%以下，更佳為 2.5%以下，進一步較佳為 2.0%以下。又，因前述霧度越小吸水後的透明性越高，故下限值並沒有特別限制，例如亦可為 0.01%以上。此外，前述吸水後的霧度係可以例如實施例中所記載的方法測定。

【 0085 】

(層合玻璃用中間膜)

本發明包含由本發明的樹脂片所構成之層合玻璃用中間膜(亦簡稱為中間膜)。從對於玻璃等的基材之接著性、透明性、自立性優異的點來看，本發明的層合玻璃用中間膜特別是較佳為作為構造材料用層合玻璃的中間膜。

【 0086 】

(層合玻璃)

可將本發明的樹脂片插入由無機玻璃或有機玻璃構成之 2 片以上的玻璃板之間，藉由積層製作層合玻璃。使與本發明的層合玻璃用中間膜積層之玻璃板並沒有特別限制，除了浮法玻璃、強化玻璃、夾網玻璃、熱線吸收板玻璃(heat ray-absorbing plate glass)等之無機玻璃外，亦可使用聚甲基丙烯酸甲酯、聚碳酸酯等之以往周知之有機玻璃。玻璃板的厚度並沒有特別限制，但較佳為 1~10mm，更佳為 2~6mm。

【 0087 】用於本發明的層合玻璃的中間膜，可僅由包含上述樹脂組成物之層構成，亦可為包含至少 1 層前述層之多層膜。作為前述多層膜並沒有特別限制，可列

舉例如：將前述層與其它層積層而成之 2 層膜、於 2 個前述層之間配置其它層之 3 層膜等。前述層或其它層為複數之層的情況下，構成各層之樹脂或樹脂組成物可相同亦可相異。

【0088】作為前述其它的層，可列舉包含周知的樹脂之層。作為該樹脂，可使用例如：聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚胺基甲酸酯、聚四氟乙烯、丙烯酸樹脂、聚醯胺、聚縮醛、聚碳酸酯、聚酯之中的聚對酞酸乙二酯、聚對酞酸丁二酯、環狀聚烯烴、聚苯硫醚、聚四氟乙烯、聚砜、聚醚砜、聚芳酯、液晶聚合物、聚醯亞胺等。又，其它的層視需要，也可含有塑化劑、抗氧化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、抗黏結劑、顏料、染料、隔熱材料(例如，具有紅外線吸收能力之無機隔熱性材料或有機隔熱性材料)、機能性無機化合物等添加劑。

【0089】用以得到上述之層合玻璃的積層方法，可採取周知的方法，可列舉例如：使用真空積層機裝置的方法、使用真空袋的方法、使用真空環的方法、使用壓送輥(nip roll)的方法等。又，在暫時接著後，也可額外進行投入至高壓釜的方法。

【0090】使用壓送輥的情況下，可列舉例如：在改性乙烯縮醛樹脂之流動起始溫度以下的溫度進行第 1 次的暫時接著後，進一步以接近流動起始溫度的條件進行暫時接著的方法。具體而言，可列舉例如：以紅外線加熱器等加熱至 30~70℃後，以輥除氣，進一步加熱至 50

~ 120°C後，以輥壓接而進行接著或暫時接著的方法。

【0091】在暫時接著後額外進行的高壓釜步驟，也因模組、層合玻璃的厚度或構成而異，但例如，在約 1 ~ 1.5MPa 的壓力下，130~145°C的溫度實施約 2 小時。

【0092】本發明的層合玻璃較佳為透明性優異者。例如，藉由後述之條件將層合玻璃緩慢冷卻時的霧度較佳依序為 4.0%以下、3.5%以下、3.0%以下、2.5%以下、2.0%以下，更佳為 1.6%以下，進一步較佳為 1.2%以下。又，因前述霧度越小緩慢冷卻後的透明性越高，故下限值並沒有特別限制，例如亦可為 0.01%以上。此外，經前述緩慢冷卻時的霧度係可以例如實施例中所記載的方法測定。

