



(21)申請案號：104102641

(22)申請日：中華民國 104 (2015) 年 01 月 27 日

(51)Int. Cl. : B32B27/32 (2006.01)

B32B37/04 (2006.01)

B32B37/06 (2006.01)

H01L51/52 (2006.01)

(30)優先權：2014/01/29 日本

2014-014678

(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：井上弘康 INOUE, HIROYASU (JP)；石黑淳 ISHIGURO, ATSUSHI (JP)；小出洋平 KOIDE, YOHEI (JP)

(74)代理人：洪澄文

(56)參考文獻：

CN 102026805A

EP 2033988A2

US 2013/0021667A1

US 2013/0146860A1

審查人員：吳國宇

申請專利範圍項數：6 項 圖式數：3 共 69 頁

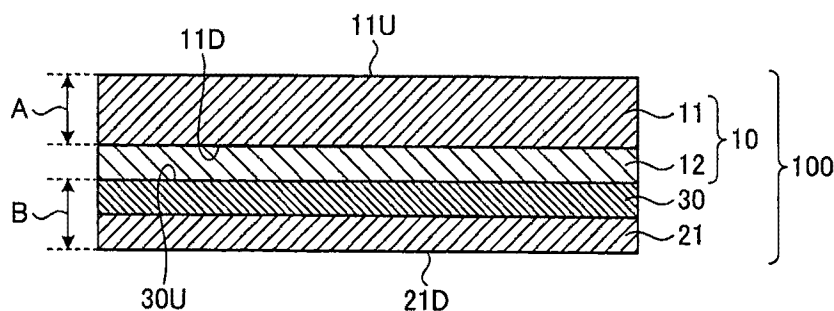
(54)名稱

複合氣體阻障層積體及其製造方法

(57)摘要

一種有機電激發光元件用的複合氣體阻障層積體及其製造方法，該複合氣體阻障層積體係具備：氣體阻障層積體(A)，其具備脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)、及直接設置在前述薄膜(a)的至少一面上之 1 層以上的無機阻障層(a)；脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)，其具有前述薄膜(a)的厚度以下之厚度；及熱熔融層，其介於前述無機阻障層(a)及前述薄膜(b)之間且將前述無機阻障層與前述薄膜(b)貼合；前述熱熔融層的玻璃轉移溫度，係比構成前述薄膜(a)及前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度更低 25°C 以上。

指定代表圖：



符號簡單說明：

10 . . . 氣體阻障層積體(A)

11 . . . 薄膜(a)

11U . . . 複合氣體阻障層積體的一外側面

11D . . . 薄膜(a)的一面

12 . . . 無機阻障層(a)

21 . . . 薄膜(b)

第 1 圖

- 21D . . . 薄膜(b)的一表面
- 30 . . . 熱熔融層、或熱熔融樹脂的薄膜(薄膜(c))
- 30U . . . 熱熔融層之無機阻障層(a)側的表面
- 100 . . . 複合氣體阻障層積體
- A、B . . . 區域

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】 (中文/英文)

複合氣體阻障層積體及其製造方法

【技術領域】

【0001】 本發明係有關於一種複合氣體阻障層積體及其製造方法。

【先前技術】

【0002】 有機電激發光元件(以下，有適當地稱爲「有機 EL 元件」、或簡稱爲「元件」之情形)，係爲了防止水蒸氣及氧氣侵入元件內部，而有設置具有氣體阻障性的構件之情形。特別是因爲有機 EL 元件內部的有機材料係因水蒸氣及氧氣而引起性能大幅度地低之情況，所以特別是要求具有優異的氣體阻障性之構件。

【0003】 作爲此種構件，例如已知具有無機層者(例如，參照專利文獻 1)。通常無機層係因爲將水蒸氣及氧氣隔離之能力優異，所以藉由無機層而能夠得到氣體阻障性。又，因爲無機層的厚度越厚，能夠期待越高的氣體阻障性，例如專利文獻 2 係提案揭示一種將形成有矽氧化物之薄膜貼合而成之高阻障性塑膠，又，專利文獻 3 係提案揭示一種具備複數層無機層之氣體阻障層積體。

先前技術文獻

專利文獻

【0004】

[專利文獻 1] 日本特開 2005-327687 號公報(對應外國公報：歐洲專利申請公開第 1768463 號說明書)

[專利文獻 2] 日本特開平 03-063127 號公報

[專利文獻 3] 日本特開 2009-190186 號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0005】 但是，具備無機層之氣體阻障層積體，其無機層的厚度較厚時產生翹曲。認為這是因為氣體阻障層積體所具有的無機層與無機層以外的層之熱膨脹係數不同而產生。亦即，認為在氣體阻障層積體的製造時或使用時，產生溫度變化時，在無機層與無機層以外的層之間，膨脹或收縮的程度產生差異，因該差異致使氣體阻障層積體產生翹曲。針對此種情形，舉出具體例而進行說明。例如，在樹脂薄膜上具備無機層之氣體阻障層積體，通常在樹脂薄膜上形成無機層之步驟係在高溫環境進行，隨後，將所得到的氣體阻障層積體冷卻。此時，因為通常無機層與樹脂薄膜係熱膨脹係數為不同，所以因冷卻致使樹脂薄膜比無機層更大幅度地收縮。因此前述的氣體阻障層積體，係往往以無機層為外側且以樹脂薄膜為內側而產生翹曲。特別是為了實現 $2 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以下的水蒸氣阻障性，以充分厚度的無機層為佳，結果產生較大的翹曲。在氣體阻障層積體產生較大的翹曲時，氣體阻障層積體的操作性低落致使將該氣體阻障層積體安裝在有機 EL 元件之操作係變難。因此，要求開發改善翹曲之氣體阻障層積體構造。

【0006】 又，藉由如專利文獻 2 的構造雖然能夠改善翹曲，

但是接著劑所產生的氣體成分增加、使用能量硬化型的接著劑致使可撓性喪失係成爲課題。

特別是在氣體阻障層積體的使用，排氣(從氣體阻障層積體所產生的氣體)係使元件製造的製造效率減低且在元件製造及使用時，使元件產生暗點等的不良。因而，被期望能夠充分地減低此種排氣。

而且，氣體阻障層積體係被期望能夠防止氣體阻障性在高溫環境下低落、或容易產生龜裂而損害氣體阻障性。這是因爲例如在使用時、保存時搬運時能夠抑制氣體阻障層積體的氣體阻障性低落而良好地維持氣體阻障性之緣故。因此，要求一種具有優異的可撓性且被彎曲時的氣體阻障性能降低較少之氣體阻障層積體。

【0007】 因而，本發明之目的，係提供一種排氣較少、具有優異的可撓性、被彎曲時的氣體阻障性能降低較少且翹曲較小之複合氣體阻障層積體及其製造方法。

[用以解決課題之手段]

【0008】 爲了解決上述的課題，本發明者進行研討之結果，想出如以下構成之複合氣體阻障層積體，該複合氣體阻障層積體係具備不同厚度之複數片的脂環式聚烯烴樹脂薄膜、及以特定態樣被配置在其間之無機阻障層及熱熔融層。而且，本發明者進一步發現此種複合氣體阻障層積體，係不僅是能夠改善翹曲，而且亦能夠顯現改善排氣的減低、可撓性的提升、及對彎曲的耐久性等之效果。本申請係基於此種知識而完成。亦即，本發明係如以下。

【0009】

[1]一種有機電激發光元件用的複合氣體阻障層積體，係具備：氣體阻障層積體(A)，其具備脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)、及直接設置在前述薄膜(a)的至少一面上之 1 層以上的無機阻障層(a)；

脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)，其具有前述薄膜(a)的厚度以下之厚度；及

熱熔融層，其介於前述無機阻障層(a)及前述薄膜(b)之間且將前述無機阻障層與前述薄膜(b)貼合；

前述熱熔融層的玻璃轉移溫度 TgA 與構成前述薄膜(a)及前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度 TgB 之差($TgB-TgA$)為 $25^{\circ}C$ 以上。

[2]如[1]所述之複合氣體阻障層積體，其中前述熱熔融層為苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂之層。

[3]如[2]所述之複合氣體阻障層積體，其中前述苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂係含有苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物氫化物。

[4]如[1]至[3]項中任一項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述薄膜(a)及前述薄膜(b)的任一者在波長 $550nm$ 時的面內方向的遲滯值為 $115\sim 160nm$ ，另一者在波長 $550nm$ 時的面內方向的遲滯值為 $0\sim 25nm$ 。

[5]如[1]至[4]項中任一項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述薄膜(b)的厚度為 $30\mu m$ 以下，前述複合氣體阻障層積體的厚度為 $100\mu m$ 以下。

[6]一種複合氣體阻障層積體的製造方法，包含以下的步驟：在

脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)的至少一面上，直接形成無機阻障層(a)而得到氣體阻障層積體(A)之步驟；以及將前述氣體阻障層積體(A)、前述具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)、及熱熔融樹脂的薄膜(c)，以成爲前述薄膜(a)、前述無機阻障層(a)、前述薄膜(c)、及前述薄膜(b)的順序之方式使其重疊、加熱壓黏之步驟；

前述熱熔融樹脂的玻璃轉移溫度 TgA 、與構成前述薄膜(a)及前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度 TgB 之差 ($TgB-TgA$)爲 $25^{\circ}C$ 以上。

[發明效果]

【0010】 依照本發明，能夠提供一種排氣爲較少、具有優異的可撓性且被彎曲時的氣體阻障性能降低較少之氣體阻障層積體及其製造方法。

【圖式簡單說明】

【0011】

第1圖係示意性地顯示將本發明的一實施形態之複合氣體阻障層積體，在與其主面垂直的平面切割而成之剖面之剖面圖。

第2圖係示意性地顯示在本發明的一實施形態之複合氣體阻障層積體的製造方法中，使氣體阻障層積體(A)、薄膜(b)及熱熔融樹脂的薄膜(c)加熱壓黏之步驟之側面圖。

第3圖係示意性地顯示將使用本發明的一實施形態之複合氣體阻障層積體之抗反射膜，在與其主面垂直的平面切割而成之剖面之剖面圖。

【實施方式】

[用以實施發明之形態]

【0012】 以下，揭示實施形態及例示物而詳細地說明本發明，但是本發明不被以下所揭示的實施形態及例示物限定，在不脫離本發明的申請專利範圍及其均等的範圍之範圍，能夠任意地實施變更。

【0013】 在以下的說明，所謂薄膜為「長條」，係指相對於寬度，具有至少 5 倍以上的長度者，較佳是具有 10 倍或是其以上的長度，具體而言係指能夠被捲取成為捲物狀而保管或搬運的程度之長度者。相對於寬度之長度的倍率之上限，係沒有特別限定，通常能夠設為 5000 倍以下。

【0014】 在以下的說明，所謂「偏光板」及「1/4 波長板」，係只要未預先告知，就不僅是剛直的構件，亦包含例如樹脂製的薄膜之具有可撓性之構件。

【0015】 在以下的說明，某薄膜的面向遲滯值係以 $(n_x - n_y) \times d$ 表示之值。在此， n_x 係表示在與該薄膜的厚度方向垂直的方向(面內方向)，提供最大的折射率之方向的折射率。又， n_y 係表示在該薄膜的前述面內方向且與 n_x 的方向正交之方向的折射率。而且， d 係表示該薄膜的厚度。該遲滯值係能夠使用市售的分光橢圓偏光計(ellipsometer)(例如，J. A. Woollam Japan 股份公司 M-2000U)等而測定。面向遲滯值的測定波長係只要未預先告知，就是 550nm。

【0016】 [1.複合氣體阻障層積體的概要]

第 1 圖係示意性地顯示將本發明的一實施形態之複合氣體

阻障層積體 100，在與其主面垂直的平面切割而成之剖面之剖面圖。在第 1 圖所顯示的例子，複合氣體阻障層積體 100 係將具備薄膜(a)11 及無機阻障層(a)12 之氣體阻障層積體(A)10、及薄膜(b)21，以無機阻障層(a)12 與薄膜(b)21 為相向的方式透過熱熔融層 30 加熱壓黏而成之層積體。因而，複合氣體阻障層積體 100 係依照以下的順序具備薄膜(a)11、無機阻障層(a)12、熱熔融層 30、及薄膜(b)21。

【0017】 [2.氣體阻障層積體(A)]

本發明的複合氣體阻障層積體係具備氣體阻障層積體(A)，該氣體阻障層積體(A)係具備脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)、及直接設置在薄膜(a)的至少一面上之 1 層以上的無機阻障層(a)。在第 1 圖所顯示的例子，氣體阻障層積體(A)10 係具備薄膜(a)11、及在薄膜(a)11 的一面 11D 形成之無機阻障層(a)12，且薄膜(a)11 與無機阻障層(a)12 係直接接觸。

【0018】 [2.1.薄膜(a)]

薄膜(a)係脂環式聚烯烴樹脂薄膜。在此，所謂脂環式聚烯烴樹脂，係指含有脂環式烯烴聚合物、及按照必要的其他任意成分之樹脂。脂環式聚烯烴樹脂係水蒸氣透過率低且排氣的產生少。因而，在形成無機阻障層(a)之含有系統內減壓的步驟(例如蒸鍍、濺鍍等)，從薄膜往減壓系統內排氣的排放量少。因此，藉由採用脂環式聚烯烴樹脂薄膜作為薄膜(a)，能夠形成良好的無機阻障層(a)，其結果，能夠提高複合氣體阻障層積體的氣體阻障性。又，因為在將本發明的複合氣體阻障層積體使用於製造元件時，在減壓時之排氣的排放量亦少，而且在元件使

