



(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 I869748 B

(45)公告日：中華民國 114 (2025) 年 01 月 11 日

(21)申請案號：111149962

(22)申請日：中華民國 111 (2022) 年 12 月 26 日

(51)Int. Cl. : **B32B37/12 (2006.01)****B32B38/00 (2006.01)****B32B15/08 (2006.01)****B32B7/12 (2006.01)****C09J163/00 (2006.01)****C09J171/12 (2006.01)****C09J7/00 (2018.01)**

(30)優先權：2021/12/27 日本

2021-213476

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

日本

(72)發明人：高橋信行 TAKAHASHI, NOBUYUKI (JP) ; 森優俊 MORI, MASATOSHI (JP)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

US 2019/0077089A1

審查人員：林偉

申請專利範圍項數：7 項 圖式數：1 共 46 頁

(54)名稱

接合體之製造方法

(57)摘要

一種接合體之製造方法，其係依序接合基材 A、以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜，與樹脂 B 而成的接合體之製造方法，其具有於使前述薄膜與前述基材 A 進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述薄膜之第 1 接合步驟，與於使接合於前述基材 A 之前述薄膜與樹脂 B 進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述樹脂 B 之第 2 接合步驟，前述基材 A 為金屬及無機物之至少任一者，前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為 1,600g/eq.以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之溶解熱為 15J/g 以下。



I869748

【發明摘要】**【中文發明名稱】**

接合體之製造方法

【中文】

一種接合體之製造方法，其係依序接合基材A、以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜，與樹脂B而成的接合體之製造方法，其具有於使前述薄膜與前述基材A進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述薄膜之第1接合步驟，與於使接合於前述基材A之前述薄膜與樹脂B進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述樹脂B之第2接合步驟，前述基材A為金屬及無機物之至少任一者，前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為1,600g/eq.以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為15J/g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】

接合體之製造方法

【技術領域】

【0001】本發明係關於適合將異種材容易且堅固地接合之用途的接合體之製造方法。

【先前技術】

【0002】近年來，由製品之輕量化及高性能化等之觀點，於汽車零件、醫療設備、家電製品等各種領域中零件的多材料化正在進展。多材料化係指藉由併用機能或材質相異的材料(以下稱為異種材)而謀求材料之輕量化或高強度化之手法。要實現多材料化，將異種材堅固地接合的技術係不可欠缺。

【0003】將異種材堅固地接合的手段，係廣為使用作為液狀型接著劑之熱硬化型環氧樹脂系接著劑(專利文獻1等)。

使用了液狀型接著劑之接合，必需有塗佈液狀之樹脂組成物之塗佈步驟，與塗佈後使前述樹脂組成物聚合反應而硬化之硬化步驟。

因此，使用液狀型接著劑進行接合時，係有於塗佈步驟中，樹脂組成物之塗佈耗費時間，於硬化步驟中，聚合反應耗費時間(亦即接合製程時間長)，便利性欠缺的問

題。

本說明書中，接合製程時間，意指以構成接合體之至少任一基材與薄膜之接觸時為起點、以接合體之製作完成時為終點，從起點至終點之時間。例如，相當於對基材載置薄膜之步驟所需的時間，及將基材彼此接合(例如使薄膜硬化)所需的時間。

【0004】亦揭示有將熱硬化型環氧樹脂組成物於基材含浸或塗覆後，進行半硬化(B階段化)，作為附有由B階段狀之熱硬化型環氧樹脂系接著劑所構成的接著劑層之層合體，而使用於接合體之製造的技術(專利文獻2等)。

但是，使用具有B階段狀之接著劑層的層合體的情況，亦必需有使B階段狀之接著劑層聚合反應而硬化的硬化步驟，係有接合製程時間長的問題。

又，B階段狀之接著劑層，係有儲存安定性差，無法於常溫長期保管，必需於低溫保管，開放時間短，欠缺便利性的問題。

本說明書中，開放時間，意指於基材A之上塗佈或載置接合劑或接著劑後，至結束載置基材B為止的限制時間。若為開放時間內，則接合劑或接著劑之接著力不降低，能夠以充分的接著力將基材A與基材B貼合。開放時間越長，於基材A之上塗佈或載置接合劑或接著劑後，至結束載置基材B為止的限制時間變長，便利性高。

【0005】作為將異種材接合之手段，亦使用作為熱可塑性接著劑之熱熔接著劑(專利文獻3等)。熱熔接著劑於

常溫為固體，藉由加熱熔融而液狀化。將經液狀化之熱熔接著劑塗佈於被接著體，藉由冷卻固化而形成接合。熱熔接著劑，由於係利用不伴隨聚合反應的相變化來進行接著者，故不需塗佈步驟，硬化時間早(亦即接合製程時間短)、便利性優良。又，熱熔接著劑亦可於常溫長期保管，於開放時間長的觀點亦為便利性優良。

【0006】但是，以往之熱熔接著劑，為了使熔融黏度低，係由結晶性之樹脂所構成，或由含有結晶性之樹脂的樹脂所構成，故接著樹脂內之凝集力高，無法具備對基材之充分的相互作用。又，熔融而接著時，於高溫下成為低黏度，容易由接著面流出，且不易控制黏度，故膜厚不安定。由於此等之要因，於以往之熱熔接著劑中係有無法安定地得到高接著力之問題。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0007】

[專利文獻1]日本特開2019-157018號公報

[專利文獻2]日本特開平10-17685號公報

[專利文獻3]日本特開平10-168417號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0008】本發明係有鑑於該技術背景而為者，其目的

為提供接合製程時間短、開放時間長，且可製造接合性優良的接合體之接合體之製造方法。

[用以解決課題之手段]

【0009】本發明者等經深入探討的結果，發現藉由具有於使特定薄膜與基材A進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述薄膜之第1接合步驟，與於使接合於前述基材A之前述薄膜與樹脂B進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述樹脂B之第2接合步驟，可解決上述課題。本發明為基於該見解者。

【0010】亦即本發明提供以下之[1]~[7]。

[1] 一種接合體之製造方法，其係依序接合基材A、以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜，與樹脂B而成的接合體之製造方法，其具有

於使前述薄膜與前述基材A進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述薄膜之第1接合步驟，與

於使接合於前述基材A之前述薄膜與樹脂B進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述樹脂B之第2接合步驟，

前述基材A為金屬及無機物之至少任一者，

前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為1,600g/eq.以

上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為15J/g以下。

[2] 如上述[1]之接合體之製造方法，其中前述樹脂B係由熱可塑性樹脂構成。

[3] 如上述[1]或[2]之接合體之製造方法，其中前述基材A係由金屬構成。

[4] 如上述[1]~[3]中任一項之接合體之製造方法，其中於前述第1接合步驟中，將前述薄膜加熱至100~300℃來進行熔融後固化。

[5] 如上述[1]~[4]中任一項之接合體之製造方法，其中於前述第2接合步驟中，將前述薄膜藉由選自由接觸加熱、溫風加熱、熱壓、紅外線加熱、熱板熔接、超音波熔接、振動熔接及高頻感應熔接所成之群的至少1種來進行熔融後固化。

[6] 如上述[1]~[5]中任一項之接合體之製造方法，其中於前述第2接合步驟中，於前述樹脂B及前述薄膜之至少任一者的熔點以上之溫度加熱，來將前述薄膜進行熔融後固化。

[7] 如上述[1]~[6]中任一項之接合體之製造方法，其中於前述第2接合步驟中，於加熱溫度100~400℃，及0.01~20MPa之加壓下，來將前述薄膜進行熔融後固化。

[發明之效果]