【0093】本發明的層合玻璃較佳為與玻璃之接著力優異者。例如，藉由後述之方法實施的壓縮剪切強度試驗中最大剪應力較佳為 20N/mm²以上，更佳為 22N/mm²以上，進一步較佳為 25N/mm²以上。最大剪應力小於 20N/mm² 的情況下，與玻璃之接著力不夠充分而有玻璃破損時玻璃飛散的傾向。

【0094】從透明性、強度、高溫環境下的自立性、及製造時之接著加工性優異的點來看，如上述般本發明的層合玻璃用中間膜特別是較佳為作為構造材料用層合玻璃之中間膜。又，其不僅適用於作為構造材料用層合玻璃之中間膜，亦可適用於作為汽車等之移動物、建築物、太陽能電池等之各種用途中之層合玻璃用中間膜，但並未限定於此等之用途。

[實施例]

【0095】以下藉由實施例具體說明本發明，但本發明並非限於此等之實施例。

此外，以下實施例及比較例中採用的各評價方法如下所示。

【0096】

[乙烯單元、乙烯醇單元、縮醛單元、縮醛化度]

在 120°C 下，使實施例及比較例中所使用之成為改性乙烯縮醛樹脂之原料的乙烯乙烯醇共聚物溶解於 DMSO 中，並冷卻至室溫下後，添加 N,N-二甲基-4-胺基吡啶及乙酸酐，攪拌反應 1 小時，之後，以離子交換水及丙酮使其沉澱，進行洗淨、乾燥，藉以得到乙烯乙酸乙烯酯共聚物。將所得到的乙烯乙酸乙烯酯共聚物溶解於 DMSO-d₆，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置 (JEOL 公司製、「ECX4000」)，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，由源自乙烯單元及乙酸乙烯酯單元的次甲基質子 (1.1~1.9ppm 的波峰)、以及源自乙酸乙烯酯單元的末端甲基質子 (2.0ppm 的波峰) 之強度比，算出乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例 (n)。在此，由於乙烯單元不會受到因縮醛化反應之影響，故將乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例 (n) 視為與縮醛化反應後得到之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯單元之莫耳比例 (n) 相等者。

【0097】相對於構成改性乙烯縮醛樹脂的全部單體單元之乙烯醇單元之莫耳比例 (1)、乙酸乙烯酯單元之莫

耳比例(m)及縮醛化的乙烯醇單元之莫耳比例(k)係將該改性乙烯縮醛樹脂溶解於 DMSO-d₆，藉由 400MHz 的質子 NMR 測定裝置(JEOL 公司製、「ECX400」)，由以累計次數 256 次進行測定得到的光譜，使用源自乙烯單元、乙烯醇單元及乙烯酯單元的次甲基質子(1.0~1.8ppm 的波峰)、以及源自縮醛單元的末端甲基質子(0.8~1.0ppm 的波峰)之強度比與乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元之莫耳比例(n)算出。

【0098】改性乙烯縮醛樹脂的縮醛化度係使用前述所求出的乙烯醇單元之莫耳比例(l)、乙酸乙烯酯單元之莫耳比例(m)及縮醛化的乙烯醇單元之莫耳比例(k)，藉由縮醛化度(莫耳%)= $\{k/(k+1+m)\} \times 100$ 而求出。

【0099】

[金屬鹽的含量]

以後述方法所得之樹脂組成物中所含之強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽的含量係以以下之方法求得。

於樹脂組成物 0.1g 中添加硝酸 6.0ml 後，使用微波分解裝置(CEM 公司製、「Discover SP-D80」)，在 4 分鐘內從初期溫度升溫至 210°C，於 210°C 保持 4 分鐘後，使用分解裝置內的空氣冷卻用風扇進行冷卻，直到下降至容器溫度 80°C 壓力 70psi 為止。冷卻後，將試料以 50ml 之 PFA 製定量瓶稀釋，以 0.45μm 厚之過濾器進行過濾，藉由感應偶合電漿光發射光譜儀(Thermo Fisher SCIENTIFIC 公司製、「iCAP6500Duo」)測定樹脂組成物中之鹼金屬或鹼土類金屬含量。接著，從金屬含量及