用時排氣往元件內的排放量亦少，所以能夠容易地製造高品質的元件。而且，因為將脂環式聚烯烴樹脂熔融擠出而製成之薄膜，係表面的平滑性良好且成為無機層產生龜裂的原因之表面的凸出較小，其結果，因為相較於表面平滑性較差的薄膜，能夠以較薄的無機層而減少水蒸氣透過率，所以具有優異的生產性及可撓性。又，薄膜(a)通常成為支撐無機阻障層(a)，亦能夠達成維持氣體阻障層積體(A)的強度之效果。

【0019】 脂環式烯烴聚合物，在主鏈及/或側鏈具有脂環構造之非晶性的熱可塑性聚合物。作為脂環式烯烴聚合物中的脂環構造，可舉出飽和脂環烴(環烷)構造、不飽和脂環烴(環烯)構造，從機械強度、耐熱性等的觀點而言，以環烷構造為佳。構成脂環構造之碳原子數係沒有特別限制，通常為 4 個以上，較佳為 15 個以上，又，通常為 30 個以下，以 20 個以下為佳，較佳為 15 個以下時，機械強度、耐熱性、及薄膜的成形性的特性係能夠高度地平衡，乃是較佳。

【0020】 在脂環式烯烴聚合物，具有脂環構造之構造單元的比率，較佳為 55 重量%以上，更佳為 70 重量%以上，特佳為 90 重量%以上。在脂環式烯烴聚合物，從透明性及耐熱性的觀點而言，具有脂環式構造之構造單元的比率為該範圍為佳。

【0021】 作為脂環式烯烴聚合物，例如，可舉出降冰片烯聚合物、單環環狀烯烴聚合物、環狀共軛二烯聚合物、乙烯基脂環式烴聚合物、及該等的氫化物等。該等之中，因為降冰片烯聚合物之透明性及成形性良好，所以能夠適合使用。

【0022】 作為降冰片烯聚合物，例如可舉出具有降冰片烯

構造之單體的開環聚合物或是具有降冰片烯構造之單體與其他單體的開環共聚物、或是該等的氫化物；具有降冰片烯構造之單體的加成聚合物或是具有降冰片烯構造之單體與其他單體的加成共聚物、或是該等的氫化物等。該等之中，從透明性、成形性、耐熱性、低吸濕性、尺寸安定性、輕量性等之觀點而言，具有降冰片烯構造之單體的開環(共)聚合物氫化物，係特別能夠適合使用。

【0023】 作為脂環式烯烴聚合物，該等聚合物之中，係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。又，薄膜(a)之構成，亦可以是複數種類的脂環式烯烴樹脂各自構成層。

【0024】 在脂環式烯烴樹脂所含有的脂環式烯烴聚合物之分子量，係能夠按照使用目的而適當地選定，使用環己烷作為溶劑且藉由(但是，聚合物係不溶解於環己烷時，亦可用甲苯)凝膠滲透層析法所測得之聚異戊二烯換算(溶劑為甲苯時係聚苯乙烯換算)的重量平均分子量(Mw)，通為 10,000 以上，以 15,000 以上為佳，較佳為 20,000 以上，通常為 100,000 以下，以 80,000 以下為佳，較佳為 50,000 以下。藉由重量平均分子量為此種範圍，因為薄膜(a)的機械強度及成型加工性等能夠高度地平衡，乃是較佳。

【0025】 作為脂環式聚烯烴樹脂能夠含有的任意成分，例如能夠舉出抗氧化劑、熱安定劑、光安定劑、紫外線吸收劑、抗靜電劑、分散劑、氯捕捉劑、阻燃劑、結晶化核劑、增強劑、抗黏結劑、防霧劑、脫模劑、顏料、有機或無機填充劑、中和

劑、滑劑、分解劑、金屬惰性化劑、抗污染劑、抗菌劑、其他樹脂、熱可塑性彈性體等的添加劑。又，該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。而且，相對於在脂環式聚烯烴樹脂所含有的聚合物 100 重量份，任意成分的量係通常為 0~50 重量份，較佳為 0~30 重量份。

【0026】 脂環式聚烯烴樹脂未必限定是具有高透明性者。但是，從能夠將複合氣體阻障層積體使用在有機 EL 元件之被要求透射光線的部分作為有用物的觀點而言，脂環式聚烯烴樹脂係以具有高透明性者為佳。例如，使脂環式聚烯烴樹脂成為厚度 1mm 的試片而測得的總光線透射率，通常為 70%以上，以 80%以上為佳，較佳是以 90%以上者為佳。

【0027】 薄膜(a)的厚度，係以 10 μ m 以上為佳，較佳為 30 μ m 以上，以 300 μ m 以下為佳，較佳為 100 μ m 以下，更佳為 50 μ m 以下。薄膜(a)的厚度係能夠使用接觸式膜厚計而測定。具體而言，係在與 TD 方向平行的線狀，以等間隔測定厚度 10 點而求取其平均值且能夠將其設作厚度的測定值。

【0028】 薄膜(a)之熱膨脹率，係以 70ppm/K 以下為佳，以 50ppm/K 以下為較佳，以 40ppm/K 以下為更佳。此種熱膨脹率，係能夠藉由使薄膜(a)成為 20mm \times 5mm 的試片，且在荷重 5.0g、氮 100cc/分鐘、升溫速度為 0.5 $^{\circ}$ C/分鐘的條件下，測定從 30 $^{\circ}$ C 升溫至 130 $^{\circ}$ C 時之試片長度的伸長率來測定。

又，薄膜(a)之濕度膨脹率，係以 30ppm/%RH 以下為佳，以 10ppm/%RH 以下為較佳，以 1.0ppm/%RH 以下為更佳。此種濕度膨脹率，係能夠藉由使薄膜成為 20mm \times 5mm 的試片，

且在荷重 5.0g、氮 100cc/分鐘、溫度 25°C、速度 5.0%RH/分鐘的條件下，測定使濕度從 30%RH 上升至 80%RH 時之試片長度的伸長率來測定。

又，薄膜(a)的玻璃轉移溫度，係以 110°C 以上為佳，以 130°C 以上為更佳，以 160°C 以上為特佳。藉由具有高玻璃轉移溫度，能夠抑制在高溫環境等的熱履歷前後之薄膜(a)的熱收縮。又，藉由具有高玻璃轉移溫度，在複合氣體阻障層積體的製造，能夠不帶來不希望的 Re 變動而進行加熱壓黏。

藉由得到如此較佳的熱膨脹率、濕度膨脹率-及玻璃轉移溫度，能夠得到在高溫高濕的環境下可抑制氣體阻障性低落之複合氣體阻障層積體。

【0029】 又，亦可在薄膜(a)之與無機阻障層(a)為相反側的表面(在第 1 圖係面 11U)，形成凹凸構造。藉由具有凹凸構造，薄膜(a)係變為不容易產生黏結。因此，例在如使用長條薄膜(a)且藉由捲繞式(roll to roll)法來製造複合氣體阻障層積體時，因為能夠將薄膜(a)容易地從捲物拉出，而能夠容易地製造。又，薄膜(a)之與無機阻障層(a)為相反側的表面，係通常成為複合氣體阻障層積體的最表面。因此，在薄膜(a)之與無機阻障層(a)為相反側的表面形成凹凸構造時，因為複合氣體阻障層積體的最表面係具有凹凸構造，所以亦能夠抑制複合氣體阻障層積體的黏結。又，代替薄膜(a)的該表面、或是除了薄膜(a)的該表面以外，亦可在薄膜(b)之相反側的表面(在第 1 圖係面 21D)形成凹凸構造。

【0030】 形成有凹凸構造之表面的算術平均粗糙度 Ra(JIS

B601-2001)，係以 $0.02\mu\text{m}$ 以上為佳，較佳為 $0.1\mu\text{m}$ 以上，特佳為 $3\mu\text{m}$ 以上。藉由使算術平均粗糙度 R_a 成為前述範圍的下限值以上，能夠使形成有凹凸構造之表面的滑性成為良好而能夠穩定地防止黏結。又，前述算術平均粗糙度的上限值係沒有特別限制，以 $50\mu\text{m}$ 以下為佳，較佳為 $25\mu\text{m}$ 以下，特佳為 $10\mu\text{m}$ 以下。

【0031】 薄膜(a)的製造方法沒有特別限制，例如，可使用熔融成形法、溶液流延法的任一者。熔融成形法，更詳細地例如能夠分類成為擠製成形法、壓製成形法、吹塑成形法、射出成形法、吹氣成形法、延伸成形法等。該等方法之中，為了得到具有優異的機械強度、表面精度等之薄膜(a)，以擠製成形法、吹塑成形法或壓製成形法為佳，尤其是從效率良好且能夠簡單地製造薄膜(a)的觀點而言，以擠製成形法為特佳。

【0032】 而且，在薄膜(a)的製造方法，亦可進行將薄膜延伸之延伸步驟等。藉此，能夠得到延伸膜作為薄膜(a)。使用延伸膜作為薄膜(a)時，能夠抑制薄膜(a)的熱膨脹率，且能夠進一步減低在高溫高濕的環境下之氣體阻障性能的劣化。此種延伸膜係例如能夠藉由上述的方法將脂環式聚烯烴樹脂成形為坯膜，且將此種坯膜進行延伸來得到。

【0033】 坯膜的形狀，能夠依照所需要的延伸倍率，以能夠得到所需要尺寸的薄膜(a)之方式適當地設定。較佳是設作長條薄膜狀的形狀。在此，所謂薄膜為「長條」，係指相對於寬度，具有至少 5 倍以上的長度者，較佳是具有 10 倍或是其以上的長度，具體而言係指能夠被捲取成為捲物狀而保管或搬運

的程度之長度者。

【0034】 延伸的態樣，係較佳是能夠設為雙軸延伸。此種雙軸延伸，係可以藉由將坯膜在與其面平行且互相垂直的 2 個方向延伸來進行。在此，所謂「垂直的」方向，係以構成 90° 的角度為佳，並且亦可能包括含有 ±10° 左右的誤差之情況。

通常，垂直的 2 個方向係各自被設為長條坯膜的 MD 方向（坯膜的流動方向，亦即長條坯膜的長度方向）及 TD 方向（與 MD 方向垂直之坯膜的寬度方向），但是不被此限定，亦可以是對 MD 方向及 TD 方向傾斜且互相垂直的 2 個方向。

【0035】 雙軸延伸的態樣，可以是逐次雙軸延伸（將 2 個方向的延伸之各自設作各別步驟而進行之延伸），亦可以是同時雙軸延伸（同時進行 2 個方向的延伸步驟之至少一部分之延伸）。就製造效率而言，係以同時雙軸延伸為佳，但是被要求使薄膜 (a) 的相位差之值盡可能成為較少之情況等，而欲獨立且精密地控制 2 個方向的延伸時，就容易進行此種控制而言，亦有逐次雙軸延伸為佳之情況。

【0036】 雙軸延伸之延伸倍率，在 2 個方向各自以 1.05 倍以上為佳，較佳為 1.5 倍以上，以 4.5 倍以下為佳，較佳為 3.5 倍以下。又，為了使在高溫高濕環境下的透濕度變化成為最小，及使透射氣體阻障層積體之光線成為均勻者，2 個方向的倍率之比，係以在 1 : 1~2 : 1 的範圍內為佳。

【0037】 進行雙軸延伸時的溫度，係能夠將形成坯膜之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度 T_g 設定為基準。雙軸延伸時的溫度範圍，例如以 T_g 以上為佳，以 $T_g+30^\circ\text{C}$ 以下為佳，較

佳為 $T_g+20^{\circ}\text{C}$ 以下。在此，坯膜係具備具有複數種類不同玻璃轉移溫度之脂環式聚烯烴樹脂之層時，能夠將該等的脂環式聚烯烴樹脂之中最低玻璃轉移溫度作為基準，而設定雙軸延伸時的溫度範圍。

【0038】 作為進行雙軸延伸所使用的裝置，例如，能夠適合舉出拉幅延伸機、及其他具有導軌及沿著該導軌而移動的把持件之延伸機。又，此外，亦可使用縱向單軸延伸機、磁泡延伸機(bubble stretcher)、輥延伸機等的任意延伸機。

【0039】 而且，在薄膜(a)的表面形成凹凸構造時，凹凸構造的 formed 方法沒有限制。作為凹凸構造的 formed 方法，例如可舉出藉由使用在表面具有凹凸構造之成形輥(forming roll)按壓薄膜(a)，而將凹凸構造轉印在薄膜(a)的表面之夾持成形法；藉由將表面具有凹凸構造之脫模薄膜挾壓薄膜(a)，而將脫模薄膜的凹凸構造轉印在薄膜(a)之後，將脫模薄膜從薄膜(a)剝離之方法；對薄膜(a)的表面噴射粒子而切削薄膜(a)的表面之方法；藉由在薄膜(a)的表面配置電子射線硬化型樹脂且使硬化而形成凹凸構造之方法等。而且，亦能夠藉由調整薄膜(a)的組成而形成凹凸構造。例如，可舉出使形成薄膜(a)之脂環式聚烯烴樹脂含有預定粒徑的粒子而形成凹凸構造之方法；調整在形成薄膜(a)之脂環式聚烯烴樹脂所含有的成分之調配比而使其形成凹凸構造之方法等。

【0040】 通常，相較於在薄膜(a)的表面形成無機阻障層(a)之時點，薄膜(a)的黏結係容易在更前面的時點產生。因此，就防止黏結之觀點而言，在薄膜(a)的表面形成凹凸構造之步驟，