【0011】依照本發明，可提供接合製程時間短、開放

時間長，且可製造接合性優良的接合體之接合體之製造方法。

【圖式簡單說明】

【0012】

[圖1]顯示本發明之一實施形態中之接合體的構成之說明圖。

【實施方式】

【0013】以下詳細說明本發明之實施形態。

本說明書中，接合意指將物與物連結，接著及熔接為其下位概念。接著意指透過如膠帶或接著劑般的有機材(熱硬化性樹脂或熱可塑性樹脂等)，使2個被接著材(欲接著者)成為接合狀態。熔接意指將熱可塑性樹脂等之表面藉由熱而熔融，利用進行冷卻之過程中所產生的分子擴散所致之纏結與結晶化使成為接合狀態。

本說明書中，表示數值範圍之「A~B」之記載，係表示包含端點A及B之數值範圍。亦即意指「A以上B以下」(A<B時)，或「A以下B以上」(A>B時)。

【0014】

[接合體之製造方法]

本實施形態之接合體之製造方法，為依序接合基材A、以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜，與樹脂B而成的接

合體之製造方法，其具有於使前述薄膜與前述基材 A 進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述薄膜之第 1 接合步驟，與於使接合於前述基材 A 之前述薄膜與樹脂 B 進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述樹脂 B 之第 2 接合步驟。此外，前述基材 A 為金屬及無機物之至少任一者，前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為 1,600g/eq. 以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為 15J/g 以下。

前述「主成分」，意指薄膜中之樹脂成分當中含量最高的成分。薄膜較佳含有樹脂成分 50 質量% 以上、更佳含有 70 質量% 以上、又更佳含有 80 質量% 以上、特佳含有 90 質量% 以上。

【0015】依照該製造方法，前述基材 A 與前述樹脂 B 之接合，為利用以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜之相變化(固體~液體~固體)者，不伴隨著化學反應，因此可較以往之熱硬化型之環氧樹脂更短時間完成接合，又，開放時間亦長。

又，作為薄膜之主成分的特定熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂，於樹脂內之凝集力低，且具有羥基，因此與基材之相互作用強，相較以往之結晶性之熱熔接著劑能夠以更高的接合力接合異種材。

又，該製造方法，係分為第 1 接合步驟與第 2 接合步驟

的步驟來接合。藉由如此地區分，能夠以適於接合界面之溫度加熱來接合，可製造接合性優良的接合體。又，加熱溫度控制亦相較於未區分步驟的情況更容易，亦可抑制樹脂B之加熱所致之變形。進一步地，藉由預先使薄膜接合於基材A，可將基材A與樹脂B精度良好地接合，可抑制於接合部位產生偏移。

【0016】

<第1接合步驟>

第1接合步驟，為於使前述薄膜與前述基材A進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述薄膜之步驟。

藉由於第1接合步驟中預先接合基材A與前述薄膜，可將基材A與樹脂B精度良好地接合。

再者，本說明書中，「固化」意指於常溫下為固體，亦即於23°C之無加壓的狀態下無流動性。惟第1接合步驟後之薄膜亦可具有黏著性。

【0017】使前述薄膜熔融之方法，可列舉選自由接觸加熱、溫風加熱、熱壓、熱板熔接、紅外線加熱、超音波熔接、振動熔接及高頻感應熔接所成之群的至少1種方法。其中就製造容易性及接合製程縮短之觀點，尤佳為紅外線加熱。

【0018】將薄膜藉由加熱而熔融時，較佳為將基材A之與薄膜之接合面的溫度加熱至100~300°C進行熔融，更佳為120~250°C、又更佳為150°C~220°C。藉由於100~300

°C 進行加熱，前述薄膜效率良好地變形、熔融而有效地濕潤擴展於接合面，因此可得到高的接合力。

【0019】使經熔融之薄膜固化之方法，可列舉於常溫放冷之方法或使用冷卻裝置放冷之方法。再者，「常溫」意指於5~30°C之範圍內之一般的室溫。其中，就製造容易性之觀點，尤佳為於常溫放冷之方法。

【0020】

(薄膜)

薄膜係以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分。此外，前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為1,600g/eq.以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為15J/g以下。

再者，本說明書中，「薄膜」意指厚度10 μ m~3mm之薄片狀物。

又，本實施形態中之非晶性熱可塑性樹脂，意指使用示差掃描熱量計(DSC)之測定中，熔解熱為15J/g以下之樹脂。惟，亦包含伴隨熔解之吸熱峰為檢測極限以下，或與雜訊為同等以下而無法分化的情況。

熔解熱係由DSC(示差掃描熱量計)之吸熱峰的面積，與熱可塑性樹脂成分之重量所算出。於薄膜中含有無機填充劑等時，係由無機填充劑以外的熱可塑性樹脂成分之重量所算出。具體而言，秤量試料2-10mg，置入鋁製試樣盤，使用DSC(Rigaku股份有限公司製DSC8231)，由23°C

以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 昇溫至 200°C 以上得到 DSC 曲線，接著可由從該 DSC 曲線所求得之熔解時之吸熱峰的面積，與前述秤量值來算出。

【0021】就對薄膜充分賦予非晶性熱可塑性樹脂之特性的觀點，前述非晶性熱可塑性樹脂之含量，於薄膜中之樹脂成分當中，較佳為 60 質量% 以上、更佳為 70 質量% 以上、又更佳為 80 質量% 以上、最佳為 90 質量% 以上。

【0022】非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為 15J/g 以下，較佳為 11J/g 以下、更佳為 7J/g 以下、又更佳為 4J/g 以下、最佳為吸熱峰為檢測極限以下。

非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為 $1,600\text{g/eq.}$ 以上，較佳為 $2,000\text{g/eq.}$ 以上、更佳為 $5,000\text{g/eq.}$ 以上、又更佳為 $9,000\text{g/eq.}$ 以上，最佳為檢測極限以上且實質上檢測不到環氧基。再者，環氧當量為檢測極限以上，意指基於後述之 JIS K 7236：2001 測定環氧當量時，檢測不到環氧基。

【0023】藉由使用作為以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者作為主成分，前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為 $1,600\text{g/eq.}$ 以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之熔解熱為 15J/g 以下之薄膜，於加熱時不發生如於以往的熱熔接著劑中可見到般的急遽的黏度降低，於超過 200°C 之高溫度區域亦不造成低黏度 ($0.001\sim 100\text{Pa}\cdot\text{s}$) 狀態。因此該薄膜即使於熔融之狀態亦不會由層合體流出，薄膜經熔融後固化所形成的接合層之厚度可安定地確保，可安定地得到高的

接合力。

【0024】此處所稱的環氧當量(含有環氧基1莫耳之前述熱可塑性樹脂的重量)，為接合前之薄膜中所含的熱可塑性環氧樹脂或苯氧基樹脂之環氧當量之值，其係以JIS-K7236：2001所規定之方法所測定之值(單位「g/eq.」)。具體而言，係使用電位差滴定裝置，添加溴化四乙基銨乙酸溶液，使用0.1mol/L過氯酸-乙酸溶液，溶劑稀釋品(樹脂塗漆)係由不揮發成分算出作為固體成分換算值之數值而得之值。再者，2種以上之樹脂的混合物的情況時，亦可由各自的含量與環氧當量算出。

【0025】薄膜之主成分的非晶性熱可塑性樹脂具有熔點時，熔點較佳為50~400℃、更佳為60℃~350℃、又更佳為70℃~300℃。藉由於50~400℃之範圍具有熔點，前述薄膜係藉由加熱而效率良好地變形及熔融，有效地濕潤擴展於接合面，故可得到高的接合力。

本說明書中，熱可塑性樹脂之熔點，意指以DSC所測定之吸熱峰溫度。再者，得不到吸熱峰時，或熔解熱為15J/g以下時，係以玻璃轉移點加70℃之溫度作為熔點。玻璃轉移點意指以DSC昇溫至200℃後，冷卻至40℃以下，進一步加熱至200℃之第2循環之DSC曲線之下降開始時的溫度。具體而言，為藉由實施例記載之方法所測定值。

