



(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 202449015 A

(43)公開日：中華民國 113 (2024) 年 12 月 16 日

(21)申請案號：112129516

(22)申請日：中華民國 112 (2023) 年 08 月 07 日

(51)Int. Cl.：

C08G63/20 (2006.01)

C08L67/02 (2006.01)

C08K5/10 (2006.01)

(30)優先權：2023/06/08

日本

2023-094467

(71)申請人：日商東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)

日本

(72)發明人：林凌土 HAYASHI, RYOUTO (JP)；稻川泰廣 INAGAWA, YASUHIRO (JP)

(74)代理人：賴碧宏；蔡淑美

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：20 項 圖式數：0 共 64 頁

(54)名稱

聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜

(57)摘要

本發明提供一種聚酯樹脂組成物，其異物少，色調良好，透明性優良，耐熱性與耐水解性優良，在薄膜成形時具有良好的靜電施加性，用作乾膜光阻支撐體用薄膜時因曝光障礙造成的缺陷少。

本發明之聚酯樹脂組成物，係固有黏度為 0.55dL/g 以上的聚酯樹脂組成物，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，對甲苯磺酸成分的含量為 0.07 ~ 0.65mol/t，四級磷成分的含量為 0.07 ~ 0.65mol/t，式 1 表示的耐熱性參數 X 為 1.0 X 1.3，等效圓直徑 0.2 μ m 以上的異物數量為 650 個/0.1mm² 以下，熔融比電阻為 4.0 $\times 10^6\Omega\cdot$ cm 以下，色差計中的色調 b 值為 10.0 以下。

【發明摘要】

【中文發明名稱】

聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜

【中文】

本發明提供一種聚酯樹脂組成物，其異物少，色調良好，透明性優良，耐熱性與耐水解性優良，在薄膜成形時具有良好的靜電施加性，用作乾膜光阻支撐體用薄膜時因曝光障礙造成的缺陷少。

本發明之聚酯樹脂組成物，係固有黏度為 0.55dL/g 以上的聚酯樹脂組成物，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，對甲苯磺酸成分的含量為 $0.07\sim 0.65\text{mol/t}$ ，四級磷成分的含量為 $0.07\sim 0.65\text{mol/t}$ ，式 1 表示的耐熱性參數 X 為 $1.0\leq X\leq 1.3$ ，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量為 $650\text{個}/0.1\text{mm}^2$ 以下，熔融比電阻為 $4.0\times 10^6\Omega\cdot\text{cm}$ 以下，色差計中的色調 b 值為 10.0 以下。

【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】

聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜

【技術領域】

【0001】本發明係關於聚酯樹脂組成物。

【先前技術】

【0002】聚酯，其機械特性、熱特性、耐化學藥品性、電特性、成形性優良，而被用於各種用途。聚酯之中，尤其是聚對苯二甲酸乙二酯(以下記載為 PET)，因為透明性、加工性優良，而被用於各種光學用薄膜，例如：液晶顯示器之構件的稜鏡片、光擴散片、反射板、觸控面板等的基材薄膜、抗反射用基材薄膜；顯示器的防爆用基材薄膜、PDP 濾光片用薄膜、乾膜光阻支撐體用薄膜等各種用途。然而，隨著用途變得廣泛，所要求之品質亦提升，例如為乾膜光阻支撐體用薄膜的情況，在曝光步驟中照射紫外線時，會引起紫外線的散射、反射，而成為微細配線之解析度降低、缺損等的原因，故期待一種抑制薄膜缺陷之原因的樹脂組成物，該薄膜缺陷係金屬異物、因聚酯之熱分解而產生之凝膠狀異物等。

【0003】又，在將 PET 樹脂薄膜化時，大多採用靜電施加澆鑄法，其係對於未固化的片狀物之上表面施加高電壓，而使片狀物密合於旋轉冷卻鼓輪。靜電施加澆鑄法中，若為了提高製膜速度而提升旋轉冷卻鼓輪的速度，則片狀物與旋轉冷卻鼓輪的密合力會降低而導致薄

膜之厚度均勻性、透明性的降低，因為施加不均而產生薄膜表面缺陷。

【0004】針對此等的課題，已有下述文獻所示的研究。

【0005】例如，專利文獻 1 中提出了：在聚酯中大量添加鹼金屬化合物、鹼土金屬化合物、磷化合物的方法以作為提升靜電施加性的方法。然而，此方法雖可一定程度地改良靜電施加性，但因為大量使用以乙酸鎂為代表的金屬化合物，故會產生金屬異物，而有無法滿足聚酯薄膜所要求之品質的問題。

【0006】專利文獻 2 中提出了：添加磺酸四級磷鹽的方法以作為提升靜電施加性的方法，但因為大量含有鹼金屬或鹼土金屬，故無法充分抑制金屬異物，亦無法充分抑制因熱分解而來的凝膠狀異物。

【0007】專利文獻 3 中提出了：添加磺酸化合物且不添加聚合觸媒以外之金屬元素的聚酯樹脂組成物之製造方法，但磷酸的添加量多，無法充分獲得用於薄膜成形的靜電施加性。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0008】

[專利文獻 1]日本特開 2006-249213 號公報

[專利文獻 2]國際公開第 1990/8171 號

[專利文獻 3]日本特開平 10-36495 號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0009】然而，僅對聚酯樹脂組成物添加磺酸化合物或磺酸磷化合物並無法充分獲得用於薄膜成形的靜電施加性。又，有因為磺酸化合物及鹼金屬的添加而產生異物或是聚酯樹脂組成物之耐熱性變不良而引起凝膠化這樣的課題。亦即，上述以往的技術對於兼具薄膜成形時的靜電施加性的提升、與源自金屬化合物之異物的減少、以及因改善耐熱性而產生之凝膠狀異物的抑制來說尚嫌不足。本發明之目的係提供一種聚酯樹脂組成物，其異物少，色調良好，透明性優良，耐熱性與耐水解性優良，在薄膜成形時具有良好靜電施加性。

[用以解決課題之手段]

【0010】為了解決上述課題而詳細研究的結果，本發明具有以下構成。

(1)一種聚酯樹脂組成物，其係固有黏度為 0.55dL/g 以上的聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，對甲苯磺酸成分的含量為 $0.07\sim 0.65\text{mol/t}$ ，四級磷成分的含量為 $0.07\sim 0.65\text{mol/t}$ ，式 1 表示的耐熱性參數 X 為 $1.0\leq X\leq 1.3$ ，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量為 $650\text{個}/0.1\text{mm}^2$ 以下，熔融比電阻為 $4.0\times 10^6\Omega\cdot\text{cm}$ 以下，色差計中的色調 b 值為 10.0 以下。

【 0011 】 [數 1]

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$$X = \frac{\frac{1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的}}}{\frac{1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚酯樹脂組成物熱處理前的}}}$$

式 1

$$\frac{1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚酯樹脂組成物熱處理前的}}}$$

1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

【 0012 】 (2)如 (1)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 鹼 金 屬 元 素 的 含 量 為 3 重 量 ppm 以 下 。

(3)如 (2)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 銻 元 素 的 含 量 為 15 重 量 ppm 以 下 ， 且 鈦 元 素 的 含 量 為 0.1 重 量 ppm ～ 20 重 量 ppm 。

(4)如 (3)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 錳 元 素 的 含 量 為 5 ～ 40 重 量 ppm ， 磷 元 素 的 含 量 為 3 ～ 50 重 量 ppm 。

(5)如 (2)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 銻 元 素 的 含 量 為 15 重 量 ppm 以 下 ， 且 鉻 元 素 的 含 量 為 5 重 量 ppm ～ 150 重 量 ppm 。

(6)如 (5)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 錳 元 素 的 含 量 為 5 ～ 40 重 量 ppm ， 磷 元 素 的 含 量 為 3 ～ 50 重 量 ppm 。

(7)如 (2)之 聚 酯 樹 脂 組 成 物 ， 其 中 ， 相 對 於 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量 ， 銻 元 素 的 含 量 為 15 重 量 ppm 以 下 ， 且 鋁 元 素 的 含 量 為 0.1 重 量 ppm ～ 100 重 量 ppm 。

(8)如(7)之聚 酯 樹 脂 組 成 物，其中，相對於聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量，錳 元 素 的 含 量 為 5～40 重 量 ppm，
磷 元 素 的 含 量 為 3～50 重 量 ppm。

(9)如(2)之聚 酯 樹 脂 組 成 物，其中，相對於聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量，銻 元 素 的 含 量 為 50 重 量 ppm～150
重 量 ppm。

(10)如(9)之聚 酯 樹 脂 組 成 物，其中，相對於聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量，錳 元 素 的 含 量 為 5～40 重 量 ppm，
磷 元 素 的 含 量 為 3～50 重 量 ppm。

(11)一 種 聚 酯 樹 脂 組 成 物，其係固有黏度為
0.55dL/g 以上的聚 酯 樹 脂 組 成 物，其中，相對於聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 總 重 量，對 甲 苯 磺 酸 成 分 的 含 量 為 0.07～
0.65mol/t，四 級 磷 成 分 的 含 量 為 0.07～0.65mol/t，鹼 金
屬 元 素 的 含 量 為 3 重 量 ppm 以 下，式 1 表 示 的 耐 熱 性 參
數 X 為 $1.0 \leq X \leq 1.3$ ，等 效 圓 直 徑 0.2μm 以 上 的 異 物 數 量
為 630 個/0.1mm² 以 下，色 差 計 中 的 色 調 b 值 為 10.0 以
下。

【 0013 】 [數 2]

在氮氣環境下於 285℃將聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 5 小 時 後 的
1610cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

在氮氣環境下於 285℃將聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 5 小 時 後 的
1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

X =
$$\frac{\text{在氮氣環境下於 285℃將聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 5 小 時 後 的 } 1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 前 的 } 1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}} \times \frac{\text{聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 前 的 } 1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚 酯 樹 脂 組 成 物 熱 處 理 前 的 } 1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}$$

式 1

【 0014 】 (12)如(11)之聚 酯 樹 脂 組 成 物，其中，相 對

於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鈦元素的含量為 0.1 重量 ppm～20 重量 ppm。

(13)如(12)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

(14)如(11)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鍺元素的含量為 5 重量 ppm～150 重量 ppm。

(15)如(14)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

(16)如(11)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鋁元素的含量為 0.1 重量 ppm～100 重量 ppm。

(17)如(16)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

(18)如(11)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 50 重量 ppm～150 重量 ppm。

(19)如(18)之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

(20)一種聚酯薄膜，其係使用如(1)至(19)中任一項

之聚酯樹脂組成物而成。

[發明之效果]

【0015】本發明提供一種聚酯樹脂組成物，其異物少，色調良好，透明性優良，耐熱性與耐水解性優良，在薄膜成形時具有良好靜電施加性，用作乾膜光阻支撐體用薄膜時因曝光障礙所造成之缺陷少。

【圖式簡單說明】

無。

【實施方式】

[用以實施發明的形態]

【0016】以下詳細說明本發明。

另外，本說明書中，「重量」、「重量%」及「重量份」分別與「質量」、「質量%」及「質量份」同義。關於「元素」方面，有時亦與「原子」同義使用。

【0017】本發明中所使用的聚酯樹脂組成物係指將二羧酸成分與二醇成分進行聚縮合所得之聚酯樹脂組成物。

【0018】本發明的二羧酸成分可列舉：對苯二甲酸、2,6-萘二羧酸、間苯二甲酸、4,4'-二苯基二羧酸、5-鈉磺酸基間苯二甲酸、草酸、琥珀酸、己二酸、癸二酸、丙二酸、二聚物酸等。從可獲得熔點高且容易加工成薄膜、纖維等的聚酯組成物之觀點來看，就本發明之二羧酸而言，更佳的態樣為：對苯二甲酸、2,6-萘二羧酸、間苯二甲酸或此等的烷酯。從熔點高、得到更佳之加工性的觀點來看，更佳為對苯二甲酸或其烷酯。

