I838691

(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 I838691 B**

(45)公告日： 中華民國 113 (2024) 年 04 月 11 日

(21)申請案號：111104660 (22)申請日： 中華民國 111 (2022) 年 02 月 09 日

(51)Int. Cl.： ***C09J7/35*** ***(2018.01)*** ***C09J163/02*** ***(2006.01)***

B32B7/12 ***(2006.01)***

(30)優先權：2021/02/10 日本 2021-020100

(71)申請人：日商力森諾科股份有限公司 (日本) RESONAC CORPORATION (JP)

日本國

(72)發明人：新林良太 NIIBAYASHI, RYOTA (JP) ；高橋信行 TAKAHASHI, NOBUYUKI (JP) ；齋藤勇人 SAITO, HAYATO (JP) ；黒木一博 KUROKI, KUNIHIRO (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

TW 202024165A CN 111971343A

審查人員：陳瀅安

申請專利範圍項數：6 項 圖式數：1 共 28 頁

(54)名稱

熔接薄膜及接合體

(57)摘要

一種熔接薄膜，其係由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜，前述苯氧基樹脂的 z 平均分子量為 70,000 以上，前述苯氧基樹脂的 z 平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為 5.0 以上。

公告本

I838691

【發明摘要】

【中文發明名稱】

熔接薄膜及接合體

【中文】

一種熔接薄膜，其係由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜，前述苯氧基樹脂的z平均分子量為70,000以上，前述苯氧基樹脂的z平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為5.0以上。

【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】

熔接薄膜及接合體

【技術領域】

【0001】本發明係關於將同種或異種的樹脂材、同種或異種的金屬、金屬與樹脂之間堅固地進行熔接之用途為適合的熔接薄膜。

【先前技術】

【0002】近年，由於製品之輕量化及低成本化等的觀點，在汽車零件、醫療機器、家電製品等的樹脂零件彼此間、金屬彼此間、樹脂零件與金屬之間之接合當中，進行著適用以往的機械性接合以外的接合方法。作為將樹脂或金屬材料相互進行接合的機械性接合方法以外的技術手段，使用接著劑接合、超音波熔接、振動熔接、熱熔接、熱風熔接、感應熔接、射出熔接等的熔接，熔接特別是簡便性高且對於生產性而言為有用的接合方法。

【0003】以往，使用熱溶膠、環氧系樹脂、反應型聚胺基甲酸酯系樹脂等來作為熔接材料。熱溶膠則是以數平均分子量、重量平均分子量作為指標來進行開發，已檢討了各式各樣的調配等(例如專利文獻1)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0004】

[專利文獻1]日本特開2020-41100號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0005】前述熱溶膠具有下述之問題：無法得到充分的熔接強度、需以特殊方法來進行事前處理等且耗時等，而無法得到令人滿足的性能。又，若使用環氧系樹脂或反應型聚胺基甲酸酯系樹脂的交聯反應時，則需要嚴格的作業時間及水分等的管理，而具有所謂的作業變得繁瑣之課題。又，就作業簡便性之觀點而言，期望著使熔接劑予以薄膜化，但該等使用交聯反應的環氧系樹脂或反應型聚胺基甲酸酯系樹脂的保形性為差，具有所謂的難以薄膜化之課題。

【0006】本發明係有鑑於如此般的實情所完成之發明，以提供熔接強度及保形性為優異的熔接薄膜，以及使用該熔接薄膜而成的接合體及其製造方法為目的。

[解決課題之手段]

【0007】本發明人為了解決前述課題經深入研究之結果發現，由z平均分子量、及z平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為特定值以上的苯氧基樹脂來構成熔接薄膜，則可解決前述課題。

【0008】即，本申請案之揭示為關於下述。

[1].一種熔接薄膜，其係由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜，前述苯氧基樹脂的z平均分子量為70,000以上，前述苯氧基樹脂的z平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為5.0以上。

[2].如上述[1]記載之熔接薄膜，其中，前述熔接薄膜的厚度為1~1000μm。

[3].如上述[1]或[2]記載之熔接薄膜，其中，使前述熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間之際的拉伸剪切強度，在依據JIS K 6850:1999的試驗中為10MPa以上。