與金屬陽離子成對之陰離子種類之原子量或分子量，求得樹脂組成物中之金屬鹽的含量。

【 0100】

[MFR]

根據 JIS K7210-1：2014，以 190°C、2.16kg 荷重之條件測定作為原料之乙烯乙烯醇共聚物、及以後述方法得到之樹脂組成物之熔體流動速率(MFR)。

【 0101】

[高溫環境下自立性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 200°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的樹脂片。自該樹脂片切出長 40mm×寬 5mm 之試驗片，使用動態黏彈性測定裝置(UBM 股份有限公司製)，以測定溫度 50°C、頻率 1Hz、升溫速度 3°C/分鐘的條件，測定儲存模數(E')，以其值作為在高溫環境下之樹脂片的自立性之指標。

【 0102】

[耐貫通性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 200°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的薄片。自該樹脂片切出長 60mm×寬 60mm 的試驗片，使用落錘式衝擊試驗機(Instron 公司製「CEAST9350」)，依據 ASTM D3763-18，以測定溫度 23°C、荷重 2kg、碰撞速度 9m/sec 的條件進行試驗，由試驗片貫通之時的鐘錘前端與試驗片接觸(感測到試驗

力)的瞬間至貫通(試驗力恢復為零)為止之 SS 曲線的面積算出貫通能量。

【 0103 】

[製膜性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物，使用 40mm 徑的全程單軸擠製機、60cm 寬的衣架型模具，以筒溫度 200°C 的條件進行製膜，製造厚度 0.8mm、寬 50cm 的樹脂片。觀察此時的製膜安定性，將沒有問題可連續製膜，且可得到外觀良好的樹脂片之情況評價為 A，將發生樹脂片之斷裂、鬆弛等問題，且得不到外觀良好的樹脂片之情況評價為 B。

【 0104 】

[吸水前之透明性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 210°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的樹脂片。使用霧度測定儀(日本電色工業股份有限公司製、「SH7000」)，根據 JIS K7136：2000 測定所得到之樹脂片之霧度。

【 0105 】

[吸水後之透明性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 210°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的樹脂片。使所得到之樹脂片浸漬於 23°C 的蒸餾水中 2 週，使用霧度測定儀(日本電色工業股份有限公司製、「SH7000」)，根據 JIS K7136：2000 測

定浸漬後之樹脂片的霧度。

【 0106】

[緩慢冷卻後之透明性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 210°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的樹脂片。將得到的樹脂片以 2 片厚度 2.7mm 之浮法玻璃夾住，使用真空積層機 (Nisshinbo Mechatronics 股份有限公司製「1522N」)，在 100°C 將真空積層機內減壓 1 分鐘，保持減壓度、溫度直接以 30kPa 加壓 5 分鐘，得到暫時接著體。將所得到之暫時接著體投入高壓釜中，加熱至 140°C 後，以 0.1°C/分鐘的速度緩慢冷卻至 23°C。使用霧度測定儀 (日本電色工業股份有限公司製、「SH7000」)，根據 JIS K7136：2000 測定緩慢冷卻操作後之層合玻璃的霧度。

【 0107】

[玻璃接著性]

將以後述的方法得到的樹脂組成物之熔融混練物，在 210°C 加熱下，以 50kgf/cm² 之壓力壓縮成形 5 分鐘，得到厚度 0.8mm 的樹脂片。將得到的樹脂片以 2 片厚度 2.7mm 之浮法玻璃夾住，使用真空積層機 (Nisshinbo Mechatronics 股份有限公司製「1522N」)，在 100°C 將真空積層機內減壓 1 分鐘，保持減壓度、溫度直接以 30kPa 加壓 5 分鐘，得到暫時接著體。將得到的暫時接著體投入至高壓釜，在 140°C、1.2MPa 處理 30 分鐘，得到層合玻璃。將得到的層合玻璃切斷成 25mm×25mm