【0019】本發明的二醇成分可例示：乙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,4-丁二醇、2-甲基-1,3-丙二醇、1,2-己二醇、1,6-己二醇、新戊二醇等脂肪族二醇、環己烷二甲醇、環己烷二乙醇、降莖烷二甲醇、降莖烷二乙醇、三環癸烷二甲醇、三環癸烷二乙醇、十氫萘二甲醇、十氫萘二乙醇等飽和脂環式一級二元醇；異山梨醇等包含環狀醚的飽和雜環一級二元醇；其他環己二醇、雙環己基-4,4'-二醇、2,2-雙(4-羥基環己基丙烷)、2,2-雙(4-(2-羥基乙氧基)環己基)丙烷、環戊二醇、3-甲基-1,2-環戊二醇、4-環戊烯-1,3-二醇、金剛烷二醇等各種脂環式二元醇；對二甲苯二醇、雙酚 A、雙酚 S、苯乙烯二醇、9,9-雙(4-(2-羥基乙氧基)苯基)萸、9,9'-雙(4-羥基苯基)萸等芳香環式二元醇。又，除了使用二醇以外，亦可在無損本發明效果的範圍，使用三羥甲基丙烷、新戊四醇等多官能醇。其中，從容易餾出至反應系統外來看，較佳為沸點 230℃以下的二元醇，從低成本且反應性高來看，更佳為脂肪族二元醇。再者，從所得之聚酯樹脂組成物、其成形品的機械特性之觀點來看，特佳為乙二醇。

【0020】本發明中的聚酯並無特別限定，較佳係以選自對苯二甲酸乙二酯、2,6-萘二甲酸乙二酯、對苯二甲酸丙二酯、對苯二甲酸丁二酯、對苯二甲酸六亞甲酯、環己烷二亞甲基對苯二甲酸酯、2,6-萘二甲酸丙二酯、2,6-萘二甲酸丁二酯、六亞甲基-2,6-萘二甲酸酯、環己烷二亞甲基-2,6-萘二甲酸酯單元等之至少一種結構

單元作為主要構成成分。其中，以對苯二甲酸乙二酯作為主要構成單元的聚酯，因為成形加工性優良而特佳。只要在無損本發明效果的範圍內，亦可將 2 種以上的聚酯混合，或使用共聚合的聚酯，從無損聚酯樹脂組成物之熔點、玻璃轉移點等熱特性的觀點來看，較佳係聚酯的構成單元之 99mol% 以上為對苯二甲酸乙二酯，特佳係實質上不包含共聚成分的聚對苯二甲酸乙二酯。

【0021】本發明的聚酯樹脂組成物必須含有對甲苯磺酸成分及四級磷成分。藉由使聚酯樹脂組成物含有對甲苯磺酸成分及四級磷成分，可獲得薄膜成形時的良好靜電施加性。

【0022】本發明的聚酯樹脂組成物中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，必須使對甲苯磺酸成分的含量為 0.07 ~ 0.65mol/t。較佳為 0.20 ~ 0.60mol/t，再佳為 0.25 ~ 0.50mol/t。對甲苯磺酸成分的含量未達 0.07mol/t 的情況，聚酯樹脂組成物熔融時的熔融比電阻變高，薄膜成形時的靜電施加性可能變得不良。對甲苯磺酸的含量超過 0.65mol/t 的情況，除了會因為源自對甲苯磺酸成分之異物導致聚酯樹脂組成物的溶液濁度變差以外，亦可能因為磺酸基而導致聚酯樹脂組成物的耐水解性變差。

【0023】本發明中，對甲苯磺酸成分係指對甲苯磺酸及其鹼金屬鹽等具有對甲苯磺酸陰離子的化合物。具體可例示對甲苯磺酸、對甲苯磺酸鈉、對甲苯磺酸鉀、對甲苯磺酸甲酯等，從抑制聚酯樹脂組成物中之異物的

觀點來看，對甲苯磺酸成分較佳係不包含鹼金屬，較佳為對甲苯磺酸。因為對甲苯磺酸成分不具有酯形成性官能基，因此不會對於聚酯樹脂進行共聚合而是分散在樹脂中，故無損聚酯樹脂組成物的熔點、玻璃轉移點等熱特性，可在薄膜成形時賦予良好的靜電施加性。此外，因為不具有酯形成性官能基，因此在形成有源自磺酸化合物之異物的情況中，可抑制異物大型化。除了對甲苯磺酸成分以外，若使用碳數 6 以上的直鏈烷基、碳數 8 以上的芳基，則在形成源自磺酸化合物之異物的情況中，除了異物容易大型化以外，在將聚酯樹脂組成物從聚縮合反應槽吐出至冷水中而成為股線狀並進行顆粒化的步驟中，冷水的起泡還會變多而有損生產性，因而不佳。另一方面，若使用苯磺酸、碳數 5 以下的烷基磺酸，則難以殘留在聚酯樹脂組成物中，薄膜成形時的靜電施加性變得不良，因而不佳。

【0024】本發明的聚酯樹脂組成物中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，四級磷成分之含量必須為 $0.07 \sim 0.65 \text{ mol/t}$ 。較佳為 $0.10 \sim 0.49 \text{ mol/t}$ ，再佳為 $0.15 \sim 0.33 \text{ mol/t}$ 。四級磷成分的含量未達 0.07 mol/t 的情況，聚酯樹脂組成物熔融時的熔融比電阻變高，薄膜成形時的靜電施加性可能變得不良。四級磷成分的含量超過 0.65 mol/t 的情況，可能產生異物而導致聚酯樹脂組成物的溶液濁度變差。

【0025】本發明中四級磷成分係指具有四級磷陽離子的化合物。作為四級磷的具體例，可例示：四乙基

磷、四丁基磷、四己基磷、甲基三丁基磷、乙基三丁基磷、辛基三丁基磷、十六基三丁基磷、苄基三甲基磷、苄基三乙基磷、3-(三氟甲基)苯基三甲基磷，作為四級磷成分可列舉：此等的氫氧化物、氯化物、溴化物這類的鹵化物。其中較佳為四丁基氫氧化磷。

【0026】在本發明中，使聚酯樹脂組成物含有對甲苯磺酸成分及四級磷成分的方法並無特別限定。可藉由下述習知的方法來實施：在聚酯樹脂組成物的聚縮合反應時進行添加的方法；使用雙軸混練擠製機等與聚縮合反應後的聚酯樹脂組成物混練的方法等。尤其為了抑制源自對甲苯磺酸、四級磷成分的聚酯樹脂組成物中的異物，較佳係將對甲苯磺酸成分與四級磷成分各自添加至聚酯樹脂組成物的聚縮合反應開始之前的反應系統內以使其含有該等成分的方法。又，下述方法亦為理想：使對甲苯磺酸成分與四級磷成分進行中和反應而調整成對甲苯磺酸四級磷的二醇溶液之後，使其通過過濾器，然後添加至聚縮合反應開始之前的反應系統內以使其含有該等成分。

【0027】本發明的聚酯樹脂組成物的固有黏度為0.55dL/g以上。上限並未限定，較佳為0.75dL/g以下。小於0.55dL/g的情況，薄膜成形時的機械特性可能變得不佳。從減輕因薄膜成形中的熔融擠製時之剪切發熱所導致的溫度上升、抑制樹脂熔融時環狀三聚物之再生的觀點、及防止因樹脂的熱劣化導致薄膜成形時機械特性變差的觀點來看，聚酯樹脂組成物的固有黏度較佳為

0.60dL/g 以上。

【0028】本發明的聚酯樹脂組成物，其以式 1 表示的耐熱性參數 X 必須為 $1.0 \leq X \leq 1.3$ 。較佳為 $1.0 \leq X \leq 1.2$ ，再佳為 $1.0 \leq X \leq 1.1$ 。本發明中的耐熱性參數 X 係表示聚酯樹脂組成物之耐熱穩定性的參數，聚酯完全未改質的情況係 $X=1$ ，改質程度越高則值越大，X 若超過 1.3，則聚酯樹脂組成物的耐熱性降低，在形成薄膜時會產生大量凝膠狀異物。聚酯樹脂組成物中的耐熱性參數 X 之測定方法的詳細內容於實施例中進行說明。

【0029】[數 3]

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}$ 之最大吸收峰值強度

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}$ 之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

$1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}$ 之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

$1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}$ 之最大吸收峰值強度

式 1

【0030】 1610cm^{-1} 係聚酯熱改質物(聚酯重複進行水解、熱分解、交聯反應而生成的凝膠化物)之特徵性的 IR 吸收峰值， 1580cm^{-1} 係聚酯主鏈的 IR 吸收峰值。將範圍設為 $\pm 10\text{cm}^{-1}$ 係考量到測定誤差，但本範圍中吸收強度最大的峰值分別規定為聚酯熱改質物及聚酯主鏈的吸收。亦即，分母及分子中各別的 1610cm^{-1} 附近之吸收相對於 1580cm^{-1} 附近之吸收的比係表示聚酯熱改質物相對於聚酯主鏈的比例。

【0031】本發明的聚酯樹脂組成物，等效圓直徑

0.2 μm 以上的異物數量必須為 650 個/0.1 mm^2 以下。較佳為 630 個/0.1 mm^2 以下，更佳為 600 個/0.1 mm^2 以下，再佳為 500 個/0.1 mm^2 以下。聚酯樹脂組成物中，等效圓直徑 0.2 μm 以上之異物的存在多於 650 個/0.1 mm^2 的情況，可能有損聚酯樹脂組成物的透明性。聚酯樹脂組成物中的異物數量測定方法的詳細內容於實施例中進行說明。

【0032】本發明的第 1 聚酯樹脂組成物，熔融比電阻必須為 $4.0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下，第 2 聚酯樹脂組成物其熔融比電阻較佳為 $4.0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下。較佳為 $3.5 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下，再佳為 $3.0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下。聚酯樹脂組成物的熔融比電阻大於 $4.0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 的情況，使用此聚酯樹脂組成物使薄膜成形時，靜電施加性可能變得不良。聚酯樹脂組成物的熔融比電阻測定方法的詳細內容於實施例中進行說明。

【0033】本發明的聚酯樹脂組成物，色差計中的色調 b 值必須為 10.0 以下。色調 b 值越大，表示聚酯樹脂組成物的黃色調越強，若其超過 10.0，則強烈感受到聚酯樹脂組成物的黃色調而不佳。再者，色調 b 值較佳為 9.0 以下。

本發明的聚酯樹脂組成物中，聚縮合反應觸媒可使用習知的化合物。可列舉例如：銻、鈦、鋁、錫、鍺、鋅、鈷、鉛、錳、鎂的氧化物、羧酸鹽、乙酸鹽、氫氧化物、螯合錯合物、烷氧化物等，亦可為此等金屬化合物之水合物。添加此等聚縮合反應觸媒時的形態可為粉

體、漿液、溶液的任一者，從分散性的觀點來看，較佳係作成溶液或漿液而進行添加。此時的溶劑較佳與聚酯樹脂組成物的二醇成分相同。

本發明的聚酯樹脂組成物中，將銻化合物使用於聚縮合反應觸媒的情況，從聚合反應性與對於分解反應之活性的觀點來看，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量較佳為 50 重量 ppm～150 重量 ppm 的範圍。銻元素的含量超過 150 重量 ppm 的情況，聚酯樹脂組成物中的金屬銻量變多，薄膜加工時會成為異物，因而不佳。銻元素的含量少於 50 重量 ppm 的情況，聚合活性不足，聚酯樹脂組成物可能無法達到目標的固有黏度。從抑制溶液濁度變差的觀點以及抑制聚酯樹脂組成物中的金屬銻之觀點來看，銻元素的含量較佳為 50 重量 ppm～120 重量 ppm 的範圍，進一步更佳為 50 重量 ppm～100 重量 ppm 的範圍。