[4].一種接合體，其係使上述[1]~[3]中任一項記載之熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間而成。

[5].如上述[4]記載之接合體，其中，前述第一基材及前述第二基材係皆由選自鋁、鐵、纖維強化塑膠、玻璃、陶瓷、聚丙烯、聚碳酸酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚醚醯亞胺、聚醯胺及聚對苯二甲酸丁二酯之至少1種來構成。

[6].一種如上述[4]或[5]記載之接合體之製造方法，其係以選自由加熱、熱壓、超音波熔接及高頻感應熔接所成之群組中之至少1種之方法，來使熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間。

[發明的效果]

【0009】藉由本發明，可提供熔接強度及保形性為優異的熔接薄膜，以及使用該熔接薄膜而成的接合體及其製造方法。

【圖式簡單說明】

【0010】

[圖1]表示本發明的一實施形態的接合體之構成之說明圖。

【實施方式】

[實施發明之最佳形態]

【0011】以下，對於本發明以一邊參照一實施形態，一邊進行詳細說明。

本說明書中，所謂的接合意指物與物之連結，接著及熔接係其下位概念。所謂的接著意指經由如膠帶及接著劑般之有機材(熱硬化性樹脂及熱塑性樹脂等)，將2個被接著材(欲被接著者)成為接合狀態。

【0012】

<熔接薄膜>

本實施形態的熔接薄膜，其特徵在於，由苯氧基樹脂來構成，該苯氧基樹脂的z平均分子量為70,000以上，前述苯氧基樹脂的z平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為5.0以上。

【0013】前述苯氧基樹脂的z平均分子量(Mz)為70,000以上。當前述Mz未滿70,000時，將會有薄膜成型性之降低及熔接強度之降低之疑慮。就薄膜成型性之提升、及熔接強度之提高之觀點而言，前述Mz較佳為

70,000~800,000，又較佳為70,000~600,000，更佳為70,000~400,000，又更佳為80,000~250,000。

尚，本說明書中，可藉由使用下述之裝置之手法來測量前述的Mz、後述的Mn及Mw，所述之裝置係利用具有細孔的管柱來分離不同的分子大小之裝置，具體而言可藉由實施例記載之方法來測量。

【0014】由於前述苯氧基樹脂的Mz為70,000以上，故推測前述苯氧基樹脂係形成三次元分支的樹脂、與直鏈狀的樹脂為適度地混合存在之樹脂。因此，前述苯氧基樹脂的薄膜成型性為良好，由前述苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜，熔接強度為優異者。又，前述熔接薄膜的保存穩定性及修補性為優異者。

前述苯氧基樹脂亦可包含直鏈狀的相對較低分子量的樹脂。藉由包含該低分子量的樹脂，可提高熔接薄膜對於被接著材之濕潤性。

【0015】前述苯氧基樹脂的數平均分子量(Mn)較佳為6,000~30,000，又較佳為6,000~25,000，更佳為6,000~20,000，又更佳為7,000~20,000。當前述苯氧基樹脂的Mn為前述範圍內時，將會存在一定程度的形成三次元分支的樹脂，且變得容易含有相對較低分子量的樹脂，熔接強度及對於被接著材之濕潤性將成為優異者。

【0016】前述Mz與前述Mn之比[Mz/Mn]為5.0以上。當前述比[Mz/Mn]未滿5.0時，將會有薄膜成型性之降低及熔接強度之降低之疑慮。就薄膜成型性之提升、及熔接強

度之提高之觀點而言，前述比[Mz/Mn]較佳為5.0~200.0，又較佳為5.0~100.0，更佳為5.0~50.0，又更佳為5.0~35.0，又更佳為5.0~30.0，又更佳為5.0~24.0。

【0017】前述苯氧基樹脂的重量平均分子量(Mw)較佳為10,000~500,000，又較佳為20,000~300,000，更佳為25,000~150,000，又更佳為25,000~120,000，又更佳為30,000~120,000。當前述苯氧基樹脂的Mw為前述範圍內時，將會存在一定程度的形成三次元分支的樹脂，且變得容易含有相對較低分子量的樹脂，薄膜成形性及熔接強度將成為優異者。