的大小，得到試驗樣本。將得到的試驗樣本，藉由國際公開第 1999/058334 號所記載的壓縮剪切強度試驗 (Compression shear strength test) 進行評價。將層合玻璃剝離時的最大剪切應力作為玻璃接著性的指標。此時，最大剪應力為 25N/mm^2 以上的情況下評價為 A，小於 25N/mm^2 的情況評價為 B。

【 0108 】

[實施例 1]

使根據特開 2016-28139 中記載之方法合成之乙烯單元 44 莫耳%、皂化度 99%、MFR5.5g/10min 的乙烯乙醇共聚物的料片 100 質量份分散於 500 質量份之甲醇及 50 質量份之離子交換水的混合溶媒中，接著添加 1M 鹽酸 40 質量份，於攪拌下將所到的分散液之溫度升溫至 60°C ，使料片完全溶解。隨後，以乙烯乙醇共聚物的均勻溶液狀態，添加異丁醛 16.7 質量份使之分散後，保持 60°C 進行縮醛化反應。在從反應開始保持 3 小時之時點，添加碳酸鈉 6.4 質量份使反應停止，得到含改性乙烯縮醛樹脂之反應液。

【 0109 】於中和後的反應液中添加甲醇 500 質量份後，將其滴下至離子交換水 2000 質量份中使樹脂析出。將析出之樹脂過濾後，使樹脂分散於離子交換水中，於 23°C 攪拌 15 分鐘，水洗、過濾。進一步重複 2 次此水洗・過濾之操作。將此析出至水洗・過濾為止之洗淨作業當作 1 組。其後，將樹脂溶解於甲醇 1000 質量份中，再度進行 1 組洗淨作業。此後，藉由於 60°C 實

施真空乾燥 8 小時得到樹脂組成物。所得到之樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯單元為 44 莫耳%，縮醛化度為 30 莫耳%，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，NaCl 的含量為 0.0120 質量份。

【0110】將上述得到的樹脂組成物，使用 LABO PLASTOMILL(東洋精機製作所股份有限公司製、「4M150」)，以腔室溫度 200°C、轉數 100rpm 進行熔融混練 3 分鐘，取出腔室內內容物，進行冷卻，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 1。

【0111】

[實施例 2]

除了如表 2 所示變更洗淨條件以外，以與實施例 1 同樣的方法得到樹脂組成物。將所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 1。

【0112】

[實施例 3]

使根據特開 2016-28139 號公報中記載之方法合成之乙烯單元 48 莫耳%、皂化度 99%、MFR6.4g/10min 的乙烯-烯醇共聚物的料片 100 質量份分散於 315 質量份之甲醇中，於攪拌下將溶液之溫度升溫至 60°C 後，添加 1M 鹽酸 40 質量份，接著添加正丁醛 6.5 質量份使之分散後，保持 60°C 進行縮醛化反應。隨著反應的進行，料

片溶解成均勻的溶液。在從反應開始保持 36 小時之時點，添加碳酸氫鈉 6.4 質量份使反應停止，得到改性乙烯縮醛樹脂。於中和後的反應液中添加甲醇 500 質量份，並均勻化後，將其滴至離子交換水 2000 質量份中使樹脂析出。將析出之樹脂過濾後，使樹脂分散於離子交換水中，於 23°C 攪拌 15 分鐘，水洗、過濾之。進一步重複 2 次此水洗、過濾之操作。此後，藉由於 60°C 實施真空乾燥 8 小時得到樹脂組成物。所得到之樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的乙烯單元為 48 莫耳%，縮醛化度為 13 莫耳%，相對於改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，NaCl 的含量為 0.0335 質量份。

將於上述所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 1。

【 0113 】

[實施例 4]

除了如表 1 所示變更使用的乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元、MFR、醛之添加量以外，以與實施例 3 同樣的方法得到樹脂組成物。將所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 1。

【 0114 】

[實施例 5~7]

除了如表 1 及表 2 所示變更使用的醛之種類及添加量、酸之種類、碳酸鈉之添加量、反應時間、洗淨條件

以外，以與實施例 1 同樣的方法得到樹脂組成物。將所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 1。

【 0115 】 [表 1]