【0034】本發明的聚酯樹脂組成物中，將鈦化合物用於聚縮合反應觸媒的情況，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量較佳為 15 重量 ppm 以下，更佳為 10 重量 ppm 以下。再者，鈦元素的含量較佳為 0.1 重量 ppm～20 重量 ppm，更佳為鈦元素的含量為 2 重量 ppm～15 重量 ppm。若銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，則可減少聚酯樹脂組成物中源自金屬銻的異物。金屬銻係藉由三氧化銻等銻化合物還原而生成，已知其會成為聚酯樹脂組成物中的異物，而變成透明性降低、薄膜成形時之缺陷的原因。鈦元素的含量超過 20 重量 ppm

的情況，聚酯樹脂組成物的色調 b 值與耐熱性變差，因而不佳。鈦元素的含量未達 0.1 重量 ppm 的情況，聚合活性不足，聚酯樹脂組成物可能未達到目標的固有黏度。

【0035】本發明的聚酯樹脂組成物中，將銻化合物用於聚縮合反應觸媒的情況，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，更佳為 10 重量 ppm 以下。再者，銻元素的含量較佳為 5 重量 ppm ~ 150 重量 ppm。若銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，則可減少聚酯樹脂組成物中源自金屬銻的異物，可抑制薄膜成形時的缺陷。銻元素的含量超過 150 重量 ppm 的情況，容易產生異物，聚酯樹脂組成物的溶液濁度可能變差。銻元素的含量未達 5 重量 ppm 的情況，聚合活性不足，聚酯樹脂組成物可能未達到目標的固有黏度。

【0036】本發明的聚酯樹脂組成物中，將鋁化合物用於聚縮合反應觸媒的情況，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量較佳為 15 重量 ppm 以下，更佳為 10 重量 ppm 以下。再者，鋁元素的含量較佳為 0.1 重量 ppm ~ 100 重量 ppm，鋁元素的含量上限更佳為 50 重量 ppm，更佳為 30 重量 ppm。又，鋁元素的含量下限更佳為 3 重量 ppm。若銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，則可減少聚酯樹脂組成物中源自金屬銻的異物，可抑制薄膜成形時的缺陷。鋁元素的含量超過 100 重量 ppm 的情況，容易產生異物，除了聚酯樹脂組成物的溶液濁度變差以外，色調 b 值與耐熱性亦變差，因而不佳。鋁元

素的含量未達 0.1 重量 ppm 的情況，聚合活性不足，聚酯樹脂組成物可能未達到目標的固有黏度。

【0037】本發明的聚酯樹脂組成物可含有錳元素。相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量較佳為 5～40 重量 ppm，更佳為 5～30 重量 ppm。藉由含有錳元素，可減少凝膠狀異物，但錳元素的含量超過 40 重量 ppm 的情況，異物變多，聚酯樹脂組成物的溶液濁度變差，因而不佳。又，錳元素的含量低於 5 重量 ppm 的情況，凝膠狀異物的生成變多，因而不佳。

【0038】本發明的聚酯樹脂組成物可含有四級磷成分以外的磷化合物。四級磷成分以外的磷化合物可列舉選自由磷酸、亞磷酸、膦酸、膦醯基乙酸或此等的甲酯或乙酯、苯酯、進一步為半酯所構成之群組中的一種以上，亦可混合使用此等的 2 種以上，更佳係使用磷酸。

【0039】本發明的聚酯樹脂組成物，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，磷元素的含量較佳為 3～50 重量 ppm，再更佳為 5～40 重量 ppm。磷元素的含量表示四級磷成分及其以外之磷化合物的總量。磷元素的含量超過 50 重量 ppm 的情況，異物變多，聚酯樹脂組成物的溶液濁度變差，因而不佳。磷元素的含量小於 3 重量 ppm 的情況，聚酯樹脂組成物熔融時的熔融比電阻變高，薄膜成形時的靜電施加性不良，此外還不佳。

【0040】本發明的聚酯樹脂組成物，在無損本發明之效果的範圍內，可含有鹼金屬元素，但從抑制等效圓直徑 0.2 μ m 以上之異物、抑制聚酯樹脂組成物之溶液濁

度增加的觀點來看，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，鹼金屬的含量較佳為 3 重量 ppm 以下，更佳為實質上未含有。為了使本發明的聚酯樹脂組成物含有鹼金屬元素而使用鹼金屬化合物。作為鹼金屬化合物，可例示：乙酸鋰；鹼金屬氫氧化物的氫氧化鋰、氫氧化鈉、氫氧化鉀；磷酸鹼金屬鹽的磷酸二氫鈉、磷酸氫二鈉、磷酸三鈉、磷酸二氫鉀、磷酸氫二鉀、磷酸三鉀；為磺酸化合物之鹼金屬鹽的甲烷磺酸鈉、甲烷磺酸鉀、丁基磺酸鈉、丁基磺酸鉀、三氟甲烷磺酸鈉、三氟甲烷磺酸鉀、四氟乙烷磺酸鈉、四氟乙烷磺酸鉀、九氟丁烷磺酸鈉、九氟丁烷磺酸鉀、苯磺酸鈉、苯磺酸鉀、對甲苯磺酸鈉、對甲苯磺酸鉀、2,4,6-三甲基苯磺酸鈉、2,4,6-三甲基苯磺酸鉀、苯乙烯磺酸鈉、苯乙烯磺酸鉀、全氟辛烷磺酸鈉、全氟辛烷磺酸鉀、十七氟辛烷磺酸鈉、十七氟辛烷磺酸鉀等。可藉由在聚酯樹脂組成物的聚縮合反應時進行添加的方法、使用雙軸混練擠製機等與聚縮合反應後的聚酯樹脂組成物混練的方法等習知的方法，使聚酯樹脂組成物含有該等鹼金屬化合物。

【0041】本發明的聚酯樹脂組成物可含有粒子。本發明的聚酯樹脂組成物含有的粒子，若為無機粒子，可例示：二氧化矽、氧化鋁、硫酸鋇、碳酸鋇、氧化鎂、硫酸鎂、碳酸鎂、氧化鋅、硫化鋅、碳酸鋅、二氧化鈦、氧化鈾、氧化鋯、氧化鐵、高嶺石、滑石、雲母、碳黑、矽，若為有機粒子，可例示：交聯聚苯乙烯、交聯矽、交聯丙烯酸、交聯苯乙烯-丙烯酸、交聯聚酯、

聚醯亞胺、三聚氰胺的樹脂粒子，粒子的種類並無特別限定。從經濟性、熱穩定性、粒子分散性的觀點來看，較佳係使用二氧化矽粒子、氧化鋁粒子、交聯聚苯乙烯粒子。

【0042】使本發明的聚酯樹脂組成物含有粒子的方法並無特別限定，從提升粒子分散性的觀點來看，較佳係藉由在聚酯樹脂組成物的聚縮合反應時進行添加的方法、使用雙軸混練擠製機等與聚縮合反應後的聚酯樹脂組成物混練的方法，使聚酯樹脂組成物含有粒子。又，本發明的聚酯樹脂組成物含有之粒子種類的數量，只要在無損本發明之效果的範圍內則無特別限定，可使其含有 1 種以上的粒子。

【0043】使本發明的聚酯樹脂組成物含有粒子時的形態可為粉體、漿液的任一者，從分散性的觀點來看，較佳係作為漿液進行添加。又，漿液可為水漿液，亦可為聚酯組成物的二醇成分之漿液的任一者，從聚酯樹脂組成物之粒子分散性的觀點來看，較佳係與聚酯的二醇成分相同。

【0044】以下具體記載本發明的聚酯樹脂組成物的製造方法。

【0045】例如，本發明中的聚酯為聚對苯二甲酸乙二酯(以下稱為 PET)的情況，通常係以下述製程所製造：以對苯二甲酸或對苯二甲酸二甲酯與乙二醇作為原料，藉由酯化反應、酯交換反應等反應獲得以雙羥乙基對苯二甲酸酯(以下稱為 BHET)為代表的低聚合物後，

藉由聚縮合反應獲得高分子量 PET。

【0046】獲得低聚合物的 BHET 之反應並無特別限定，可藉由習知的反應實施。作為例子，可藉由以對苯二甲酸二甲酯與乙二醇作為原料並加入酯交換反應觸媒而進行的酯交換反應、以對苯二甲酸與乙二醇作為原料且即使無觸媒亦會因羧酸的自觸媒作用而進行的酯化反應來獲得 BHET。又，亦可將回收的 PET 製品解聚合而獲得 BHET。即使無觸媒，反應亦會因為羧酸的自觸媒作用而充分進行，無須添加鈣化合物、鎂化合物、錳化合物等反應觸媒，從此點來看，較佳係以酯化反應來進行。藉由在無觸媒下實施酯化反應，可抑制聚縮合反應之階段中的熱分解、異物的產生等。

【0047】然後，將所得之 BHET 移送至聚合槽，添加對甲苯磺酸成分、四級磷成分等添加劑以及聚縮合反應觸媒等之後，將裝置內溫度緩慢加熱至 279℃，從常壓減壓至 133Pa 以下。隨著聚合反應的進行，反應物的黏度上升。在變成既定攪拌扭矩的時間點，結束反應，獲得熔融 PET。之後，所得之熔融 PET 藉由從噴嘴吐成股線狀、冷卻並利用裁切進行顆粒化之方法可製造聚酯樹脂組成物。

【0048】所得之聚酯樹脂組成物，較佳係在乾燥步驟前進行預結晶化。預結晶化可採用：對於聚酯樹脂組成物施加機械衝擊以實施剪切處理的方法、在熱風流通下實施加熱處理的方法等。

【0049】就本發明的聚酯組成物而言，為了獲得高

分子量的聚酯樹脂組成物，亦可進行固相聚合。固相聚合其裝置、方法並無特別限定，可藉由在非活性氣體環境下或減壓下，以聚酯樹脂組成物的熔點以下之溫度對於聚酯組成物進行加熱處理而實施。非活性氣體只要是相對於聚酯樹脂組成物為非活性者即可，可列舉例如：氮、氬、碳酸氣體等，從經濟性來看，較佳係使用氮。又，減壓條件中，進一步提高真空度可縮短固相聚合反應所需的時間而有利，具體而言，較佳係保持 110Pa 以下。

【0050】本發明的聚酯樹脂組成物可適用於薄膜、纖維、成形體等各種用途，因為具有良好的靜電施加性及透明性，尤其適用於薄膜。又，在將本發明的聚酯樹脂組成物成形為薄膜時，可以習知的成形加工方法使薄膜成形。在將本發明的聚酯樹脂組成物加工成薄膜時，在無損本發明之效果的範圍內，可添加各種添加劑，例如可添加包含顏料及染料的著色劑、潤滑劑、抗靜電劑、阻燃劑、紫外線吸收劑、抗菌劑、核劑、塑化劑、離型劑等添加劑中的一種以上。

【0051】由本發明的聚酯樹脂組成物所構成之薄膜，無論係由熔融擠製所得之未延伸薄膜或是實施了單軸延伸、雙軸延伸的延伸薄膜皆無妨。又，實施雙軸延伸的情況，無論是逐次雙軸延伸薄膜或是同時雙軸延伸薄膜皆無妨。例如，將所得之聚酯樹脂組成物的顆粒在 180℃ 真空乾燥 3 小時以上之後，為了避免固有黏度降低，而在氮氣流下或真空下供給至已加熱至 280～320℃

的擠製機，使其通過纖維燒結不銹鋼金屬過濾器內部之後，從狹縫狀的模進行擠製，一邊對於澆鑄鼓輪施加靜電荷一邊進行冷卻，藉此獲得未延伸薄膜。再者，將此未延伸薄膜導入紅外線加熱器裝置，在輥間於薄膜的行進方向即長邊方向上進行延伸，藉此獲得單軸延伸薄膜。接著，以夾具載持單軸延伸薄膜，一邊加熱一邊在與長邊方向正交的寬度方向上延伸之後，藉由冷卻完成結晶定向而獲得逐次雙軸延伸薄膜。或是將未延伸薄膜在長邊及寬度方向上同時延伸而藉此獲得同時雙軸延伸薄膜。

