



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 202024208 A

(43) 公開日：中華民國 109 (2020) 年 07 月 01 日

(21) 申請案號：108133560 (22) 申請日：中華民國 108 (2019) 年 09 月 18 日

(51) Int. Cl. : **C08K5/56 (2006.01)** **C08F287/00 (2006.01)**  
**B32B27/20 (2006.01)** **B32B27/08 (2006.01)**

(30) 優先權：2018/09/27 日本 2018-182603

(71) 申請人：日商日本瑞翁股份有限公司 (日本) ZEON CORPORATION (JP)  
 日本

(72) 發明人：真島啟 MASHIMA, HIROMU (JP)

(74) 代理人：許世正

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：9 項 圖式數：1 共 44 頁

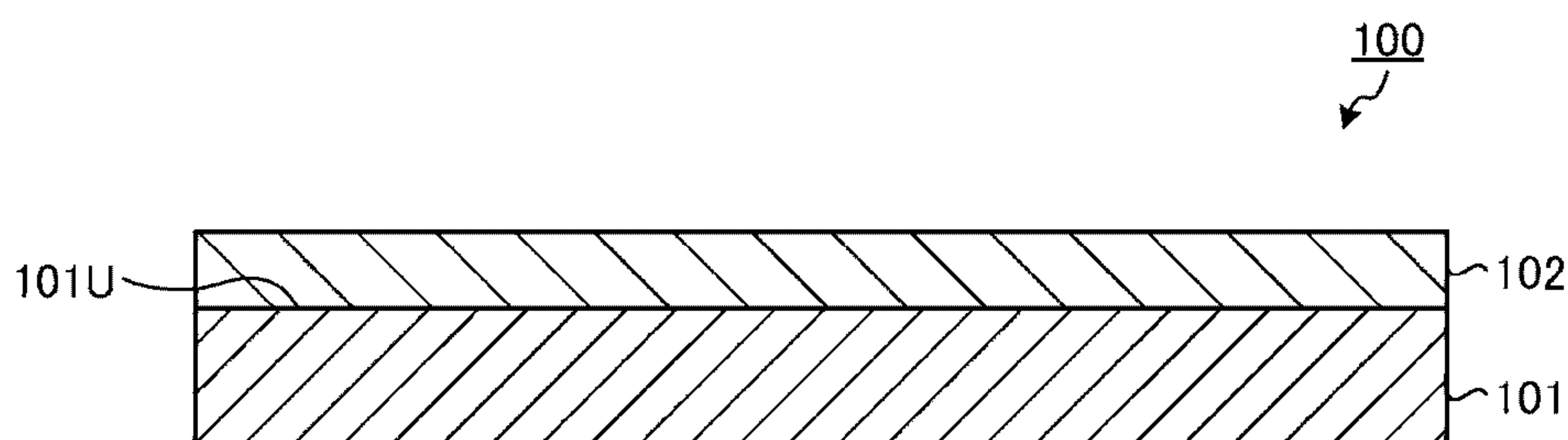
(54) 名稱

樹脂組成物、樹脂薄膜及堆疊體

(57) 摘要

一種樹脂組成物，其係包含嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物與有機金屬化合物的樹脂組成物，前述嵌段共聚物氫化物係包含「包含芳族乙烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔A〕」與「包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔B〕」的嵌段共聚物經氫化的物質。

指定代表圖：



符號簡單說明：

100:堆疊體

101:基材薄膜

102:樹脂薄膜

101U:面

圖 1



202024208

## 【發明摘要】

【中文發明名稱】 樹脂組成物、樹脂薄膜及堆疊體

【中文】

一種樹脂組成物，其係包含嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物與有機金屬化合物的樹脂組成物，前述嵌段共聚物氫化物係包含「包含芳族乙烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔A〕」與「包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔B〕」的嵌段共聚物經氫化的物質。

【指定代表圖】 圖 1。

【代表圖之符號簡單說明】

100	堆疊體
101	基材薄膜
102	樹脂薄膜
101U	面

【特徵化學式】

無。

## 【發明說明書】

【中文發明名稱】 樹脂組成物、樹脂薄膜及堆疊體

【技術領域】

【0001】 本發明係關於樹脂組成物、樹脂薄膜及堆疊體。

【先前技術】

【0002】 以往於光學元件等所使用之基材薄膜，以薄膜之保護等為目的而堆疊有樹脂層。

【0003】 舉例而言，作為偏光件保護薄膜，由包含指定之嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物的樹脂所形成之樹脂層已為人所使用（專利文獻 1）。

【0004】 『專利文獻』

《專利文獻 1》：國際專利公開第 2018/003715 號（對應公報：美國專利申請公開第 2019/0162876 號說明書）

【發明內容】

【0005】 然而，由專利文獻 1 相關之樹脂所形成之樹脂薄膜，其與基材薄膜的密合性並不充分。

【0006】 因此，要求：可形成與基材薄膜之密合性優異之樹脂薄膜的材料；與基材薄膜之密合性優異的樹脂薄膜；以及密合性優異之樹脂薄膜與基材薄膜的堆疊體。

【0007】 本發明人為能解決前述問題而潛心研究。其結果，發現藉由包含指定之聚合物之改質物與有機金屬化合物的樹脂組成物，可解決前述問題，進而完成本發明。

【0008】 亦即，本發明提供以下內容。

【0009】〔1〕一種樹脂組成物，其係包含  
嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物與  
有機金屬化合物  
的樹脂組成物，

前述嵌段共聚物氫化物係包含「包含芳族乙烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔A〕」與「包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔B〕」的嵌段共聚物經氫化的物質。

【0010】〔2〕如〔1〕所記載之樹脂組成物，其中前述嵌段共聚物每一分子包含至少 2 個前述聚合物嵌段〔A〕與至少 1 個前述聚合物嵌段〔B〕。

【0011】〔3〕如〔1〕或〔2〕所記載之樹脂組成物，其中在前述嵌段共聚物中之前述芳族乙烯化合物單元的含有重量相對於前述鏈狀共軛二烯化合物單元的含有重量之比率（芳族乙烯化合物單元／鏈狀共軛二烯化合物單元）為 30／70 以上且 60／40 以下。

【0012】〔4〕如〔1〕～〔3〕之任一項所記載之樹脂組成物，其中前述嵌段共聚物氫化物係在前述嵌段共聚物中之芳香性碳—碳不飽和鍵的 90% 以上及在前述嵌段共聚物中之非芳香性碳—碳不飽和鍵的 90% 以上經氫化的物質。

【0013】〔5〕如〔1〕～〔4〕之任一項所記載之樹脂組成物，其中前述有機金屬化合物係矽烷耦合化合物。

【0014】〔6〕如〔5〕所記載之樹脂組成物，其中前述矽烷耦合化合物包含亦可具有取代基的胺基。

【0015】〔7〕如〔6〕所記載之樹脂組成物，其中前述矽烷耦合化合物每一分子包含 2 個亦可具有取代基的胺基。

【0016】〔8〕一種樹脂薄膜，其係由如〔1〕～〔7〕之任一項所記載之樹脂組成物所形成者。

【0017】〔9〕一種堆疊體，其包含如〔8〕所記載之樹脂薄膜與基材薄膜，前述樹脂薄膜直接接觸於前述基材薄膜之面。

【0018】根據本發明，可提供：可形成與基材薄膜之密合性優異之樹脂薄膜的樹脂組成物；與基材薄膜之密合性優異的樹脂薄膜；以及密合性優異之樹脂薄膜與基材薄膜的堆疊體。

#### 【圖式簡單說明】

【0019】〈圖 1〉圖 1 係繪示本發明之一實施型態相關之堆疊體的剖面示意圖。

#### 【實施方式】

【0020】以下揭示實施型態及示例物以詳細說明本發明。惟本發明並非受限於以下所揭示之實施型態及示例物者，在不脫離本發明之申請專利範圍及其均等之範圍的範圍內，得任意變更而實施。

【0021】在以下說明中，所謂「長條狀」之薄膜，係謂具有相對於幅寬為 5 倍以上之長度的薄膜，以具有 10 倍或其以上之長度為佳，具體而言係謂具有可收捲成輓狀儲存或搬運之程度之長

度的薄膜。薄膜之長度的上限並無特別限制，得定為例如相對於幅寬為 10 萬倍以下。

【0022】〔1.樹脂組成物〕

【0023】本實施型態之樹脂組成物包含嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物與有機金屬化合物。

【0024】〔1.1.嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物〕

【0025】〔1.1.1.嵌段共聚物氫化物〕

【0026】嵌段共聚物氫化物係包含聚合物嵌段〔A〕與聚合物嵌段〔B〕的嵌段共聚物經氫化的物質。亦即，嵌段共聚物氫化物係具有將嵌段共聚物氫化而獲得之結構的物質。惟氫化物不因其製造方法而受限。

【0027】（聚合物嵌段〔A〕）

【0028】聚合物嵌段〔A〕包含芳族乙烯化合物單元作為主成分。於此，所謂包含芳族乙烯化合物單元作為主成分，意謂在聚合物嵌段〔A〕中之芳族乙烯化合物單元的含率為 50 重量%以上。