【0026】以往之熱硬化性之接著劑中，將接合體解體為困難，將構成接合體之異種材予以區別而進行再循環為

困難(亦即再循環性差)，又，接合體之製造步驟中，當存在接合部位之偏移等時或內容物或被接著體中有缺陷而必需交換時，係有重貼困難(亦即修復性差)、便利性欠缺的問題，但前述薄膜能夠以熱進行軟化/熔融，可容易地剝離，故再循環性優良。又，前述薄膜為熱可塑性，因此能夠可逆地重複進行軟化/熔融與硬化，修復性亦優良。

【0027】

《熱可塑性環氧樹脂》

熱可塑性環氧樹脂較佳為(a)2官能環氧樹脂單體或寡聚物與(b)具有選自由酚性羥基、羧基、巰基、異氰酸酯基及氰酸酯基所成之群的相同或相異之2個官能基的2官能性化合物之聚合物。

藉由使用該化合物，形成直鏈狀之聚合物的聚合反應優先地進行，可得到具備所期望之特性的熱可塑性環氧樹脂。

【0028】前述(a)2官能環氧樹脂單體或寡聚物，係指分子內具有2個環氧基之環氧樹脂單體或寡聚物。

前述(a)之具體例子，例如可列舉雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、2官能之酚酚醛清漆型環氧樹脂、雙酚AD型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂、2官能之萘型環氧樹脂、2官能之脂環式環氧樹脂、2官能之縮水甘油酯型環氧樹脂(例如鄰苯二甲酸二縮水甘油酯、四氫鄰苯二甲酸二縮水甘油酯、二聚物酸二縮水甘油酯等)、2官能之縮水甘油胺型環氧樹脂(例如二縮水甘油基苯胺、二縮水甘油基

甲苯胺等)、2官能之雜環式環氧樹脂、2官能之二芳基醚型環氧樹脂、氫醌型環氧樹脂(例如氫醌二縮水甘油醚、2,5-二-*tert*-丁基氫醌二縮水甘油醚、間苯二酚二縮水甘油醚等)、2官能之伸烷基縮水甘油醚系化合物(例如丁二醇二縮水甘油醚、丁烯二醇二縮水甘油醚、丁炔二醇二縮水甘油醚等)、含2官能之縮水甘油基之乙內醯脲化合物(例如1,3-二縮水甘油基-5,5-二烷基乙內醯脲、1-縮水甘油基-3-(縮水甘油氧基烷基)-5,5-二烷基乙內醯脲等)、含2官能之縮水甘油基之矽氧烷(例如1,3-雙(3-縮水甘油氧基丙基)-1,1,3,3-四甲基二矽氧烷、 α,β -雙(3-縮水甘油氧基丙基)聚二甲基矽氧烷等)及該等之改質物等。此等之中，就反應性及作業性之觀點，較佳為雙酚A型環氧樹脂、雙酚F型環氧樹脂、聯苯型環氧樹脂。

前述(b)之具有酚羥基之2官能性化合物，例如可列舉兒茶酚、間苯二酚、氫醌等之具有1個苯環之一核體芳香族二羥基化合物類；雙(4-羥基苯基)丙烷(雙酚A)、雙(4-羥基苯基)甲烷(雙酚F)、雙(4-羥基苯基)乙烷(雙酚AD)等之雙酚類；二羥基萘等之具有縮合環之化合物；二烯丙基間苯二酚、二烯丙基雙酚A、三烯丙基二羥基聯苯等之導入有烯丙基之2官能酚化合物；二丁基雙酚A等。

前述(b)之含羧基之化合物之具體例子，可列舉己二酸、琥珀酸、丙二酸、環己烷二甲酸、鄰苯二甲酸、間苯二甲酸，及對苯二甲酸等。

前述(b)之具有巰基之2官能性化合物，例如可列舉乙

二醇雙巯乙酸酯、乙二醇雙巯丙酸酯等。

前述(b)之含異氰酸酯基之2官能性化合物之具體例子，可列舉二苯基甲烷二異氰酸酯(MDI)、異佛酮二異氰酸酯(IPDI)、六亞甲基二異氰酸酯(HMDI)，及甲苯二異氰酸酯(TDI)等。

前述(b)之含氰酸酯基之2官能性化合物之具體例子，可列舉2,2-雙(4-氰酸基苯基)丙烷、1,1-雙(4-氰酸基苯基)乙烷，及雙(4-氰酸基苯基)甲烷等。

前述(b)之中，尤以具有酚羥基之2官能性化合物，就得到熱可塑性之聚合物的觀點而言較佳，以具有2個酚性羥基，且具有雙酚構造或聯苯構造之2官能性化合物，就耐熱性及接合性之觀點而言較佳，以雙酚A、雙酚F或雙酚S，就耐熱性及成本之觀點而言較佳。

【0029】前述(a)為雙酚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，且前述(b)為雙酚A、雙酚F或雙酚S時，藉由前述(a)與(b)之聚合所得之聚合物，以對伸苯基構造與醚鍵為主骨架，且具有將該等以伸烷基連結之主鏈，與將藉由聚加成所生成的羥基配置於側鏈之構造。

藉著由對伸苯基骨架所構成之直鏈狀之構造，可提高聚合後之聚合物的機械強度，並且藉由配置於側鏈的羥基，可提高對基材之密著性。其結果，可在維持熱硬化性樹脂之作業性的同時，實現高的接合強度。進一步地，為熱可塑性樹脂的情況時，可藉由以熱進行軟化/熔融，而

進行再循環及修復，可改善熱硬化性樹脂中的問題點之再循環性及修復性。

【0030】

《苯氧基樹脂》

苯氧基樹脂為由雙酚類與表氯醇所合成之聚羥基聚醚，具有熱可塑性。苯氧基樹脂之製造，已知有以二元酚類與表氯醇之直接反應所進行的方法、以二元酚類之二縮水甘油醚與二元酚類之加成聚合反應所進行的方法，本發明所用之苯氧基樹脂不管藉由何種製法所得者均可。二元酚類與表氯醇之直接反應的情況時，二元酚類例如可列舉雙酚A、雙酚F、雙酚S、聯酚、聯伸苯二醇、苐二苯基等之酚類；乙二醇、丙二醇、二乙二醇等之脂肪族二醇。其中就成本或接合性、黏度、耐熱性之觀點，尤佳為雙酚A、雙酚F、雙酚S。此等可1種單獨使用、亦可併用2種以上。

苯氧基樹脂，具有與環氧樹脂類似之化學構造，以對伸苯基構造與醚鍵為主骨架，且具有連結該等之主鏈，與將羥基配置於側鏈之構造。

【0031】

《熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之物性》

前述熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂，以GPC(凝膠滲透層析)測定所得之以聚苯乙烯換算之值的重量平均分子量較佳為10,000~500,000、更佳為18,000~300,000、又更佳為20,000~200,000。重量平均分子量為由藉由GPC所

檢測的溶出峰位置所算出，分別以標準聚苯乙烯換算之分子量之值。重量平均分子量若為該值之範圍，則熱可塑性與耐熱性之平衡良好，可效率良好地藉由熔融得到接合體，其耐熱性亦變高。重量平均分子量若為10,000以上，則耐熱性優良，若為500,000以下則熔融時之黏度低，接合性變高。

【0032】

《薄膜中之樹脂成分以外之成分》

薄膜亦可依需要，在不阻礙本發明之目的之範圍，含有或不含有填料或添加劑，作為樹脂成分以外之成分。

【0033】 填料可列舉無機填料及有機填料(樹脂粉體)。

無機填料例如可列舉球狀熔融二氧化矽、鐵等之金屬之金屬粉、矽砂、滑石、碳酸鈣、雲母、酸性白土、矽藻土、高嶺土、石英、氧化鈦、二氧化矽、酚樹脂微中空球、玻璃中空球等。