【0052】由本發明的聚酯樹脂組成物所構成之薄膜可為薄膜整體由相同樹脂構成的單膜薄膜，亦可為摻合本發明的聚酯樹脂組成物與其他聚酯樹脂組成物而構成的單膜薄膜。又，亦可為含有本發明之聚酯樹脂組成物之薄膜層至少被包含一層的積層薄膜。將含有本發明之聚酯樹脂組成物之薄膜層進行積層的情況，本發明的聚酯樹脂組成物的摻合量並未特別限定。又，從賦予所得之聚酯薄膜易滑性的觀點來看，可摻合含有粒子的聚酯樹脂組成物。

【0053】本發明的聚酯樹脂組成物，因為異物少、色調良好、透明性(濁度)優良並具有耐熱性、良好的靜電施加性，因此可適用於：積層陶瓷電容器的生胚成形用基材、液晶偏光板的分隔件、乾膜光阻用基材之類的離型用途的薄膜；光學用途的高品質薄膜。由本發明的聚酯樹脂組成物所構成之聚酯薄膜具有下述特徵：在成

形時具有良好的靜電施加性，薄膜厚度不均勻的情況少，金屬異物少，透明性優良。

[實施例]

【0054】以下舉出實施例具體說明本發明。另外，物性的測定方法、效果的評價方法可以下述方法進行。

【0055】

(1)聚酯樹脂組成物的固有黏度 $[\eta]$ (單位：dL/g)

以 0.001g 以內的精度秤量 0.1g 的聚酯樹脂組成物，使用 10mL 的鄰氯酚(以下稱為 OCP)加熱 100°C×30 分鐘以進行溶解。將溶液冷卻至室溫，對於設置在 25°C 之水槽中的奧士華黏度計加入 8mL 的該溶液，測量通過標線的秒數(A 秒)。又，僅使用 8mL 的 OCP，與前述相同地以設置於 25°C 之水槽中的奧士華黏度計測量通過標線的秒數(B 秒)。固有黏度 $[\eta]$ 係藉由 $[\eta] = -1 + [1 + 4 \times K \times \{(A/B) - 1\}]^{0.5} / (2 \times K \times C)$ 的算式算出。此處，K 為 0.343，C 為試料溶液的濃度(g/100mL)。

【0056】

(2)聚酯樹脂組成物的聚合時間

在聚酯樹脂組成物的聚縮合反應中，將裝置內溫度開始升溫及從常壓開始減壓的時間點設為 0 分鐘，將變成既定攪拌扭矩的時間點視為反應結束，以設為聚合時間。聚合時間超過 5 小時的情況，有損聚酯樹脂組成物的製造效率，因此評為不適當。

【0057】

(3)聚酯樹脂組成物中的元素含量(單位：重量 ppm)

關於磷元素(原子)、鎂元素(原子)、錳元素(原子)、銻元素(原子)、鈦元素(原子)、鉻元素(原子)及鋁元素(原子)的含量，係以熔融壓製機將聚酯樹脂組成物的試料顆粒成形為圓柱狀，使用理學電機股份有限公司製螢光 X 光分析裝置(型號：3270)求出螢光 X 光強度，由預先製成的校正曲線算出。關於鹼金屬元素(鋰元素(原子)、鈉元素(原子)、鉀元素(原子))的含量，係以原子吸光分析法(日立製作所股份有限公司製：偏光 Zeeman 原子吸光光度計 180-80 形，火燄：乙炔-空氣)進行定量。

【 0058 】

(4) 聚酯樹脂組成物的色調

將聚酯樹脂組成物的樹脂顆粒填充至圓柱狀的粉體測定用容器，藉由 Suga Test Instruments 股份有限公司製的色差計(SM color meter SM-T)，使用反射法，以 $n=3$ 測定 b 值。將測定值的算術平均設為色調 b 值，以作為色調的評價指標。若此值為 9.0 以下則評為良好，大於 9.0 且 10.0 以下則評為合格，超過 10.0 的情況則評為不合格。

【 0059 】

(5) 對甲苯磺酸成分及四級磷成分的含量(單位：mol/t)

將 0.5g 的聚對苯二甲酸乙二酯樹脂組成物溶解於 8mL 的六氟異丙醇，以 10mL 的二氯甲烷稀釋後，緩慢添加 30mL 的甲醇，進行再沉澱。進行離心分離，將上清液採集至圓底燒瓶。對於殘渣加入 10mL 的二氯甲烷

與 20mL 的甲醇以進行清洗，再將上清液採集至先前的圓底燒瓶。一邊將圓底燒瓶加熱至 80℃一邊緩慢吹入氮氣，濃縮後以二甲基亞碲進行稀釋，作為液體層析(以下記載為 HPLC)的試料。試料中的對甲苯磺酸成分之含量(mol/t)係由預先製作的對甲苯磺酸之校正曲線而使用 HPLC 裝置求出，四級磷成分的含量(mol/t)係由預先製作的各物質(添加四丁基氫氧化磷、四乙基氫氧化磷、其他四級磷化合物的情況亦相同)之校正曲線而使用 HPLC 裝置求出。另外，以 HPLC 進行成分分割的各成分之鑑定係以液體層析質量分析法(LC-MS)進行分析。

【0060】HPLC 測定條件如下。

製造商：HITACHI

機種名：Chromaster(檢測器：5420，管柱烘箱：6310)

管柱：ODS-2 6.0×250mm，5μm(GL Sciences)

移動相：A：B=40：60(A：0.1%磷酸水溶液，B：乙醯二甲苯基)

流量：1.2mL/分鐘

注入量：30μL

管柱溫度：45℃

UV 波長：235nm。

【0061】

(6)聚酯樹脂組成物的熔融比電阻(單位： $\Omega \cdot \text{cm}$)

於 290℃將聚對苯二甲酸乙二酯樹脂組成物熔融後，將 2 片面積為 0.5cm^2 的不銹鋼製電極以 8mm 的間

隔平行插入其中，溫度穩定後，藉由電阻計(日置電機股份有限公司製：電阻計 RM3545)測定電阻值(R)。然後從 $\rho(\Omega \cdot \text{cm}) = R \times 0.5 / 0.8$ 的算式算出熔融比電阻(ρ)。

【 0062 】

(7)聚酯樹脂組成物的耐熱性(主鏈斷裂率(%BB))(單位：%)

採集 5g 的聚酯樹脂組成物至試管中，於 160℃真空乾燥 5 小時後，在 290℃的油浴中以 300mL/分鐘流通氮氣流下進行熔融 6 小時。使用熔融物的固有黏度 $[\eta]_{6\text{hr}}$ 及熔融前的固有黏度 $[\eta]_{0\text{hr}}$ 而由主鏈斷裂率(%) $=0.27 \times \{[\eta]_{6\text{hr}}^{(-1.33)} - [\eta]_{0\text{hr}}^{(-1.33)}\}$ 的算式算出主鏈斷裂率。此值為 0.43%以下則評為良好，大於 0.43%且 0.48%以下則評為合格，超過 0.48%的情況則評為不合格。

【 0063 】

(8)聚酯樹脂組成物的 COOH 末端基量(單位：eq/t)以 Maurice 的方法進行測定(文獻 M.J. Maurice, F.Huizinga, Anal. Chem. Acta, 22, 363(1960))。

亦即，以 0.001g 以內的精度秤量 0.5g 的聚酯樹脂組成物。在該試料中加入 50ml 的以 7/3 的質量比混合鄰甲酚/氯仿而成的溶劑，進行加熱，在內溫成為 90℃之後開始加熱攪拌 20 分鐘以進行溶解。又，亦僅將混合溶劑相同地另外進行加熱以作為對照液。將溶液冷卻至室溫，以 1/50N 的氫氧化鉀之甲醇溶液，使用電位差滴定裝置進行滴定。又，亦對於僅有混合溶劑的對照液相

同地實施滴定。

聚酯樹脂組成物的 COOH 末端基量係由以下的算式進行計算。

$$\text{COOH 末端基量 (eq/t)} = \{ (V1 - V0) \times N \times f \} \times 1000 / S$$

此處 V1 為試料溶液的滴定液體量 (mL)、V0 為對照液的滴定液體量 (mL)、N 為滴定液的當量濃度 (N)、f 為滴定液的因數、S 為聚酯樹脂組成物的質量 (g)。

【 0064 】

(9) 聚酯樹脂組成物的耐水解性 (COOH 末端基增加量 (ΔCOOH))(單位：eq/t)

將聚酯樹脂組成物在飽和水蒸氣下於 155℃進行濕熱處理 4 小時，測定處理前後的 COOH 末端基量，藉此算出 COOH 末端基增加量 ($\Delta\text{COOH} = \text{處理後 COOH} - \text{處理前 COOH}$)，以評價耐水解性。另外，處理裝置係使用 PRESSERCOOKER 306SIII (HIRAYAMA 製作所股份有限公司製)。 ΔCOOH 的值越低，耐水解性越好。本發明的聚酯樹脂組成物的 ΔCOOH 值在 80.0 以下則評為良好，大於 80.0 且 90.0 以下則評為合格，超過 90.0 的情況則評為不合格。

【 0065 】

(10) 聚酯樹脂組成物的溶液濁度 (單位：%)

將 2.0g 的聚酯樹脂組成物加入 20mL 的苯酚 / 1,1,2,2-四氯乙烷 (60：40wt%) 的混合溶劑，於 100℃攪拌 60 分鐘以使其溶解，冷卻至室溫後，將該溶液置入 20mm 的玻璃容器，藉由 Suga Test Instruments 製濁度

計(HGM-2DP)進行測定。溶液濁度的測定值為 1.0%以下則聚酯樹脂組成物的透明性良好，大於 1.0%且 1.2%以下則將透明性評為合格，超過 1.2%的情況則評為不合格。

【 0066】

(11)聚酯樹脂組成物中的異物數量(單位：個/ 0.1mm^2)

以電漿低溫灰化處理法去除聚酯樹脂組成物，使大型的異物露出。處理條件係選擇異物不受到極大損傷的條件。以掃描式電子顯微鏡(SEM)觀察該異物，以影像分析器處理異物影像。SEM 的倍率係選擇 1000 倍。改變觀察處，在 0.1mm^2 以上進行測定，針對觀察的白色物，將等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上視為異物，計算異物個數。

【 0067】

(12)耐熱性參數 X(熱處理前後的 FT-IR 吸收峰值的測定)

從各試料內部進行取樣，藉由顯微紅外分光裝置(FT-IR MICROSCOPE：Nicolet ContinuumII(Thermo Fisher scientific 製顯微 FT-IR))，測定熱處理前以及在氮氣環境下於 285°C 加熱處理 5 小時後之聚合物的 FT-IR，求出分別在 1610cm^{-1} 及 $1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}$ 的吸收強度。另外，為了將測定不均勻極小化，對於相同樣本進行測定 5 次並使用其之相加平均。使用所得之吸收強度，從式 1 算出耐熱性參數 X。

【 0068 】 [數 4]

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$$X = \frac{\frac{1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}}{\frac{\text{聚酯樹脂組成物熱處理前的 } 1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}} \quad \text{式 1}$$

【 0069 】

(13) 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 過 濾 捕 捉 物 中 的 金 屬 銻 數 量 (單 位 : 個 /0.1mm²)