【0029】並且，所謂芳族乙烯化合物單元，意謂具有將芳族乙烯化合物聚合而形成之結構的結構單元。芳族乙烯化合物單元不因其製造方法而受限。

【0030】作為聚合物嵌段〔A〕所具有之芳族乙烯化合物單元所對應之芳族乙烯化合物，可列舉例如：苯乙烯； $\alpha$ -甲基苯乙烯、2-甲基苯乙烯、3-甲基苯乙烯、4-甲基苯乙烯、2,4-二甲基苯乙烯、2,4-二異丙基苯乙烯、4-三級丁基苯乙烯、5-三級丁基-2-甲基苯乙

烯等具有碳原子數 1~6 的烷基作為取代基的苯乙烯類；4-氯苯乙烯、二氯苯乙烯、4-一氟苯乙烯等具有鹵素原子作為取代基的苯乙烯類；4-甲氧基苯乙烯等具有碳原子數 1~6 的烷氧基作為取代基的苯乙烯類；4-苯基苯乙烯等具有芳基作為取代基的苯乙烯類；1-乙烯基萘、2-乙烯基萘等乙烯基萘類；等。此等可單獨使用 1 種，亦可以任意比率組合 2 種以上使用。此等之中，就可降低吸濕性而言，以苯乙烯、具有碳原子數 1~6 的烷基作為取代基的苯乙烯類等不含極性基的芳族乙烯化合物為佳，就工業上之取得容易性而言，以苯乙烯為尤佳。

**【0031】** 在聚合物嵌段〔A〕中之芳族乙烯化合物單元的含率以 90 重量%以上為佳，以 95 重量%以上為較佳，以 98 重量%以上為更佳，以 99 重量%以上為尤佳。藉由在聚合物嵌段〔A〕中將芳族乙烯化合物單元之量做成如前所述之多，可提高由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的硬度及耐熱性。

**【0032】** 聚合物嵌段〔A〕除了芳族乙烯化合物單元以外，亦可包含任意結構單元。聚合物嵌段〔A〕可單獨包含 1 種任意結構單元，亦可以任意比率將 2 種以上任意結構單元組合而包含。

**【0033】** 作為聚合物嵌段〔A〕得包含之任意結構單元，可舉出例如鏈狀共軛二烯化合物單元。於此，所謂鏈狀共軛二烯化合物單元，係謂具有將鏈狀共軛二烯化合物聚合而形成之結構的結構單元。於此，鏈狀共軛二烯化合物可為直鏈共軛二烯化合物，亦可為支鏈共軛二烯化合物。作為鏈狀共軛二烯化合物單元所對

應之鏈狀共軛二烯化合物，可列舉例如與作為聚合物嵌段〔B〕所具有之鏈狀共軛二烯化合物單元所對應之鏈狀共軛二烯化合物之例而列舉者相同之例。鏈狀共軛二烯化合物單元不因其製造方法而受限。

**【0034】** 並且，作為聚合物嵌段〔A〕得包含之任意結構單元，可舉出例如具有將除了芳族乙烯化合物及鏈狀共軛二烯化合物以外之任意不飽和化合物聚合而形成之結構的結構單元。作為任意不飽和化合物，可列舉例如：鏈狀乙烯化合物、環狀乙烯化合物等乙烯化合物；不飽和環狀酸酐；不飽和醯亞胺化合物；等。此等化合物亦可具有腈基、烷氧基羰基、羥基羰基或鹵基等取代基。此等之中，就吸濕性的觀點而言，以乙烯、丙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-庚烯、1-辛烯、1-壬烯、1-癸烯、1-十二烯、1-二十烯、4-甲基-1-戊烯、4,6-二甲基-1-庚烯等每 1 分子碳原子數 2~20 的鏈狀烯烴；乙烯環己烷、4-乙烯環己烷、降萘烯等每 1 分子碳原子數 5~20 的環狀烯烴；等不具極性基的烯烴化合物為佳，以每 1 分子碳原子數 2~20 的鏈狀烯烴為較佳，以乙烯、丙烯為尤佳。

**【0035】** 在聚合物嵌段〔A〕中之任意結構單元的含率以 10 重量%以下為佳，以 5 重量%以下為較佳，以 2 重量%以下為更佳，以 1 重量%以下為尤佳。

**【0036】** 在嵌段共聚物 1 分子中之聚合物嵌段〔A〕的數量以 2 個以上為佳，且以 5 個以下為佳，以 4 個以下為較佳，以 3 個以下為更佳，以 2 個為尤佳。於在嵌段共聚物 1 分子中之聚合物



嵌段〔A〕的數量為2個以上的情況下，聚合物嵌段〔A〕可彼此相同，亦可相異，舉例而言，聚合物嵌段〔A〕所包含之結構單元的組成及／或結構單元的數量亦可彼此相異。

**【0037】** （聚合物嵌段〔B〕）

**【0038】** 聚合物嵌段〔B〕包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分。於此，所謂包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分，意謂在聚合物嵌段〔B〕中之鏈狀共軛二烯化合物單元的含率為50重量%以上。

**【0039】** 並且，所謂鏈狀共軛二烯化合物單元，意謂具有將鏈狀共軛二烯化合物聚合而形成之結構的結構單元。鏈狀共軛二烯化合物可為直鏈共軛二烯化合物，亦可為支鏈共軛二烯化合物。鏈狀共軛二烯化合物單元不因其製造方法而受限。

**【0040】** 作為此聚合物嵌段〔B〕所具有之鏈狀共軛二烯化合物單元所對應之鏈狀共軛二烯化合物，可列舉例如：1,3-丁二烯、異戊二烯、2,3-二甲基-1,3-丁二烯、1,3-戊二烯等。此等可單獨使用1種，亦可以任意比率組合2種以上使用。其中，為了降低吸濕性，以不含極性基的鏈狀共軛二烯化合物為佳，以1,3-丁二烯、異戊二烯為較佳。

**【0041】** 在聚合物嵌段〔B〕中之鏈狀共軛二烯化合物單元的含率以70重量%以上為佳，以80重量%以上為較佳，以90重量%以上為更佳，以95重量%以上或98重量%以上為尤佳。藉由在聚合物嵌段〔B〕中將鏈狀共軛二烯化合物單元之量做成如前所述

之多，可提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的柔軟性。

**【0042】** 聚合物嵌段〔B〕除了鏈狀共軛二烯化合物單元以外，亦可包含任意結構單元。聚合物嵌段〔B〕可單獨包含 1 種任意結構單元，亦可以任意比率將 2 種以上任意結構單元組合而包含。

**【0043】** 作為聚合物嵌段〔B〕得包含之任意結構單元，可列舉例如：芳族乙烯化合物單元，以及具有將除了芳族乙烯化合物及鏈狀共軛二烯化合物以外之任意不飽和化合物聚合而形成之結構的結構單元。作為此等芳族乙烯化合物單元以及具有將任意不飽和化合物聚合而形成之結構的結構單元，可列舉例如：與已作為聚合物嵌段〔A〕亦可包含者而示例者相同之例。

**【0044】** 在聚合物嵌段〔B〕中之任意結構單元的含率以 30 重量%以下為佳，以 20 重量%以下為較佳，以 10 重量%以下為更佳，以 5 重量%以下為尤佳，以 2 重量%以下為最佳。藉由降低在聚合物嵌段〔B〕中之任意結構單元的含率，可提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的柔軟性。

**【0045】** 在嵌段共聚物 1 分子中之聚合物嵌段〔B〕的數量通常為 1 個以上，亦可為 2 個以上。於在嵌段共聚物 1 分子中之聚合物嵌段〔B〕的數量為 2 個以上的情況下，聚合物嵌段〔B〕可彼此相同，亦可相異，舉例而言，聚合物嵌段〔B〕所包含之結構單元的組成及／或結構單元的數量亦可彼此相異。

**【0046】** （嵌段共聚物）

**【0047】** 嵌段共聚物之嵌段的型態，可為鏈型嵌段，亦可為星

型嵌段。其中，鏈型嵌段因機械性強度優異而佳。在嵌段共聚物具有鏈型嵌段之型態的情況下，嵌段共聚物之分子鏈的兩端為聚合物嵌段〔A〕，可將樹脂組成物之黏性抑至適切之低值，故為佳。

【0048】 嵌段共聚物以每一分子包含至少 2 個聚合物嵌段〔A〕與至少 1 個聚合物嵌段〔B〕為佳。

【0049】 嵌段共聚物之尤佳嵌段的型態係如〔A〕—〔B〕—〔A〕所示，於聚合物嵌段〔B〕之兩端鍵結有聚合物嵌段〔A〕的三嵌段共聚物；如〔A〕—〔B〕—〔A〕—〔B〕—〔A〕所示，於聚合物嵌段〔A〕之兩端鍵結有聚合物嵌段〔B〕，並進一步於該兩聚合物嵌段〔B〕之另一端分別鍵結有聚合物嵌段〔A〕的五嵌段共聚物。

【0050】 〔A〕—〔B〕—〔A〕之三嵌段共聚物由於製造容易且可輕易使物性落於期望之範圍，故為尤佳。

【0051】 在嵌段共聚物中，嵌段共聚物之整體中芳族乙烯化合物單元所佔的重量分率  $w_A$  與嵌段共聚物之整體中鏈狀共軛二烯化合物單元所佔的重量分率  $w_B$  之比（ $w_A/w_B$ ），以落於特定之範圍為佳。具體而言，前述比（ $w_A/w_B$ ）以 30/70 以上為佳，以 40/60 以上為較佳，且以 60/40 以下為佳，以 55/45 以下為較佳。藉由將前述比  $w_A/w_B$  定為前述範圍之下限值以上，可提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的硬度及耐熱性，減小雙折射。並且，藉由定為上限值以下，可提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的柔軟性。於此，芳族乙烯化合物單元的重量分率  $w_A$  表示