		實施例						
		1	2	3	4	5	6	7
乙烯乙烯醇共聚物	乙烯單元(莫耳%)	44	44	48	27	44	44	44
	乙烯醇單元(莫耳%)	56	56	52	73	56	56	56
	MFR (g/10min)	5.5	5.5	6.4	1.6	5.5	5.5	5.5
反應條件	原料樹脂(質量份)	100	100	100	100	100	100	100
	1M 鹽酸(質量份)	40	40	40	40	無	無	40
	1M 硝酸(質量份)	無	無	無	無	40	無	無
	1M 硫酸(質量份)	無	無	無	無	無	40	無
	正丁醛(質量份)	無	無	6.5	15.4	16.7	16.7	無
	異丁醛(質量份)	16.7	16.7	無	無	無	無	16.7
	碳酸鈉(質量份)	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4	12.8	6.4
	反應時間(小時)	3	3	36	36	2	4	3
改性乙烯縮醛樹脂	縮醛化度(莫耳%/PVA 單元)	30	30	13	22	29	30	30
	乙烯單元(莫耳%)	44	44	48	27	44	44	44
	乙烯醇單元(莫耳%)	39	39	45	57	40	39	39
樹脂組成物	改性乙烯縮醛樹脂(質量份)	100	100	100	100	100	100	100
	金屬鹽之種類	NaCl	NaCl	NaCl	NaCl	NaNO ₃	Na ₂ SO ₄	NaCl
	金屬鹽的含量(質量份)	0.012	0.055	0.0335	0.0418	0.0257	0.0449	0.003
	MFR (g/10min)	10	10	6	27	11	9	10
樹脂片	儲存模數(MPa)@50°C	132	110	110	950	147	125	132
	貫通能量(J)	18	17	16	11	17	16	18
	製膜性	A	A	A	A	A	A	A
	吸水前之霧度(%)	1.3	1.1	1	1.3	1.2	1.5	0.9
	吸水後之霧度(%)	2.9	2.6	1.7	2	2.1	2.9	1.3
層合玻璃	緩慢冷卻後之霧度(%)	3.5	1.1	1.1	1.6	1.3	1.7	3.8
	最大剪應力(N/mm ²)	A	A	A	A	A	A	A

【 0116 】 [表 2]

	實施例						
	1	2	3	4	5	6	7
步驟(1) 將樹脂溶解於甲醇	有	有	有	有	有	有	有
步驟(2) 析出	23°C	23°C	23°C	23°C	23°C	23°C	23°C
	15min	15min	15min	15min	15min	15min	15min
步驟(3) 過濾	有	有	有	有	有	有	有
步驟(4) 水洗	23°C	40°C	23°C	23°C	23°C	23°C	40°C
	15min	15min	15min	15min	15min	15min	15min
步驟(5) 過濾	有	有	有	有	有	有	有
步驟(6) 水洗	23°C	40°C	23°C	23°C	23°C	23°C	40°C
	15min	15min	15min	15min	15min	15min	15min
步驟(7) 過濾	有	有	有	有	有	有	有
步驟(8) 水洗	23°C	40°C	23°C	23°C	23°C	23°C	40°C
	15min	15min	15min	15min	15min	15min	15min
步驟(9) 過濾	有	有	有	有	有	有	有
重複步驟(10)	實施步驟 (1)~(9)	/	/	/	/	/	實施步驟 (1)~(9)

【 0117 】

[比較例 1]

除了如表 4 所示變更洗淨條件以外，以與實施例 1 同樣的方法得到樹脂組成物。將所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 3。

【 0118 】

[比較例 2]

除了如表 3 所示變更使用的乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元、MFR、醛之種類以外，以與實施例 3 同樣的方法得到樹脂組成物，以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 3。

【0119】

[比較例 3]

除了參考特開 2011-57737 號公報之實施例 1 中記載之乙烯乙烯醇共聚物的乙烯單元、正丁醛之添加量，並如表 3 所示變更以外，以與實施例 3 同樣的方法得到樹脂組成物。除了相對於所得到之樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，添加作為塑化劑之三乙二醇-二-2-乙基己酸酯 30 質量份以外，以與實施例 1 同樣的方法得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 3。