使 2.0g 的 聚 酯 樹 脂 組 成 物 的 樹 脂 顆 粒 溶 解 於 20mL 的 二 氯 甲 烷 -OCP 混 合 溶 劑 , 以 孔 徑 0.1μm 的 隔 膜 過 濾 器 進 行 過 濾 。 以 掃 描 式 電 子 顯 微 鏡 (SEM)的 背 散 射 電 子 影 像 觀 察 過 濾 後 在 過 濾 器 上 的 異 物 , 藉 由 影 像 分 析 器 處 理 異 物 影 像 。 SEM 的 倍 率 係 選 擇 1000 倍 。 改 變 觀 察 處 , 在 0.1mm² 以 上 進 行 測 定 , 針 對 觀 察 的 白 色 物 , 將 等 效 圓 直 徑 0.2μm 以 上 視 為 過 濾 捕 捉 物 中 的 金 屬 銻 , 計 算 個 數 , 以 作 為 聚 酯 樹 脂 組 成 物 中 的 金 屬 銻 數 量 之 指 標 。 背 散 射 電 子 影 像 中 觀 察 的 白 色 物 , 藉 由 SEM-EDX(能 量 分 散 型 X 光 光 譜 法)的 觀 察 而 確 認 為 銻 。 過 濾 捕 捉 物 中 的 金 屬 銻 數 量 越 少 越 好 , 若 為 100 個 /0.1mm² 以 下 則 評 為 良 好 , 若 為 101 個 /0.1mm² 以 上 500 個 /0.1mm² 以 下 則 評 為 合 格 , 若 為 501 個 /0.1mm² 以 上 則 評 為 不 合 格 。

【 0070 】

(14) 聚酯薄膜的製膜性(靜電施加性)

在實施例、比較例中製作未延伸薄膜時，以下述基準判斷製膜性。

○(良好)：無問題而可製作薄膜。

△(合格)：雖觀察到對於澆鑄鼓輪的密合性降低，但薄膜的製作沒有問題。

×(不合格)：對於澆鑄鼓輪的密合性不良，難以製作薄膜。

【 0071 】

(15) 導體電路的良率評價

在實施例、比較例中製作延伸後的薄膜時，以下述程序進行導體電路的良率評價。

(i)在經過單面鏡面研磨的 6 英吋 Si 晶圓上塗布東京應化股份有限公司製的負光阻「PMER N-HC600」，藉由大型旋塗機使其旋轉，藉此製作厚度 7 μ m 的光阻層。接著，使用氮氣循環的通風烘箱，以 70℃的溫度條件，進行約 20 分鐘的前熱處理。

(ii)將聚酯薄膜的表面以接觸光阻層的方式與其重疊，使用橡膠製的滾軸，在將聚酯薄膜層合於光阻層上，在其上配置係鉻金屬且經圖案化的光罩，使用 I 線步進機從該光罩上方進行曝光。

(iii)將聚酯薄膜從光阻層剝離後，將光阻層置入裝有顯影液 N-A5 的容器中，進行顯影約 1 分鐘。之後，將其從顯影液取出，以水進行清洗約 1 分鐘。

(iv)從顯影後製作的導體電路之斷線/短路試驗的結

果，將斷線不良或短路不良的發生率未達 5%者評為○(良好)，5%以上且未達 10%者評為△(合格)，10%以上者評為×(不合格)。另外，△以上的評價為可實用等級。

【0072】

(實施例 1)

在裝有 105 重量份的已於 250℃溶解之 BHET 的酯化反應器中，緩慢添加由 86 重量份的對苯二甲酸與 37 重量份的乙二醇(相對於對苯二甲酸為 1.15 倍莫耳)所構成之漿液，一邊餾出水一邊進行酯化反應。反應系統內的溫度係控制為 245～250℃，在反應率到達 95%的階段，結束酯化反應，將 105 重量份的所得之酯化反應物(相當於 100 重量份的 PET)在熔融狀態下置入附餾出裝置的聚合裝置。

【0073】將 0.0112 重量份的四丁基氫氧化磷作成乙二醇溶液而進行添加，然後將 0.0077 重量份的對甲苯磺酸作成乙二醇溶液而進行添加。接著將 0.0090 重量份的乙酸錳四水合物作成乙二醇溶液而進行添加，然後將 0.0084 重量份的三氧化二銻作成乙二醇漿液而進行添加。接著將聚合反應槽內緩慢減壓，用 35 分鐘變成 0.13kPa 以下，與此同時緩慢升溫變成 279℃，實施聚合反應直到聚酯樹脂組成物的固有黏度成為 0.62dL/g。之後，藉由氮氣使聚縮合反應槽回到常壓，從噴嘴將其吐出至冷水中而成為股線狀，藉由擠製裁刀進行顆粒化而成為圓柱狀，獲得等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量為

490 個 /0.1mm²、熔融比電阻為 $2.2 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 、耐熱性參數 X 為 1.1 的聚酯樹脂組成物。

【0074】所得之聚酯樹脂組成物，含有表 1 記載之量的對甲苯磺酸成分、四級磷成分、銻元素、磷元素、錳元素。色調 b 值為 6.8，耐熱性指標的主鏈斷裂率(%BB)為 0.38%，耐水解性指標的 COOH 末端基增加量(ΔCOOH)為 72.9eq/t，溶液濁度為 0.9%，皆為良好的值。又，過濾捕捉物中的金屬銻數量為 270 個 /0.1mm²，在合格範圍內。

【0075】然後將所得之聚酯樹脂組成物的樹脂顆粒在 160℃減壓乾燥 8 小時後，供給至擠製機，在 285℃的溫度條件下進行熔融擠製，將其澆鑄於施加了靜電的 20℃之澆鑄鼓輪上，藉此獲得未延伸片。藉由加熱至 90℃的延伸輥，將此未延伸片在長邊方向上延伸 3.5 倍，接著藉由拉幅式延伸機於 120℃在寬度方向上延伸 4.0 倍，之後於 230℃實施熱固定 10 秒。在冷卻區域中均勻地徐冷後捲繞成捲筒，獲得厚度 16μm 的聚酯薄膜。在此聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【0076】
(實施例 2～7、比較例 1～3)
變更對甲苯磺酸的添加量，使其為表 1、2 記載的含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 2。

實施例 2～4 與比較例 1 中，隨著對甲苯磺酸成分

含量增加，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物增加，因此聚酯樹脂組成物的溶液濁度上升， ΔCOOH 亦上升。此等的指標，在實施例 2～4 中係在合格範圍內，但在比較例 1 中則為不合格。

實施例 5～7 與比較例 2 中，隨著對甲苯磺酸成分含量減少，熔融比電阻上升，在聚酯薄膜的製膜性評價中，有靜電施加性變差的傾向。又，聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻數量亦增加。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向。此等的指標在實施例 5～7 中係在合格範圍內，但在比較例 2 中則為不合格，比較例 2 的導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

再者，比較例 3 中，因為未添加對甲苯磺酸成分，熔融比電阻大幅上升，聚酯薄膜的製膜性不合格。又，聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻數量亦不合格，比較例 3 的導體電路之良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

【0077】

(實施例 8～14、比較例 4～6)

變更四丁基氫氧化鎘的添加量，使其為表 1、2 記載的含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 2。

實施例 8～11 與比較例 4 中，隨著四級鎘成分含量的增加，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物增加，因此聚酯樹脂組成物的溶液濁度上升。又，聚酯樹脂組成物的過

濾捕捉物中的金屬銻數量亦增加。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向。此等的指標，在實施例 8～11 中係在合格範圍內，但在比較例 4 中則為不合格。

實施例 12～14 與比較例 5 中，隨著四級磷成分含量減少，熔融比電阻上升，在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性有變差的傾向。又， ΔCOOH 亦有上升的傾向。此等的指標，在實施例 12～14 中係在合格範圍內，但在比較例 5 中則為不合格，導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

再者，比較例 6 中，因為未添加四級磷成分，故熔融比電阻大幅上升，聚酯薄膜的製膜性不合格。又， ΔCOOH 的值亦大而不合格，導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

【 0078 】 [表 1]

[表 1]

	聚脂樹脂組成物的構成														
	對甲苯磺酸成分		四級磷成分		聚縮合觸媒 元素含量(重量 ppm)				四級磷成分以外之 磷化合物	磷元素含量 (重量 ppm)	錳元素含量 (重量 ppm)	鹼金屬		其他金屬成分	
	化合物	含量 (mol/t)	化合物	含量 (mol/t)	Sb	Ti	Ge	Al				元素名稱	含量 (重量 ppm)	元素名稱	含量 (重量 ppm)
實施例 1	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 2	對甲苯磺酸	0.48	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 3	對甲苯磺酸	0.55	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 4	對甲苯磺酸	0.63	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 5	對甲苯磺酸	0.28	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 6	對甲苯磺酸	0.21	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 7	對甲苯磺酸	0.10	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
實施例 8	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.31	70	-	-	-	-	10	20			-	-
實施例 9	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.45	70	-	-	-	-	14	20			-	-
實施例 10	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.52	70	-	-	-	-	17	20			-	-
實施例 11	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.62	70	-	-	-	-	20	20			-	-
實施例 12	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.17	70	-	-	-	-	5	20			-	-
實施例 13	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.12	70	-	-	-	-	4	20			-	-
實施例 14	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.08	70	-	-	-	-	3	20			-	-
比較例 1	對甲苯磺酸	0.70	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
比較例 2	對甲苯磺酸	0.05	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20			-	-
比較例 3	無	-	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	5	20			-	-
比較例 4	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.70	70	-	-	-	-	22	20			-	-
比較例 5	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.05	70	-	-	-	-	1	20			-	-
比較例 6	對甲苯磺酸	0.41	無	-	70	-	-	-	-	-	20			-	-

【 0079 】 [表 2]

[表 2]

	聚酯樹脂組成物的特性												聚酯薄膜的特性	
	固有黏度 (dL/g)	聚合時間 (hh:mm)	色調 b 值	耐熱性 (%BB)	耐水解性 ΔCOOH (eq/t)	溶液濁度 (%)	過濾捕捉物中的 金屬 Sb 數量 (個/0.1mm ²)	凝膠化指標			等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量 (個/0.1mm ²)	熔融比電阻 (Ω·cm)	靜電 施加性	導體電路的 良率評價
								處理前	285°C×5hr、 氮氣下處理後	耐熱性參數 X				
實施例 1	0.62	2:55	6.8	0.38	72.9	0.9	270	0.24	0.27	1.1	490	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 2	0.62	2:55	6.8	0.38	76.8	1.0	270	0.24	0.27	1.1	540	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 3	0.62	2:55	6.8	0.40	81.2	1.1	270	0.24	0.27	1.1	570	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 4	0.62	2:55	6.8	0.41	87.4	1.2	270	0.24	0.27	1.1	620	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 5	0.62	2:55	6.8	0.38	71.6	0.9	310	0.24	0.27	1.1	490	2.9×10 ⁶	○	○
實施例 6	0.62	2:55	6.8	0.38	68.5	0.9	330	0.24	0.27	1.1	480	3.4×10 ⁶	△	○
實施例 7	0.62	2:55	6.8	0.38	62.4	0.9	400	0.24	0.27	1.1	480	3.8×10 ⁶	△	○
實施例 8	0.62	2:55	6.8	0.38	70.8	1.0	290	0.24	0.27	1.1	500	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 9	0.62	2:55	6.8	0.38	67.7	1.1	340	0.24	0.27	1.1	560	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 10	0.62	2:55	6.8	0.38	65.4	1.2	410	0.24	0.27	1.1	610	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 11	0.62	2:55	6.8	0.38	62.4	1.2	480	0.24	0.27	1.1	630	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 12	0.62	2:55	6.8	0.38	79.3	1.0	270	0.24	0.27	1.1	500	2.8×10 ⁶	○	○
實施例 13	0.62	2:55	6.8	0.39	83.3	1.0	270	0.24	0.27	1.1	540	3.3×10 ⁶	△	○
實施例 14	0.62	2:55	6.8	0.39	88.4	1.1	270	0.24	0.27	1.1	560	4.0×10 ⁶	△	○
比較例 1	0.62	2:55	6.8	0.42	93.5	1.3	270	0.24	0.27	1.1	680	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 2	0.62	2:55	6.8	0.38	55.2	0.8	530	0.24	0.27	1.1	490	8.7×10 ⁶	×	-
比較例 3	0.62	3:00	6.8	0.38	44.1	0.8	550	0.24	0.27	1.1	490	20.0×10 ⁶	×	-
比較例 4	0.62	2:55	6.8	0.38	60.5	1.4	520	0.24	0.27	1.1	690	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 5	0.62	2:55	6.0	0.41	96.9	1.1	270	0.24	0.27	1.1	580	8.2×10 ⁶	×	-
比較例 6	0.62	3:00	6.0	0.41	230	1.1	270	0.24	0.27	1.1	590	43.6×10 ⁶	×	-