芳族乙烯化合物單元之整體的重量分率，鏈狀共軛二烯化合物單元的重量分率  $w_B$  表示鏈狀共軛二烯化合物單元之整體的重量分率。

**【0052】** 前述比 ( $w_A / w_B$ ) 表示在嵌段共聚物中之芳族乙烯化合物單元的含有重量相對於鏈狀共軛二烯化合物單元的含有重量之比率 (芳族乙烯化合物單元 / 鏈狀共軛二烯化合物單元)。

**【0053】** 嵌段共聚物的重量平均分子量 ( $M_w$ ) 以 10,000 以上為佳，以 20,000 以上為較佳，以 30,000 以上為更佳，且以 200,000 以下為佳，以 100,000 以下為較佳，以 60,000 以下為更佳。

**【0054】** 並且，嵌段共聚物的分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) 以 3 以下為佳，以 2 以下為較佳，以 1.5 以下為尤佳，且以 1.0 以上為佳。於此， $M_n$  表示數量平均分子量。

**【0055】** 嵌段共聚物的重量平均分子量 ( $M_w$ ) 及分子量分布 ( $M_w / M_n$ )，得藉由以四氫呋喃 (THF) 作為溶劑之凝膠滲透層析法 (GPC)，量測為聚苯乙烯換算之值。

**【0056】** 嵌段共聚物可藉由從前眾所周知的方法來製造。作為嵌段共聚物的製造方法，可列舉例如：藉由活性陰離子聚合等方法，使含有芳族乙烯化合物作為主成分的單體組成物 (a) 與含有鏈狀共軛二烯化合物作為主成分的單體組成物 (b) 交替聚合的方法；使含有芳族乙烯化合物作為主成分的單體組成物 (a) 與含有鏈狀共軛二烯化合物作為主成分的單體組成物 (b) 依序聚合後，使聚合物嵌段 [B] 的末端分別透過耦合劑耦合的方法。

【0057】 嵌段共聚物可藉由例如國際專利公開第 2018/003715 號所記載之方法來製造。

【0058】 (嵌段共聚物氫化物)

【0059】 嵌段共聚物氫化物係前述嵌段共聚物經氫化的物質，更詳細而言，係前述嵌段共聚物之不飽和鍵的至少一部分經氫化而獲得的聚合物。於此，於經氫化之嵌段共聚物的不飽和鍵，嵌段共聚物之主鏈及側鏈之「芳香性及非芳香性」的碳—碳不飽和鍵皆包含在內。

【0060】 藉由氫化嵌段共聚物，得獲得包含：包含「芳族乙烯化合物單元所包含之芳香性碳—碳不飽和鍵的至少一部分經氫化之結構單元」的聚合物嵌段〔hA〕；及／或包含「鏈狀共軛二烯化合物單元所包含之非芳香性碳—碳不飽和鍵的至少一部分經氫化之結構單元」的聚合物嵌段〔hB〕；的嵌段共聚物氫化物。

【0061】 芳香性的碳—碳不飽和鍵通常包含嵌段共聚物所包含之芳族乙烯化合物單元所具有之芳環的碳—碳不飽和鍵。

【0062】 非芳香性的碳—碳不飽和鍵通常包含嵌段共聚物所包含之鏈狀共軛二烯化合物單元所具有的碳—碳雙鍵。

【0063】 非芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率以在嵌段共聚物中之非芳香性的碳—碳不飽和鍵的 90%以上為佳，以 97%以上為較佳，以 99%以上為更佳。藉由提高非芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率，可更提高樹脂組成物的耐光性及耐氧化性。

【0064】 並且，芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率以在嵌段

共聚物中之芳香性的碳—碳不飽和鍵的 90%以上為佳，以 97%以上為較佳，以 99%以上為更佳。藉由提高芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率，將聚合物嵌段〔A〕氫化而獲得之聚合物嵌段的玻璃轉移溫度會變高，故可有效提高樹脂組成物的耐熱性。再來，可降低樹脂組成物的光彈性係數。

**【0065】** 良佳為非芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率為在嵌段共聚物中之非芳香性的碳—碳不飽和鍵的 90%以上，且芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率為在嵌段共聚物中之芳香性的碳—碳不飽和鍵的 90%以上。氫化率愈高，可愈優化樹脂組成物的透明性、耐熱性及耐候性，更容易減小雙折射。

**【0066】** 在嵌段共聚物氫化物中之芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率及非芳香性的碳—碳不飽和鍵的氫化率，得藉由量測嵌段共聚物及嵌段共聚物氫化物的  $^1\text{H-NMR}$  來求得。

**【0067】** 嵌段共聚物氫化物的重量平均分子量（ $M_w$ ）以 10,000 以上為佳，以 20,000 以上為較佳，以 30,000 以上為更佳，且以 200,000 以下為佳，以 100,000 以下為較佳，以 60,000 以下為更佳。藉由使嵌段共聚物氫化物的重量平均分子量（ $M_w$ ）落於前述範圍，可提升樹脂薄膜的機械強度及耐熱性，更容易減小雙折射。

**【0068】** 嵌段共聚物氫化物的分子量分布（ $M_w/M_n$ ）以 3 以下為佳，以 2 以下為較佳，以 1.5 以下為尤佳，且以 1.0 以上為佳。藉由使嵌段共聚物氫化物的分子量分布（ $M_w/M_n$ ）落於前

述範圍，可提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的機械強度及耐熱性，更容易減小雙折射。

**【0069】** 嵌段共聚物氫化物的重量平均分子量 ( $M_w$ ) 及分子量分布 ( $M_w/M_n$ )，得藉由以四氫呋喃 (THF) 作為溶劑之凝膠滲透層析法 (GPC)，以聚苯乙烯換算之值來量測。

**【0070】** 嵌段共聚物氫化物得藉由將嵌段共聚物氫化來製造。嵌段共聚物的氫化可利用從前眾所周知的方法來進行。作為氫化方法，以可提高氫化率，嵌段共聚物之斷鏈反應少的氫化方法為佳。作為此種氫化方法，可列舉例如：國際專利公開第 2011/096389 號、國際專利公開第 2012/043708 號所記載之方法。

**【0071】** [ 1.1.2.嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物 ]

**【0072】** 嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物，係於嵌段共聚物氫化物導入烷氧矽基而獲得之聚合物。所導入之烷氧矽基可直接鍵結於嵌段共聚物氫化物，亦可中介例如伸烷基、伸烷氧基、羰基伸烷基等 2 價之有機基間接鍵結。烷氧矽基改質物由於對於廣泛之材料的密合性優異，故得將包含此種烷氧矽基改質物之樹脂組成物的密合性做成優異者。

**【0073】** 作為導入之烷氧矽基，可列舉例如：三甲氧基矽基、三乙氧基矽基等三 ( $C_1 - C_6$  烷氧基) 矽基；甲基二甲氧基矽基、甲基二乙氧基矽基、乙基二甲氧基矽基、乙基二乙氧基矽基、丙基二甲氧基矽基、丙基二乙氧基矽基等 ( $C_1 - C_{20}$  烷基) 二 ( $C_1 - C_6$  烷氧基) 矽基；苯基二甲氧基矽基、苯基二乙氧基矽基等 (芳基) 二 ( $C_1$

— C<sub>6</sub> 烷氧基)矽基；等。

**【0074】** 在烷氧矽基改質物中之烷氧矽基的導入量，相對於烷氧矽基之導入前的嵌段共聚物氫化物 100 重量份，以 0.1 重量份以上為佳，以 0.2 重量份以上為較佳，以 0.3 重量份以上為更佳，且以 5 重量份以下為佳，以 4 重量份以下為較佳，以 3 重量份以下為更佳。若使烷氧矽基的導入量落於前述範圍，則可抑制因水分等而分解之烷氧矽基彼此間之交聯度變得過高，故可高度維持樹脂組成物的密合力。

**【0075】** 烷氧矽基的導入量得以 <sup>1</sup>H-NMR 光譜來測量。並且，於測量烷氧矽基的導入量時，在導入量少的情況下，得增加累計次數來測量。

**【0076】** 烷氧矽基改質物的重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) 由於所導入之烷氧矽基之量少，故通常不會較導入烷氧矽基前之嵌段共聚物氫化物的重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) 大幅變化。惟在導入烷氧矽基時在過氧化物的存在下使嵌段共聚物氫化物進行改質反應，故此嵌段共聚物氫化物的交聯反應及斷裂反應會進行，分子量分布會有大幅變化的傾向。

**【0077】** 烷氧矽基改質物的重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) 以 10,000 以上為佳，以 20,000 以上為較佳，以 30,000 以上為更佳，且以 200,000 以下為佳，以 100,000 以下為較佳，以 60,000 以下為更佳。並且，烷氧矽基改質物的分子量分布 (M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>) 以 3.5 以下為佳，以 2.5 以下為較佳，以 2.0 以下為尤佳，且以 1.0 以上為



佳。若烷氧矽基改質物的重量平均分子量( $M_w$ )及分子量分布( $M_w/M_n$ )為此範圍，則可維持由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜之良好的機械強度及拉伸伸長率。