【0018】本發明中所使用的苯氧基樹脂，前述Mz及前述比[Mz/Mn]只要分別是前述之值以上即可，並未特別限定，可舉例如藉由使2官能環氧化合物與具有2官能羥基之化合物在觸媒存在下進行反應所得到的樹脂。

【0019】作為前述2官能環氧化合物，可舉例如雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、雙酚S型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、萘型2官能環氧樹脂等的芳香族環氧樹脂；1,6-己二醇二縮水甘油醚等的脂肪族環氧樹脂。該等可單獨使用1種，亦可合併使用2種以上來使用。

特佳為雙酚A型環氧樹脂，該分子量較佳為250~6,000，又較佳為300~6,000，更佳為700~5,000。當前述分子量為此範圍內時，薄膜成型性將為良好。

【0020】作為前述具有2官能羥基之化合物，可舉例如：雙酚A、雙酚F、雙酚S、聯苯酚(biphenol)等的酚類；

乙二醇、丙二醇、二乙二醇等的脂族二醇。其中，就成本或接著性、耐水性之觀點而言，較佳為雙酚A、雙酚S，特佳為雙酚S。該等可單獨使用1種，亦可合併使用2種以上來使用。

【0021】前述具有2官能羥基之化合物之調配量，相對於前述2官能環氧化合物1.0等量，較佳為0.4~1.2等量，又較佳為0.5~1.0等量。當前述具有2官能羥基之化合物之調配量為前述範圍內時，薄膜成型性將為良好。又，苯氧基樹脂的Mz及比[Mz/Mn]將分別容易成為前述之值以上。

【0022】作為前述觸媒，可適合使用例如三乙胺、2,4,6-參(二甲基胺基甲基)酚等的3級胺；三苯基膦等的磷系化合物等。其中，就穩定性之觀點而言，較佳為三苯基膦。

前述觸媒之使用量並未特別限制，相對於2官能環氧化合物與具有2官能羥基之化合物之合計100質量份，較佳為0.01~10.00質量份，又較佳為0.10~1.00質量份，更佳為0.15~0.50質量份。

【0023】2官能環氧化合物與具有2官能羥基之化合物之反應，較佳為在50~200℃下來進行。

【0024】本發明中，除了具有2官能羥基之化合物以外，亦可使用2官能羧基化合物及2官能硫醇化合物。2官能羧基化合物，只要是分子內具有2個羧基之化合物即可，可舉例如：對苯二甲酸、間苯二甲酸等的芳香族二羧酸；草酸、琥珀酸、丙二酸、戊二酸、己二酸、癸二酸、

馬來酸、富馬酸等的脂肪族二羧酸。作為2官能硫醇化合物，只要是分子內具有2個巰基之化合物即可，可舉例如昭和電工股份有限公司製的2官能2級硫醇化合物CURRANTS MT(註冊商標)BD1：1,4-雙(3-巰基丁醯氧基)丁烷等。

【0025】

(熔接薄膜之製造方法)

本實施形態的熔接薄膜之製造方法並未特別限定，可舉例如將下述之樹脂組成物予以加熱壓縮而得到的由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜之方法等，所述之樹脂組成物係將前述2官能環氧樹脂、及前述具有2官能羥基之化合物加熱混合而得到的樹脂組成物，或是，將前述2官能環氧樹脂、及前述具有2官能羥基之化合物溶解於溶劑中，再從所得到的混合物中因應所需地去除前述溶劑而得到的固形分95質量%以上的樹脂組成物。

藉由前述製造方法，可簡便地製造由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜。又，苯氧基樹脂的Mz及比[Mz/Mn]將分別容易成為前述之值以上。

尚，本說明書中，所謂的「固形分」意指將溶劑等的揮發成分除去後的組成物中之成分。

【0026】若使用觸媒時，觸媒可與前述2官能環氧化合物、及前述具有2官能羥基之化合物同時地添加於溶劑中，亦可於前述2官能環氧樹脂、及前述具有2官能羥基之化合物溶解於溶劑後再進行添加。