【 0080】

(實施例 15)

在裝有 105 重量份已於 250℃溶解之 BHET 的酯化反應器中，緩慢添加由 86 重量份的對苯二甲酸與 37 重量份的乙二醇(相對於對苯二甲酸為 1.15 倍莫耳)所構成之漿液，一邊使水餾出，一邊進行酯化反應。反應系統內的溫度控制為 245～250℃，在反應率到達 95%的階段，結束酯化反應，將 105 重量份的所得之酯化反應物(相當於 100 重量份的 PET)在熔融狀態下加入附餾出裝置的聚合裝置。

【0081】將 0.0175 重量份的預先將等莫耳的對甲苯磺酸與四丁基氫氧化鎘進行中和調整而成之對甲苯磺酸四丁基鎘作成乙二醇溶液而進行添加，然後將 0.0090 重量份的乙酸錳四水合物作成乙二醇溶液而進行添加，然後將 0.0050 重量份的鈦酸四正丁酯作成乙二醇溶液而進行添加。接著將聚合反應槽內緩慢減壓，以 35 分鐘使其為 0.13kPa 以下，與此同時緩慢升溫至 279℃，實施聚合反應直到聚酯樹脂組成物的固有黏度為 0.62dL/g。之後，藉由氮氣使聚縮合反應槽回到常壓，從噴嘴將其吐出至冷水中而成為股線狀，藉由擠製裁刀進行顆粒化而成為圓柱狀，獲得等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量為 380 個/0.1mm²、熔融比電阻為 $2.2 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 、耐熱性參數 X 為 1.1 的聚酯樹脂組成物。又，以與實施例 1 相同的方法獲得聚酯薄膜。結果顯示於表 4。

所得之聚酯樹脂組成物，色調 b 值高至 8.2，但在

良好範圍內。又，相較於實施例 1 的聚酯樹脂組成物，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物少，又，因未使用銻觸媒，故未觀察到聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻。此聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【0082】

(實施例 16~19、比較例 7、8)

變更鈦酸四正丁酯的添加量，使其為表 3 記載的鈦元素之含量，除此之外，以與實施例 15 相同的方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 4。

實施例 16、17 與比較例 7 中，隨著鈦元素含量的增加，色調 b 值、%BB、 ΔCOOH 有上升的傾向，但此等指標在實施例 16 與 17 中係在合格範圍內。另一方面，比較例 7 中，色調 b 值與 %BB 不合格。

實施例 18、19 與比較例 8 中，隨著鈦元素含量的減少，有聚合時間變長的傾向，但實施例 18 與 19 在合格範圍。另一方面，比較例 8 中，鈦元素的含量少，聚縮合反應的活性不足，聚合時間超過 5 小時亦未到達目標的固有黏度。因此未實施聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜的特性評價。

【0083】

(實施例 20)

將 0.0072 重量份的二氧化銻作成乙二醇溶液而進行添加，藉此代替添加鈦酸四正丁酯作為聚縮合反應觸媒，除此之外，以與實施例 15 相同的方法，獲得聚酯

樹脂組成物及聚酯薄膜。色調 b 值為 6.8，%BB 為 0.34%， ΔCOOH 為 68.5eq/t，溶液濁度為 0.5%，皆為良好的值。因未使用銻觸媒，故未觀察到聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻。聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【 0084 】

(實施例 21、22、比較例 9、10)

變更二氧化銻的添加量，使其為表 3 記載的銻元素之含量，除此之外，以與實施例 20 相同的方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。

實施例 21 中，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量多至 610 個/ 0.1mm^2 ，聚酯樹脂組成物的溶液濁度為 1.1%，但在合格範圍內。又，聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向，但仍在合格範圍內。

比較例 9 中，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量進一步多至 680 個/ 0.1mm^2 ，聚酯樹脂組成物的溶液濁度為 1.4%而不合格。

實施例 22 中，相較於實施例 20，銻元素量少，聚合時間變長，但在聚酯樹脂組成物的特性評價中，皆在合格範圍內。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向，但仍在合格範圍內。

比較例 10 中，相較於實施例 22，銻元素量更少，聚縮合反應的活性不足，因此即使聚合時間超過 5 小

時，亦未達到目標的固有黏度。因此未實施聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜的特性評價。

【0085】

(實施例 23)

作為添加鈦酸四正丁酯以作為聚縮合反應觸媒的替代，將其變更為乙酸鋁的乙二醇溶液而進行添加，使其為表 3 記載之鋁元素的含量，除此之外，以與實施例 15 相同的方法，獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。色調 b 值為 6.9，%BB 為 0.38%， ΔCOOH 為 70.6eq/t，溶液濁度為 0.9%，皆為良好的值。因未使用銻觸媒，故未觀察到聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻。聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【0086】

(實施例 24～28、比較例 11、12)

變更乙酸鋁的添加量，使其為表 3 記載的鋁元素之含量，除此之外，以與實施例 23 相同的方法，獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。

實施例 24～26 與比較例 11 中，隨著鋁元素之含量的增加，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物增加，聚酯樹脂組成物的溶液濁度因而上升，色調 b 值、%BB、 ΔCOOH 有上升的傾向，但此等的指標在實施例 24～26 中皆在合格範圍內。又，在使用實施例 26 中所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向，但仍在合格範圍內。另一方面，在比較例 11 中，%BB、溶液濁度皆為

不合格，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。

實施例 27、28 與比較例 12 中，隨著鋁元素含量減少，有聚合時間變長的傾向，但實施例 27 與 28 為合格範圍。另一方面，比較例 12 中鋁元素含量少，聚縮合反應的活性不足，即使聚合時間超過 5 小時，亦未達到目標的固有黏度。因此未實施聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜的特性評價。

【 0087】 [表 3]

[表 3]

	聚酯樹脂組成物的構成														
	對甲苯磺酸成分		四級磷成分		聚縮合觸媒 元素含量(重量 ppm)				四級磷成分 以外之 磷化合物	磷元素含量 (重量 ppm)	錳元素含量 (重量 ppm)	鹼金屬		其他金屬成分	
	化合物	含量 (mol/t)	化合物	含量 (mol/t)	Sb	Ti	Ge	Al				元素 名稱	含量 (重量 ppm)	元素 名稱	含量 (重量 ppm)
實施例 15	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 16	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	10	-	-	-	7	20			-	-
實施例 17	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	18	-	-	-	7	20			-	-
實施例 18	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	3	-	-	-	7	20			-	-
實施例 19	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	1	-	-	-	7	20			-	-
實施例 20	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	50	-	-	7	20			-	-
實施例 21	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	135	-	-	7	20			-	-
實施例 22	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	20	-	-	7	20			-	-
實施例 23	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	15	-	7	20			-	-
實施例 24	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	25	-	7	20			-	-
實施例 25	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	45	-	7	20			-	-
實施例 26	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	90	-	7	20			-	-
實施例 27	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	5	-	7	20			-	-
實施例 28	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	0.5	-	7	20			-	-
比較例 7	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	25	-	-	-	7	20			-	-
比較例 8	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	0.05	-	-	-	7	20			-	-
比較例 9	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	170	-	-	7	20			-	-
比較例 10	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	3	-	-	7	20			-	-
比較例 11	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	140	-	7	20			-	-
比較例 12	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	-	0.05	-	7	20			-	-

【 0088 】 [表 4]

[表 4]

	聚酯樹脂組成物的特性												聚酯薄膜的特性	
	固有黏度 (dL/g)	聚合時間 (hh:mm)	色調 b 值	耐熱性 (%BB)	耐水解性 ΔCOOH (eq/t)	溶液濁度 (%)	過濾捕捉物中的 金屬 Sb 數量 (個/0.1mm ²)	凝膠化指標			等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量 (個/0.1mm ²)	熔融比電阻 (Ω・cm)	靜電 施加性	導體電路的 良率評價
								處理前	285°C×5hr、 氬氣下處理後	耐熱性 參數 X				
實施例 15	0.62	2:55	8.2	0.41	77.2	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	380	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 16	0.62	2:45	8.7	0.43	79.5	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	410	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 17	0.62	2:30	9.5	0.46	81.3	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	450	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 18	0.62	3:10	8.1	0.40	77.4	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	360	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 19	0.62	3:50	8.6	0.40	72.3	0.6	未觀察到	0.24	0.27	1.1	350	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 20	0.62	2:55	6.8	0.34	68.5	0.9	未觀察到	0.24	0.27	1.1	490	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 21	0.62	2:30	7.0	0.45	69.4	1.1	未觀察到	0.24	0.27	1.1	610	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 22	0.62	3:40	7.3	0.45	69.4	1.1	未觀察到	0.24	0.27	1.1	610	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 23	0.62	2:55	6.9	0.38	70.6	0.9	未觀察到	0.24	0.27	1.1	480	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 24	0.62	2:50	7.2	0.39	72.5	1.0	未觀察到	0.24	0.27	1.1	500	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 25	0.62	2:45	7.6	0.43	78.4	1.1	未觀察到	0.24	0.27	1.1	590	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 26	0.62	2:30	8.4	0.46	83.0	1.2	未觀察到	0.24	0.27	1.1	630	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 27	0.62	3:15	6.9	0.40	71.4	0.9	未觀察到	0.24	0.27	1.1	400	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 28	0.62	3:40	7.2	0.43	72.0	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	360	2.2×10 ⁶	○	○
比較例 7	0.62	2:10	10.6	0.50	83.4	0.9	未觀察到	0.24	0.27	1.1	490	2.2×10 ⁶	○	○
比較例 8	0.52	5:00 以上	9.7	-	-	-	-	-	-	-	330	2.2×10 ⁶	-	-
比較例 9	0.62	2:15	7.0	0.45	69.4	1.4	未觀察到	0.24	0.27	1.1	680	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 10	0.53	5:00 以上	8.1	-	-	-	-	-	-	-	350	2.2×10 ⁶	-	-
比較例 11	0.62	2:15	9.1	0.50	88.2	1.4	未觀察到	0.24	0.27	1.1	720	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 12	0.52	5:00 以上	8.2	-	-	-	-	-	-	-	340	2.2×10 ⁶	-	-

【 0089 】

(實施例 29～35、比較例 13、14)

將聚縮合反應觸媒從三氧化二銻變更為鈦酸四正丁酯，並將鈦元素及對甲苯磺酸成分變更成表 5 記載的含量，除此之外，以與實施例 1 相同的方法，獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 6。

實施例 29 中，對甲苯磺酸成分、四級磷成分、鈦元素、磷元素的含量與實施例 15 相同，但變更對甲苯磺酸成分與四級磷成分的添加方法。因此，等效圓直徑 0.2 μ m 以上的異物數量減少。所得之聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜的評價中，任一指標皆在合格範圍內。

實施例 30～32 與比較例 13 中，隨著對甲苯磺酸成分含量增加，等效圓直徑 0.2 μ m 以上的異物增加，聚酯樹脂組成物的溶液濁度因而上升， Δ COOH 亦上升。此等指標，在實施例 30～32 中皆在合格範圍內，但在比較例 13 中則為不合格。

實施例 33～35 與比較例 14 中，隨著對甲苯磺酸成分含量減少，熔融比電阻上升，在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性有變差的傾向，在實施例 33～35 中係在合格範圍內，但在比較例 14 中則為不合格。又，比較例 14 中導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

【 0090 】

(實施例 36～42、比較例 15、16)

將聚縮合反應觸媒從三氧化二銻變更至鈦酸四正丁

酯，將鈦元素、磷元素及四級磷成分變更成表 5 記載的含量，除此之外，以與實施例 1 相同的方法，獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 6。