**【0078】** 烷氧矽基改質物的重量平均分子量( $M_w$ )及分子量分布( $M_w/M_n$ )，得藉由以四氫呋喃(THF)作為溶劑之凝膠滲透層析法(GPC)，量測為聚苯乙烯換算之值。

**【0079】** 烷氧矽基改質物得藉由於前述嵌段共聚物氫化物導入烷氧矽基來製造。作為於嵌段共聚物氫化物導入烷氧矽基的方法，可舉出例如使嵌段共聚物氫化物與乙烯性不飽和矽烷化合物在過氧化物的存在下反應的方法。

**【0080】** 作為乙烯性不飽和矽烷化合物，得使用可與嵌段共聚物氫化物接枝聚合，並可於嵌段共聚物氫化物導入烷氧矽基者。作為此種乙烯性不飽和矽烷化合物之例，可列舉：乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、二甲氧基甲基乙烯基矽烷、二乙氧基甲基乙烯基矽烷等具有乙烯基的烷氧基矽烷；烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷等具有烯丙基的烷氧基矽烷；對苯乙烯基三甲氧基矽烷、對苯乙烯基三乙氧基矽烷等具有對苯乙烯基的烷氧基矽烷；3-甲基丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基三乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二乙氧基矽烷等具有3-甲基丙烯醯氧丙基的烷氧基矽烷；3-丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧丙基三乙氧基矽烷等具有3-丙烯醯氧丙基的烷氧基矽烷；2-降

苧烯-5-基三甲氧基矽烷等具有 2-降苧烯-5-基的烷氧基矽烷；等。此等之中，就可更加易於獲得本發明之效果而言，以乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、二甲氧基甲基乙烯基矽烷、二乙氧基甲基乙烯基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、對苯乙烯基三甲氧基矽烷為佳。並且，乙烯性不飽和矽烷化合物可單獨使用 1 種，亦可以任意比率組合 2 種以上使用。

**【0081】** 乙烯性不飽和矽烷化合物之量，相對於導入烷氧基矽基前之嵌段共聚物氫化物 100 重量份，以 0.1 重量份以上為佳，以 0.2 重量份以上為較佳，以 0.3 重量份以上為更佳，且以 5 重量份以下為佳，以 4 重量份以下為較佳，以 3 重量份以下為更佳。

**【0082】** 作為過氧化物，得使用作為自由基反應起始劑發揮功能者。作為此種過氧化物，通常使用有機過氧化物。作為有機過氧化物，可列舉例如：過氧化二苯甲醯基、過氧乙酸三級丁酯、2,2-二(三級丁基過氧)丁烷、過氧苯甲酸三級丁酯、過氧化(三級丁基)(異丙苯基)、過氧化二異丙苯基、過氧化二(三級己基)、2,5-二甲基-2,5-二(三級丁基過氧)己烷、過氧化二(三級丁基)、氫過氧化三級丁基、過氧異丁酸三級丁酯、過氧化月桂醯基、過氧化二丙醯基、氫過氧化對蓋烷等。此等之中，以 1 分鐘半衰期溫度為 170°C ~ 190°C 者為佳，具體而言，以過氧化(三級丁基)(異丙苯基)、過氧化二異丙苯基、過氧化二(三級己基)、2,5-二甲基-2,5-二(三級丁基過氧)己烷、過氧化二(三級丁基)等為佳。並且，過氧化物可單獨使用 1 種，亦可組合 2 種以上使用。

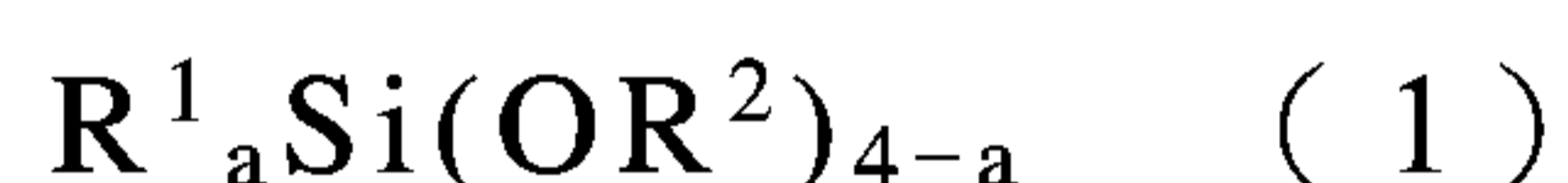
【0083】 過氧化物之量相對於導入烷氧矽基前之嵌段共聚物氫化物 100 重量份，以 0.05 重量份以上為佳，以 0.1 重量份以上為較佳，以 0.2 重量份以上為更佳，且以 2 重量份以下為佳，以 1 重量份以下為較佳，以 0.5 重量份以下為更佳。

【0084】 烷氧矽基改質物，具體而言，得藉由例如國際專利公開第 2018/003715 號所記載之方法來製造。

【0085】 [ 1.2.有機金屬化合物 ]

【0086】 有機金屬化合物係包含「金屬與碳之化學鍵」及「金屬與氧之化學鍵」之至少一者的化合物，且係具有有機基的金屬化合物。作為有機金屬化合物之例，可列舉：有機矽化合物、有機鈦化合物、有機鋁化合物及有機鋇化合物。此等之中，以有機矽化合物、有機鈦化合物及有機鋇化合物為佳，以有機矽化合物為較佳。有機金屬化合物亦可使用 1 種，或組合 2 種以上使用。

【0087】 作為有機金屬化合物，可列舉例如下述式 (1) 所示之化合物，但不受限於此。



(在式 (1) 中， $R^1$  及  $R^2$  分別獨立表示選自由氫原子、鹵素原子、碳原子數 1~10 之烴基、環氧基 (環氧乙基)、胺基、巰基 (氫硫基)、異氰酸酯基及碳原子數 1~10 之有機基而成之群組之基， $a$  表示 0~4 的整數。在有多個  $R^1$  的情況下，多個  $R^1$  亦可彼此相異。在有多個  $R^2$  的情況下，多個  $R^2$  亦可彼此相異。)

【0088】  $R^1$  以表示碳原子數 1~10 的有機基為佳，以表示包

含「選自由環氧乙基、胺基、巯基、乙烯基、異氰酸酯基、丙烯醯氧基及甲基丙烯醯氧基而成之群組之 1 個以上之基」之碳原子數 1~10 的有機基為較佳。

【0089】  $R^2$  以表示氫原子或碳原子數 1~8 的烷基為佳，以表示甲基或乙基為較佳。

【0090】 a 以表示 1 或 2 為佳，以表示 1 為較佳。

【0091】 以矽烷耦合化合物作為有機金屬化合物為尤佳。所謂矽烷耦合化合物，係有機矽化合物，包含反應性基與鍵結於矽原子的烷氧基及／或鍵結於矽原子的羥基。

【0092】 作為矽烷耦合化合物所包含之反應性基之例，可列舉：鹵素原子、乙烯基、具有氧呋環結構之基、丙烯醯氧基、甲基丙烯醯氧基、亦可具有取代基的胺基、胺甲醯胺基、異氰酸基、具有三聚異氰酸環結構之基及巯基（氫硫基）。

【0093】 所謂具有氧呋環結構之基，係於結構中具有氧呋環之基，可以單環的形式具有氧呋環結構，亦可以與其他環為稠環的形式具有之。作為具有氧呋環結構之基之例，可列舉：環氧乙基、環氧環己烷基（例如 3,4-環氧環己烷基）、環氧丙氧基。

【0094】 所謂亦可具有取代基的胺基，意謂無取代的胺基（由  $-NH_2$  所示之基）、由  $-NH-R^3$  所示之基、由  $-NR^4R^5$  所示之基或由  $-N=R^6$  所示之基。於此， $R^3$ 、 $R^4$  及  $R^5$  分別獨立表示碳原子數 1~10 之 1 價的烴基。作為由  $R^3$ 、 $R^4$  及  $R^5$  所示之碳原子數 1~10 之 1 價的烴基之例，可列舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、

正丁基、二級丁基、三級丁基、正戊基等碳原子數 1~10 的烷基；環戊基、環己基等碳原子數 3~10 的環烷基；苯基等碳原子數 6~10 的芳基；苄基等碳原子數 7~10 的芳烷基。

**【0095】** 並且， $R^6$  表示碳原子數 1~10 之 2 價的烴基。作為由  $R^6$  所示之碳原子數 1~10 之 2 價的烴基之例，可列舉：亞甲基、亞乙基、亞丙基、亞丁基、亞戊基等碳原子數 1~10 的亞烷基。

**【0096】** 於此， $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  及  $R^6$  分別獨立，亦可更具有取代基。作為  $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$  及  $R^6$  得具有之取代基之例，可列舉胺基及乙烯基。

**【0097】** 矽烷耦合化合物所包含之反應性基可直接鍵結於矽原子，亦可中介連結基而鍵結於矽原子。在矽烷耦合化合物中，作為連結反應性基與矽原子的連結基之例，可舉出碳原子數 1~10 之 2 價的烴基。作為「作為連結基之碳原子數 1~10 之 2 價的烴基之例」，可列舉：亞甲基、伸乙基、丙烷二基、丁烷二基等碳原子數 1~10 的烷二基；環戊烷二基、環己烷二基等碳原子數 3~10 的環烷二基；伸苯基等碳原子數 6~10 的伸芳基，以伸乙基、丙烷二基及伸苯基為佳。