係比在薄膜(a)的表面形成無機阻障層(a)之步驟更前面的時點進行為佳。

【0041】 [2.2.無機阻障層(a)]

無機阻障層(a)係使用無機材料所形成之層，例如具有將水分及氧氣等在外氣中所存在的成分且可能使顯示裝置及發光裝置等的裝置的內部之構成要素(例如，有機 EL 元件的發光層等)劣化之成分進行阻障的能力之層。該無機阻障層(a)係發揮將從氣體阻障層積體(A)的表背的一面往另一面之水分及氧氣等成分的透過進行阻障之效果。

【0042】 又，在複合氣體阻障層積體，因為無機阻障層(a)係位於薄膜(a)的內側，所以能夠防止外力所致之無機阻障層(a)的負傷。因而，無機阻障層(a)係不容易產生龜裂且氣體阻障性不容易受到損害。

【0043】 而且，通常脂環式聚烯烴樹脂多半是與其他材料之親和性較低，而無機阻障層(a)係與脂環式聚烯烴樹脂、與熱熔融層(特別是苯乙烯系的熱可塑性彈性體，尤其是含有苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物氫化物者)均能夠具有高親和性。因此，藉由無機阻障層(a)係被設置在脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)與熱熔融層之間，能夠使薄膜(a)與熱熔融層的密著性成為良好。

【0044】 舉出能夠形成無機層之無機材料的較佳例子時，可舉出金屬；矽的氧化物、氮化物、氮化氧化物；鋁的氧化物、氮化物、氮化氧化物；DLC(鑽石類似碳)；及該等 2 以上混合而成之材料等。尤其是就透明性而言，係以矽的氧化物或氮化

氧化物等至少含有矽之材料為特佳。又，就與薄膜(a)的材料亦即脂環式聚烯烴樹脂之親和性而言，係以 DLC 為特佳。

【0045】 作為矽的氧化物，例如可舉出 SiO_x 。在此，從使無機阻障層(a)的透明性及水蒸氣阻障性並存的觀點而言， x 係以 $1.4 < x < 2.0$ 為佳。又，作為矽的氧化物，亦能夠舉出 SiOC 。

作為矽的氮化物，例如可舉出 SiN_y 。在此，從使無機阻障層(a)的透明性及水蒸氣阻障性並存的觀點而言， y 係以 $0.5 < y < 1.5$ 為佳

作為矽的氮化氧化物，例如可舉出 SiO_pN_q 。在此，重視提升無機阻障層(a)的密著性時，係設作 $1 < p < 2.0$ 、 $0 < q < 1.0$ ，而使無機阻障層(a)成為富含氧的膜為佳。又，重視提升無機阻障層(a)的水蒸氣阻障性時，係設作 $0 < p < 0.8$ 、 $0.8 < q < 1.3$ ，而使無機阻障層(a)成為富含氮的膜為佳。

【0046】 作為鋁的氧化物、氮化物及氮化氧化物，例如能夠舉出 AlO_x 、 AlN_y 、及 AlO_pN_q 。

尤其是從無機阻障性的觀點而言，能夠將 SiO_pN_q 及 AlO_x 、以及該等的混合物設作較佳材料而使用。

【0047】 無機阻障層(a)的厚度係以 100nm 以上為佳，較佳為 300nm 以上，特佳是 500nm 以上，以 2500nm 以下為佳，較佳為 2000nm 以下，特佳為 1500nm 以下。藉由將無機阻障層(a)的厚度設為前述範圍的下限值以上，能夠得到良好的氣體阻障性。又，藉由設為上限值以下，能夠邊維持充分的氣體阻障性邊抑制複合氣體阻障層積體被著色成為黃色等的顏色。

【0048】 形成有無機阻障層(a)之薄膜(a)，亦即氣體阻障層

積體(A)的水蒸氣透過率，係以 $5 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以下為佳，以 $2 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以下為較佳。另一方面，水蒸氣透過率的下限，係以 $0 \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 為佳，但是即便是其以上的值，只要是上述上限以下的範圍內，就能夠適合使用。

【0049】 無機阻障層(a)，係例如能夠在當作基材的薄膜(a)之表面使用蒸鍍法、濺鍍法、離子噴鍍法、離子射束輔助蒸鍍法、電弧放電電漿蒸鍍法、熱 CVD 法、電漿 CVD 法等成膜方法來形成。尤其是以使用熱 CVD 法、電漿 CVD 法等化學氣相成長法為佳。使用化學氣相成長法時，藉由調整製膜所使用的氣體成分，而能夠形成具有可撓性的無機阻障層(a)。又，藉由得到具有可撓性的無機阻障層(a)，無機阻障層(a)能夠追隨薄膜(a)的變形和在高溫高濕環境下的薄膜(a)尺寸變化，即便在真空度的環境下亦能夠以較高的製膜速度製膜且能夠實現良好的氣體阻障性。無機阻障層(a)係使用如此的化學氣相成長法而形成時，厚度下限係以 300nm 以上為佳，較佳為 500nm 以上，上限係以 2000nm 以下為佳，以 1500nm 以下為較佳。

【0050】 在氣體阻障層積體(A)中，無機阻障層(a)係直接在薄膜(a)的至少一面上設置 1 層以上。無機阻障層(a)亦可設置在薄膜(a)的表面及背面之雙方的面上，但是通常係設置在一面上。又，無機阻障層(a)可以在薄膜(a)一面上只設置 1 層，亦可設置 2 層以上。在 2 層的無機阻障層之間亦可具有另外的薄膜有機層。從製造成本及確保可撓性等的觀點而言，通常係以只設置 1 層為佳，但是亦有設置 2 層以上的無機阻障層(a)而能夠進一步提高氣體阻障性能之情形。重疊而設置 2 層以上的無

機阻障層(a)時，其中只有最接近薄膜(a)者係直接設置在薄膜(a)上。重疊而設置 2 層以上的無機阻障層(a)時，該等合計的厚度係以在前述較佳厚度的範圍內為佳。

【0051】 [3.薄膜(b)]

本發明的複合氣體阻障層積體，係具備具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)。

薄膜(b)係脂環式聚烯烴樹脂薄膜。作為構成薄膜(b)之材料的例子，可舉出作為構成薄膜(a)之材料的例子所舉出者同樣物。因而，薄膜(b)的較佳物性(透明性、在某厚度之熱膨脹率及濕度膨脹率、以及玻璃轉移溫度等)的範圍亦能夠與薄膜(a)的較佳物性範圍同樣地設定。又，作為薄膜(b)的製造方法之較佳例子，可舉出與薄膜(a)的製造方法之較佳例同樣者。

【0052】 薄膜(b)係具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之薄膜。藉由薄膜(b)係具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之薄膜，能夠使在複合氣體阻障層積體之比無機阻障層(a)更靠近薄膜(a)側的厚度區域(以下，有稱為「區域 A」之情形)、與比無機阻障層(a)更靠近薄膜(b)側之包含薄膜(b)及熱熔融層的厚度區域(以下，有稱為「區域 B」之情形)之厚度，成為接近均等的狀態。使用第 1 圖的例子說明時，區域 A 係從薄膜(a)11 之無機阻障層(a)12 側的表面 11D 起至其相反側的表面 11U 為止之區域，且係在第 1 圖以箭號 A 表示的區域。另一方面，區域 B 係從熱熔融層 30 之無機阻障層(a)側的表面 30U 至薄膜(b)21 之與熱熔融層 30 為相反側的表面 21D 為止的區域，且係在第 1 圖以箭號 B 表示的區域。

如此，薄膜(b)係具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之薄膜，藉此，藉由區域 A 及區域 B 的厚度係成爲接近均等的狀態，複合氣體阻障層積體在各式各樣的方向被彎曲時，在無機阻障層(a)能夠減低此種負荷，進而能夠減低無機阻障層產生裂紋且能夠抑制氣體阻障性能低落。又，因爲使區域 A 產生翹曲之應力、與使區域 B 產生翹曲之應力係互相被抵銷，所以能夠穩定地防止複合氣體阻障層積體產生翹曲。

【0053】 薄膜(b)的厚度係以 $5\mu\text{m}$ 以上爲佳，較佳爲 $10\mu\text{m}$ 以上，以 $50\mu\text{m}$ 以下爲佳，較佳爲 $30\mu\text{m}$ 以下。薄膜(b)的厚度係能夠與薄膜(a)的厚度同樣地測定。

【0054】 區域 A 的厚度與區域 B 的厚度之比，係以 1:2~4:1 爲佳，以 2:3~2:1 爲較佳。藉由使區域 A 的厚度與區域 B 的厚度之比在前述範圍內，能夠使以上所敘述之抑制氣體阻障性能低落的效果、及防止翹曲的效果特別良好地顯現。又，熱熔融層係苯乙烯系的熱可塑性彈性體樹脂之層時，特別是在含有苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物氫化物之熱可塑性彈性體樹脂之層時，藉由使區域 A 的厚度與區域 B 的厚度之比在前述範圍內，能夠使以上所敘述之抑制氣體阻障性能低落的效果、及防止翹曲的效果更良好地顯現。

【0055】 而且，薄膜(a)與薄膜(b)的厚度之比，係以 1:1~5:1 爲佳，以 10:9~3:1 爲較佳。藉由使區域 A 的厚度與區域 B 的厚度之比在前述範圍內，能夠使以上所敘述之抑制氣體阻障性能低落的效果、及防止翹曲的效果特別良好地顯現。又，熱熔融層係苯乙烯系的熱可塑性彈性體樹脂之層時、特別是在含

有苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物氫化物之熱可塑性彈性體樹脂之層時，藉由使薄膜(a)的厚度與薄膜(b)的厚度之比在前述範圍內，能夠使以上所敘述之抑制氣體阻障性能低落的效果、及防止翹曲的效果更良好地顯現。

【0056】 作為本發明的複合氣體阻障層積體之較佳態樣，係除了氣體阻障的功能以外，亦能夠具有作為 $1/4\lambda$ 波長板的功能者。在該態樣，作為薄膜(a)及薄膜(b)，係能夠使用具有可顯現作為 $1/4\lambda$ 波長板的功能之面內方向的遲滯值者。亦即，能夠使用在可見光線的波長範圍中心亦即 550nm 之面內方向的遲滯值(以下，有簡稱為「Re」之情形)，係薄膜(a)與薄膜(b)的合計為 115~160nm 者。在該態樣，薄膜(a)與薄膜(b)的 Re 之比沒有特別限定，從製造的容易性、光學設計的容易性等的觀點而言，較佳是薄膜(a)及薄膜(b)之一方的 Re 為能夠作為 $1/4\lambda$ 波長板的功能之值且另一方為接近等向者。具體而言，較佳是薄膜(a)及薄膜(b)之一方的 Re 為 115~160nm 且另一方的 Re(550nm)為 0~25nm。具有此種遲滯值之薄膜(a)及(b)，係例如能夠藉由在薄膜的製造，適當地調節延伸條件來製造。

【0057】 [4.熱熔融層]

本發明的複合氣體阻障層積體係在無機阻障層(a)與薄膜(b)之間，具備使無機阻障層與薄膜(b)貼合之熱熔融層。第 1 圖所顯示的例子，在複合氣體阻障層積體 100 中，氣體阻障層積體(A)10 與薄膜(b)21 係以無機阻障層(a)12 與薄膜(b)21 為相向的方式透過熱熔融層 30 而被加熱壓黏。因為無機阻障層(a)12 的兩側存在含有薄膜(b)21 及熱熔融層 30 之區域 B、及

含有薄膜(a)之區域 A，且該等厚度成爲接近均等的狀態，所以能夠得到抑制氣體阻障性能低落、及防止翹曲的效果。

【0058】 所謂熱熔融層，係藉由加熱使得柔軟性增加且產生大的接著性，藉由加熱壓黏而與其他層接著且冷卻後亦維持其接著力之層，通常係具有此種特性的樹脂之層。

【0059】 通常，熱熔融層係在被施加應力時，能夠按照其應力而變形。因而，例如在將複合氣體阻障層積體 100 折彎之情況或是施加如熱震(heat shock)之情況等，即便在氣體阻障層積體(A)10 或薄膜(b)21 產生應力時，熱熔融層 30 係藉由變形而能夠將其應力吸收。因而，因爲能夠抑制較大的應力集中在無機阻障層(a)12 的一部分，所以能夠防止無機阻障層(a)12 產生龜裂。因此能夠良好地維持複合氣體阻障層積體 100 的氣體阻障性。這是因爲例如將 UV 硬化樹脂使用作爲接著劑而進行接著時，因爲硬化後的 UV 硬化樹脂之硬度爲較高，無法藉由應力而變形，所以相較於無機阻障層(a)容易產生龜裂，係具有優異的效果。

【0060】 又，熱熔融層係通常不含有殘留溶劑或是即便含有，相較於通常的黏著劑，因爲其量少，所以排氣少。因而，因爲熱熔融層係即便在低壓環境下亦不容易產生氣體，複合氣體阻障層積體本身較少成爲氣體的產生源而損害氣體阻障性。這相較於例如使用黏著劑而將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)貼合時，因爲黏著劑係含有溶劑致使排氣量爲變多之情形，乃是具有優異的效果。

【0061】 前述優點，係將複合氣體阻障層積體設置在有機

EL 元件時，特別地有用。例如製造有機 EL 元件時，有使用複合氣體阻障層積體作為基材且在該基材上進行形成有機材料之層的步驟之情形。在此，在形成有機材料之層之步驟，有產生較大的溫度變化，或將基材放置在低壓環境之情形。此時，透過熱熔融層而將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)加熱壓黏時，能夠抑制產生龜裂及排氣而使氣體阻障性維持較高。