【0120】

[比較例 4]

除了如表 3 及表 4 變更醛之種類、酸之種類、洗淨條件以外，以與實施例 1 同樣的方法得到樹脂組成物。將所得到之樹脂組成物以與實施例 1 同樣的方法熔融混練，得到熔融混練物。使用得到的熔融混練物進行各種物性評價。將結果顯示於表 3。

【 0121 】 [表 3]

		比較例			
		1	2	3	4
乙烯乙醇共聚物	乙烯單元(莫耳%)	44	44	15	44
	乙醇單元(莫耳%)	56	56	85	56
	MFR(g/10min)	5.5	5.5	1.5	5.5
反應條件	原料樹脂(質量份)	100	100	100	100
	1M 鹽酸(質量份)	40	40	40	無
	1M 乙酸(質量份)	無	無	無	40
	正丁醛(質量份)	無	無	60	16.7
	異丁醛(質量份)	16.7	16.7	無	無
	碳酸鈉(質量份)	6.4	6.4	6.4	6.4
	反應時間(小時)	3	8	8	3
	改性乙烯縮醛樹脂	縮醛化度(莫耳%/PVA 單元)	30	59	73
乙烯單元(莫耳%)		44	44	15	44
乙醇單元(莫耳%)		39	23	23	39
樹脂組成物	改性乙烯縮醛樹脂(質量份)	100	100	100	100
	金屬鹽之種類	NaCl	NaCl	NaCl	CH ₃ COONa
	金屬鹽的含量(質量份)	0.0003	0.065	0.0457	0.0105
	塑化劑(質量份)	無	無	30	無
	MFR (g/10min)	10	45	52	9
樹脂片	儲存模數(MPa)@50°C	145	7	2	87
	貫通能量(J)	15	11	9	14
	製膜性	A	A	A	A
	吸水前之霧度(%)	4.3	0.9	1.2	1.4
	吸水後之霧度(%)	5.2	94.8	92.9	4.1
層合玻璃	緩慢冷卻後之霧度(%)	4.5	1	1.5	1.5
	最大剪應力(N/mm ²)	A	A	B	B

【 0122 】 [表 4]

	比較例			
	1	2	3	4
步驟(1) 將樹脂溶解於甲醇	有	有	有	有
步驟(2) 析出	23°C	23°C	23°C	23°C
	15min	15min	15min	15min
步驟(3) 過濾	有	有	有	有
步驟(4) 水洗	23°C	23°C	23°C	23°C
	15min	15min	15min	15min
步驟(5) 過濾	有	有	有	有
步驟(6) 水洗	23°C	23°C	23°C	23°C
	15min	15min	15min	15min
步驟(7) 過濾	有	有	有	有
步驟(8) 水洗	23°C	23°C	23°C	23°C
	15min	15min	15min	15min
步驟(9) 過濾	有	有	有	有
重複步驟(10)	實施步驟(1)~(9)			
重複步驟(11)	實施步驟(1)~(9)			

【 0123 】 可以確認實施例 1~7 之樹脂組成物係因以 0.0005~0.06 質量份之範圍含有強酸之鹼金屬鹽，故均衡良好地兼具透明性、耐熱性、製膜性、及耐水性，特別是透明性優異。

【 0124 】 另一方面，可以確認比較例 1 之樹脂組成物因強酸之鹼金屬鹽的含量少，樹脂組成物中所含之改性乙烯縮醛樹脂的結晶性高，透明性差。可以確認比較例 2 之樹脂組成物因強酸之鹼金屬鹽的含量多，耐水性差，吸水後之霧度差。比較例 3 之樹脂組成物因乙烯含量低，耐貫通性差。可以確認比較例 4 之樹脂組成物對

玻璃之接著性差，可能是含有乙酸鈉。

[產業上利用之可能性]