**【0098】** 作為矽烷耦合化合物所包含之鍵結於矽原子的烷氧基之例，可列舉：甲氧基、乙氧基、丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、二級丁氧基、三級丁氧基、戊氧基等碳原子數 1~10 的烷氧基，以碳原子數 1~5 的烷氧基為佳，以甲氧基及乙氧基為較佳。

【0099】 鍵結於矽原子的烷氧基亦可更具有取代基。作為鍵結於矽原子的烷氧基亦可具有之取代基之例，可舉出碳原子數 1 ~ 4 的烷氧基。

【0100】 矽烷耦合化合物為於矽原子鍵結有 1 個烷氧基的有機矽化合物、於矽原子鍵結有 2 個烷氧基的有機矽化合物及於矽原子鍵結有 3 個烷氧基的有機矽化合物之任一者皆可。在矽烷耦合化合物包含多個鍵結於矽原子的烷氧基之情況下，該多個烷氧基可彼此相同，亦可彼此相異，但由於易於製造矽烷耦合化合物，故以彼此相同為佳。

【0101】 作為係為有機金屬化合物的矽烷耦合化合物之例，可列舉：乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、對苯乙烯基三甲氧基矽烷等包含乙烯基的有機矽化合物；2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧丙基甲基二甲氧基矽烷、3-環氧丙氧丙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧丙基甲基二乙氧基矽烷、3-環氧丙氧丙基三乙氧基矽烷等包含具有氧呋環結構之基的有機矽化合物；3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基三乙氧基矽烷等包含甲基丙烯醯氧基的有機矽化合物；3-丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷等包含丙烯醯氧基的有機矽化合物；N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基甲基二甲氧基矽烷、N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-胺基丙基三甲氧基矽烷、3-胺基丙基三乙氧基矽烷、3-三乙氧基矽基-N-(1,3-二甲基亞

PZNA-19215-TW(2019TWP3453)

丁基)丙胺、N-苯基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷、N-(乙烯基苄基)-2-胺基乙基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷鹽酸鹽等包含亦可具有取代基之胺基的有機矽化合物；3-脲基丙基三烷氧基矽烷等包含胺甲醯胺基的有機矽化合物；3-異氰酸丙酯基三乙氧基矽烷等包含異氰酸基的有機矽化合物；三聚異氰酸參(三甲氧基矽基丙基)酯等包含具有三聚異氰酸環結構之基的有機矽化合物；及3-巰基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-巰基丙基三甲氧基矽烷等包含巰基的有機矽化合物。

**【0102】** 作為矽烷耦合化合物，以包含亦可具有取代基之胺基的有機矽化合物為佳，以每一分子包含2個亦可具有取代基之胺基的有機矽化合物為較佳。於此，在矽烷耦合化合物包含具有取代基之胺基且該取代基更具有胺基的情況下，於矽烷耦合化合物所包含之亦可具有取代基之胺基的數量，包含在胺基的取代基中之胺基的數量。

**【0103】** 作為每一分子包含2個亦可具有取代基之胺基的矽烷耦合化合物之例，可列舉：N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基甲基二甲氧基矽烷、N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷及N-(乙烯基苄基)-2-胺基乙基-3-胺基丙基三甲氧基矽烷鹽酸鹽。

**【0104】** 作為有機鈦化合物之例，可列舉：鈦酸四異丙酯等烷氧化鈦、乙醯丙酮鈦等鈦螯合物、異硬脂酸鈦等醯氧鈦。

**【0105】** 作為有機鋅化合物之例，可列舉：鋅酸正丙酯等烷氧化鋅、四乙醯丙酮鋅等鋅螯合物、硬脂酸鋅等醯氧鋅。

【0106】 作為有機鋁化合物之例，可列舉二級丁基氧化鋁等烷氧化鋁、三乙醯丙酮鋁等鋁螯合物。

【0107】 有機金屬化合物相對於烷氧矽基改質物的比例，相對於烷氧矽基改質物 100 重量份，以 0.005 重量份以上為佳，以 0.01 重量份以上為較佳，以 0.03 重量份以上為更佳，且以 1.0 重量份以下為佳，以 0.5 重量份以下為較佳。藉由將有機金屬化合物的比例定為前述範圍，得更加有效提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的密合性。

【0108】 得使用例如：信越化學工業公司製之 KBE 系列及 KBM 系列、Matsumoto Fine Chemical Co., Ltd.製之 ORGATIX（註冊商標）系列等市售品作為前述有機金屬化合物。

【0109】 [ 1.3.任意成分 ]

【0110】 樹脂組成物得於前述烷氧矽基改質物及有機金屬化合物以外包含添加劑、溶劑等任意成分。

【0111】 作為添加劑之例，可列舉：抗氧化劑、紫外線吸收劑、光穩定劑等穩定劑；滑劑等樹脂改質劑；染料或顏料等著色劑；及抗靜電劑。此等添加劑可單獨使用 1 種，或組合 2 種以上使用。添加劑的摻合量得適當選擇，但良佳為相對於烷氧矽基改質物 100 重量份，以 30 重量份以下為佳，以 20 重量份以下為較佳，以 10 重量份以下為更佳。藉由將添加劑的摻合量定為前述範圍，得更加有效提升由樹脂組成物所形成之樹脂薄膜的密合性。

【0112】 作為樹脂組成物得包含之溶劑之例，可列舉：己烷、



環己烷、甲基環己烷、乙基環己烷等脂族及脂環烴溶劑；苯、甲苯、二甲苯等芳烴溶劑；四氫呋喃等醚溶劑。溶劑可單獨使用 1 種，或組合 2 種以上使用。在樹脂組成物中之溶劑的比例得考慮樹脂組成物所包含之成分的溶解性等而適當選擇。在樹脂組成物中之溶劑的比例，舉例而言，相對於烷氧矽基改質物 100 重量份，以 150 重量份以上為佳，以 200 重量份以上為較佳，且以 500 重量份以下為佳，以 400 重量份以下為較佳。

**【0113】** [ 1.4.樹脂組成物的製造方法 ]

**【0114】** 樹脂組成物得因應樹脂組成物所包含之成分的性質藉由從前眾所周知的方法來製造。舉例而言，樹脂組成物得藉由「使用擠製機等將樹脂組成物之成分熔融混合的方法」、「於溶劑添加溶劑以外之樹脂組成物之成分而混合的方法」等來製造。

**【0115】** [ 2.樹脂薄膜 ]

**【0116】** 本發明之一實施型態相關之樹脂薄膜係由前述樹脂組成物所形成。因此，樹脂薄膜得包含烷氧矽基改質物及有機金屬化合物。

**【0117】** 樹脂薄膜得藉由熔融擠製法、溶液流延法、塗布法等任意方法，由樹脂組成物所形成。

**【0118】** 在樹脂組成物包含溶劑的情況下，得藉由形成樹脂組成物之層體並使此樹脂組成物之層體乾燥，來形成樹脂薄膜。

**【0119】** 樹脂薄膜的厚度可因應樹脂薄膜的用途而任意設定，但以 1  $\mu\text{m}$  以上為佳，以 3  $\mu\text{m}$  以上為較佳，且以 50  $\mu\text{m}$  以下為佳，

以 20  $\mu\text{m}$  以下為較佳。

【0120】 樹脂薄膜由於與作為基材薄膜之各種薄膜的密合性優異，故作為例如各種光學元件薄膜（例如偏光件薄膜）的保護薄膜為有用。

【0121】 [ 3.堆疊體 ]

【0122】 本發明之一實施型態相關之堆疊體包含前述樹脂薄膜與基材薄膜，前述樹脂薄膜直接接觸於前述基材薄膜之面。圖 1 係繪示本實施型態相關之堆疊體的剖面示意圖。堆疊體 100 具備基材薄膜 101 與設置成接觸於基材薄膜 101 之面 101U 的樹脂薄膜 102。

【0123】 作為基材薄膜的材料，並不特別受限，得使用包含各種聚合物的樹脂。作為聚合物之例，可列舉：含脂環結構聚合物；聚對酞酸乙二酯（PET）等聚酯；三乙酸纖維素等纖維素酯；聚甲基丙烯酸甲酯等丙烯酸聚合物；聚乙烯醇；聚碳酸酯；聚醯亞胺；聚砜；聚醚砜；環氧聚合物；聚苯乙烯；及此等之組合。基材薄膜得藉由熔融擠製法、溶液流延法、塗布法等任意方法來形成。基材薄膜亦可進行表面處理（例如電暈處理、電漿處理、皂化處理、底塗處理、錨式塗覆處理）、延伸處理、染色處理等任意處理。

【0124】 基材薄膜可為單層結構，亦可為多層結構。

【0125】 基材薄膜的厚度得適當選擇，但以 1  $\mu\text{m}$  以上為佳，以 5  $\mu\text{m}$  以上為較佳，以 10  $\mu\text{m}$  以上為更佳，且以 1000  $\mu\text{m}$  以下

為佳，以 500  $\mu\text{m}$  以下為較佳，以 110  $\mu\text{m}$  以下為更佳，以 100  $\mu\text{m}$  以下為尤佳。