【0062】 作為熱熔融層，可舉出苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂、烯烴系熱可塑性彈性體樹脂、氯化乙烯系熱可塑性彈性體樹脂、聚酯系熱可塑性彈性體樹脂、胺甲酸酯系熱可塑性彈性體樹脂等的層。特佳是苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂之層。所謂苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂，係含有苯乙烯系熱可塑性彈性體、及按照必要的他任意成分之樹脂。又，所謂苯乙烯系熱可塑性彈性體，係具有芳香族乙烯系化合物單元作為該分子的構造單元之熱可塑性彈性體。在此，所謂芳香族乙烯系化合物單元，係指具有將苯乙烯等的芳香族乙烯系化合物聚合而形成的構造之構造單元。又，所謂熱可塑性彈性體，係即便不進行硫化處理在室溫亦具有橡膠彈性之聚合物，且在高溫係與通常的熱可塑性樹脂同樣地，能夠使用原有的成形機而成形之聚合物。熱可塑性彈性體係通常在分子中具有：橡膠成分(亦即軟鏈段)，其具有彈性；及分子拘束成分(亦即硬鏈段)，其係用以防止塑性變形。苯乙烯系熱可塑性彈性體係通常具有前述的芳香族乙烯系化合物單元作為硬鏈段。

【0063】 作為苯乙烯系熱可塑性彈性體的較佳例子，可舉出芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物及其氫化物。在

此，所謂芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物，係指由含有芳香族乙烯系化合物單元之聚合物嵌段[A]、及含有鏈狀共軛二烯化合物單元之聚合物嵌段[B]所構成之嵌段共聚物。又，所謂鏈狀共軛二烯化合物單元，係指將鏈狀共軛二烯化合物聚合而形成的構造之構造單元。該等嵌段共聚物及其氫化物係例如亦可以被烷氧基矽烷、羧酸、羧酸酐等改性。尤其是以使用苯乙烯作為芳香族乙烯系化合物之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物(以下，有適當地稱為「苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物」之情形)及其氫化物為佳，以苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物為特佳。以下，具體地說明芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物及其氫化物。

【0064】 如前述，聚合物嵌段[A]係含有芳香族乙烯系化合物單元。作為對應該芳香族乙烯系化合物單元之芳香族乙烯系化合物，例如可舉出苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、2-甲基苯乙烯、3-甲基苯乙烯、4-甲基苯乙烯、2,4-二異丙基苯乙烯、2,4-二甲基苯乙烯、4-第三丁基苯乙烯、5-第三丁基-2-甲基苯乙烯、4-一氯苯乙烯、二氯苯乙烯、4-一氟苯乙烯、4-苯基苯乙烯等。該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。尤其是就吸濕性方面而言，以不有極性基者為佳。而且，從工業上取得容易性及耐衝擊性的觀點而言，以苯乙烯為特佳。

【0065】 在聚合物嵌段[A]中，芳香族乙烯系化合物單元通常成為主成分。具體而言，在聚合物嵌段[A]中之芳香族乙烯系化合物單元的含有率，通常為 90 重量%以上，以 95 重量%

以上為佳，較佳為 99 重量%以上。在聚合物嵌段[A]，藉由使芳香族乙烯系化合物單元的量如前述地增多，能夠提高複合氣體阻障層積體的耐熱性。

【0066】 又，聚合物嵌段[A]亦可含有芳香族乙烯系化合物單元以外的成分。作為芳香族乙烯系化合物單元以外的成分，例如可舉出鏈狀共軛二烯化合物單元、具有將芳香族乙烯系化合物以外的乙烯系化合物聚合而形成的構造之構造單元等。

【0067】 作為對應鏈狀共軛二烯化合物單元之鏈狀共軛二烯化合物，例如可舉出 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。該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。尤其是就吸濕性方面而言，以不含有極性基者為佳，具體而言，係以 1,3-丁二烯、異戊二烯為特佳。

【0068】 作為芳香族乙烯系化合物以外的乙烯系化合物，例如，可舉出鏈狀乙烯系化合物；環狀乙烯系化合物；具有腈基、烷氧基羰基、羥羰基、或鹵基之乙烯系化合物；不飽和的環狀酸酐；不飽和醯亞胺化合物等。舉出較佳的例子時，就吸濕性方面而言，係以乙烯、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-庚烯等的鏈狀烯烴；乙烯基環己烷等的環狀烯烴等不含有極性基者為佳。尤其是以鏈狀烯烴為較佳，以乙烯、丙烯為特佳。又，該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。

【0069】 在聚合物嵌段[A]之芳香族乙烯系化合物單元以外

的成分之含有率，係通常為 10 重量%以下，以 5 重量%以下為佳，較佳為 1 重量%以下。

【0070】 在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物之聚合物嵌段[A]的數目，係通常為 2 個以上，通常為 5 個以下，以 4 個以下為佳，較佳為 3 個以下。複數個聚合物嵌段[A]係可互相相同，亦可不同。

【0071】 如前述，聚合物嵌段[B]係含有鏈狀共軛二烯化合物單元。作為該鏈狀共軛二烯化合物單元，例如同樣地可舉出作為可以在聚合物嵌段[A]含有者所例示之物。

【0072】 在聚合物嵌段[B]，鏈狀共軛二烯化合物單元係通常當作主成分。具體而言，在聚合物嵌段[B]之鏈狀共軛二烯化合物單元的含有率係通常為 90 重量%以上，以 95 重量%以上為佳，較佳為 99 重量%以上。在聚合物嵌段[B]，藉由使鏈狀共軛二烯化合物單元的量如前述地增多，能夠使複合氣體阻障層積體在低溫的耐衝擊性提升。

【0073】 又，聚合物嵌段[B]，亦可含有鏈狀共軛二烯化合物單元以外的成分。作為鏈狀共軛二烯化合物單元以外的成分，例如，可舉出芳香族乙烯系化合物單元、以及將芳香族乙烯系化合物以外的乙烯系化合物聚合而形成的構造之構造單元等。具有將該等芳香族乙烯系化合物單元、以及芳香族乙烯系化合物以外的乙烯系化合物聚合而形成的構造之構造單元，例如同樣地可舉出作為可以在聚合物嵌段[A]含有者所例示之物。

【0074】 在聚合物嵌段[B]之鏈狀共軛二烯化合物單元以外

的成分之含有率，係通常為 10 重量%以下，以 5 重量%以下為佳，較佳為 1 重量%以下。特別是藉由使在聚合物嵌段[B]之芳香族乙烯系化合物單元的含有率低，能夠使熱熔融層在低溫的柔軟性提升且能夠使複合氣體阻障層積體在低溫的耐衝擊性提升。

【0075】 在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物之聚合物嵌段[B]的數目，係通常為 1 個以上，亦可為 2 個以上。在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物之聚合物嵌段[B]的數目為 2 個以上時，聚合物嵌段[B]係可以互相相同，亦可以不同。

【0076】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的嵌段形態，可為鏈狀型嵌段，亦可為放射型嵌段。尤其是鏈狀型嵌段具有優異的機械強度，乃是較佳。芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的特佳形態，係聚合物嵌段[A]鍵結在聚合物嵌段[B]的兩端而成之三嵌段共聚物；及聚合物嵌段[B]鍵結在聚合物嵌段[A]的兩端，而且在該兩聚合物嵌段[B]的另外一端係各自鍵結有聚合物嵌段[A]之五嵌段共聚物。

【0077】 在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物，將總聚合物嵌段[A]在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物全體所佔有的重量分率設作 w_A ，將總聚合物嵌段[B]在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物全體所佔有的重量分率設作 w_B 。此時， w_A 與 w_B 之比(w_A/w_B)，係以 20/80 以上為佳，較佳為 35/65 以上，特佳為 40/60 以上，以 80/20 以下為佳，較佳為 65/35 以下，特佳為 60/40 以下。藉由使 w_A/w_B 成

為前述範圍的下限值以上，能夠使複合氣體阻障層積體的耐熱性提升。又，藉由成為上限值以下，能夠提高熱熔融層的柔軟性而使複合氣體阻障層積體 100 的氣體阻障性穩定地維持良好。

【0078】 聚合物嵌段[A]或聚合物嵌段[B]係存在複數個時，將在聚合物嵌段[A]之中，重量平均分子量為最大的聚合物嵌段及最少的聚合物嵌段之重量平均分子量各自設作 $M_w(A1)$ 及 $M_w(A2)$ ，以及在將聚合物嵌段[B]之中，重量平均分子量為最大的聚合物嵌段及最少的聚合物嵌段之重量平均分子量各自設為 $M_w(B1)$ 及 $M_w(B2)$ 。此時， $M_w(A1)$ 與 $M_w(A2)$ 之比「 $M_w(A1)/M_w(A2)$ 」、及 $M_w(B1)$ 與 $M_w(B2)$ 之比「 $M_w(B1)/M_w(B2)$ 」，係各自以 2.0 以下為佳，較佳為 1.5 以下，特佳為 1.2 以下。藉此，能夠將各種物性值的偏差抑制變小。

【0079】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的分子量，係藉由以四氫呋喃(THF)作為溶劑之 GPC 所測定之聚苯乙烯換算的重量平均分子量(M_w)，通常為 30,000 以上，以 40,000 以上為佳，較佳為 50,000 以上，通常 200,000 以下，以 150,000 以下為佳，較佳為 100,000 以下。又，芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的分子量分布(M_w/M_n)係以 3 以下為佳，較佳為 2 以下，特佳為 1.5 以下。

【0080】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的製造方法，例如製造具有 3 個聚合物嵌段之嵌段共聚物時，係有具有以下的步驟之方法：第 1 步驟，其係使含有芳香族乙烯系化合物作為形成聚合物嵌段[A]的單體成分之單體混合物(a1)進

行聚合；第 2 步驟，其係使含有鏈狀共軛二烯化合物作為形成聚合物嵌段[B]的單體成分之單體混合物(b1)進行聚合；及第 3 步驟，其係使含有芳香族乙烯系化合物作為形成聚合物嵌段[A]的單體成分之單體混合物(a2)(但是單體混合物(a1)與單體混合物(a2)係可以相同亦可以不同)進行聚合；及具有以下之步驟之方法：第 1 步驟，其係使含有芳香族乙烯系化合物作為形成聚合物嵌段[A]的單體成分之單體混合物(a1)進行聚合；第 2 步驟，其係使含有鏈狀共軛二烯化合物作為形成聚合物嵌段[B]的單體成分之單體混合物(b1)進行聚合；及使用偶合劑使聚合物嵌段[B]的末端之間進行偶合之方法等。

【0081】 作為將上述單體混合物聚合而得到各自的聚合物嵌段之方法，例如，能夠使用自由基聚合、陰離子聚合、陽離子聚合、配位陰離子聚合、配位陽離子聚合等。從使聚合操作及後步驟之氫化反應容易化之觀點，以藉由活性聚合來進行自由基聚合、陰離子聚合、陽離子聚合等之方法為佳，以藉由活性陰離子聚合來進行之方法為特佳。

【0082】 前述的單體混合物之聚合，係在聚合起始劑的存在下，通常係在 0℃ 以上，以 10℃ 以上為佳，較佳為 20℃ 以上，又，通常為 100℃ 以下，以 80℃ 以下為佳，較佳為 70℃ 以下的溫度範圍進行。

活性陰離子聚合時，作為聚合起始劑，例如能夠使用正丁基鋰、第二丁基鋰、第三丁基鋰、己基鋰等的單有機鋰；二鋰化甲烷、1,4-二鋰化丁烷、1,4-二鋰化-2-乙基環己烷等的多官能性有機鋰化合物等。又，該等係可單獨使用 1 種類，亦可以

任意比率組合 2 種類以上而使用。

【0083】 聚合反應的形態，係溶液聚合、漿料聚合等的任一種均無妨。尤其是使用溶液聚合時，反應熱容易除去。

進行溶液聚合時，作為溶劑，能夠使用在各步驟所得到的聚合物能夠溶解之惰性溶劑。作為惰性溶劑，例如可舉出正戊烷、異戊烷、正己烷、正庚烷、異辛烷等的脂肪族烴類；環戊烷、環己烷。甲基環戊烷、甲基環己烷、十氫萘等的脂環式烴類；苯、甲苯等的芳香族烴類等。該等可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。尤其是將脂環式烴類使用作為溶劑時，在氫化反應亦能夠直接使用作為惰性溶劑且芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的溶解性亦良好，乃是較佳。相對於總使用單體 100 重量份，溶劑的使用量係通常為 200 重量份~2000 重量份。

【0084】 各自的單體混合物係含有 2 種以上的單體時，為了防止只有某一成分的鏈變長，例如亦可使用無規化劑 (randomizer)。特別是藉由陰離子聚合來進行聚合反應時，以使用例如路易斯鹼化合物等作為無規化劑為佳。作為路易斯鹼化合物，例如可舉出二甲醚、二乙醚、二異丙醚、二丁醚、四氫呋喃、二苯基醚、乙二醇二乙醚、乙二醇甲基苯基醚等的醚化合物；四甲基乙二胺、三甲胺、三乙胺、吡啶等的第 3 級胺化合物；鉀-第三戊基氧化物、鉀-第三丁基氧化物等的鹼金屬烷氧化物化合物；三苯基磷等的磷化合物等。該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。