薄膜含有填料時，薄膜之總量100體積%中之填料之含量，較佳為50體積%以下、更佳為30體積%以下、又更佳為20體積%以下、最佳為10體積%以下。再者，填料之體積，可將薄膜中所含有的填料之重量除以填料之真比重來求得。

薄膜之總量100體積%中之樹脂成分之含量，較佳為10體積%以上、更佳為20體積%以上、又更佳為30體積%以上、又再更佳為50體積%以上、於一態樣中為80體積%

以上、於別的態樣中為90體積%以上、於別的態樣中為99體積%以上。

【0034】添加劑例如可列舉消泡劑、矽烷偶合劑等之偶合劑、顏料等，此等可含有1種或2種以上。

薄膜中之添加劑之含量，較佳為10質量%以下、更佳為5質量%以下、又更佳為1質量%以下。

薄膜中之樹脂成分之含量，較佳為10質量%以上、更佳為20質量%以上、又更佳為30質量%以上、又再更佳為50質量%以上、於一態樣中為80質量%以上、於別的態樣中為90質量%以上、於別的態樣中為99質量%以上。

【0035】

《薄膜之形態》

薄膜為厚度10 μ m~3mm之薄片狀物。

薄膜之厚度，就以短的接合製程時間得到接合性優良的接合體之觀點，較佳為1mm以下、更佳為0.5mm以下、又更佳為0.3mm以下、又再更佳為0.2mm以下、最佳為0.1mm以下。

若為如此之範圍之尺寸，則夾於基材A與基材B之間，可藉由加熱或加壓等，使薄膜效率良好地擴展於接合面，可得到高的接合力。

【0036】該薄膜可為單層亦可為由複數層所構成的層合體，就製造容易性之觀點及接合力提高之觀點，較佳為單層。

又，薄膜在不阻礙接合力或其耐熱性之範圍，亦可具

有黏著性。

【0037】

《薄膜之製造方法》

薄膜之製造方法不特別限定，例如可藉由將2官能環氧化合物之單體或寡聚物加熱並聚合而得到樹脂組成物，並於所得之樹脂組成物中依需要添加溶劑，塗佈於脫模薄膜等，並進行硬化/乾燥、依需要加壓藉以得到薄膜。

【0038】

<第2接合步驟>

第2接合步驟，為於使接合於前述基材A之前述薄膜與樹脂B進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材A與前述樹脂B之步驟。

【0039】就得到高的接合力之觀點，於第2接合步驟中，較佳於樹脂B及薄膜之至少任一者的熔點以上之溫度加熱，來將薄膜進行熔融後固化。藉由於樹脂B及薄膜之至少任一者的熔點以上之溫度加熱，薄膜與基材相溶化，容易得到更強的接合力。

【0040】使前述薄膜熔融之方法，可列舉選自由接觸加熱、溫風加熱、熱壓、紅外線加熱、熱板熔接、超音波熔接、振動熔接及高頻感應熔接所成之群的至少1種方法。其中尤佳為熱壓、超音波熔接，及高頻感應熔接。

【0041】進行熱壓時之條件無特別限定。

例如溫度較佳為100~400℃、更佳為120~350℃、又更佳為150℃~300℃。藉由於100~400℃加熱，前述薄膜效率

良好地變形、熔融而有效地濕潤擴展於接合面，因此可得到高的接合力。

前述熱壓中之加壓力較佳為0.01~20MPa、更佳為0.1~10MPa、又更佳為0.2~5MPa。藉由於0.01~20MPa加壓，可使前述薄膜效率良好地變形，有效地濕潤擴展於接合面，故可得到高的接合力。樹脂B為熱可塑性樹脂時，藉由於0.01~20MPa加壓，使薄膜與基材相溶化，可得到強的接合力。

【0042】 進行超音波熔接時之條件無特別限定。

例如發信頻率，較佳為10~70kHz、更佳為15~40kHz。

超音波施加時間，就接著性與外觀性之觀點，較佳為0.1~3秒、更佳為0.2~2秒。

於超音波施加時將基材A與樹脂B加壓時，加壓力較佳為0.01~20MPa、更佳為0.1~10MPa、又更佳為0.2~5MPa。藉由以0.01~20MPa進行加壓，前述薄膜效率良好地變形，有效地濕潤擴展於接著面，故可得到高的接著力。

【0043】 進行超音波熔接時之條件無特別限定。

例如振盪頻率可列舉1~1500kHz之範圍。只要依基材A及樹脂B之大小或種類，調整為適當的振盪頻率即可。

輸出可列舉100~5000W之範圍。

振盪時間只要依基材A及樹脂B之大小或種類調整即可，例如較佳為1.0~10.0秒、更佳為1.5~8.0秒。

【0044】基材 A 與樹脂 B 之接合，係如上述，為利用薄膜之相變化(固體~液體~固體)者，不伴隨化學反應，因此相較於以往之熱硬化型之環氧樹脂，能夠以更短時間完成接合。

【0045】

[接合體]

圖 1 顯示本發明之接合體之一實施形態。圖 1 所示之接合體 1，為透過由熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂所構成之薄膜經熔融後固化之接合層 2，使基材 A 3 與樹脂 B 4 經接合一體化者。本發明之接合體，即使異種材之接合體，亦顯示優良的接合強度。接合強度，係受到接合層與基材 A 及接合層與樹脂 B 之間所作用的界面相互作用之強度，且受到接合層之厚度、構成薄膜之聚合物之分子量或化學構造、力學特性、黏彈性特性等多數因子的影響，因此本發明之接合體顯示優良的接合強度之機構的詳情雖不明朗，但推測是構成接合層 2 之非晶性熱可塑性樹脂內的凝集力低，與樹脂內存在羥基，接合層與基材 A，及接合層與樹脂 B 之界面形成氫鍵或凡得瓦力等之化學鍵結或分子間力為主要的要因。但是，於前述接合體中，前述接合體之前述界面的狀態或特性係奈米等級以下之極薄的化學構造，分析困難，在現時時間點的技術上，藉由將其進行特定，以與不基於使用薄膜者區別為目的來進行表述，係不可能或非實際的。

【0046】接合層由熱可塑性樹脂所構成的本發明之接

合體，再循環性及修復性優良，可藉由將接合體加熱，而容易地解體為基材 A 與樹脂 B。

【0047】

(基材 A)

基材 A 為金屬或無機物之至少任一者。

金屬不特別限定，例如可列舉鋁、鐵、銅、鎂、鈦等。

再者，本實施形態中「鐵」的用語，係以包含鐵及其合金的意義使用。作為鐵的合金，例如可列舉鋼、不鏽鋼等。同樣地，銅、鋁、鎂、鈦，亦以包含此等之單質及其合金的意義使用。

【0048】 無機物不特別限定，例如可列舉玻璃、陶瓷、碳成形體等。

作為前述玻璃，例如可為一般的玻璃，此外可為耐熱玻璃、防火玻璃、耐火玻璃、智慧型手機之保護等所用的化學強化玻璃等。具體而言，可列舉蘇打石灰玻璃、鉛玻璃、硼矽酸玻璃、石英玻璃等。

作為前述陶瓷，例如可列舉半導體、汽車、產業用設備等所用的精密陶瓷等。具體而言，可列舉氧化鋁、氧化鋯、鈦酸鋇等之氧化物系陶瓷；羥基磷灰石等之氫氧化物系陶瓷；碳化矽等之碳化物系陶瓷；氮化矽等之氮化物系陶瓷等。