作為溶劑，較佳為甲基乙基酮、環己酮、甲苯、二甲苯、丙酮等。

【0027】作為將前述樹脂組成物予以加熱壓縮之方法，可舉例如利用加熱的壓製(熱壓)等來進行壓縮之方法。

前述熱壓的溫度較佳為120~250℃，又較佳為130~200℃，更佳為140~180℃。

又，利用熱壓來將前述樹脂組成物進行壓縮之際的壓縮時間，較佳為0.5~4小時，又較佳為0.5~3小時，更佳為0.5~2小時。

【0028】本實施形態的熔接薄膜之厚度較佳為1~1000μm，又較佳為10~800μm，更佳為20~500μm。

【0029】使本實施形態的熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間之際的拉伸剪切強度，在依據JIS K 6850：1999的試驗中較佳為10MPa以上，又較佳為13MPa以上。

前述拉伸剪切強度，具體而言可藉由實施例記載之方法來測量。

【0030】

<接合體>

圖1為表示本發明的一實施形態(本實施形態)的接合體之構成之說明圖。如圖1所示般，本實施形態的接合體10係使熔接薄膜1熔接於第一基材2與第二基材3之間而成。作為前述熔接方法，可舉出選自由加熱、熱壓、超音波熔接及高頻感應熔接所成之群組中之至少1種之方法。

其中，較佳為熱壓、超音波熔接、高頻感應熔接。

【0031】前述第一基材及前述第二基材係皆以由選自鋁、鐵、纖維強化塑膠(FRP)、玻璃、陶瓷、聚丙烯、聚碳酸酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚醚醯亞胺、聚醯胺及聚對苯二甲酸丁二酯之至少1種來構成為較佳，以由選自鋁、鐵、聚碳酸酯及聚對苯二甲酸丁二酯之至少1種來構成為又較佳。

前述第一基材及前述第二基材，可由相同的材料來構成，亦可由相異的材料來構成。

【0032】以表面之污染物之去除、及/或、定錨效應為目的，前述第一基材及前述第二基材係皆以對於表面施予前處理為較佳。

作為前處理，可舉例如脫脂處理、UV臭氧處理、噴砂處理、研磨處理、電漿處理、電暈放電處理、雷射處理、蝕刻處理、火焰處理等。

作為前處理，較佳為將基材之表面洗淨之前處理或對於表面賦予凹凸之前處理。具體而言，當基材係由鋁、玻璃、陶瓷或鐵來構成時，以選自由脫脂處理、UV臭氧處理、噴砂處理、研磨處理、電漿處理、蝕刻處理所成之群組中之至少1種為較佳；當基材係由FRP、聚丙烯、聚碳酸酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚醚醯亞胺、聚醯胺或聚對苯二甲酸丁二酯來構成時，以選自由脫脂處理、UV臭氧處理、噴砂處理、研磨處理、電漿處理及電暈放電處理所成之群組中之至少1種為較佳。

前處理可僅實施1種，亦可實施2種以上。作為該等的前處理之具體方法，可使用習知之方法。

通常而言，認為在FRP之表面存在著來自於樹脂或補強材的羥基、在玻璃及陶瓷表面則原本存在著羥基，但藉由前述的前處理，將可生成新的羥基，而增加基材之表面的羥基。

【0033】前述所謂的脫脂處理意指以丙酮、甲苯等的有機溶劑等來溶解、去除基材表面的油脂等的髒汙之方法。

【0034】前述所謂的UV臭氧處理意指藉由自低壓水銀燈發光之短波長紫外線所具有之能量與藉此產生之臭氧(O_3)之力，將表面洗淨並改質之方法。玻璃之情形時，係成為進行表面之有機系雜質去除之表面洗淨法之一。一般而言，使用低壓水銀燈之洗淨表面改質裝置稱為「UV臭氧清淨機」、「UV洗淨裝置」、「紫外線表面改質裝置」等。

【0035】作為前述噴砂處理，可舉例如濕噴砂處理、噴射噴砂處理、砂石噴砂處理等。其中，濕噴砂處理與乾噴砂處理相比由於可獲得更緻密面，故為較佳。

【0036】作為前述研磨處理，可舉例如使用研磨布之拋光研磨、使用研磨紙(sandpaper)之輥研磨、電解研磨等。

【0037】前述所謂的電漿處理意指以高壓電源與桿製作電漿射束並碰撞材料表面而使分子激發成官能狀態，而

可對材料表面賦予羥基或是極性基之大氣壓電漿處理方法等。

【0038】前述所謂的電暈放電處理可舉出對高分子薄膜實施表面改質之方法，其係自電極釋出之電子切斷高分子表面層之高分子主鏈或側鏈而產生的以自由基為起點的於表面產生羥基或極性基之方法。