實施例 36～39 與比較例 15 中，隨著四級磷成分含量增加，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物增加，聚酯樹脂組成物的溶液濁度上升，實施例 36～39 中係在合格範圍內，但在比較例 15 中則為不合格。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價，在實施例 39 中有變差的傾向但仍在合格範圍內，然而在比較例 15 中則為不合格。

實施例 40～42 與比較例 16 中，隨著四級磷成分含量減少，熔融比電阻上升，在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性有變差的傾向。又， ΔCOOH 亦有上升的傾向。此等指標，在實施例 40～42 中係在合格範圍內，但在比較例 16 中則為不合格。又，比較例 16 中導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

【 0091】 [表 5]

[表 5]

	聚酯樹脂組成物的構成														
	對甲苯磺酸成分		四級磷成分		聚縮合觸媒 元素含量(重量 ppm)				四級磷成分以外之磷化合物	磷元素含量(重量 ppm)	錳元素含量(重量 ppm)	鹼金屬		其他金屬成分	
	化合物	含量(mol/t)	化合物	含量(mol/t)	Sb	Ti	Ge	Al				元素名稱	含量(重量 ppm)	元素名稱	含量(重量 ppm)
實施例 29	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 30	對甲苯磺酸	0.48	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 31	對甲苯磺酸	0.55	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 32	對甲苯磺酸	0.63	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 33	對甲苯磺酸	0.28	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 34	對甲苯磺酸	0.21	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 35	對甲苯磺酸	0.10	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 36	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.31	-	7	-	-	-	10	20			-	-
實施例 37	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.45	-	7	-	-	-	14	20			-	-
實施例 38	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.52	-	7	-	-	-	17	20			-	-
實施例 39	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.62	-	7	-	-	-	20	20			-	-
實施例 40	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.17	-	7	-	-	-	5	20			-	-
實施例 41	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.12	-	7	-	-	-	4	20			-	-
實施例 42	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.08	-	7	-	-	-	3	20			-	-
比較例 13	對甲苯磺酸	0.70	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
比較例 14	對甲苯磺酸	0.05	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
比較例 15	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.70	-	7	-	-	-	22	20			-	-
比較例 16	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.05	-	7	-	-	-	1	20			-	-

【 0092 】 [表 6]

[表 6]

	聚酯樹脂組成物的特性												聚酯薄膜的特性	
	固有 黏度 (dL/g)	聚合 時間 (hh:mm)	色調 b 值	耐熱性 (%BB)	耐水解性 ΔCOOH (eq/t)	溶液 濁度 (%)	過濾捕捉物中的 金屬 Sb 數量 (個/0.1mm ²)	凝膠化指標			等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量 (個/0.1mm ²)	熔融 比電阻 (Ω·cm)	靜電 施加性	導體電路的 良率評價
								處理前	285°C×5hr、 氮氣下處理後	耐熱性 參數 X				
實施例 29	0.62	2:55	8.2	0.41	77.2	0.6	未觀察到	0.24	0.27	1.1	350	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 30	0.62	2:55	8.2	0.42	81.0	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	400	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 31	0.62	2:55	8.2	0.44	84.7	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	470	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 32	0.62	2:55	8.2	0.45	88.4	1.0	未觀察到	0.24	0.27	1.1	540	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 33	0.62	2:55	8.2	0.41	72.4	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	380	2.9×10 ⁶	○	○
實施例 34	0.62	2:55	8.2	0.41	69.2	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	380	3.4×10 ⁶	△	○
實施例 35	0.62	2:55	8.2	0.41	63.5	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	370	3.8×10 ⁶	△	○
實施例 36	0.62	2:55	8.2	0.41	74.6	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	470	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 37	0.62	2:55	8.2	0.41	71.4	1.0	未觀察到	0.24	0.27	1.1	530	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 38	0.62	2:55	8.2	0.41	67.7	1.0	未觀察到	0.24	0.27	1.1	560	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 39	0.62	2:55	8.2	0.41	62.5	1.2	未觀察到	0.24	0.27	1.1	630	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 40	0.62	2:55	8.2	0.41	81.2	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	450	2.8×10 ⁶	○	○
實施例 41	0.62	2:55	8.2	0.41	86.3	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	480	3.3×10 ⁶	△	○
實施例 42	0.62	2:55	8.2	0.42	88.7	0.9	未觀察到	0.24	0.27	1.1	510	4.0×10 ⁶	△	○
比較例 13	0.62	2:55	8.2	0.47	96.4	1.2	未觀察到	0.24	0.27	1.1	590	2.2×10 ⁶	○	○
比較例 14	0.62	2:55	8.2	0.41	57.4	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	370	8.7×10 ⁶	×	-
比較例 15	0.62	2:55	8.2	0.41	58.3	1.6	未觀察到	0.24	0.27	1.1	760	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 16	0.62	2:55	8.2	0.43	95.5	1.1	未觀察到	0.24	0.27	1.1	540	8.2×10 ⁶	×	-

【 0093 】

(實施例 43、44、比較例 17、18)

實施例 43、44 及比較例 17，在添加鈦酸四正丁酯後，再添加乙酸錳的乙二醇溶液，使其為表 7 記載的錳元素之含量，除此之外，以與實施例 29 相同的方法，獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 8。

實施例 43 中，從實施例 29 的聚酯樹脂組成物減少錳元素，耐熱性參數 X 因而稍為變大，導致使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價有變差的傾向，但仍在合格範圍內。又，聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好。

實施例 44 中，使錳元素含量增加而多於實施例 29，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量進一步增加，溶液濁度上升，但在合格範圍內。又，聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

比較例 17 中，從實施例 44 進一步增加錳元素的含量。等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量進一步增加，溶液濁度上升而不合格，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。

比較例 18 中，不添加乙酸錳，除此之外與實施例 29 相同地進行，結果耐熱性參數 X 超出規定的範圍，因此使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。

【 0094 】

(比較例 19)

添加乙酸鎂的乙二醇溶液代替乙酸錳，使其為表 7 記載的鎂元素之含量，除此之外，以與實施例 29 相同的方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 8。

因為使用乙酸鎂，耐熱性參數 X 超出規定的範圍，因此使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。

【 0095 】

(實施例 45～47)

在四丁基氫氧化鎂與對甲苯磺酸之添加至鈦酸四正丁酯之添加的期間，將磷酸作成乙二醇溶液而進行添加，使其為表 7 記載的磷元素之含量，除此之外，以與實施例 29 相同的方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 8。

實施例 45 中，相較於減少錳元素量且未添加磷酸的實施例 29 之聚酯樹脂組成物，在聚酯樹脂組成物的特性評價中皆為合格範圍。

實施例 46、47 中，從實施例 45 進一步增加磷酸添加量，使磷元素的含量增加。藉此，聚酯樹脂組成物的特性評價皆為合格範圍。

【 0096 】

(實施例 48)

將四級鎂成分從四丁基氫氧化鎂變更成四乙基氫氧化鎂的乙二醇溶液，除此之外，以與實施例 29 相同的

方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 8。

所得之聚酯樹脂組成物具有與實施例 29 之聚酯樹脂組成物同等的特性，任一指標皆在合格範圍內。又，聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【0097】

(比較例 20～22)

使其含有表 7 記載的磺酸化合物以代替對甲苯磺酸，除此之外，以與實施例 45 相同的方法獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 8。

比較例 20 中，因為使用碳數大於對甲苯磺酸的十二基苯磺酸，相較於實施例 45 的聚酯樹脂組成物，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量變多，溶液濁度高而不合格。又，熔融比電阻高，在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性不合格，導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價。

比較例 21 中，因為使用具有 2 個酯形成性官能基的 3,5-二羧基苯磺酸，相較於實施例 45 的聚酯樹脂組成物，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物數量變多，溶液濁度變高而不合格，因此使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。又，熔融比電阻雖高，但在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性為合格範圍。

比較例 22 中，因為使用碳數比對甲苯磺酸更小的甲烷磺酸，相較於實施例 45 的聚酯樹脂組成物，熔融

比電阻變高，在聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性為不合格。又，導體電路的良率評價，因為無法採集到薄膜而未進行評價

(實施例 49)

相對於 250 重量份的回收 PET 製品，將 87 重量份的乙二醇加入反應裝置，同時開始升溫，於 240℃、常壓下開始解聚合，之後緩慢升溫，2 小時 50 分鐘後結束解聚合反應。將此時的反應產物 BHET 以開口 10μm 的折疊型過濾器(pleated filter)進行過濾之後，將 105 重量份(相當於 100 重量份的 PET)在熔融狀態下加入附餾出裝置的聚合裝置。

將 0.0112 重量份的四丁基氫氧化鎘、然後 0.0077 重量份的對甲苯磺酸作成乙二醇溶液而進行添加，接著將 0.0090 重量份的乙酸錳四水合物作成乙二醇溶液而進行添加，接著將 0.0050 重量份的鈦酸四正丁酯作成乙二醇溶液而進行添加。然後將聚合反應槽內緩慢減壓，以 35 分鐘成為 0.13kPa 以下，與此同時緩慢升溫至 279℃，實施聚合反應直到聚酯樹脂組成物的固有黏度成為 0.62dL/g。之後，藉由氮氣使聚縮合反應槽回到常壓，從噴嘴吐出至冷水中而成為股線狀，藉由擠製裁刀進行顆粒化而成為圓柱狀，獲得等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量為 400 個/0.1mm²、熔融比電阻為 2.2×10⁶Ω·cm、耐熱性參數 X 為 1.1 的聚酯樹脂組成物。

所得之聚酯樹脂組成物含有表 7 記載之量的對甲苯磺酸成分、四級鎘成分、鈦元素、磷元素。色調 b 值為

8.2、%BB 為 0.41%、 ΔCOOH 為 77.2eq/t、溶液濁度為 0.7%，皆為良好的值。又，因未使用銻觸媒，故未觀察到聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻。然後，以與實施例 1 相同的方法獲得聚酯薄膜。此聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【 0098 】 [表 7]

[表 7]

	聚酯樹脂組成物的構成														
	對甲苯磺酸成分		四級磷成分		聚縮合觸媒 元素含量(重量 ppm)				四級磷成分以外之 磷化合物	磷元素 含量 (重量 ppm)	錳元素 含量 (重量 ppm)	鹼金屬		其他金屬成分	
	化合物	含量 (mol/t)	化合物	含量 (mol/t)	Sb	Ti	Ge	Al				元素 名稱	含量 (重量 ppm)	元素 名稱	含量 (重量 ppm)
實施例 43	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	10			-	-
實施例 44	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	35			-	-
實施例 45	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	30	20			-	-
實施例 46	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	40	20			-	-
實施例 47	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	50	20			-	-
實施例 48	對甲苯磺酸	0.41	四乙基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
實施例 49	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	20			-	-
比較例 17	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	50			-	-
比較例 18	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	0			-	-
比較例 19	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	-	7	0			Mg	20
比較例 20	十二基苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	22	20			-	-
比較例 21	3,5-二羧基苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	22	20			-	-
比較例 22	甲烷磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	7	-	-	磷酸	22	20			-	-

【 0099 】 [表 8]

[表 8]