【0049】 基材 A 就耐熱性或強度之觀點，較佳由金屬所構成。

【 0050】

(樹脂 B)

樹脂 B 不特別限定，較佳由選自由熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂，及纖維強化塑膠 (FRP) 所成之群的 1 種所構成，就接合力或成本、成形之容易性的觀點，更佳由熱可塑性樹脂所構成。

作為熱可塑性樹脂，例如可列舉聚烯烴及其酸改質物、聚苯乙烯、聚甲基丙烯酸甲酯、AS 樹脂、ABS 樹脂、聚對苯二甲酸乙二酯或聚對苯二甲酸丁二酯等之熱可塑性芳香族聚酯、聚碳酸酯、聚醯亞胺、聚醯胺、聚醯胺醯亞胺、聚醚醯亞胺、聚醚砜、聚苯醚及其改質物、聚苯硫醚、聚甲醛、聚芳酯、聚醚酮、聚醚醚酮、聚醚酮酮、熱可塑性環氧樹脂或該等之纖維強化材等，又，作為熱硬化性樹脂，例如可使用選自環氧樹脂、乙烯酯樹脂、酚樹脂、胺基甲酸酯樹脂等的 1 種以上。就耐熱性、接合力或成本、成形之容易性等之觀點，較佳由選自聚碳酸酯、玻璃纖維強化聚醯胺、玻璃纖維強化聚對苯二甲酸丁二酯、玻璃纖維強化聚苯硫醚的至少 1 種構成。

【 0051】 樹脂 B 具有熔點時，熔點較佳為 100~400℃、更佳為 150℃~350℃、又更佳為 180℃~300℃。藉由於 100~400℃ 之範圍具有熔點，前述薄膜藉由加熱而效率良好地變形及熔融，於接合面有效地濕潤擴展，故可得到高的接合力。

【 0052】 基材 A 與樹脂 B 之組合不特別限定。

基材 A 及 B 之形狀不特別限定，各自的厚度較佳為 0.1mm 以上、更佳為 0.3mm 以上、又更佳為 0.5mm 以上、特佳為 1mm 以上。若為 0.1mm 以上，則可得到堅固的接合體。又，基材 A 及 B 之各自的厚度較佳為 10mm 以下、更佳為 8mm 以下、又更佳為 6mm 以下、特佳為 4mm 以下。若為 10mm 以下，則容易有效率地加熱，製造變得容易。

【0053】

(前處理)

前述基材 A，及前述樹脂 B，均較佳以表面之污染物去除，及/或定錨效應為目的，而對表面實施前處理。

前處理例如可列舉脫脂處理、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，較佳為將基材表面洗淨之前處理或對表面賦予凹凸之前處理。具體而言，基材由鋁、玻璃、陶瓷或鐵構成時，較佳為選自由脫脂處理、UV 臭氧處理、噴砂處理、研磨處理、電漿處理、蝕刻處理所成之群的至少 1 種，基材由 FRP、聚丙烯、聚碳酸酯、聚甲基丙烯酸甲酯、聚醯醯亞胺、聚醯胺或聚對苯二甲酸丁二酯構成時，較佳為選自由脫脂處理、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的至少 1 種。

前處理可僅為 1 種、亦可實施 2 種以上。此等之前處理之具體的方法，可使用公知方法。

通常，可認為於 FRP 之表面係存在有源自樹脂或補強

材之羥基，於玻璃或陶瓷表面原本存在有羥基，但藉由前述之前處理，新生成羥基，可增加基材表面之羥基。

【0054】前述脫脂處理，係指將基材表面之油脂等之髒污以丙酮、甲苯等之有機溶劑等溶解而去除之方法。

【0055】前述UV臭氧處理，係指以由低壓水銀燈所發光之短波長紫外線所具有的能量與藉此產生之臭氧(O₃)之力，將表面洗淨或改質之方法。玻璃的情況時，係為進行表面之有機系雜質的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，係稱為「UV臭氧清潔器」、「UV洗淨裝置」、「紫外線表面改質裝置」等。

【0056】前述噴砂處理，例如可列舉濕式噴砂處理、珠粒噴砂處理、噴砂處理等。其中尤以濕式噴砂處理，相較於乾式噴砂處理，可得到更緻密的面，故較佳。

【0057】前述研磨處理，例如可列舉使用研磨布之拋光研磨(buffing)，或使用研磨紙(砂紙)之輾研磨、電解研磨等。

【0058】前述電漿處理，係指以高壓電源與桿來製造電漿束，使其碰撞素材表面，使分子激發，成為官能狀態者，可列舉可對素材表面賦予羥基或極性基之大氣壓電漿處理方法等。

【0059】前述電暈放電處理，可列舉於高分子薄膜之表面改質中實施的方法，其係從電極釋出的電子切斷高分子表面層之高分子主鏈或側鏈，以所產生的自由基為起

點，於表面產生羥基或極性基之方法。

【0060】前述雷射處理，係指藉由雷射照射，僅將基材表面急速加熱並冷卻，而改善表面之特性的技術，其係有效於表面之粗面化的方法。可使用公知之雷射處理技術。

【0061】前述蝕刻處理，例如可列舉鹼法、磷酸-硫酸法、氟化物法、鉻酸-硫酸法、氯化鐵法等之化學蝕刻處理，又，可列舉電解蝕刻法等之電化學蝕刻處理等。

【0062】前述火焰處理，係指藉由使燃燒氣體與空氣之混合氣體燃燒，使空氣中之氧電漿化，藉由對處理對象物賦予氧電漿，而謀求表面之親水化之方法。可使用公知之火焰處理技術。

[實施例]

【0063】接著說明本發明之具體的實施例，但本發明不特別限定於此等實施例者。

【0064】

[薄膜之製造]

<製造例1>

於附有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管，及溫度計之反應裝置，給入jER(註冊商標)1007(三菱化學股份有限公司製、雙酚A型環氧樹脂、重量平均分子量約10,000)1.0當量(203g)、雙酚S1.0當量(12.5g)、三苯基膦2.4g，及甲基乙基酮1,000g，於氮環境下一邊攪拌一邊昇溫至100

℃。以目視確認溶解，冷卻至40℃，得到固體成分約20質量%之熱可塑性環氧樹脂組成物。由其中去除溶劑，得到作為固體成分之熱可塑性環氧樹脂。於壓合機之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)，於下板之非黏著氟樹脂薄膜上配置上述熱可塑性環氧樹脂後，將前述壓合機加熱至160℃，將前述熱可塑組成環氧樹脂進行2小時加熱壓縮，得到固體成分100質量%、長度32~33mm、厚度100μm之薄膜P-1。所得薄膜P-1之重量平均分子量、環氧當量，及溶解熱之測定結果如表1所示。再者，就重量平均分子量之測定而言，係將所得薄膜溶解於四氫呋喃進行測定。

又，針對藉由後述其他之製造例所得薄膜及接合劑亦進行同樣之測定，其結果亦示於表1及2。

【0065】

<製造例2>

於附有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管，及溫度計之反應裝置中，給入Phenototo(註冊商標)YP-50S(NIPPON STEEL Chemical & Material股份有限公司製、苯氧基樹脂、重量平均分子量約50,000)20g、環己酮80g，一邊攪拌一邊昇溫至60℃，以目視確認溶解，冷卻至40℃，得到固體成分20質量%之樹脂組成物。由其中去除溶劑，得到固體成分100質量%、厚度100μm之薄膜P-2。

【0066】

<製造例 3>

將前述薄膜 P-2 與結晶性環氧樹脂 YSLV-80XY (NIPPON STEEL Chemical & Material 股份有限公司製) 分別予以粉碎，以 98 比 2 之質量比混合，以虎鉗加壓，藉由加熱至 50℃ 而得到固體成分 100 質量%、厚度 100 μm 之薄膜 P-3。