【0039】前述所謂的雷射處理意指以藉由雷射照射而僅使基材之表面急速加熱、冷卻，來改善表面特性之技術，對表面之粗面化為有效之方法。可使用習知之雷射處理技術。

【0040】作為前述蝕刻處理，可舉例如：鹼法、磷酸-硫酸法、氟化物法、鉻酸-硫酸法、氯化鐵法等的化學蝕刻處理；電解蝕刻法等的電化學蝕刻處理等。

【0041】前述所謂的火焰處理意指將燃燒氣體與空氣之混合氣體燃燒而使空氣中之氧電漿化，藉由將氧電漿賦予至處理對象物而謀求表面之親水化之方法。可使用習知之火焰處理技術。

[實施例]

【0042】以下，藉由實施例來具體地說明本發明，但本發明並不受該等例任何的限定。

【0043】

(製造例1)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度

計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)1.0等量(12.5g)、三苯基膦0.8g及甲基乙基酮400g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100℃。以目視確認溶解後，冷卻至40℃，得到固形分35質量%的樹脂組成物。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-1)。

【0044】

(製造例2)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.8等量(10.0g)、三苯基膦0.8g及甲基乙基酮397g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100℃。以目視確認溶解後，冷卻至40℃，得到固形分35質量%的樹脂組成物。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-2)。

【0045】

(製造例3)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.5等量(6.3g)、三苯基膦0.8g及甲基乙基酮390g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至

100℃。以目視確認溶解後，冷卻至40℃，得到固形分35質量%的樹脂組成物。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-3)。

【0046】

(製造例4)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1001(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約900)1.0等量(270g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(71.3g)、三苯基膦0.8g及甲基乙基酮515g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100℃。以目視確認溶解後，冷卻至40℃，得到固形分35質量%的樹脂組成物。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-4)。

【0047】

(製造例5)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入EPOMIK R140P(三井化學股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約378)1.0等量(189g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(119g)、三苯基膦0.8g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100℃。以目視確認溶解後，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-5)。

【0048】

(製造例6)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度

計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.25等量(3.1g)、三苯基膦0.8g及甲基乙基酮390g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100℃。以目視確認溶解後，冷卻至40℃，得到固形分35質量%的樹脂組成物。將溶劑從該等中除去後，得到得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-6)。

【0049】

(製造例7)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(11.8g)、三苯基膦0.8g及環己酮198g，於氮環境下昇溫至170℃並使其反應。於6.5小時反應後，利用凝膠滲透層析(GPC)確認雙酚S的波峰消失後結束反應，得到固形分52質量%的苯氧基樹脂。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的苯氧基樹脂(EP-7)。

【0050】

(製造例8)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入EPOMIK R140P(三井化學股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約378)1.0等量(189g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(119g)、三苯基膦0.8g及環己酮

1232g，於氮環境下昇溫至170℃並使其反應。於4小時反應後，利用GPC確認雙酚S的波峰消失後結束反應，得到固形分25質量%的苯氧基樹脂。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的苯氧基樹脂(EP-8)。

【0051】

(製造例9)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(11.8g)、三苯基膦0.8g及環己酮400g，於氮環境下昇溫至170℃並使其反應。於6.5小時反應後，利用GPC確認雙酚S的波峰消失後結束反應，得到固形分35質量%的苯氧基樹脂。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的苯氧基樹脂(EP-9)。

【0052】

(製造例10)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.95等量(11.8g)、三苯基膦7.2g及環己酮200g，於氮環境下昇溫至170℃並使其反應。於4小時反應後，利用GPC確認雙酚S的波峰消失後結束反應，得到固形分52質量%的苯氧基樹脂。將溶劑從該

等中除去後，得到固形分100質量%的苯氧基樹脂(EP-10)。

【0053】

(製造例11)