	聚酯樹脂組成物的特性												聚酯薄膜的特性	
	固有黏度 (dL/g)	聚合時間 (hh:mm)	色調 b 值	耐熱性 (%BB)	耐水解性 ΔCOOH (eq/t)	溶液濁度 (%)	過濾捕捉物中的 金屬 Sb 數量 (個/0.1mm ²)	凝膠化指標			等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量 (個/0.1mm ²)	熔融比電阻 (Ω·cm)	靜電 施加性	導體電路的 良率評價
								處理前	285°C×5hr、 氮氣下 處理後	耐熱性參數 X				
實施例 43	0.62	2:50	8.3	0.42	79.5	0.5	未觀察到	0.24	0.29	1.2	300	1.9×10 ⁶	○	△
實施例 44	0.62	2:50	8.5	0.43	80.4	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	440	1.8×10 ⁶	○	○
實施例 45	0.62	3:00	8.2	0.41	77.2	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	320	2.8×10 ⁶	○	○
實施例 46	0.62	3:10	8.1	0.40	76.5	0.6	未觀察到	0.24	0.27	1.1	350	3.0×10 ⁶	○	○
實施例 47	0.62	3:30	8.3	0.37	67.6	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	420	3.6×10 ⁶	△	○
實施例 48	0.62	2:55	8.2	0.41	77.2	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	380	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 49	0.62	2:55	8.2	0.41	77.2	0.8	未觀察到	0.24	0.27	1.1	400	2.2×10 ⁶	○	○
比較例 17	0.62	2:45	8.6	0.43	81.6	1.5	未觀察到	0.24	0.27	1.1	680	1.8×10 ⁶	○	×
比較例 18	0.62	2:55	8.2	0.41	77.2	0.3	未觀察到	0.24	0.33	1.4	180	2.2×10 ⁶	○	×
比較例 19	0.62	2:50	8.3	0.42	78.0	0.7	未觀察到	0.24	0.33	1.4	380	1.9×10 ⁶	○	×
比較例 20	0.62	2:55	6.8	0.38	73.2	1.4	未觀察到	0.24	0.27	1.1	690	4.4×10 ⁶	×	-
比較例 21	0.62	2:55	6.8	0.38	72.5	1.3	未觀察到	0.24	0.27	1.1	660	3.4×10 ⁶	△	×
比較例 22	0.62	2:55	6.8	0.38	74.4	0.7	未觀察到	0.24	0.27	1.1	580	9.5×10 ⁶	×	-

【 0100 】

(實施例 50～53)

變更三氧化二銻的添加量，使其為表 9 記載的含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 10。

所得之聚酯樹脂組成物，隨著銻元素含量增加，%BB 與聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻數有增加的傾向，但任一指標皆在合格範圍內。又，聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價良好。

【 0101 】

(實施例 54、55)

將對甲苯磺酸成分變更為對甲苯磺酸與對甲苯磺酸鈉的混合物，使其為表 9 記載的鹼金屬含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 10。

所得之聚酯樹脂組成物，隨著鹼金屬元素之含量增加，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物增加，聚酯樹脂組成物的溶液濁度因而上升，但在合格範圍內。另一方面，所得之聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性良好。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價，在實施例 54 中為良好，在實施例 55 中有變差的傾向但仍在合格範圍內。

【 0102 】

(比較例 23)

將對甲苯磺酸成分變更為對甲苯磺酸鈉，使其為表 9 記載的鹼金屬含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 10。

所得之聚酯樹脂組成物，鹼金屬元素的含量增加而多於實施例 55 的聚酯樹脂組成物，等效圓直徑 $0.2\mu\text{m}$ 以上的異物為 760 個/ 0.1mm^2 而不佳，因此聚酯樹脂組成物的溶液濁度為 1.4% 的為不合格，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價為不合格。

【0103】

(實施例 56、57)

從四丁基氫氧化鎘與對甲苯磺酸之添加到三氧化二銻之添加的期間，將磷酸作成乙二醇溶液而進行添加，進一步在添加三氧化二銻後，添加乙酸錳的乙二醇溶液，使其為表 9 記載的含量，除此之外，與實施例 1 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 10。

實施例 58 中所得之聚酯樹脂組成物的色調 b 值為 7.0，%BB 為 0.29%， ΔCOOH 為 78.7eq/t，皆為良好的值。溶液濁度為 1.1%，過濾捕捉物中的金屬銻數為 270 個/ 0.1mm^2 ，皆在合格範圍內。

實施例 57 中所得之聚酯樹脂組成物的色調 b 值為 7.3，%BB 為 0.30%， ΔCOOH 為 66.9eq/t，皆為良好的值。又，溶液濁度為 1.1%，過濾捕捉物中的金屬銻數量為 270 個/ 0.1mm^2 ，皆在合格範圍內。

實施例 56 與 57 中所得之聚酯薄膜的製膜性評價

中，靜電施加性良好。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價，在實施例 56 中為良好，實施例 57 中雖有變差的傾向但仍在合格範圍內。

【 0104 】

(實施例 58、59)

將聚縮合反應觸媒從三氧化二銻變更成二氧化銻的乙二醇溶液，使其為表 9 記載的銻元素之含量，除此之外，與實施例 56、57 相同地獲得聚酯樹脂組成物及聚酯薄膜。結果顯示於表 10。

實施例 58 與 59 中所得之聚酯樹脂組成物，任一特性皆在合格範圍內，而且未觀察到聚酯樹脂組成物的過濾捕捉物中的金屬銻，係良好的結果。又，所得之聚酯薄膜的製膜性評價中，靜電施加性皆為良好。又，使用所得之聚酯薄膜的導體電路之良率評價，在實施例 58 中為良好，在實施例 59 中有變差的傾向但仍在合格範圍內。

【 0105】 [表 9]

[表 9]

	聚酯樹脂組成物的構成														
	對甲苯磺酸成分		四級磷成分		聚縮合觸媒 元素含量(重量 ppm)				四級磷成分 以外之 磷化合物	磷元素含量 (重量 ppm)	錳元素含量 (重量 ppm)	鹼金屬		其他金屬成分	
	化合物	含量 (mol/t)	化合物	含量 (mol/t)	Sb	Ti	Ge	Al				元素 名稱	含量 (重量 ppm)	元素 名稱	含量 (重量 ppm)
實施例 50	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	95	-	-	-	-	7	20	-	-	-	-
實施例 51	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	110	-	-	-	-	7	20	-	-	-	-
實施例 52	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	140	-	-	-	-	7	20	-	-	-	-
實施例 53	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	170	-	-	-	-	7	20	-	-	-	-
實施例 54	對甲苯磺酸/ 對甲苯磺酸鈉	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20	Na	3	-	-
實施例 55	對甲苯磺酸/ 對甲苯磺酸鈉	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	7	20	Na	5	-	-
實施例 56	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	磷酸	35	20	-	-	-	-
實施例 57	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	磷酸	20	20	-	-	-	-
實施例 58	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	50	-	磷酸	35	20	-	-	-	-
實施例 59	對甲苯磺酸	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	-	-	50	-	磷酸	20	20	-	-	-	-
比較例 23	對甲苯磺酸鈉	0.41	四丁基氫氧化磷	0.22	70	-	-	-	-	-	20	Na	9	-	-

【 0106】 [表 10]

[表 10]

	聚酯樹脂組成物的特性												聚酯薄膜的特性	
	固有黏度 (dL/g)	聚合時間 (hh:mm)	色調 b 值	耐熱性 (%BB)	耐水解性 ΔCOOH (eq/t)	溶液濁度 (%)	過濾捕捉物中的 金屬 Sb 數量 (個/0.1mm ²)	凝膠化指標			等效圓直徑 0.2μm 以上的 異物數量 (個/0.1mm ²)	熔融比電阻 (Ω·cm)	靜電 施加性	導體電路的 良率評價
								處理前	285°C×5hr、 氮氣下處理後	耐熱性參數 X				
實施例 50	0.62	2:50	6.9	0.39	73.0	1.0	340	0.24	0.27	1.1	510	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 51	0.62	2:40	6.8	0.40	73.2	1.0	380	0.24	0.27	1.1	520	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 52	0.62	2:30	6.9	0.43	73.3	1.0	450	0.24	0.27	1.1	520	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 53	0.62	2:20	7.0	0.46	73.5	1.0	490	0.24	0.27	1.1	550	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 54	0.62	2:55	7.2	0.38	72.8	1.0	270	0.24	0.27	1.1	560	2.2×10 ⁶	○	○
實施例 55	0.62	2:55	7.4	0.37	73.2	1.2	270	0.24	0.27	1.1	640	2.2×10 ⁶	○	△
實施例 56	0.62	3:00	7.0	0.29	78.7	1.1	270	0.24	0.28	1.1	390	3.0×10 ⁶	○	○
實施例 57	0.62	3:00	7.3	0.30	66.9	1.1	270	0.24	0.28	1.2	380	2.8×10 ⁶	○	△
實施例 58	0.62	3:00	6.9	0.29	76.4	1.1	未觀察到	0.24	0.27	1.1	380	3.0×10 ⁶	○	○
實施例 59	0.62	3:00	6.9	0.30	68.2	1.0	未觀察到	0.24	0.28	1.2	350	2.8×10 ⁶	○	△
比較例 23	0.62	2:55	7.1	0.39	73.0	1.4	270	0.24	0.27	1.1	760	2.2×10 ⁶	○	×

【 符 號 說 明 】

無 。

【發明申請專利範圍】

【請求項 1】一種聚酯樹脂組成物，其係固有黏度為 0.55dL/g 以上的聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，對甲苯磺酸成分的含量為 0.07～0.65mol/t，四級磷成分的含量為 0.07～0.65mol/t，式 1 表示的耐熱性參數 X 為 $1.0 \leq X \leq 1.3$ ，等效圓直徑 0.2μm 以上的異物數量為 650 個/0.1mm² 以下，熔融比電阻為 $4.0 \times 10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以下，色差計中的色調 b 值為 10.0 以下；

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$$X = \frac{\frac{1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的}}}{\frac{1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚酯樹脂組成物熱處理前的}}} \quad \text{式 1。}$$

1610cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

1610cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

【請求項 2】如請求項 1 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，鹼金屬元素的含量為 3 重量 ppm 以下。

【請求項 3】如請求項 2 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鈦元素的含量為 0.1 重量 ppm～20 重量 ppm。

【請求項 4】如請求項 3 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 5】如請求項 2 之聚酯樹脂組成物，其中，相

對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鍺元素的含量為 5 重量 ppm～150 重量 ppm。

【請求項 6】如請求項 5 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 7】如請求項 2 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鋁元素的含量為 0.1 重量 ppm～100 重量 ppm。

【請求項 8】如請求項 7 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 9】如請求項 2 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 50 重量 ppm～150 重量 ppm。

【請求項 10】如請求項 9 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 11】一種聚酯樹脂組成物，其係固有黏度為 0.55dL/g 以上的聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，對甲苯磺酸成分的含量為 0.07～0.65mol/t，四級磷成分的含量為 0.07～0.65mol/t，鹼金屬元素的含量為 3 重量 ppm 以下，式 1 表示的耐熱性參數 X 為 $1.0 \leq X \leq 1.3$ ，等效圓直徑 0.2 μ m 以上的異物數量

為 630 個 /0.1mm² 以下，色差計中的色調 b 值為 10.0 以下；

在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的

$$X = \frac{\frac{1610\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{在氮氣環境下於 285℃將聚酯樹脂組成物熱處理 5 小時後的}}}{\frac{1580\text{cm}^{-1} \pm 10\text{cm}^{-1}\text{之最大吸收峰值強度}}{\text{聚酯樹脂組成物熱處理前的}}} \quad \text{式 1。}$$

1610cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

1610cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

聚酯樹脂組成物熱處理前的

1580cm⁻¹ ± 10cm⁻¹之最大吸收峰值強度

【請求項 12】如請求項 11 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鈦元素的含量為 0.1 重量 ppm～20 重量 ppm。

【請求項 13】如請求項 12 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 14】如請求項 11 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鍺元素的含量為 5 重量 ppm～150 重量 ppm。

【請求項 15】如請求項 14 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 16】如請求項 11 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 15 重量 ppm 以下，且鋁元素的含量為 0.1 重量 ppm～100

重量 ppm。

【請求項 17】如請求項 16 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 18】如請求項 11 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，銻元素的含量為 50 重量 ppm～150 重量 ppm。

【請求項 19】如請求項 18 之聚酯樹脂組成物，其中，相對於聚酯樹脂組成物的總重量，錳元素的含量為 5～40 重量 ppm，磷元素的含量為 3～50 重量 ppm。

【請求項 20】一種聚酯薄膜，其係使用如請求項 1 至 19 中任一項之聚酯樹脂組成物而成。