【0067】**<製造例 4>**

將前述薄膜 P-2 與結晶性環氧樹脂 YSLV-80XY (NIPPON STEEL Chemical & Material 股份有限公司製) 分別予以粉碎，以 94 比 6 之質量比混合，以虎鉗加壓，藉由加熱至 50℃ 而得到固體成分 100 質量%、厚度 100 μm 之薄膜 P-4。

【0068】**<製造例 5>**

將前述薄膜 P-2 與結晶性環氧樹脂 YSLV-80XY (NIPPON STEEL Chemical & Material 股份有限公司製) 分別予以粉碎，以 89 比 11 之質量比混合，以虎鉗加壓，藉由加熱至 50℃ 而得到固體成分 100 質量%、厚度 100 μm 之薄膜 P-5。

【0069】**<比較製造例 1>**

將熱硬化性液狀環氧接著劑 E-250 (Konishi 股份有限公司製、雙酚型環氧樹脂與胺硬化劑之 2 液型) 的 2 液混合，塗佈於脫模薄膜，於 100℃ 硬化 1 小時後冷卻，由脫模薄膜

剝離，得到厚度 $100\mu\text{m}$ 之薄膜 Q-1。

薄膜 Q-1 中，在 DSC 測定中未檢測到熔解熱峰，由於不溶於溶劑，無法測定環氧當量及重量平均分子量。

【0070】

<比較製造例 2>

將非晶性之聚碳酸酯薄膜 (Iupilon(註冊商標) FE2000、Mitsubishi Engineering-Plastics 股份有限公司製、厚度 $100\mu\text{m}$) 切割，得到薄膜 Q-2。

薄膜 Q-2 中，在 DSC 測定中未檢測到熔解熱峰，由於不溶於溶劑，無法測定環氧當量及重量平均分子量。

【0071】

<比較製造例 3>

將結晶性環氧樹脂 YSLV-80XY(NIPPON STEEL Chemical & Material 股份有限公司製)於室溫壓合藉以得到薄片，之後切割而得到厚度 $100\mu\text{m}$ 之薄膜 Q-3。

所得薄膜 Q-3 之重量平均分子量、環氧當量，及熔解熱之測定結果，係如表 2 所示。

【0072】

<比較製造例 4>

將熱硬化性液狀環氧接著劑 E-250(Konishi 股份有限公司製、雙酚型環氧樹脂與胺硬化劑之 2 液型)，直接作為液狀之接合劑 Q-4。

接合劑 Q-4 中，在 DSC 測定中未檢測到熔解熱峰，由於不溶於溶劑，無法測定環氧當量及重量平均分子量。

【 0073 】

<比較製造例 5>

於燒瓶中給入jER(註冊商標)1007(三菱化學股份有限公司製、雙酚A型環氧樹脂、重量平均分子量約10,000)1.0當量(203g)、雙酚S1.0當量(12.5g)、三苯基膦2.4g，及甲基乙基酮1,000g，藉由於常溫攪拌而得到固體成分約20質量%之液狀之接合劑Q-5。

再者，於接合劑Q-5，係使用後述比較例5中形成於樹脂A之表面的熱可塑性環氧樹脂聚合物，來測定重量平均分子量、環氧當量、溶解熱，及熔點。

【 0074 】

<比較製造例 6>

於附有攪拌機、環流冷卻器、氣體導入管，及溫度計之反應裝置中，給入Phenototo(註冊商標)YP-50S(NIPPON STEEL Chemical & Material股份有限公司製、苯氧基樹脂、重量平均分子量約50,000)20g、環己酮80g，一邊攪拌一邊昇溫至60℃，以目視確認溶解，冷卻至40℃，得到固體成分20質量%之液狀之接合劑Q-6。

再者，於接合劑Q-6中，係使用後述比較例6中形成於樹脂A之表面的苯氧基樹脂塗層，來測定重量平均分子量、環氧當量、溶解熱，及熔點。

接合劑Q-6中，於DSC測定中未檢測到溶解熱峰，環氧當量為檢測極限以上。

【 0075 】

<比較製造例 7>

將結晶性之聚醯胺系熱熔接著劑薄膜 NT-120(日本 Matai 股份有限公司製、厚度 100 μm)切割，得到厚度 100 μm 之薄膜 Q-7。

薄膜 Q-7 中，由於不溶於溶劑，無法測定環氧當量及重量平均分子量。熔解熱之測定結果，係如表 3 所示。

【 0076 】

<評價方法>

薄膜及接合劑之重量平均分子量、熔解熱及環氧當量，分別如以下般求得。又，薄膜之厚度係藉由以下方法測定。

【 0077 】

(重量平均分子量)

將薄膜及接合劑溶解於四氫呋喃，使用 Prominence 501(昭和 Science 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))，由以下條件進行測定。

管柱：昭和 電工 股份有限公司製 LF-804 \times 2 支

管柱溫度：40 $^{\circ}\text{C}$

試料：樹脂之 0.4 質量%四氫呋喃溶液

流量：1ml/分鐘

溶析液：四氫呋喃

校正法：以標準聚苯乙烯換算

【 0078 】

(溶解熱及熔點)

秤量 2~10mg 的薄膜及接合劑，置入鋁製試樣盤中，以 DSC(Rigaku 股份有限公司製 DSC8231)以 10°C /min 由 23°C 昇溫至 200°C，得到 DSC 曲線。由其 DSC 曲線之溶解時的吸熱峰之面積與前述秤量值來算出溶解熱。又，以所得之 DSC 曲線之吸熱峰溫度作為熔點。再者，得不到吸熱峰時，或溶解熱為 15J/g 以下時，係以玻璃轉移點加 70°C 之溫度作為熔點。玻璃轉移點，係為以 DSC 昇溫至 200°C 後，冷卻至 40°C 以下，進一步加熱至 200°C 之第 2 循環的 DSC 曲線下降開始時之溫度。再者，不藉由加熱而熔融的熱硬化性樹脂，視為無熔點。

【0079】

(環氧當量)

以 JIS K-7236：2001 測定，換算為作為樹脂固體成分之值。又，不伴隨反應的單純混合物的情況時，係由各自的環氧當量與含量算出。

【0080】

(薄膜之厚度)

薄膜之厚度係於 23°C、濕度 50% 之環境中放置 24 小時後，使用 Mitutoyo 股份有限公司製之 MDC-25MX 測定。

【0081】

[接合體之製造]

<基材 A>

基材 A，係使用以下之基材。

《鐵》

將 SPCC-SD 之表面噴砂處理，得到寬度 18mm、長度 45mm、厚度 1.6mm 之試驗片。

《鋁》

將 A6061-T6 之表面噴砂處理，得到寬度 18mm、長度 45mm、厚度 1.6mm 之試驗片。

【0082】

<樹脂 B>

樹脂 B，係使用以下之基材。

《PA6(6-耐綸)》

將東麗股份有限公司製 Amilan CM1011G-30 射出成形，得到寬度 10mm、長度 45mm、厚度 3mm 之試驗片(軟化點 215°C、熔點 225°C)。不經表面處理地使用。

為了於超音波熔接時效率良好地加熱，係於距端部 2.5mm 之場所製成截面正三角形之高度 0.5mm 之線狀突起。

【0083】

《PBT(聚對苯二甲酸丁二酯)》

將 SABIC 製 420-1001 射出成形，得到寬度 18mm、長度 45mm、厚度 1.5mm 之試驗片(軟化點：207°C、熔點 225°C)。不經表面處理地使用。為了於使用超音波熔接機之接合(第 2 接合步驟)時效率良好地加熱，係於距端部 2.5mm