對於昇溫至140℃的2L混合機3011(高林理化股份有限公司製)投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(939g)，以低速一邊攪拌一邊使其溶解。溶解後，將雙酚S(分子量250)0.95等量(56.3g)分4次投入，維持在140℃之狀態下，以旋轉數30rpmr進行攪拌直到雙酚S溶解為止。利用目視確認雙酚S之溶解後，投入三苯基膦3.8g，以溫度140℃、旋轉數30rpm之條件下攪拌45分鐘，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-11)。

【0054】

(製造例12)

對於昇溫至140℃的2L混合機3011(高林理化股份有限公司製)投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(939g)，以低速一邊攪拌一邊使其溶解。溶解後，將雙酚S(分子量250)1.0等量(57.5g)分4次投入，維持在140℃之狀態下，以旋轉數30rpmr進行攪拌直到雙酚S溶解為止。利用目視確認雙酚S之溶解後，投入三苯基膦3.8g，以溫度160℃、旋轉數30rpm之條件下攪拌80分鐘，得到固形分100質量%的樹脂組成物(EP-12)。

【0055】

(製造例13)

對於裝備有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管及溫度計的反應裝置投入jER(註冊商標)1007(Mitsubishi Chemical股份有限公司製，雙酚A型環氧樹脂，分子量約4060)1.0等量(203g)、雙酚S(分子量250)0.5等量(6.3g)、BRG-555 0.5等量(5.2g)(Aica Kogyo股份有限公司製，酚醛清漆型苯酚樹脂)、三苯基膦0.8g及環己酮400g，於氮環境下昇溫至170℃並使其反應。於6.5小時反應後，利用GPC確認雙酚S的波峰消失後結束反應，得到固形分35質量%的苯氧基樹脂。將溶劑從該等中除去後，得到固形分100質量%的苯氧基樹脂(EP-13)。

【0056】

(實施例1~8、及比較例1~5)

[熔接薄膜之製作]

在壓機(press machine)的上板及下板設置非黏著氟樹脂薄膜(NITOFLON(註冊商標)No.900UL，日東電工股份有限公司製)，在下板的非黏著氟樹脂薄膜上配置以製造例1~13所得到的樹脂組成物或苯氧基樹脂後，將前述壓機加熱至160℃，將前述樹脂組成物或苯氧基樹脂加熱壓縮2小時，來製作厚度為50μm的熔接薄膜。使用所得到的熔接薄膜來實施以下的評估。將結果表示於表1。

【0057】

<評估>

(1)熔接薄膜之保形性

評估係將可成型為熔接薄膜者設定為「A」；將看起來雖然稍微脆弱但仍可脫模並可得到熔接薄膜者設定為「B」；將無法以熔接薄膜來進行脫模者設定為「C」。

【0058】

(2)分子量測量(Mz、Mn、Mw)

將以各實施例及比較例所製作的熔接薄膜溶解於四氫呋喃中，使用Prominence 501(ShowaScience股份有限公司製，Detector:Shodex(註冊商標) RI-501(昭和電工股份有限公司製))並以下述之條件下來測量。

管柱：昭和電工製 LF-804×2管

管柱溫度：40℃

樣品：聚合物的0.4質量%四氫呋喃溶液

流量：1ml/分鐘

溶離劑：四氫呋喃

【0059】

(3)熔接薄膜之厚度

將所得到的熔接薄膜放置於23℃、濕度50%的環境中24小時後，使用股份有限公司Mitutoyo製的MDC-25MX來測量厚度。

【0060】

(4)拉伸剪切試驗

[接合試驗體-1(鋼板/熔接薄膜/鋼板)之製作]

將25mm×100mm、厚度3mm的冷軋鋼板之表面進行噴

砂處理10分鐘後，利用甲基乙基酮將噴砂面進行脫脂。使熔接薄膜放置於已脫脂之面上，再將已進行相同處理的冷軋鋼板，以接合部之重疊成為長度12.5mm、寬度25mm之方式來進行疊放，並以鉗夾固定。以已固定之狀態放置於160℃環境下2小時使其熔接，來製作接合試驗體-1。於此所謂的接合部意指與試驗體用基材重疊之部位。

【0061】

[接合試驗體-2(鋁/熔接薄膜/鋁)之製作]