**【0126】** 本實施型態之堆疊體所具備的樹脂薄膜係由包含前述烷氧矽基改質物與有機金屬化合物之樹脂組成物所形成的薄膜。

**【0127】** 堆疊體得藉由從前眾所周知的方法來製造。作為製造方法之例，可列舉：（1）製造基材薄膜與樹脂薄膜，隨後藉由壓合等來堆疊基材薄膜與樹脂薄膜以製造堆疊體的方法、（2）於基材薄膜之至少一面塗布包含溶劑的樹脂組成物以形成樹脂組成物之層體，隨後使該樹脂組成物之層體乾燥以形成樹脂薄膜，藉此製造堆疊體的方法。就使樹脂薄膜對基材薄膜的密合性有效發揮的觀點而言，堆疊體以藉由前述（2）的方法來製造為佳。

**【0128】** 作為於基材薄膜之面塗布包含溶劑之樹脂組成物的方法之例，可列舉：溶液塗覆、乳液塗覆及熔融擠製塗覆，就能以高速塗布而可獲得均勻之厚度的樹脂薄膜而言，以溶液塗覆為佳。所塗布之樹脂組成物之層體的厚度得因應對於樹脂薄膜所要求之期望的厚度適度設定。

**【0129】** 作為使樹脂組成物之層體乾燥的方法之例，可列舉：加熱乾燥、減壓乾燥、加熱減壓乾燥及自然乾燥。

**【0130】** 另一實施型態相關之堆疊體依序包含第 1 樹脂薄膜、基材薄膜與第 2 樹脂薄膜，第 1 樹脂薄膜直接接觸於前述基材薄膜之一面，第 2 樹脂薄膜直接接觸於基材薄膜之另一面。

**【0131】** 本實施型態之堆疊體由於在兩面設置有密合性優異

的樹脂薄膜，故兩面得因樹脂薄膜而受到良好保護。

**【0132】** 『實施例』

**【0133】** 以下揭示實施例以具體說明本發明。惟本發明並非受限於以下所揭示之實施例者，在不脫離本發明之申請專利範圍及其均等之範圍的範圍內，得任意變更而實施。

**【0134】** 在以下說明中，表示量的「%」及「份」，除非另有註記，否則係重量基準。並且，以下所說明之操作，除非另有註記，否則在常溫及常壓的條件下進行。

**【0135】** [ 評價方法 ]

**【0136】** ( 重量平均分子量 (  $M_w$  ) 及數量平均分子量 (  $M_w / M_n$  ) )

**【0137】** 嵌段共聚物及嵌段共聚物氫化物的分子量，係在 38 °C 量測為藉由以 THF 作為溶析液之 GPC 的標準聚苯乙烯換算值。使用東曹公司製「HLC8020GPC」作為量測裝置。

**【0138】** ( 氫化率 )

**【0139】** 量測嵌段共聚物及嵌段共聚物氫化物的  $^1\text{H-NMR}$  光譜，算出嵌段共聚物氫化物的氫化率。

**【0140】** ( 厚度的量測方法 )

**【0141】** 堆疊體所包含之各薄膜的厚度，使用厚度計 ( Mitutoyo Corporation 公司製，商品名「ABS 數位型測厚計 ( 547-401 ) 」 ) 量測 5 次，將其平均值定為各薄膜的厚度。

**【0142】** ( 密合性的評價 )

【0143】 依據 JIS K5400：1990（棋盤格試驗），於樹脂薄膜（樹脂層）切出 1 mm×1 mm 之 100 方格的切痕，實施棋盤格試驗。在剝落之方格的數量多於 20 方格的情況下，評價為密合性不良。在樹脂薄膜（樹脂層）形成後，將樹脂薄膜放置於下述條件下，進行密合性的評價。

（1 天後）將樹脂薄膜靜置於大氣中 1 天後

（5 天後）將樹脂薄膜靜置於大氣中 5 天後

（耐濕熱試驗後）將樹脂薄膜靜置於大氣中 5 天後，進一步在溫度 60℃、相對濕度 90% 的環境下靜置 500 小時後

【0144】〔製造例 1〕嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物〔S1〕的製造

【0145】（嵌段共聚物的製造）

【0146】準備具備攪拌裝置的反應器，將內部充分氮氣置換。於此反應器，放入脫水環己烷 400 份、脫水苯乙烯 10 份及二丁基醃 0.475 份。將容器內容物在 60℃ 攪拌，同時於其加入正丁基鋰（15%環己烷溶液）0.90 份以使聚合起始。隨後，將容器內之反應液在 60℃ 攪拌，同時耗時 40 分鐘將脫水苯乙烯 15 份連續添加於反應液以使聚合反應進行。添加脫水苯乙烯之後，進一步在 60℃ 繼續攪拌反應液 20 分鐘。利用氣體層析法（GC）分析在此時點之反應液，結果聚合轉化率為 99.5%。

【0147】隨後，於反應液，耗時 130 分鐘連續添加脫水異戊二烯 50 份。添加脫水異戊二烯之後，就此繼續攪拌反應液 30 分

鐘。利用 GC 分析在此時點之反應液，結果聚合轉化率為 99.5%。

【0148】 隨後，進一步耗時 70 分鐘將脫水苯乙烯 25 份連續添加於反應液。添加脫水苯乙烯之後，就此繼續攪拌反應液 60 分鐘。利用 GC 分析在此時點之反應液，結果聚合轉化率為幾乎 100%。

【0149】 隨後，於反應液，加入異丙醇 0.5 份以使反應終止，獲得包含嵌段共聚物的聚合物溶液。此聚合物溶液所包含之嵌段共聚物〔J1〕，係包含苯乙烯單元之聚合物嵌段〔A〕—包含異戊二烯單元之聚合物嵌段〔B〕—包含苯乙烯單元之聚合物嵌段〔A〕型的三嵌段共聚物。嵌段共聚物〔J1〕的重量平均分子量（Mw）為 45,300，分子量分布（Mw/Mn）為 1.04， $w_A/w_B = 50/50$ 。

【0150】 於此， $w_A$  表示嵌段共聚物〔J1〕之整體中芳族乙烯化合物單元（苯乙烯單元）所佔的重量分率， $w_B$  表示嵌段共聚物〔J1〕之整體中鏈狀共軛二烯化合物單元（異戊二烯單元）所佔的重量分率。

【0151】 （嵌段共聚物氫化物的製造）

【0152】 隨後，將前述聚合物溶液轉移至具備攪拌裝置的耐壓反應器。於聚合物溶液添加矽藻土承載型鎳觸媒（製品名「E22U」，日揮觸媒化成公司製，鎳承載量 60%）7.0 份及脫水環己烷 80 份作為氫化觸媒並混合，獲得混合物。將反應器內部以氫氣置換，隨後，在攪拌混合物的同時將氫氣供給於反應器內，於溫度 150°C、壓力 3.0 MPa 進行氫化反應 1 小時，隨後升溫升壓至溫度 190°C、壓力 4.5 MPa，進行氫化反應 6 小時，獲得包含

嵌段共聚物氫化物〔H1〕的反應混合物。所獲得之反應混合物中之嵌段共聚物氫化物〔H1〕的重量平均分子量（Mw）為 47,900，分子量分布（Mw/Mn）為 1.06。

【0153】 氫化反應結束後，過濾所獲得之反應混合物以去除氫化觸媒，獲得濾液，於所獲得之濾液添加溶解有「係為酚系抗氧化劑之肆{3-[3,5-二(三級丁基)-4-羥基苯基]丙酸}新戊四醇酯（製品名「AO60」，ADEKA 公司製）0.1 份」的二甲苯溶液 2.0 份並使之溶解，獲得溶液。

【0154】 隨後，利用金屬纖維製過濾器（孔徑 0.4 μm，NICHIDAI 公司製）過濾前述溶液以去除微小的固體成分。隨後，使用圓筒型濃縮乾燥器（製品名「KONTRO」，日立製作所公司製），在溫度 260°C、壓力 0.001 MPa 以下自溶液去除環己烷、二甲苯及其他揮發成分。自直接連接於濃縮乾燥器的模具擠製熔融樹脂，水冷後，利用水中切割機裁切做成顆粒狀，添加約 100 ppm 之伸乙雙硬脂醯胺的微粉作為抗結塊劑，製造嵌段共聚物氫化物〔H1〕的顆粒 95 份。

【0155】 所獲得之顆粒狀的嵌段共聚物氫化物〔H1〕，重量平均分子量（Mw）為 47,400，分子量分布（Mw/Mn）為 1.10，鏈狀共軛二烯化合物單元之雙鍵（主鏈及側鏈的雙鍵、非芳香性碳—碳不飽和鍵）的氫化率及芳香性碳—碳不飽和鍵的氫化率皆為幾乎 100%。

【0156】 （烷氧矽基改質物的製造）

【0157】 對於所獲得之嵌段共聚物氫化物〔H1〕的顆粒 100 份，添加乙烯基三甲氧基矽烷（製品名「KBM-1003」，信越化學工業公司製）2.0 份及 2,5-二甲基-2,5-二(三級丁基過氧)己烷（製品名「PERHEXA（註冊商標）25B」，日油公司製）0.1 份，獲得混合物。使用雙軸擠製機（製品名「TEM37B」，東芝機械公司製），將此混合物以樹脂溫度 210°C、滯留時間 60 秒鐘以上且 70 秒鐘以下混練。將所獲得之混練物擠製成股狀，空氣冷卻後，利用造粒機切割，獲得已導入烷氧矽基之嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物〔S1〕的顆粒 96 份。