之場所製成截面正三角形之高度0.5mm之線狀突起。

《PC(聚碳酸酯)》

將 SABIC 製 121R 射出成形，得到寬度 10mm、長度 45mm、厚度 3mm 之試驗片(軟化點：129℃、熔點 220℃)。不經表面處理地使用。為了於使用超音波熔接機之接合(第 2 接合步驟)時效率良好地加熱，係於距端部 2.5mm 之場所製成截面正三角形之高度 0.5mm 之線狀突起。

【0084】

<實施例 1>

作為基材 A，於前述鋁基材之上配置切斷為 10×15mm 之大小的前述薄膜 P-1，加熱至薄膜 P-1 之溫度成為 200℃，使薄膜 P-1 熔融後，於常溫放冷 1 分鐘，使薄膜 P-1 固化，將基材 A 與薄膜 P-1 接合。

接著，於接合於基材 A 之薄膜 P-1 上，作為樹脂 B 使前述 PC 基材進行面接觸。此等之基材彼此之重疊部分為寬度 10mm、深度 5mm。前述薄膜 P-1 係以將前述基材彼此之重疊區域全部被覆的方式配置。換言之，前述基材 A 與樹脂 B 彼此未直接接觸，以其間存在有前述薄膜 P-1 的狀態，準備樹脂 B 與薄膜 P-1 未接合之層合體。

藉由使用超音波熔接機(精電舍電子工業股份有限公司製、振盪器 JII930S、壓合機 JIIP30S)施加超音波，以加熱/加壓將基材 A 與基材 B 接合。隱沒量設為 0.6mm，超音波施加時間設為 1 秒以內。再者，以前述隱沒完成的時間

點作為結束，即使未達1秒亦為結束。之後的保持時間設為1秒。加壓力使用110N(壓力2.2MPa)、振盪頻率使用28.5kHz。如此地，製作接合體。

又，針對作為基材A使用前述鋁及作為基材B使用前述PA6的情況，作為基材A使用前述鋁及作為基材B使用前述PBT的情況，以及作為基材A使用前述鐵及作為基材B使用前述PC的情況，亦以與上述相同之操作得到接合體。

又，作為開放時間評價用，係於前述基材A上接合有薄膜的狀態下靜置3日後，使接合於基材A之薄膜與樹脂B進行面接觸，將基材A與樹脂B接合，除此以外係同樣地製作接合體。

【0085】

<實施例2~5、比較例1~3>

使各材料成為如表1及表2所示，除此以外係與實施例1同樣地製作接合體。

【0086】

<比較例4>

將使熱硬化性液狀環氧接著劑E-250(Konishi股份有限公司製、雙酚型環氧樹脂與胺硬化劑之2液型)的2液混合而得的接合劑Q-4，於作為基材A之前述鋁基材及作為樹脂B之前述PC基材之表面各自塗佈縱10mm×橫18mm之區域，於1分鐘以內貼合。之後，於經夾子固定的狀態下於100℃之烘箱內靜置1小時藉以使接合劑Q-4硬化。之後，冷卻至室溫。如此地製作接合體。接著劑層之厚度為0.1 mm。

又，作為開放時間評價用，係於基材 A 與樹脂 B 之各自上塗佈接合劑 Q-4，靜置 3 日後，於將基材 A 與樹脂 B 疊合並經夾子固定的狀態下於 100°C 之烘箱內靜置 1 小時，除此以外係與上述同樣地製作接合體。

【0087】

<比較例 5>

作為基材 A，於前述鋁基材之上將液狀接合劑 Q-5 進行棒塗佈，於室溫乾燥 30 分鐘後，藉由於 160°C 之烘箱中靜置 2 小時，於基材 A 之表面上形成縱 20mm×橫 18mm×厚度 50 μ m 之固體的熱可塑性環氧樹脂聚合物塗層。

接著，將基材 A 與作為樹脂 B 之前述 PC 基材疊合後，與實施例 1 同樣地以超音波熔接而得到接合體。

又，作為開放時間評價用，係將表面形成有上述熱可塑性環氧樹脂聚合物塗層的基材 A 靜置 3 日後，將該基材 A 與樹脂 B 重疊，除此以外係與上述同樣地製作接合體。

【0088】

<比較例 6>

於作為基材 A 之前述鋁基材之上，將前述液狀樹脂組成物進行棒塗佈，於 70°C 之烘箱中靜置 30 分鐘，藉以於基材 A 之表面上形成 20mm×橫 18mm×厚度 50 μ m 之苯氧基樹脂塗層。

將基材 A 上之塗層與作為樹脂 B 之前述 PC 基材疊合，除此以外係與比較例 5 同樣地製作接合體。

又，作為開放時間評價用，係將表面形成有上述苯氧

基樹脂塗層的基材 A 靜置 3 日後，將該基材 A 與樹脂 B 疊合，除此以外係與上述同樣地製作接合體。

【0089】

<比較例 7>

作為薄膜係使用薄膜 Q-7，除此以外係與實施例 1 同樣地製作接合體(包含開放時間評價用接合體)。

【0090】

<比較例 8~11>

不將基材 A 與薄膜接合，而依序層合基材 A、薄膜與樹脂 B 準備層合體，除此以外係與實施例 1 同樣地製作接合體(包含開放時間評價用接合體)。

【0091】

<接合體評價方法>

針對所得之接合體進行以下之評價。其評價結果示於表 1~3。

【0092】

(剪切接合力)

將實施例及比較例所得之接合體於測定溫度(23℃或 80℃)靜置 30 分鐘以上後，根據 ISO19095，以拉伸試驗機(萬能試驗機 Autograph「AG-X plus」(島津製作所股份有限公司製)；測力計 10kN、拉伸速度 10mm/min)，進行於 23℃及 80℃環境之拉伸剪切接合強度試驗，測定接合強度。

【0093】

(接合製程時間)

接合製程時間係以構成接合體之至少任一者的基材與接合劑之接觸時為起點、接合體之製作完成時為終點，測定自起點至終點之時間。

【0094】

(再循環性)

將接合體置於200℃之加熱板，加熱1分鐘後，以1N以下之力可否容易地剝離來進行判斷。若可剝離則為良好(A)、無法剝離則為不佳(B)。

【0095】

(修復性)

針對藉由實施例及比較例所製作之各接合體，使用藉由前述拉伸剪切強度試驗於23℃之試驗而解除了接合的基材A及樹脂B，藉由以與各實施例及各比較例相同之操作再度製作接合體，而得到修復接合體。

與前述試驗方法同樣地測定該修復接合體之23℃之剪切接合力，若為第1次的剪切接合力之80%以上則為良好(A)、若未達80%則為不佳(B)。

【0096】

(開放時間評價)

使用開放時間評價用接合體，於23℃實施前述拉伸剪切接合強度試驗。相較於以前述實施例及比較例之方法所製成的試驗片，剪切接合力若為80%以上則為良好(A)、若未達80%則為不佳(B)。開放時間評價為良好(A)，意指開放時間長、便利性優良。

【 0097】

[表1]

		實施例1						實施例2	實施例3	實施例4	實施例5	實施例6
基材A	種類	-	鋁	鋁	鋁	鐵	鋁	鋁	鋁	鋁	鋁	
樹脂B	種類	-	PC	PA6	PBT	PC	PC	PC	PC	PC	PC	
	熔點	°C	220	225	225	220	220	220	220	220	220	
組成	No		P-1	P-1	P-1	P-1	P-2	P-3	P-4	P-5	P-6	
	種類	-	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	苯氧基樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	
	重量平均分子量	-	37000	37000	37000	37000	50000	36000	35000	33000	30000	
	溶解熱	J/g	無溶解峰	無溶解峰	無溶解峰	無溶解峰	無溶解峰	2	4	11	無溶解峰	
	熔點	°C	171	171	171	171	164	157	153	135	150	
	環氧當量	g/eq	檢測極限以上	檢測極限以上	檢測極限以上	檢測極限以上	檢測極限以上	9600	2100	1745	檢測極限以上	
接着力	23°C 剪切接合力	MPa	13	18	20	15	11	10	11	12	8	
	80°C 剪切接合力	MPa	7	9	12	7	5	5	4	6	5	
評價	接合製程時間	-	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	2分鐘	
	再循環性	-	A	A	A	A	A	A	A	A	A	
	修復性	-	A	A	A	A	A	A	A	A	A	
	開放時間評價	-	A	A	A	A	A	A	A	A	A	