除了使用25mm×100mm、厚度1.6mm之鋁A6061-T6來取代冷軋鋼板以外，其餘係與前述的接合試驗體-1之製作以相同方法來製作接合試驗體-2。

【0062】

[接合試驗體-3(鋁/熔接薄膜/聚碳酸酯)之製作]

將聚碳酸酯121R(SABIC公司製)利用射出成型機(住友重機械工業股份有限公司製SE100V)，以圓筒(cylinder)溫度290℃、模具溫度85℃、射出速度30mm/秒、保壓70MPa、3秒鐘及50MPa、2秒、冷卻時間13秒鐘之條件下來進行射出成型，得到25mm×100mm、厚度2mm的聚碳酸酯板。

準備所得到的聚碳酸酯板及鋁板來作為試驗體用基材。鋁板為將25mm×100mm、厚度1.6mm之鋁A6061-T6之表面進行噴砂處理10分鐘後，利用甲基乙基酮將噴砂面進行脫脂。

使熔接薄膜放置於鋁板之已脫脂之面上，再將聚碳酸

酯板，以接合部之重疊成為長度12.5mm、寬度25mm之方式來進行固定，並將固定部使用高頻感應熔接機(精電舍電子工業股份有限公司製，振盪器UH-2.5K、Press JIIP30S)，以高頻感應來使金屬發熱，藉由加熱·加壓來接合鋁板及聚碳酸酯板，而製成接合試驗體-3。將加壓力設為110N(壓力2.2MPa)、振盪頻率數設為900kHz、振盪時間設為5秒鐘。

【0063】對於各接合試驗體，依據JIS K 6850:1999，使用拉伸試驗機(股份有限公司島津製作所製萬能試驗機(Autograph)「AG-IS」；荷重單元10kN、拉伸速度10mm/min、溫度23℃、50%RH)來進行拉伸剪切強度試驗，以測量接合強度。將測量結果表示於表1。

【0064】

[表1]

		單位	實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	實施例5	實施例6	實施例7	實施例8
樹脂組成物或苯氧基樹脂		—	EP-1	EP-2	EP-3	EP-4	EP-5	EP-7	EP-11	EP-12
數平均分子量(Mn)		—	17,139	14,302	9,765	11,812	6,196	13,898	18,532	20,521
重量平均分子量(Mw)		—	56,730	70,665	34,274	81,085	26,207	35,689	110,202	120,105
Z平均分子量(Mz)		—	144,975	208,991	81,202	270,146	152,441	72,372	387,364	588,921
比(Mz/Mn)		—	8.5	14.6	8.3	22.9	24.6	5.2	20.9	28.7
熔接薄膜之保形性		—	A	A	A	A	B	A	A	B
溶接薄膜之厚度		μm	75	97	153	53	45	30	482	553
拉伸剪切強度	接合試驗體－1	MPa	16.2	17.0	16.9	13.5	10.5	11.0	12.2	10.5
	接合試驗體－2	MPa	17.4	17.4	12.2	10.7	17.2	13.5	16.8	12.2
	接合試驗體－3	MPa	26.0	22.0	18.2	23.8	19.8	21.0	20.8	15.8

		單位	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5
樹脂組成物或苯氧基樹脂		—	EP-8	EP-9	EP-10	EP-6	EP-13
數平均分子量(Mn)		—	5,815	9,426	8,851	8,121	14,900
重量平均分子量(Mw)		—	13,910	20,165	26,913	23,400	31,800
Z平均分子量(Mz)		—	25,920	35,786	49,483	48,497	70,021
比(Mz/Mn)		—	4.5	3.8	5.6	6.0	4.7
熔接薄膜之保形性		—	C	B	B	C	A
溶接薄膜之厚度		μm	—*1	108	94	—*1	702
拉伸剪切強度	接合試驗體－1	MPa	—*1	8.0	9.8	—*1	2.4
	接合試驗體－2	MPa	—*1	9.0	8.3	—*1	3.3
	接合試驗體－3	MPa	—*1	15.2	16.0	—*1	4.8

*1：無法評估

【0065】使用由Mz為70,000以上、比[Mz/Mn]為5.0以上的苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜的實施例1~8可得知：由於具有可脫模之程度之強度，故操作性為優異，拉伸剪切強度為高的10MPa以上，且熔接強度為優異。