【0085】 前述的芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚

物，係以進行氫化而使用為佳。藉由將芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物使用作為構成熱熔融層之樹脂，能夠使從熱熔融層的排氣產生量更小。

【0086】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物，係將芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的主鏈及側鏈的碳-碳不飽和鍵、以及芳香環的碳-碳不飽和鍵氫化而成者。其氫化率係通常為 90%以上，以 97%以上為佳，較佳為 99%以上。氫化率越高，能夠使熱熔融層的耐熱性及耐光性成為越良好。在此，氫化物的氫化率係能夠藉由使用 $^1\text{H-NMR}$ 測定來求取。

【0087】 特別是主鏈及側鏈的碳-碳不飽和鍵之氫化率，係以 95%以上為佳，較佳為 99%以上。藉由提高主鏈及側鏈的碳-碳不飽和鍵之氫化率，能夠使熱熔融層的耐光性及耐氧化性進一步提高。

又，芳香環的碳-碳不飽和鍵之氫化率，係以 90%以上為佳，較佳為 93%以上，特佳為 95%以上。藉由提高芳香環的碳-碳不飽和鍵之氫化率，因為將聚合物嵌段[A]氫化而得到的聚合物嵌段之玻璃轉移溫度變高，所以能夠有效地提高複合氣體阻障層積體的耐熱性。

【0088】 具體的氫化方法，只要能夠得到所需要的氫化物，就沒有限制，以能夠提高氫化率且嵌段共聚物的鏈切斷反應較少的氫化方法為佳。作為此種較佳氫化方法，例如可舉出使用含有選自由鎳、鈷、鐵、鈦、銻、鈮、鉑、鈳、釷所組成群組的至少 1 種金屬之氫化觸媒而進行之方法。氫化觸媒係不

均勻系觸媒、均勻系觸媒的任一種均能夠使用。又，氫化反應係以在有機溶劑中進行為佳。

【0089】 不均勻系觸媒，例如可直接使用金屬或金屬化合物，亦可負載在適當的載體而使用。作為載體，例如可舉出活性碳。氧化矽、氧化鋁、碳酸鈣、氧化鈦、氧化鎂、氧化鋯、矽藻土、碳化矽、氟化鈣等。相對於觸媒及載體的合計量，觸媒的負載量通常為 0.1 重量%以上，較佳為 1 重量%以上，通常為 60 重量%以下，較佳為 50 重量%以下。又，負載型觸媒的比表面積較佳為 $100\text{m}^2/\text{g}\sim 500\text{m}^2/\text{g}$ 。而且，負載型觸媒的平均細孔徑，係以 100\AA 以上為佳，較佳為 200\AA 以上，以 1000\AA 以下為佳，較佳為 500\AA 以下。在此，比表面積係能夠測定氮吸附量且使用 BET 式而求取。又，平均細孔徑係能夠藉由水銀壓入法來測定。

【0090】 作為均勻系觸媒，例如能夠使用將鎳、鈷、鈦或鐵的化合物與有機金屬化合物組合而成之觸媒；銻、鈮、鉑、鈱、銻等的有機金屬錯合物觸媒等。

作為鎳、鈷、鈦或鐵的化合物，例如可舉出各金屬的乙醯丙酮鹽化合物、羧酸鹽、環戊二烯基化合物等。

又，作為有機金屬化合物，例如可舉出三乙基鋁、三異丁基鋁等的烷基鋁、氯化二乙基鋁、二氯化乙基鋁等的鹵化鋁、氫化二異丁基鋁等的氫化烷基鋁等的有機鋁化合物；以及有機鋰化合物等。

作為有機金屬錯合物觸媒，例如可舉出二氫化-肆(三苯基膦)鈱、二氫化-肆(三苯基膦)鐵、雙(環辛二烯)鎳、雙(環戊二

烯基)鎳等的過渡金屬錯合物。

【0091】 該等氫化觸媒係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。

相對於芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物 100 重量份，氫化觸的使用量係通常為 0.01 重量份以上，以 0.05 重量份以上為佳，較佳為 0.1 重量份以上，通常為 100 重量份以下，以 50 重量份以下為佳，較佳為 30 重量份以下。

【0092】 氫化反應的溫度，係通常為 10°C 以上，以 50°C 以上為佳，較佳為 80°C 以上，通常 250°C 以下，以 200°C 以下為佳，較佳為 180°C 以下時，氫化率變高且分子切斷亦減少。又，氫化反應時的氫壓力，係通常為 0.1MPa 以上，以 1MPa 以上為佳，較佳為 2MPa 以上，通常 30MPa 以下，以 20MPa 以下為佳，較佳為 10MPa 以下時，氫化率變高且分子鏈切斷亦減少而且操作性亦優異。

【0093】 使用上述方法而得到之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物，係例如使用濾過、離心分離等的方法將氫化觸媒及聚合觸媒從含有氫化物的反應溶液除去之後，從反應溶液回收。作為從反應溶液將氫化物回收之方法，例如，可舉出從溶解有氫化物之溶液藉由汽提法將溶劑除去之蒸汽凝固法；在減壓加熱下將溶劑除去之直接脫溶劑法；將溶液注入至氫化物的弱溶劑中而使其析出及凝固之凝固法等。

【0094】 被回收之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的形態係不被限定，通常係製成丸粒形狀而使其容易提供至隨後的成形加工或改性反應。使用直接脫溶劑法將氫

化物從反應溶液回收時，例如，可以將熔融狀態之氫化物從擠壓模擠出成爲股線狀且冷卻後，使用製粒機切割且成爲丸粒狀而提供至各種的成形。又，使用凝固法時，係例如將所得到的凝固物乾燥之後，從擠製機以熔融狀態擠出且與上述同樣地製成丸粒狀而提供至各種的成形或改性反應。

【0095】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的分子量，係使用以四氫呋喃作爲溶劑之凝膠滲透層析法(GPC)所測定之聚苯乙烯換算的重量平均分子量(Mw)，通常爲30,000以上，以40,000以上爲佳，較佳爲45,000以上，通常爲200,000以下，以150,000以下爲佳，較佳爲100,000以下。又，芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的分子量分布(Mw/Mn)，係以3以下爲佳，較佳爲2以下，特佳爲1.5以下。藉由使氫化物的分子量及分子量分布落入前述的範圍，能夠使複合氣體阻障層積體的機械強度及耐熱性提升。

【0096】 芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物，係能夠設作具有烷氧基矽烷基者。此種具有烷氧基矽烷基之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物，係能夠藉由嵌段共聚物的氫化反應之後，對反應生成物按照必要而進行使用烷氧基矽烷改性之操作，而導入烷氧基矽烷基來製造。

烷氧基矽烷基係可以直接鍵結在上述芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物，亦可透過伸烷基等2價的有機基而鍵結。作爲導入烷氧基矽烷基的方法，通常係能夠採用使上述的芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化

物與乙烯性不飽和矽烷化合物，在過氧化物的存在下反應之方法。烷氧基矽烷基的導入量太多時，係產生被微量的水分等分解後的烷氧基矽烷基之間的交聯度變高且與封裝對象的接著性變為容易低落之問題。從該觀點而言，將具有烷氧基矽烷基之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物使用作為芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物時，相對於導入此種基之前的芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物之重量，烷氧基矽烷基的導入量係通常為 0.1~10g/100g、以 0.2~5g/100g 為佳，較佳為 0.3~3g/100g。烷氧基矽烷基的導入量係能夠藉由 $^1\text{H-NMR}$ 光譜(導入量較少時係增加累計次數)而算出。

【0097】 作為乙烯性不飽和矽烷化合物，沒有特別限定，能夠適當地選擇可與上述的芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物接枝聚合，而能夠在芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物導入烷氧基矽烷基者。作為乙烯性不飽和矽烷化合物的例子，能夠舉出選自乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、二甲氧基甲基乙烯基矽烷、二乙氧基甲基乙烯基矽烷、對苯乙烯基三甲氧基矽烷、對苯乙烯基三乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷、及 2-降冰片烯-5-基三甲氧基矽烷等的乙烯性不飽和矽烷化合物之至少 1 種類。

在本發明，尤其是乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、烯丙基三甲氧基矽烷、烯丙基三乙氧基矽烷、二甲氧基甲基乙烯基矽烷、二乙氧基甲基乙烯基矽烷、對苯乙烯基三甲氧基矽烷係能夠適合使用。

【0098】 該等乙烯性不飽和矽烷化合物係可單獨使用 1 種類，亦可以組合 2 種以上而使用。相對於芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物 100 重量份，乙烯性不飽和矽烷化合物的使用量係通常為 0.1~10 重量份，以 0.2~5 重量份為佳，較佳為 0.3~3 重量份。

【0099】 作為過氧化物，例如能夠使用選自過氧化二苯甲醯、過氧化乙酸第三丁酯、2,2-二-(過氧化第三丁基)丁基、過氧化苯甲酸第三丁酯、過氧化第三丁基異丙苯、過氧化二異丙苯、過氧化二-第三己基、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧化己烷)、過氧化二-第三丁基、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧化)己烷-3、第三丁基過氧化氫、過氧化丁酸第三丁酯、過氧化月桂醯、過氧化二丙醯、對薄荷烷過氧化氫等的有機過氧化物之 1 種類以上。在本發明，尤其是 1 分鐘半衰期溫度為 170~190 °C 者係能夠適合使用，例如，過氧化第三丁基異丙苯、過氧化二異丙苯、過氧化二-第三己基、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧化己烷)、過氧化二-第三丁基等係能夠適合使用。

【0100】 該等過氧化物可單獨使用 1 種類，亦可以組合 2 種以上而使用。相對於芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物 100 重量份，过氧化物的使用量係通常為 0.01~5 重量份，以 0.2~3 重量份為佳，較佳為 0.3~2 重量份。

【0101】 將上述的芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物與乙烯性不飽和矽烷化合物在過氧化物的存在下使其反應之方法，係能夠使用過熱混煉機和反應器而進行。例如，能夠藉由將芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物、乙烯性不飽和矽烷化合物及過氧化物之混合物，使用雙軸混煉機且在嵌段共聚物的熔融溫度以上使其加熱熔融而混煉所需要的時間來進行改性。在本發明的嵌段共聚物，該溫度係通常為 180~240℃，以 190~230℃ 為佳，較佳為 200~220℃。加熱混煉時間係通常為 0.1~15 分鐘，以 0.2~10 分鐘為佳，較佳為 0.3~5 分鐘左右。使用雙軸混煉機、短軸擠製機等的連續混煉設備時，能使滯留時間成為上述範圍而連續地進一步行混煉、擠製。

【0102】 因為被導入的烷氧基矽烷基之量為較少，所以具有烷氧基矽烷基之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的分子量，係從烷氧基矽烷基導入前之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的分子量變化不大。但是因為係在過氧化物的存在下使其改性反應，所以亦同時產生聚合物的交聯反應、切斷反應，致使分子量分布變大。具有烷氧基矽烷基之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物的氫化物的分子量，係藉由以四氫呋喃作為溶劑之凝膠滲透層析法(GPC)所測定之聚苯乙烯換算的重量平均分子量(Mw)，通常為(30,000~200,000)、以(40,000~150,000)為佳，較佳為(50,000~120,000)，分子量分布(Mw/Mn)係通常為 3.5 以下，較佳為 2.5 以下，特佳為 2.0 以下。Mw 及 Mw/Mn 為該範圍時，

能夠維持本發明的複合氣體阻障層積體之良好的機械強度和拉伸伸長率。在本申請，分子量例如能夠在以下的 GPC 之測定條件下測定。作為藉由 GPC 測定重量平均分子量時之管柱，係使用 TSKgroundColumn Super H-H、TSKgel Super H5000、TSKgel Super H4000、或 TSKgel Super H2000(任一者均是 TOSOH 股份公司製)，測定時的管柱恆溫槽溫度能夠設為 40 °C。如上進行而得到的改性聚合物，係已改善與其他層且能夠提升本發明的複合氣體阻障層積體的強度。

【0103】 作為苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂能夠含有的任意成分，例如可舉出用以提升耐候性、耐熱性等之光安定劑、紫外線吸收劑、抗氧化劑、滑劑、無機填料等。又，該等係可單獨使用 1 種類，亦可以任意比率組合 2 種類以上而使用。

【0104】 作為光安定劑，係以受阻胺系光安定劑為佳，在構造中，例如以具有 3,5-二-第三丁基-4-羥苯基、2,2,6,6-四甲基哌啶基、或、1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基等之化合物為特佳。

【0105】 作為光安定劑的具體例，可舉出 1,2,3,4-丁烷四羧酸與 1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶醇與 3,9-雙(2-羥基-1,1-二甲基乙基)-2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷之混合酯化物、1,6-己二胺-N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)與嗎啉-2,4,6-三氯-1,3,5-三嗪之聚縮合物、1-[2-[3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙醯氧基]乙基]-4-[3-3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙醯氧基]-2,2,6,6-四甲基哌啶、2-(3,5-二-第三丁基-4-羥苄基)-2-正丁基丙二酸-雙-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)、2-(3,5-二-第三丁基-4-羥苄基)-2-正丁基丙二酸-雙-(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)、

4-(3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙醯氧基)-1-(2-(3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙醯氧基)乙基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(1-苄基-2-苯乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2-(4-嗎啉基)乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2-(4-嗎啉基)乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2-(4-嗎啉基)乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2-(4-嗎啉基)乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2-二異丙基胺基)乙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(2,4,6-三甲基苄基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(3-(2-乙基己氧基)丙基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(3,4-(亞甲基二氧基)苄基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-(雙環[2.2.1]庚基)-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-1,2,2-三甲基丙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-1,3-二甲基丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-1-苄基乙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-2,2-二甲基丙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-2-乙基己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-2-乙基己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-3-甲基丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-4-羥丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-4-羥丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-4-羥丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-異丙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-異丙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-第三丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-異丙基苄基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-乙氧基乙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、
4-(N-乙氧基丙基-N-

甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-十八基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-辛基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-辛基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-環苳基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-二乙胺基乙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-環十二基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-環己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基羰基哌啶、4-(N-環己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基吡啶、4-(N-環己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基吡啶、4-(N-環戊基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-環戊基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-二甲胺基丙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-癸基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-癸基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-十二基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-吡啶基甲基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-苳乙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基吡啶、4-(N-苳乙基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基吡啶、4-(N-丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-丁基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-氟苳基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-戊基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(N-戊基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(N-甲基環己基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基吡啶、4-(N-甲苳基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-

四甲基哌啶、4-(N-甲氧基苄基-N-甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、4-(甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基-N-甲基哌啶、4-(甲醯基胺基)-2,2,6,6-四甲基哌啶、

【0106】 4-[N-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N-甲醯基胺基]-2,2,6,6-四甲基-N-甲基吡啶、4-[N-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N-甲醯基胺基]-2,2,6,6-四甲基吡啶、N,N',N'',N'''-肆-(4,6-雙(丁基-(N-甲基-2,2,6,6-四甲基哌啶-4-基)胺基)-三嗪-2-基)-4,7-二氮雜癸烷-1,10-胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-N-甲基哌啶基)-N,N'-二甲醯基-1,4-苯二甲胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-N-甲基哌啶基)-N,N'-二甲醯基-丙二胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-N-甲基哌啶基)-N,N'-二甲醯基-己二胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-N-甲基哌啶基)-N,N'-二甲醯基-乙二胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基-1,4-苯二甲胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基-乙二胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基-丙二胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基-己二胺、

【0107】 N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基丙烯醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基花生醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基當歸醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十一醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十一碳烯醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基油醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基鱈油醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲

基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基辛醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基癸醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基己醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基巴豆醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基香茅醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基硬脂醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基鯊魚醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十三醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十七醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基棕櫚醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基布瑞茲酸(brenzterebic acid)醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基丙醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基庚醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基蘿醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基壬醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十五醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基十七醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基肉豆蔻醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基月桂醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基烏藥醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基戊酸醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基乙醯胺、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基抹香醯胺、N,N'-雙

(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙六亞甲基醯醯胺、

【0108】 琥珀酸二甲酯與 4-羥基-2,2,6,6-四甲基-1-哌啶乙醇之聚合物、二丁胺與 1,3,5-三嗪與 N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)丁胺之聚縮合物、雙(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-2-(3,5-二-第三丁基-4-羥苄基)-2-正丁基丙二酸酯、雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、聚[(6-嗎啉-5-三嗪-2,4-二基)[(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基]-六亞甲基[(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基]、聚[(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三嗪-2,4-二基]{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}]、聚[{6-(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三嗪-2,4-二基}{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}]、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-1,6-己二胺與 2,4,6-三氯-1,3,5-三嗪之聚合物與 N-丁基-1-丁胺與 N-丁基-2,2,6,6-四甲基-4-哌啶胺之反應生成物等。

【0109】 該等之中，就具有優異的耐候性而言，係以 N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-N-甲基哌啶基)-N,N'-二甲醯基-伸烷基二胺類、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基伸烷基二胺類、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-雙伸烷基脂肪醯胺類、聚[{6-(1,1,3,3-四甲基丁基)胺基-1,3,5-三嗪-2,4-二基}{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}六亞甲基{(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)亞胺基}]為佳，以 N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-N,N'-二甲醯基伸烷基二胺類、N,N'-雙(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-1,6-己二胺與 2,4,6-三氯-1,3,5-三嗪之聚合物與 N-

丁基-1-丁胺與 N-丁基-2,2,6,6-四甲基-4-哌啶胺之反應生成物為特佳。

【0110】 相對於苯乙烯系熱可塑性彈性體 100 重量份，光安定劑的量通常為 0.01 重量份以上，以 0.02 重量份以上為佳，較佳為 0.03 重量份以上，通常 5 重量份以下，以 2 重量份以下，以 1 重量份以下為佳。藉由使光安定劑的量成為前述範圍的下限值以上，能夠提高耐優性。又，藉由成為上限值以下，在將苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂成形成為薄膜狀之熔融成形加工時，能夠防止污染擠製機的 T 型模具和冷卻輥且能夠提高加工性。

【0111】 作為紫外線吸收劑，例如，可舉出二苯基酮系紫外線吸收劑、柳酸系紫外線吸收劑、苯并三唑系紫外線吸收劑等。

作為二苯基酮系紫外線吸收劑，例如，可舉出 2,4-二羥基二苯基酮、2-羥基-4-甲氧基二苯基酮、2-羥基-4-甲氧基二苯基酮-5-磺酸三水合物、2-羥基-4-辛氧基二苯基酮、4-十二烷氧基-2-羥基二苯基酮、4-苄氧基-2-羥基二苯基酮、2,2',4,4'-四羥基二苯基酮、2,2'-二羥基-4,4'-二甲氧基二苯基酮等。

【0112】 又，作為柳酸系紫外線吸收劑，例如，可舉出柳酸苯酯、2-羥基苯甲酸 4-第三丁基苯酯、2-羥基苯甲酸苯酯、3,5-二-第三丁基-4-羥基苯甲酸 2,4-二-第三丁基苯酯、3,5-二-第三丁基-4-羥基苯甲酸 2,4-二-第三丁基苯酯十六酯等。

【0113】 又，作為苯并三唑系紫外線吸收劑，例如，可舉出 2-(2-羥基-5-甲基苯基)2H-苯并三唑、2-(3-第三丁基-2-羥基

-5-甲基苯基)-5-氯-2H-苯并三唑、2-(3,5-二-第三丁基-2-羥苯基)-5-氯-2H-苯并三唑、2-(3,5-二-第三丁基-2-羥苯基)-2H-苯并三唑、5-氯-2-(3,5-二-第三丁基-2-羥苯基)-2H-苯并三唑、2-(3,5-二-第三戊基-2-羥苯基)-2H-苯并三唑、2-(2-羥基-5-第三辛基苯基)-2H-苯并三唑、2-(2-羥基-4-辛基苯基)-2H-苯并三唑、2-(2H-苯并三唑-2-基)-4-甲基-6-(3,4,5,6-四氫酞基甲基)苯酚、2,2'-亞甲雙[4-(1,1,3,3-四甲基丁基)-6-[(2H-苯并三唑-2-基)苯酚]]等。

【0114】 相對於苯乙烯系熱可塑性彈性體 100 重量份，紫外線吸收劑的量，通常為 0.01 重量份以上，以 0.02 重量份以上為佳，較佳為 0.04 重量份以上，通常為 1 重量份以下，以 0.5 重量份以下為佳，較佳為 0.3 重量份以下。藉由使用前述範圍的下限值以上的紫外線吸收劑，能夠改善耐光性，但是即便大於上限而過剩地使用，亦難以進一步改善。

【0115】 作為抗氧化劑，例如可舉出磷系抗氧化劑、酚系抗氧化劑、硫系抗氧化劑等，以著色較少的磷系抗氧化劑為佳。

作為磷系抗氧化劑，例如能夠舉出亞磷酸三苯酯、亞磷酸二苯基異癸酯、亞磷酸苯基二異癸酯、亞磷酸參(壬基苯基)酯、亞磷酸參(二壬基苯基)酯、亞磷酸參(2,4-二-第三丁基苯基)酯、10-(3,5-二-第三丁基-4-羥苄基)-9,10-二氫-9-氧雜-10-磷雜菲-10-氧化物等的單亞磷酸酯系化合物；4,4'-亞丁基-雙(3-甲基-6-第三丁基苯基-二-十三亞磷酸酯)、4,4'-異亞丙基-雙(苯基-二-烷基(C₁₂~C₁₅)亞磷酸酯)等的二亞磷酸酯系化合物；6-[3-(3-第三丁基-4-羥基-5-甲基苯基)丙氧基]-2,4,8,10-肆-第

三丁基二苯并[d,f][1.3.2]二氧雜磷品、6-[3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙氧基]-2,4,8,10-肆-第三丁基二苯并[d,f][1.3.2]二氧雜磷品等的化合物。

【0116】 作為酚系抗氧化劑，例如能夠舉出新戊四醇·肆[3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯]、2,2-硫基-二伸乙雙[3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯]、十八基-3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯、3,9-雙{2-[3-(3-第三丁基-4-羥基-5-甲基苯基)丙醯氧基]-1,1-二甲基乙基}-2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-參(3,5-二-第三丁基-4-羥苺基)苯等化合物。

【0117】 作為硫系抗氧化劑，例如能夠舉出 3,3'-硫代二丙酸二月桂酯、3,3'-硫代二丙酸二肉豆蔻酯、3,3'-硫代二丙酸二硬脂酸酯、3,3'-硫代二丙酸月桂基硬脂酸酯、新戊四醇-肆-(β-月桂基-硫代-丙酸酯)、3,9-雙(2-十二基硫乙基)-2,4,8,10-四氧雜螺[5,5]十一烷等等化合物。

【0118】 相對於苯乙烯系熱可塑性彈性體 100 重量份，抗氧化劑的量通常為 0.01 重量份以上，以 0.05 重量份以上為佳，較佳為 0.1 重量份以上，通常為 1 重量份以下，以 0.5 重量份以下為佳，較佳為 0.3 重量份以下。藉由使用前述範圍的下限值以上的抗氧化劑，能夠改善熱安定性，但是即便大於上限而過剩地使用，亦難以進一步改善。

【0119】 將苯乙烯系熱可塑性彈性體與前述任意成分混合之方法，例如可舉出將任意成分溶解於適當的溶劑且與苯乙烯系熱可塑性彈性體的溶液混合之後，除去溶劑而將含有任意成

分之苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂回收之方法；及使用例如雙軸混煉機、輥機、布拉本德混合機(Brabender mixer)、擠製機等使苯乙烯系熱可塑性彈性體成爲熔融狀態而將任意成分混煉之方法等。

【0120】 苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂未必限定是具有高透明性者。但是，從能夠將複合氣體阻障層積體使用在有機EL 元件之被要求透射光線的部分作爲有用物的觀點而言，苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂係以具有高透明性者爲佳。例如，使苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂成爲厚度 1mm 的試片而測得的總光線透射率，通常爲 70%以上，以 80%以上爲佳，較佳是以 90%以上者爲佳。

【0121】 熱熔融層的厚度係以 $3\mu\text{m}$ 以上爲佳，較佳爲 $5\mu\text{m}$ 以上，特佳爲 $10\mu\text{m}$ 以上，以 $150\mu\text{m}$ 以下爲佳，較佳爲 $100\mu\text{m}$ 以下，特佳爲 $50\mu\text{m}$ 以下。藉由使熱熔融層的厚度成爲前述範圍的下限值以上，能夠使用擠製成形法來製造熱熔融樹脂的薄膜的製造。又，只要是該程度的厚度，即便小異物混入熱熔融層，亦能夠防止該異物所致之熱熔融層厚度成爲不均勻。又，藉由成爲上限值以下，能夠抑制貼合後的撓曲(deflection)而能夠形成均勻的複合氣體阻障層積體，又，能夠使複合氣體阻障層積體的厚度薄化。

【0122】 相較於構成薄膜(a)及薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度，熱熔融層的玻璃轉移溫度，亦即構成熱熔融層之熱熔融樹脂的玻璃轉移溫度係較低。具體而言，將構成熱熔融層之熱熔融樹脂的玻璃轉移溫度設作 T_gA ，將構成薄膜

(a)及薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度設作 T_{gB} 時， $T_{gB}-T_{gA}$ 係 25°C 以上，較佳為 40°C 以上。 $T_{gB}-T_{gA}$ 之值的上限係沒有特別限定，例如能夠設為 120°C 以下。薄膜(a)及薄膜(b)的玻璃轉移溫度(T_g)係能夠使用差示掃描熱量分析儀(Differential scanning calorimetry; DSC)來測定。又，熱熔融層的玻璃轉移溫度係能夠使用 Rhemetric Sciectific F E 公司製黏彈性測定裝置 ARES-2KFRTN1E-FCO-SG- STD 且基於 JIS K7121 而測定。含有嵌段共聚物作為熱熔融樹脂時，該樹脂係有能夠得到複數個玻璃轉移溫度之情形。此時，將樹脂的最高玻璃轉移溫度設作 T_{gA} 時，以滿足前述較佳條件為佳。又，構成薄膜(a)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度、與構成薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度為不同時，該等之中，將較低的玻璃轉移溫度設作 T_{gB} 時，以滿足前述較佳條件為佳。藉由熱熔融樹脂的玻璃轉移溫度、及構成薄膜(a)及薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度係滿足前述較佳條件，在製造複合氣體阻障層積體之加熱壓黏的步驟，能夠容易地減低薄膜(a)及薄膜(b)的光學的特性(R_e 等)產生變動且能夠容易地製造高品質的複合氣體阻障層積體。

【0123】 熱熔融層係以長條薄膜的方式準備且能夠使用該薄膜而進行製造複合氣體阻障層積體。熱熔融樹脂的薄膜之製造方法係沒有特別限制，例如可使用熔融成形法、溶液流接近的任一種。熔融成形法係能夠更詳細地分類成為擠製成形法、例如壓製成形法、吹塑成形法、射出成形法、吹氣成形法、延伸成形法等。該等方法之中，為了得到具有優異的機械強度、