【 0098】

[表2]

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	
基材A	種類	鋁	鋁	鋁	鋁	鋁	鋁	
	樹脂B	PC	PC	PC	PC	PC	PC	
組成	熔點	220	220	220	220	220	220	
	No	Q-1	Q-2	Q-3	Q-4	Q-5	Q-6	
	種類	熱硬化性環氧樹脂	聚碳酸酯	環氧樹脂	熱硬化性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	苯氧基樹脂	
	重量平均分子量	-	-	340	-	40000	50000	
	熔解熱	J/g	無熔解峰	無熔解峰	無熔解峰	無熔解峰	無熔解峰	
	熔點	°C	無	220	60	無	164	
	環氧當量	g/eq	-	-	192	-	檢測極限以上	
	接著力	Mpa	0	0	0	3	43	
	評價	23°C 剪切接合力	Mpa	0	0	0	21	11
		80°C 剪切接合力	min	2分鐘	2分鐘	2分鐘	70分鐘	150分鐘
接合製程時間		-	B	A	A	A	A	
再循環性		-	B	A	A	B	A	
修復性		-	B	A	A	B	A	
開放時間評價	-	B	A	A	B	A		

【 0099】

[表3]

		比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11
基材A	種類	-	鋁	鋁	鋁	SPCC
	樹脂B	-	PC	PA6	PBT	PC
組成	熔點	°C	220	225	225	220
	No	-	Q-7	P-1	P-1	P-1
	種類	-	聚醯胺	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂	熱可塑性環氧樹脂
	重量平均分子量	-	-	37000	37000	37000
	熔解熱	J/g	60	無熔解峰	無熔解峰	無熔解峰
	熔點	°C	101	171	171	171
	環氧當量	g/eq	-	檢測極限以上	檢測極限以上	檢測極限以上
	接著力	Mpa	0	0	0	0
		Mpa	0	0	0	0
	評價	接合製程時間	min	2分鐘	3.0秒	3.0秒
便利性	再循環性	-	A	A	A	A
	修復性	-	A	A	A	A
	開放時間評價	-	A	A	A	A

[產業上之可利用性]

【0100】本發明之製造方法所得之接合體，例如可用作為車門側板、引擎蓋頂(bonnet roof)、尾門、轉向機柱(steering hanger)、A柱、B柱、C柱、D柱、潰縮盒、電源控制單元(PCU)殼體、電動壓縮機構件(內壁部、進氣口部、排氣控制閥(ECV)插入部、機架軸套(mount boss)部等)、鋰離子電池(LIB)隔件、電池盒、LED頭燈等之汽車用零件，或智慧型手機、筆記型電腦、平板型電腦、智慧型手錶、大型液晶電視(LCD-TV)、屋外LED照明之構造體等，但不特別限定於此等例示之用途。

【符號說明】

【0101】

- 1:接合體
- 2:接合層
- 3:基材 A
- 4:樹脂 B

【發明申請專利範圍】

【請求項 1】一種接合體之製造方法，其係依序接合基材 A、以熱可塑性環氧樹脂及苯氧基樹脂之至少任一者的非晶性熱可塑性樹脂作為主成分之薄膜，與樹脂 B 而成的接合體之製造方法，其具有

於使前述薄膜與前述基材 A 進行面接觸之狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述薄膜之第 1 接合步驟，與

於使接合於前述基材 A 之前述薄膜與樹脂 B 進行面接觸的狀態下，使前述薄膜熔融後固化，藉以接合前述基材 A 與前述樹脂 B 之第 2 接合步驟，

前述基材 A 為金屬及無機物之至少任一者，

前述非晶性熱可塑性樹脂之環氧當量為 1,600g/eq. 以上或前述非晶性熱可塑性樹脂不含環氧基，且前述非晶性熱可塑性樹脂之溶解熱為 15J/g 以下。

【請求項 2】如請求項 1 之接合體之製造方法，其中前述樹脂 B 係由熱可塑性樹脂構成。

【請求項 3】如請求項 1 或 2 之接合體之製造方法，其中前述基材 A 係由金屬構成。

【請求項 4】如請求項 1 或 2 之接合體之製造方法，其中於前述第 1 接合步驟中，將前述薄膜加熱至 100~300℃ 來進行熔融後固化。

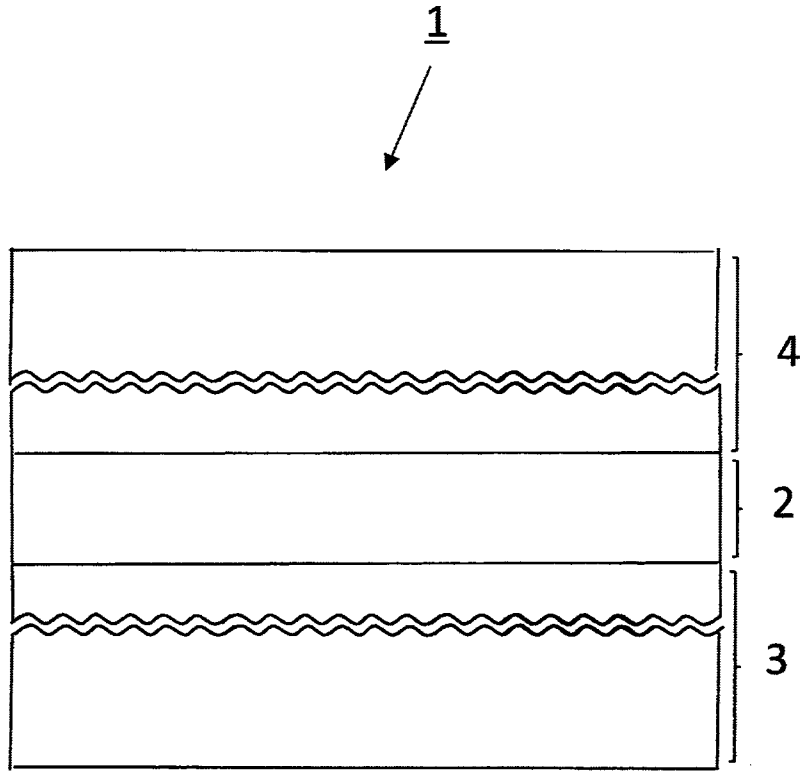
【請求項 5】如請求項 1 或 2 之接合體之製造方法，其中於前述第 2 接合步驟中，將前述薄膜藉由選自由接觸加

熱、溫風加熱、熱壓、紅外線加熱、熱板熔接、超音波熔接、振動熔接及高頻感應熔接所成之群的至少 1 種來進行熔融後固化。

【請求項 6】如請求項 1 或 2 之接合體之製造方法，其中於前述第 2 接合步驟中，於前述樹脂 B 及前述薄膜之至少任一者的熔點以上之溫度加熱，來將前述薄膜進行熔融後固化。

【請求項 7】如請求項 1 或 2 之接合體之製造方法，其中於前述第 2 接合步驟中，於加熱溫度 $100\sim 400^{\circ}\text{C}$ ，及 $0.01\sim 20\text{MPa}$ 之加壓下，來將前述薄膜進行熔融後固化。

【發明圖式】



【圖 1】