[產業利用性]

【0066】使用本實施形態的熔接薄膜而得的接合體，可使用作為例如門側板、發動機罩、車頂、尾門、方向盤罩、A柱、B柱、C柱、D柱、碰撞箱、動力控制單元(PCU)外罩、電動壓縮機構件(內部壁、吸入泵部、排氣控制閥(ECV)插入部、安裝凸耳部等)、鋰離子電池(LIB)間隔片、電池盒、LED頭燈等的各種汽車用零件，或智慧型手機、筆記型電腦、平板電腦、智慧型手錶、大型液晶電視(LCD-TV)、戶外LED照明之構造體等，並不特別限定於該等示例之用途。

【符號說明】

【0067】

10:接合體

1:熔接薄膜

2:第一基材

3:第二基材

第 111104660 號　　民國 112 年 8 月　24　日

【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種熔接薄膜，其係由苯氧基樹脂來構成的熔接薄膜，

前述苯氧基樹脂係藉由使2官能環氧化合物與具有2官能羥基之化合物在觸媒存在下進行聚加成反應而得到的樹脂，

前述2官能環氧化合物係選自由雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、雙酚S型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、萘型2官能環氧樹脂及1,6-己二醇二縮水甘油醚所成之群組中之至少1種，

前述具有2官能羥基之化合物係選自由雙酚A、雙酚F、雙酚S、乙二醇、丙二醇及二乙二醇所成之群組中之至少1種，

前述苯氧基樹脂的z平均分子量為70,000以上，前述苯氧基樹脂的z平均分子量與數平均分子量之比[Mz/Mn]為5.0以上。

【請求項2】如請求項1之熔接薄膜，其中，前述熔接薄膜的厚度為1~1000μm。

【請求項3】如請求項1或2之熔接薄膜，其中，使前述熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間之際的拉伸剪切強度，在依據JIS K 6850:1999的試驗中為10MPa以上。

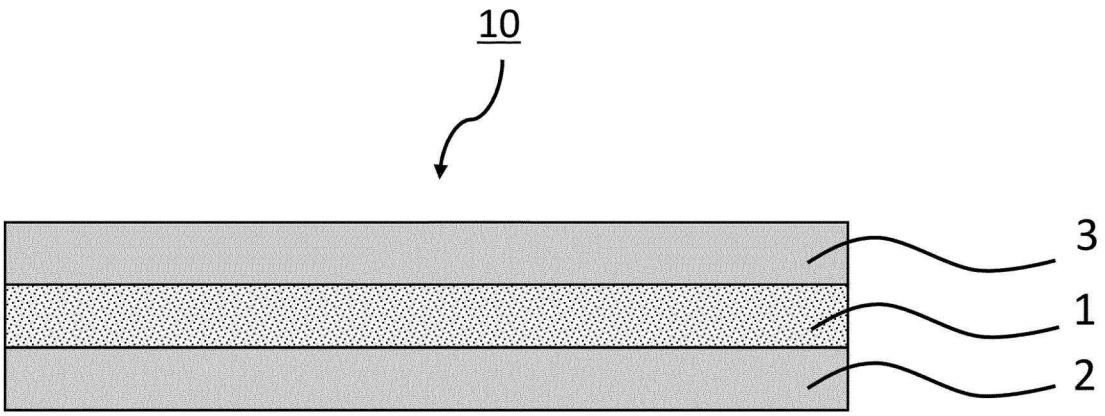
【請求項4】一種接合體，其係使請求項1~3中任一項之熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間而成。

【請求項5】如請求項4之接合體，其中，前述第一基

材及前述第二基材係皆由選自鋁、鐵、纖維強化塑膠、玻璃、陶瓷、聚丙烯、聚碳酸酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚醚醯亞胺、聚醯胺及聚對苯二甲酸丁二酯之至少1種來構成。

【請求項6】一種如請求項4或5之接合體之製造方法，其係以選自由加熱、熱壓、超音波熔接及高頻感應熔接所成之群組中之至少1種之方法，來使熔接薄膜熔接於第一基材與第二基材之間。

【發明圖式】



【圖 1】