表面精度等之薄膜，以擠製成形法、吹塑成形法或壓製成形法為佳，尤其是從能夠效率良好且簡單地製造之觀點而言，係以擠製成形法為特佳。又，在剛擠製成型後，藉由與氣體阻障層積體(A)或薄膜(b)邊夾持邊層疊，能夠形成較薄的熱熔融層。

【0124】 [5.任意的層]

複合氣體阻障層積體除了上述以外，亦可按照必要而具備任意的構成要素。

例如，在複合氣體阻障層積體的一外側面，亦可形成抗黏結層。藉由形成抗黏結層，能夠防止複合氣體阻障層積體產生黏結。又，在複合氣體阻障層積體的保存時及搬運時，能夠保護複合氣體阻障層積體的表面。抗黏結層係例如能夠藉由塗覆聚矽氧系剝離劑、長鏈烷基系剝離劑、氟系剝離劑、硫化鉬等的剝離劑之方法；形成含有惰性粒子等滑劑的樹脂層之方法等來形成。

【0125】 複合氣體阻障層積體的外側面，通常係相當於薄膜(a)之與無機阻障層(a)為相反側的表面、及薄膜(b)之與熱熔融層為相反側的表面。因此抗黏結層係通常形成在前述薄膜(a)之與無機阻障層(a)為相反側的表面或薄膜(b)之與熱熔融層為相反側的表面。在此，因為相較於在薄膜(a)或薄膜(b)的表面形成其他層的時點，黏結係在更前面的時點較容易產生，所以相較於在薄膜(a)或薄膜(b)的表面設置無機阻障層(a)或熱熔融層之步驟，抗黏結層係以在更前面的時點進行為佳。

【0126】 又，複合氣體阻障層積體係例如亦可具備抗靜電層、硬塗層、導電性賦予層、抗污染層、凹凸構造層等。其中

導電性賦予層係可以藉由印刷或蝕刻而被圖案化。此種任意層，係例如能夠藉由以下的方法來形成：將此種任意層的材料塗有在薄膜(a)或薄膜(b)上且使其硬化之方法；及藉由熱壓黏來貼附之方法。

【0127】 [6.複合氣體阻障層積體的物性]

就複合氣體阻障層積體的全體而言，水蒸氣透過率係以 $5 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以下為佳，較佳為 $2 \times 10^{-3} \text{g/m}^2$ 以下。又，下限係理想上為零，實際上為 $1 \times 10^{-6} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 以上。此種水蒸氣透過率，係能夠藉由適當地選擇無機層及其他層的材質及厚度來達成。

【0128】 複合氣體阻障層積體係柔軟且具有優異的可撓性。因此即便將複合氣體阻障層積體折彎，亦不容易產生龜裂。因而，不容易因外力而產生氣體阻障性低落。特別是複合氣體阻障層積體，係即便在被彎曲許多次之後，亦不容易損害其氣體阻障性。具體而言，即便進行在彎曲直徑 $25.4 \text{mm} \Phi$ 使其彎曲 250 次之彎曲試驗之後，通常亦能夠使其水蒸氣透過率落入如前述較低的範圍。而且，複合氣體阻障層積體，係通常即便被放置在低壓環境時，排氣的產生量亦較少。如此，因為複合氣體阻障層積體係具有高氣體阻障性，即便在高溫或低壓的環境下亦能夠良好地維持其氣體阻障性，所以具有優異的耐候性。

【0129】 複合氣體阻障層積體係不容易產生翹曲。因此，能夠將使用下述的測定方法所求得的翹曲量，減小成為通常 1mm 以下。

在此，翹曲量係能夠使用以下的方法來測定。首先，將試樣沖切成為 5cm 四方。將沖切後的試片配置水平的試驗台上。此時，在往垂直上方產生凹狀翹曲之方向配置試片。測定被配置的試片之角隅部 4 點從試驗台起算的距離。計算在所測定的 4 點之距離的平均值且將該平均值設作翹曲量。

【0130】 在複合氣體阻障層積體，氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)之接著力，係以剛製造後的接著力計，以 1.0N/cm 以上為能夠藉由，較佳為 2.0N/cm 以上。

【0131】 複合氣體阻障層積體的透明性沒有特別限定。但是，從能夠將複合氣體阻障層積體使用在有機 EL 元件之被要求透射光線的部分作為有用物的觀點而言，複合氣體阻障層積體的總光線透射率係以 70%以上為佳，較佳為 80%以上，特佳是 90%以上。

【0132】 複合氣體阻障層積體全體的霧度沒有特別限定，使用在未特別意圖使光線擴散之光學用途時，霧度係通常以較低為佳，以 3.0%以下為佳，較佳為 1.0%以下。

【0133】 本發明的複合氣體阻障層積體全體之厚度，係以 20 μm 以上為佳，較佳為 50 μm 以上，另一方面，以 300 μm 以下為佳，較佳為 100 μm 以下。特別是成為薄膜(b)的厚度為 30 μm 以下且複合氣體阻障層積體全體的厚度為 100 μm 以下之較薄的層積體時，能夠更良好地得到具有優異的可撓性且被彎曲時之氣體阻障性能降低少之本案的效果。

【0134】 [7.複合氣體阻障層積體的製造方法]

複合氣體阻障層積體係能夠使用任意方法來製造。通常，

複合氣體阻障層積體係能夠藉由在調製氣體阻障層積體(A)及薄膜(b)之後，透過熱熔融樹脂使其一體化來製造。具體而言，可舉出下述製造方法(i)、製造方法(ii)及製造方法(iii)。製造方法(ii)係使用擠製成形法形成熱熔融樹脂的薄膜(C)，且將製造方法(i)之使其加熱壓黏之步驟分開成爲2階段之方法，能夠形成較薄的熱熔融樹脂。

製造方法(i)：包含以下的步驟之製造方法，在薄膜(a)的至少一面上，直接形成無機阻障層(a)而得到氣體阻障層積體(A)之步驟；及將氣體阻障層積體(A)、薄膜(b)、及熱熔融樹脂的薄膜(c)，以成爲薄膜(a)、無機阻障層(a)、薄膜(c)、及薄膜(b)的順序之方式重疊且使其加熱壓黏之步驟。

製造方法(ii)：包含以下的步驟之製造方法，在薄膜(a)的至少一面上，直接形成無機阻障層(a)而得到氣體阻障層積體(A)之步驟；

熱熔融樹脂剛被擠製成形之後，使用夾輥將前述熱熔融樹脂層及氣體阻障層積體(A)之無機阻障層(a)側的面或薄膜(b)加熱壓黏之步驟；及

將前述加熱壓黏有熱熔融層之氣體阻障層積體(A)或薄膜(b)、未形成有熱熔融層之薄膜(b)或氣體阻障層積體(A)或薄膜(b)，以成爲薄膜(a)、無機阻障層(a)、熱熔融層、及薄膜(b)的順序之方式重疊且使其加熱壓黏之步驟。

製造方法(iii)：包含以下的步驟之製造方法，在薄膜(a)的至少一面上直接形成無機阻障層(a)而得到氣體阻障層積體(A)之步驟；

在氣體阻障層積體(A)之無機阻障層(a)側的面、薄膜(b)的一面、或是該等面之雙方，塗布液體狀熱熔融樹脂且按照必要使其乾燥來形成熱熔融層之步驟；及

將氣體阻障層積體(A)及薄膜(b)(其一方或雙方係進一步具有熱熔融層)，以成爲薄膜(a)、無機阻障層(a)、熱熔融層、及薄膜(b)的順序之方式重疊且使其加熱壓黏之步驟。。

【0135】 在以下的製造方法之說明，係說明前述製造方法(i)作爲本發明的製造方法。

【0136】 依照製造方法(i)，因爲使用熱熔融樹脂的薄膜(c)將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)接著，所以容易貼合。例如使用流體狀接著劑將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)接著時，因爲氣體阻障層積體(A)及薄膜(b)係各自單獨而容易產生翹曲，所以均勻的貼合係困難的。相對於此，使用已成形爲薄膜狀之熱熔融樹脂的薄膜進行接著時，前述的貼合係變爲容易，而能夠穩定地製造複合氣體阻障層積體。

【0137】 在薄膜(a)的表面形成無機阻障層(a)之方法，係如在無機阻障層(a)的項目所說明。通常，所得到的氣體阻障層積體(A)，係以長條薄膜的方式得到，該等係被捲繞成爲捲物狀而被供給至下一個步驟。

【0138】 第 2 圖係在本發明的一實施形態之複合氣體阻障層積體 100 的製造方法，示意性地顯示使氣體阻障層積體(A)10、薄膜(b)21 及熱熔融樹脂的薄膜(c)加熱壓黏之步驟之側面圖。在此，因爲熱熔融樹脂的薄膜(c)係相當於與前述的熱熔融層 30 相同的構件，所以附加相同符號「30」而說明。

【0139】 如第 2 圖所顯示，氣體阻障層積體(A)10、薄膜(b)21 及熱熔融樹脂的薄膜(c)30 各自被從捲物拉出，例如使用能夠控制溫度控制的加壓輥 210、220 等來進行加熱壓黏。此時，氣體阻障層積體(A)10，其方向係使無機阻障層(a)側的面與薄膜(c)30 相向。藉由熱熔融樹脂當作接著劑，將氣體阻障層積體(A)10 與薄膜(b)21 接著而得到複合氣體阻障層積體 100。所得到的複合氣體阻障層積體 100 係被捲取且以捲物狀態被保存。如此，只要能夠使用捲繞式法來製造複合氣體阻障層積體 100，就能夠進一步提高生產性。

【0140】 進行加熱壓黏時之溫度，取決於熱熔融樹脂的薄膜(c)顯示流動性之溫度，通常為 70°C 以上，較佳為 80°C 以上。藉此，能夠穩定地將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)接著。又，溫度的上限係通常為 250°C 以下，較佳是形成薄膜(a)及薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度 T_g °C 以下。特別是將前述熱熔融樹脂的薄膜(c)顯示流動性之溫度設為脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度 T_g 以下，藉由在 T_g 以下的溫度進行加熱壓黏，能夠防止薄膜(a)及薄膜(b)的熱所致之變形、及加壓壓黏製程前後之熱收縮、劣化。

【0141】 進行加熱壓黏時，從加壓輥所施加的壓力，係通常為 0.1MPa 以上。藉此，能夠穩定地將氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)接著。又，壓力的上限係通常為 1.5MPa 以下，較佳為 1.0MPa 以下。藉此，能夠防止因過剩的壓力致使無機阻障層(a)產生龜裂。

【0142】 以長條薄膜的方式準備氣體阻障層積體(A)、薄膜

(b)及熱熔融樹脂的薄膜(c)，將該等長條薄膜在生產線邊搬運邊進行加熱壓黏時，搬運時的生產線速度係通常為 0.1m/分鐘以上，以 0.2m/分鐘以上為佳，較佳為 0.3m/分鐘以上，通常為 5m/分鐘以下，以 3m/分鐘以下為佳，較佳為 2m/分鐘以下。藉由使生產線速度成為前述範圍的下限以上，能夠有效率地製造。又，藉由成為上限以下，能夠穩定地進行氣體阻障層積體(A)與薄膜(b)之接著。

【0143】 [8.複合氣體阻障層積體的用途]

本發明的複合氣體阻障層積體，能夠使用作為有機 EL 元件的構成要素。具體而言，能夠使用作為將構成有機 EL 元件的其他構成要素封裝，用以保護避免受到水分及氧氣的影響之薄膜。而且，複合氣體阻障層積體，除了氣體阻障的功能以外，具有作為 $1/4\lambda$ 波長板的功能者之情況，亦可在有機 EL 元件，將作為 $1/4\lambda$ 波長板的複合氣體阻障層積體、與其他光學構件組合而構成顯現光學的功能之層。例如，能夠將作為 $1/4\lambda$ 波長板的複合氣體阻障層積體與直線偏光板組合而構成抗反射膜。

【0144】 第 3 圖係示意性地顯示將使用本發明的一實施形態之複合氣體阻障層積體之抗反射膜，在與其主面垂直的平面切割而成之剖面之剖面圖。如第 3 圖所顯示，抗反射膜 300 係具備複合氣體阻障層積體 100、及在複合氣體阻障層積體 100 的一外側面 11U 形成之直線偏光板 40。又，在第 3 圖，針對與第 1 圖所顯示者同樣的部位，係使用與第 1 圖同樣的符號顯示。

【0145】 如此，將複合氣體阻障層積體 100 與直線偏光板 40 組合而成之抗反射膜 300，係將直線偏光板朝向出光面側而設置在有機 EL 元件的出光面時，能夠防止外光映入出光面。亦即，非偏光之自然光入射至設置有具有此種構成的抗反射膜之有機 EL 顯示裝置時，具有與直線偏光板的透射軸平行的振動方向之直線偏光成分的光線，係透射直線偏光板 40，此外的光線係被直線偏光板 40 吸收。又，透射直線偏光板 40 後之光線，係藉由透射作為 1/4 波長板功能的複合氣體阻障層積體 100 而從直線偏光被轉換成為圓偏光，在有機 EL 元件的其他層反射且再次藉由透射 1/4 複合氣體阻障層積體 100 而被轉換成為直線偏光而入射直線偏光板 40。此時，因為該光線係在具有與直線偏光板 40 的透射軸平行的振動方向之直線偏光為較少的狀態下入射直線偏光板 40，所以其大部分係被直線偏光板 40 吸收。因而，藉由抗反射膜 300 而能夠防止外光的反射。並且，因為藉由複合氣體阻障層積體 100 亦能夠顯現作為封裝的功能，所以抗反射膜 300 係能夠使用作為兼具抗反射的功能封裝的功能之構件。