【0158】 使烷氧矽基改質物〔S1〕的顆粒 0.00001 份溶解於環己烷 0.001 份，隨後將所獲得之溶液注入脫水甲醇 0.004 份中，使烷氧矽基改質物〔S1〕凝聚，並將所獲得之凝聚物濾出。將濾出之凝聚物在 25°C 真空乾燥，獲得經純化的烷氧矽基改質物〔S1〕0.000009 份。

【0159】 於烷氧矽基改質物〔S1〕的 FT-IR 光譜中，在與乙烯基三甲氧基矽烷之源自 Si-OCH<sub>3</sub> 基、Si-CH 基之吸收帶( 1075 cm<sup>-1</sup>、808 cm<sup>-1</sup> 及 766 cm<sup>-1</sup>) 相異的位置，觀察到在 1090 cm<sup>-1</sup> 源自 Si-OCH<sub>3</sub> 基、在 825 cm<sup>-1</sup> 及 739 cm<sup>-1</sup> 源自 Si-CH<sub>2</sub> 基的新吸收帶。

【0160】 並且，量測烷氧矽基改質物〔S1〕的 <sup>1</sup>H-NMR 光譜（氘代氯仿中），結果在 3.6 ppm 觀察到依據甲氧基之質子的峰值。自峰值面積比，確認到對於嵌段共聚物氫化物〔H1〕100 份，



已鍵結乙烯基三甲氧基矽烷 1.8 份。

【0161】〔製造例 2〕嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物〔S2〕的製造

【0162】（嵌段共聚物的製造）

【0163】除了變更下述事項以外，藉由與製造例 1（嵌段共聚物的製造）相同的程序，獲得包含嵌段共聚物〔J2〕的聚合物溶液。

・將正丁基鋰（15%環己烷溶液）之量自 0.90 份變更為 0.80 份。

【0164】此聚合物溶液所包含之嵌段共聚物〔J2〕係包含苯乙烯單元之聚合物嵌段〔A〕—包含異戊二烯單元之聚合物嵌段〔B〕—包含苯乙烯單元之聚合物嵌段〔A〕型的三嵌段共聚物。嵌段共聚物〔J2〕的重量平均分子量（Mw）為 51,900，分子量分布（Mw / Mn）為 1.04，wA : wB = 50 : 50。

【0165】隨後，將前述聚合物溶液轉移至具備攪拌裝置的耐壓反應器。於聚合物溶液添加「在甲苯 1.0 份中混合二氯化雙(環戊二烯基)鈦 0.042 份與氯化二乙基鋁 0.122 份而獲得」之溶液作為氫化觸媒並混合，獲得混合物。將反應器內部以氫氣置換，隨後在攪拌混合物的同時將氫氣供給於反應器內，於溫度 90℃、壓力 1.0 MPa 進行氫化反應 5 小時，獲得包含嵌段共聚物氫化物〔H2〕的反應溶液。

【0166】所獲得之反應溶液中之嵌段共聚物氫化物〔H2〕的

重量平均分子量( $M_w$ )為 55,000，分子量分布( $M_w/M_n$ )為 1.05。

【0167】 氫化反應結束後，於所獲得之反應溶液添加水 0.10 份，在 60°C 攪拌 60 分鐘。隨後，將反應溶液冷卻至 30°C 以下，添加活化黏土（製品名「GALLEON EARTH（註冊商標）」，水澤化學工業公司製）1.5 份及滑石（製品名「MICRO ACE（註冊商標）」，日本滑石公司製）1.5 份並過濾，以自反應溶液去除不溶物，獲得濾液。於所獲得之濾液添加溶解有「係為酚系抗氧化劑之肆{3-[3,5-二(三級丁基)-4-羥基苯基]丙酸}新戊四醇酯 0.1 份」的二甲苯溶液 2.0 份並使之溶解，獲得溶液。

【0168】 隨後，將前述溶液比照製造例 1 處理，製造嵌段共聚物氫化物〔H2〕的顆粒 96 份。

【0169】 所獲得之顆粒狀之嵌段共聚物氫化物〔H2〕，重量平均分子量( $M_w$ )為 54,400，分子量分布( $M_w/M_n$ )為 1.08，鏈狀共軛二烯化合物單元的雙鍵（主鏈及側鏈的雙鍵、非芳香性碳—碳不飽和鍵）的氫化率為 99%，芳香性碳—碳不飽和鍵的氫化率為未達 3%。

【0170】 （烷氧矽基改質物的製造）

【0171】 除了變更下述事項以外，藉由與製造例 1（烷氧矽基改質物的製造）相同的程序，獲得烷氧矽基改質物〔S2〕的顆粒 93 份。

• 使用嵌段共聚物氫化物〔H2〕的顆粒代替嵌段共聚物氫化物〔H1〕。

【0172】 量測所獲得之烷氧矽基改質物〔S2〕的<sup>1</sup>H-NMR光譜，結果確認到對於嵌段共聚物氫化物〔H2〕100份，已鍵結乙烯基三甲氧基矽烷1.8份。

【0173】 〔實施例1〕

【0174】 （塗布液的製備）

【0175】 使在製造例1中製造之烷氧矽基改質物〔S1〕的顆粒100重量份溶解於300重量份的環己烷，獲得樹脂溶液。隨後，於所獲得之樹脂溶液，添加0.05重量份的N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」，信越化學工業公司製，有機矽化合物（矽烷耦合化合物）），攪拌1小時，獲得作為樹脂組成物之樹脂薄膜形成用（樹脂層形成用）的塗布液。

【0176】 （堆疊體的製造）

【0177】 準備長條狀之聚對酞酸乙二酯（PET）薄膜（東洋紡公司製「A4300」，厚度50 μm）作為基材薄膜。對基材薄膜之一面施加電暈處理，並於施加過電暈處理之面，使用模具塗布機塗布塗布液，形成塗布層。塗布層的厚度以可獲得厚度10 μm之樹脂薄膜（樹脂層）的方式調整。隨後，使塗布層加熱乾燥，形成厚度10 μm的樹脂薄膜（樹脂層），獲得具備基材薄膜與樹脂薄膜之幅寬600 mm的長條狀之堆疊體。在堆疊體中，樹脂薄膜直接接觸於基材薄膜之一面。

【0178】 對於所獲得之堆疊體，利用前述方法評價密合性。

【0179】 〔實施例2〕

【0180】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 使用長條狀之三乙酸纖維素 (TAC) 薄膜 (FUJIFILM 公司製「FUJITAC」，厚度 40  $\mu\text{m}$ ) 作為基材薄膜。

【0181】 [ 實施例 3 ]

【0182】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 使用長條狀之丙烯酸樹脂 (Ac) 薄膜 (厚度 50  $\mu\text{m}$ ) 作為基材薄膜。

【0183】 丙烯酸樹脂薄膜以下述程序製造。

【0184】 準備聚甲基丙烯酸甲酯樹脂 (L) (住友化學公司製，商品名「SUMIPEX (註冊商標) HT20Y」)。並且，準備耐熱性較樹脂 (L) 高的聚甲基丙烯酸甲酯樹脂 (H) (住友化學公司製，商品名「SUMIPEX MH」)。對可由 2 種樹脂形成 3 層擠製薄膜的多層共擠製裝置之 T 字模，以可獲得樹脂 (L) / 樹脂 (H) / 樹脂 (L) 之層體結構的擠製薄膜之方式，供給樹脂 (L) 及樹脂 (H)。自 T 字模，分別以擠製量 20 kg/hr 及 10 kg/hr 使樹脂 (L) 及樹脂 (H) 排出，將已排出之薄膜以鏡面輥承接並冷卻，獲得厚度 50  $\mu\text{m}$  之 3 層結構的丙烯酸樹脂薄膜。

【0185】 [ 實施例 4 ]

【0186】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 使用長條狀之聚乙烯醇 (PVA) 薄膜 (厚度 60  $\mu\text{m}$ ) 作為基材薄膜。

【0187】 [ 實施例 5 ]

【0188】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 使用長條狀之聚碳酸酯 (PC) 薄膜 (惠和股份有限公司製，商品名「OPCON」，厚度 110  $\mu\text{m}$ ) 作為基材薄膜。

【0189】 [ 實施例 6 ]

【0190】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，使用 3-胺基丙基三甲氧基矽烷 (信越化學工業公司製「KBM903」，有機矽化合物) 代替 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷 (「KBM603」)。

【0191】 [ 實施例 7 ]

【0192】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，使用 3-環氧丙氧丙基三甲氧基矽烷 (信越化學工業公司製「KBM403」，有機矽化合物) 代替 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷 (「KBM603」)。

【0193】 [ 實施例 8 ]

【0194】 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，使用鋇酸正丙酯（Matsumoto Fine Chemical Co., Ltd.製「ORGATIX ZA-45」，有機鋇化合物）代替 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）。

【0195】〔實施例 9〕

【0196】除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，使用鈦酸四異丙酯（Matsumoto Fine Chemical Co., Ltd.製「ORGATIX TA-8」，有機鈦化合物）代替 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）。

【0197】〔實施例 10〕

【0198】除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，使用在製造例 2 中製造的烷氧矽基改質物〔S2〕代替烷氧矽基改質物〔S1〕。