【0125】藉由使用本發明的樹脂組成物，可得到透明性、強度、於高溫環境下之自立性、及製造時之接著加工性優異之層合玻璃用中間膜。該層合玻璃用中間膜特別是適合用於作為構造材料用層合玻璃之中間膜。此外，其不僅可適合使用作為構造材料用層合玻璃之中間膜，亦可適合使用作為於汽車等之移動物、建築物、太陽能電池等之各種用途中之層合玻璃用中間膜。因此，本發明的樹脂組成物係適合用於各種用途中之層合玻璃用中間膜之製造。

【符號說明】

無。

【發明申請專利範圍】

【請求項 1】一種樹脂組成物，其係包含：

以構成樹脂之所有單體單元為基準，包含 20～80 莫耳%之乙烯單元、及 4～76 莫耳%之乙烯醇單元，且以乙烯單元以外之構造單元中經縮醛化之乙烯醇單元所佔的比例定義之縮醛化度為 5～80 莫耳%之改性乙烯縮醛樹脂；以及

強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之樹脂組成物，

其中相對於前述改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，強酸之鹼金屬鹽及/或鹼土金屬鹽之合計含量為 0.0005～0.06 質量份。

【請求項 2】如請求項 1 之樹脂組成物，其中前述改性乙烯縮醛樹脂之含量為 80 質量%以上。

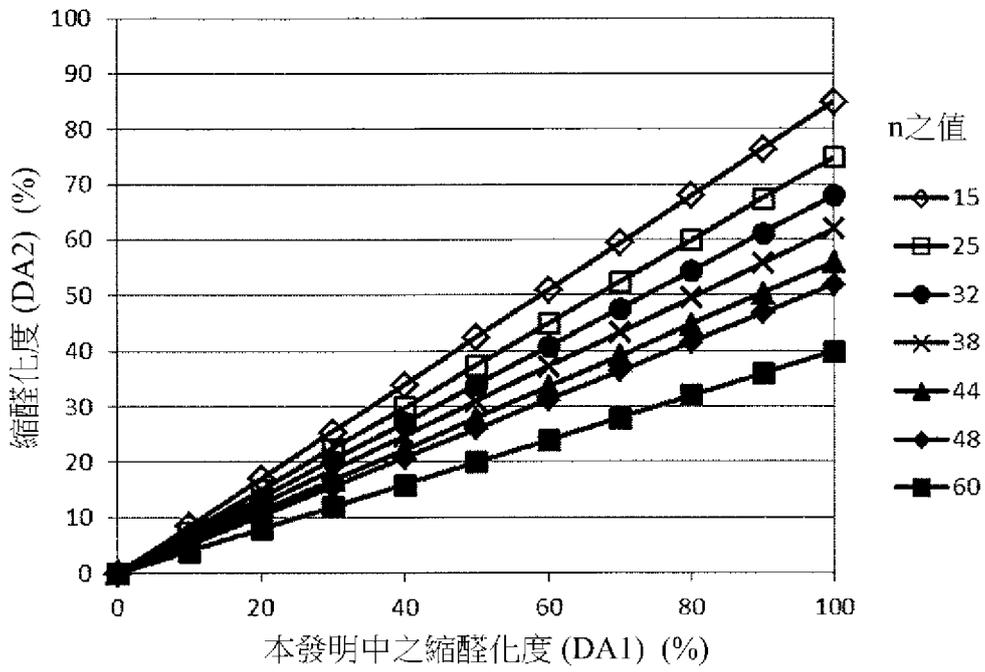
【請求項 3】如請求項 1 或 2 之樹脂組成物，其中相對於前述改性乙烯縮醛樹脂 100 質量份，塑化劑之含量為 1 質量份以下。

【請求項 4】一種樹脂片，其係由如請求項 1 至 3 中任一項之樹脂組成物構成，厚度為 0.10～3.0mm。

【請求項 5】一種層合玻璃用中間膜，其係由如請求項 4 之樹脂片構成。

【請求項 6】一種層合玻璃，其具有 2 個玻璃板及配置於該 2 個玻璃板之間的如請求項 5 之層合玻璃用中間膜。

【發明圖式】



【圖 1】