【0199】〔比較例 1〕

【0200】除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，將 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）定為 0 重量份。

【0201】〔比較例 2〕

【0202】除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

- 在塗布液的製備中，將 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）定為 0 重量份。

- 使用長條狀之三乙酸纖維素薄膜（FUJIFILM 公司製「FIJITAC」，厚度 40  $\mu\text{m}$ ）作為基材薄膜。

**【0203】** 〔比較例 3〕

**【0204】** 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

- 在塗布液的製備中，將 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）定為 0 重量份。

- 使用長條狀之丙烯酸樹脂（Ac）薄膜（厚度 50  $\mu\text{m}$ ）作為基材薄膜。丙烯酸樹脂薄膜與在實施例 3 中製造的丙烯酸樹脂薄膜相同。

**【0205】** 〔比較例 4〕

**【0206】** 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

- 在塗布液的製備中，將 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）定為 0 重量份。

- 使用長條狀之聚乙烯醇（PVA）薄膜（厚度 60  $\mu\text{m}$ ）作為基材薄膜。

**【0207】** 〔比較例 5〕

**【0208】** 除了變更下述事項以外，比照實施例 1 操作獲得堆疊體，評價密合性。

• 在塗布液的製備中，將 N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷（「KBM603」）定為 0 重量份。

• 使用長條狀之聚碳酸酯（PC）薄膜（惠和股份有限公司製，商品名「OPCON」，厚度 110 μm）作為基材薄膜。

**【0209】** 〔評價結果〕

**【0210】** 實施例及比較例的結果揭示於下述表。

**【0211】** 表中的代號表示下述意義。

「S1」：烷氧矽基改質物〔S1〕

「S2」：烷氧矽基改質物〔S2〕

「KBM603」：N-(2-胺基乙基)-3-胺基丙基三甲氧基矽烷

「KBM903」：3-胺基丙基三甲氧基矽烷

「KBM403」：3-環氧丙氧丙基三甲氧基矽烷

「PET」：聚對酞酸乙二酯薄膜

「TAC」：三乙酸纖維素薄膜

「Ac」：丙烯酸樹脂薄膜

「PVA」：聚乙烯醇薄膜

「PC」聚碳酸酯薄膜

**【0212】** 並且，表中的密合性評價係以未剝離之方格數量 X 相對於 100 方格的比例（X/100）之形式表示。



## 【0213】 『表 1』

表 1

	樹脂	有機金屬化合物	基材 薄膜	密合性 評價 (1 天後)	密合性 評價 (5 天後)	密合性 評價 (耐濕熱 試驗後)
實施例 1	S1	有機矽化合物 (KBM603)	PET	100/100	100/100	100/100
實施例 2	S1	有機矽化合物 (KBM603)	TAC	100/100	100/100	100/100
實施例 3	S1	有機矽化合物 (KBM603)	Ac	100/100	100/100	100/100
實施例 4	S1	有機矽化合物 (KBM603)	PVA	100/100	100/100	100/100
實施例 5	S1	有機矽化合物 (KBM603)	PC	100/100	100/100	100/100
實施例 6	S1	有機矽化合物 (KBM903)	PET	90/100	100/100	90/100
實施例 7	S1	有機矽化合物 (KBM403)	PET	80/100	90/100	80/100
實施例 8	S1	有機鋇化合物	PET	80/100	90/100	80/100
實施例 9	S1	有機鈦化合物	PET	80/100	90/100	80/100
實施例 10	S2	有機矽化合物 (KBM603)	PET	90/100	100/100	90/100
比較例 1	S1	無	PET	20/100	20/100	0/100
比較例 2	S1	無	TAC	20/100	20/100	0/100
比較例 3	S1	無	Ac	10/100	10/100	0/100
比較例 4	S1	無	PVA	10/100	10/100	0/100
比較例 5	S1	無	PC	0/100	0/100	0/100

【0214】 根據以上結果，可知以下內容。

【0215】 使用了包含指定之樹脂與有機金屬化合物之樹脂組成物的實施例相關之堆疊體，相較於使用了不含有機金屬化合物

之樹脂組成物的比較例相關之堆疊體，密合性顯著優異。

【0216】 再者，使用了包含胺基之矽烷耦合化合物作為有機矽化合物的實施例 1~6 及實施例 10 相關之堆疊體，相較於使用了不含胺基之矽烷耦合化合物的實施例 7，密合性優異。尤其，使用了每一分子包含 2 個胺基之矽烷耦合化合物的實施例 1，相較於使用了每一分子包含 1 個胺基之矽烷耦合化合物的實施例 6，密合性優異。

【0217】 並且，使用了每一分子包含 2 個胺基之矽烷耦合化合物作為有機矽化合物且使用了改質物〔S1〕的實施例 1~5，在耐濕熱試驗後的密合性評價相較於實施例 6~10 來得優異。

【0218】 以上結果係表示包含指定之烷氧矽基改質物與有機金屬化合物的樹脂組成物得製造密合性優異的樹脂薄膜及堆疊體者。

#### 【符號說明】

##### 【0219】

100	堆疊體
101	基材薄膜
102	樹脂薄膜
101U	面

## 【發明申請專利範圍】

【第1項】 一種樹脂組成物，其係包含  
嵌段共聚物氫化物之烷氧矽基改質物與  
有機金屬化合物  
的樹脂組成物，

前述嵌段共聚物氫化物係包含「包含芳族乙烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔A〕」與「包含鏈狀共軛二烯化合物單元作為主成分之聚合物嵌段〔B〕」的嵌段共聚物經氫化的物質。

【第2項】 如請求項 1 所述之樹脂組成物，其中前述嵌段共聚物每一分子包含至少 2 個前述聚合物嵌段〔A〕與至少 1 個前述聚合物嵌段〔B〕。

【第3項】 如請求項 1 或 2 所述之樹脂組成物，其中在前述嵌段共聚物中之前述芳族乙烯化合物單元的含有重量相對於前述鏈狀共軛二烯化合物單元的含有重量之比率（芳族乙烯化合物單元／鏈狀共軛二烯化合物單元）為 30／70 以上且 60／40 以下。

【第4項】 如請求項 1 或 2 所述之樹脂組成物，其中前述嵌段共聚物氫化物係在前述嵌段共聚物中之芳香性碳—碳不飽和鍵的 90% 以上及在前述嵌段共聚物中之非芳香性碳—碳不飽和鍵的 90% 以上經氫化的物質。

【第5項】 如請求項 1 或 2 所述之樹脂組成物，其中前述有機金屬化合物係矽烷耦合化合物。

【第6項】如請求項 5 所述之樹脂組成物，其中前述矽烷耦合化合物包含亦可具有取代基的胺基。

【第7項】如請求項 6 所述之樹脂組成物，其中前述矽烷耦合化合物每一分子包含 2 個亦可具有取代基的胺基。

【第8項】一種樹脂薄膜，其係由如請求項 1 至 7 之任一項所述之樹脂組成物所形成者。

【第9項】一種堆疊體，其包含如請求項 8 所述之樹脂薄膜與基材薄膜，前述樹脂薄膜直接接觸於前述基材薄膜之面。

【發明圖式】

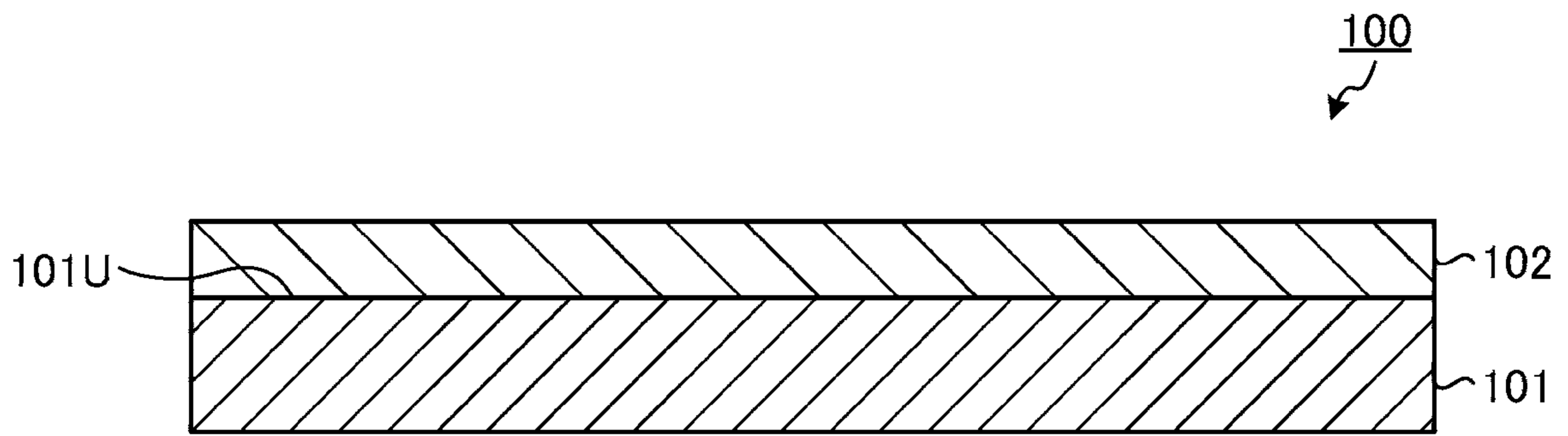


圖 1