[實施例]

【0146】 以下，揭示實施例而具體地說明本發明。但是，本發明係不被以下的實施例限定，在不脫離本發明的申請專利範圍及其均等的範圍之範圍，能夠任意地變更而實施。

在以下的說明，表示量之「%」及「份」，係只要未預先告知，就是重量基準。

又，以下說明之操作，係只要未預先告知，就是在常溫及

再壓的條件下進行。

【0147】 [測定方法]

(1.翹曲量的測定方法)

將試樣沖切成爲 5cm 四方。將沖切後的試片配置水平的試驗台上。此時，在往垂直上方產生凹狀翹曲之方向配置試片。測定被配置的試片之角隅部 4 點從試驗台起算的距離。計算在所測定的 4 點之距離的平均值且將該平均值設作翹曲量。

【0148】 (2.水蒸氣透過率的測定方法)

使用具 8cm 直徑的圓形測定區域之差壓式測定裝置，在試樣的兩側形成相當 40℃ 90%RH 的水蒸氣之壓力而測定水蒸氣透過率。

【0149】 <實施例 1>

(1-1.層積體(A1)及薄膜(b1))

將捲物狀的脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a1)(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製，ZEONORFILM ZF16、厚度 100 μ m、Re=5nm、Tg 163℃)拉出，藉由電漿 CVD 裝置在其一表面上形成厚度 1 μ m 的 SiOC 膜而得到氣體阻障層積體(A1)。所得到的氣體阻障層積體(A1)係具有翹曲量 14mm 的翹曲。

另外，準備捲物狀的薄膜(b1)(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製 ZEONFILM ZD16、厚度 40 μ m、Re=140nm、Tg 163℃)。

【0150】 (1-2.熱熔融樹脂的薄膜(c))

又，準備由厚度 50 μ m 的苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物所構成之 Tg 120℃ 的薄膜作爲熱熔融樹脂的薄膜(c)。

前述的苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物，係將使用苯乙烯作為芳香族乙烯系化合物且使用異戊二烯作為鏈狀共軛二烯化合物而製成之芳香族乙烯系化合物-共軛二烯嵌段共聚物進行氫化，進而使用乙烯基三甲氧基矽烷改性而成之聚合物，在聚合物嵌段[B]的兩端具有聚合物嵌段[A]鍵結而成之三嵌段構造。又，該苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物之重量平均分子量(Mw)為 48,000，聚合物嵌段的重量分率之比「wA/wB」為 50/50，聚合物嵌段[A]的重量平均分子量之比「Mw(A1)/Mw(A2)」為 1.1，氫化率為 99.9%

【0151】 (1-3.加熱壓黏)

將在步驟(1-1)所得到的氣體阻障層積體(A1)及薄膜(b1)，以 SiOC 膜朝向薄膜(b1)側而相向的方式配置且使其間隙挾持在步驟(1-2)所得到之熱熔融樹脂的薄膜(c)。將如此進行而重疊的氣體阻障層積體(A1)、薄膜(c)及薄膜(b1)，藉由相向的一對樹脂輥筒從兩側邊加壓邊在長度方向搬運。此時，樹脂輥筒的溫度係調節成為 140°C。又，使搬運時的生產線速度成為 0.3m/min。又，使藉由樹脂輥筒加壓之強度為 0.1MPa。藉此，氣體阻障層積體(A1)、薄膜(c)及薄膜(b1)係被加熱壓黏而能夠得到具有脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a1)-SiOC 膜-熱熔融層-脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b1)的層構成之複合氣體阻障層積體。

【0152】 (1-4.複合氣體阻障層積體的評價)

測定在步驟(1-3)所得到的複合氣體阻障層積體之翹曲量及水蒸氣透過率時，翹曲量係 1mm 以下，水蒸氣透過率係 $1.1 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 。

的苯乙烯異戊二烯苯乙烯共聚物所構成之 T_g 120°C 的薄膜作為熱熔融的薄膜(c)。

【0155】 (2-3.加熱壓黏)

將在步驟(1-1)所得到的氣體阻障層積體(A2)及薄膜(b2)，以 SiOC 膜朝向薄膜(b2)側而相向的方式配置且使其間隙挾持在步驟(2-2)所得到之熱熔融樹脂的薄膜(c)。將如此進行而重疊的氣體阻障層積體(A2)、薄膜(c)及薄膜(b2)，在與實施例 1 的步驟(1-3)的加熱壓黏條件同樣的條件下，藉由相向的一對樹脂輥筒從兩側邊加壓邊在長度方向搬運。藉此，氣體阻障層積體(A2)、薄膜(c)及薄膜(b2)係被加熱壓黏而能夠得到具有脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a2)-SiOC 膜-熱熔融層-脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b2)的層構成之複合氣體阻障層積體。

【0156】 (2-4.複合氣體阻障層積體的評價)

測定在步驟(2-3)所得到的複合氣體阻障層積體之翹曲量及水蒸氣透過率時，翹曲量係 1mm 以下，水蒸氣透過率係 $1.0 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 。

又，將複合氣體阻障層積體與在實施例 1 的步驟(1-4)所進行同樣地以彎曲直徑 25.4mm Φ 折彎，目視觀察彎曲處的狀態時，無法觀察到產生龜裂等。

而且，將所得到的複合氣體阻障層積體配置在容積 100cm³ 的處理室中，使用真空幫浦(ULVAC 公司製「GHD-030」)將空氣從處理室排氣時，約 18 小時後，處理室內壓力係到達 $1 \times 10^{-4} \text{torr}$ 。

而且，將所得到的複合氣體阻障層積體，進行以彎曲直徑

藉由對如此進行而重疊的氣體阻障層積體(A1)、黏著片之層及薄膜(b1)，在與實施例 1 的步驟(1-3)的加熱壓黏之條件同樣的條件下，藉由相向的一對樹脂輥筒從兩側邊加壓邊在長度方向搬運。藉此，氣體阻障層積體(A1)、黏著片之層、及薄膜(b1)係被加熱壓黏而能夠得到具有脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a1)-SiOC 膜-黏著片之層-脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b1)之層構成之複合氣體阻障層積體。

測定所得到的複合氣體阻障層積體之翹曲量及水蒸氣透過率時，翹曲量係 1mm 以下，水蒸氣透過率係 $1.1 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ 。但是，針對該複合氣體阻障層積體，與實施例 1 的步驟(1-4)所進行的操作同樣地，藉由配置在處理室中之真空幫浦，將空氣從處理室排氣時，然而約 18 小時後，處理室內壓力為 $3 \times 10^{-4} \text{torr}$ ，真空排氣係較花費時間。

【0159】 <比較例 3>

除了在步驟(1-1)，使用 T_g 為 136°C 的薄膜(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製 ZEONFILM ZF14、厚度 $100\mu\text{m}$ 、 $Re=3\text{nm}$)作為脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a1)，且使用 T_g 為 136°C 的薄膜(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製 ZEONFILM ZD14、厚度 $40\mu\text{m}$ 、 $Re=140\text{nm}$)作為薄膜(b1)以外，與實施例 1 的步驟(1-1)~(1-3)同樣地進行而製成複合氣體阻障層積體。

觀察所製成的複合氣體阻障層積體之 Re 時，在步驟(1-3)進行加熱壓黏時， Re 的不均發生。測定不均部分的 Re 時，其值降低 3nm 以上。

【0160】 <比較例 4>

在步驟(1-3)中，除了使樹脂輓筒的設定溫度成爲 120℃ 以外，與比較例 3 同樣地進行而得到複合氣體阻障層積體。

觀察所得到的複合氣體阻障層積體時，SiOC 層與熱熔融層、及薄膜(b)與熱熔融層之間的密著不充分且呈現白濁的狀態。

【0161】 <討論>

在實施例 1 及 2 所得到的複合氣體阻障層積體，翹曲量較小。又，實施例 2 係具有優異的可撓性。因此得知，依照本發明，能夠實現不容易產生翹曲之複合氣體阻障層積體。

比較例 1 係因折彎而容易產生龜裂，致使氣體阻障性受到損害。又，比較例 2 係在低壓環境時，從複合氣體阻障層積體產生氣體，其結果，氣體阻障性變低。又，比較例 3 及 4 係 Re 值產生變化或是密著性受到損害。相對於此，在實施例 1 及 2 所得到的複合氣體阻障層積體，能夠抑制在高溫環境下之氣體阻障性降低、因折彎而產生龜裂、及從複合氣體阻障層積體本身產生氣體。因此得知，依照本發明，能夠實現柔軟且具有優異的可撓性，而且能夠容易良好地維持氣體阻障性之複合氣體阻障層積體。

【符號說明】**【0162】**

- 10 氣體阻障層積體(A)
- 11 薄膜(a)
- 11U 複合氣體阻障層積體的一外側面

- 11D 薄膜(a)的一面
- 12 無機阻障層(a)
- 21 薄膜(b)
- 21D 薄膜(b)的一表面
- 30 熱熔融層、或熱熔融樹脂的薄膜(薄膜(c))
- 30U 熱熔融層之無機阻障層(a)側的表面
- 40 直線偏光板
- 100 複合氣體阻障層積體
- 210、220 加壓輥
- 300 抗反射膜
- A、B 區域

I664080

發明摘要

※ 申請案號：104102641

※ 申請日：104年1月27日

※IPC 分類：

B32B 27/32 (2006.01)

B32B 37/04 (2006.01)

B32B 37/06 (2006.01)

H01L 51/52 (2006.01)

【發明名稱】（中文/英文）

複合氣體阻障層積體及其製造方法

【中文】

一種有機電激發光元件用的複合氣體阻障層積體及其製造方法，該複合氣體阻障層積體係具備：氣體阻障層積體(A)，其具備脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)、及直接設置在前述薄膜(a)的至少一面上之1層以上的無機阻障層(a)；脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)，其具有前述薄膜(a)的厚度以下之厚度；及熱熔融層，其介於前述無機阻障層(a)及前述薄膜(b)之間且將前述無機阻障層與前述薄膜(b)貼合；前述熱熔融層的玻璃轉移溫度，係比構成前述薄膜(a)及前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度更低 25°C 以上。

【英文】

無。

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（1）圖。

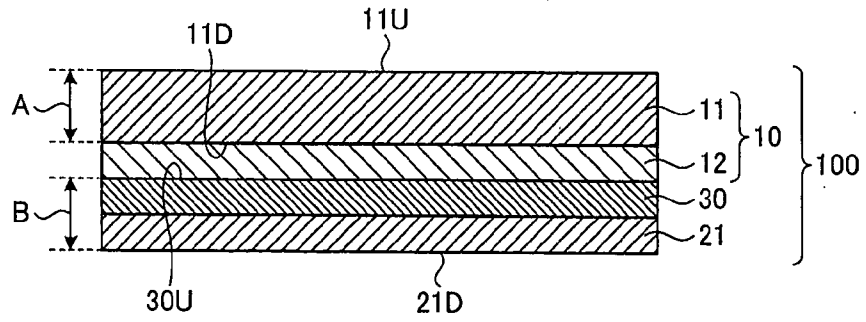
【本代表圖之符號簡單說明】：

- 10 氣體阻障層積體(A)
- 11 薄膜(a)
- 11U 複合氣體阻障層積體的一外側面
- 11D 薄膜(a)的一面
- 12 無機阻障層(a)
- 21 薄膜(b)
- 21D 薄膜(b)的一表面
- 30 熱熔融層、或熱熔融樹脂的薄膜(薄膜(c))
- 30U 熱熔融層之無機阻障層(a)側的表面
- 100 複合氣體阻障層積體
- A、B 區域

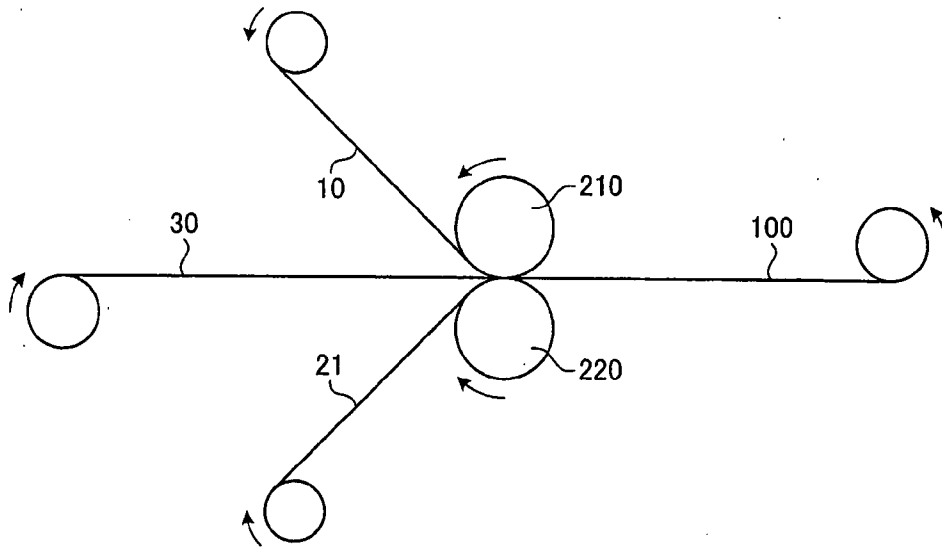
【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無。

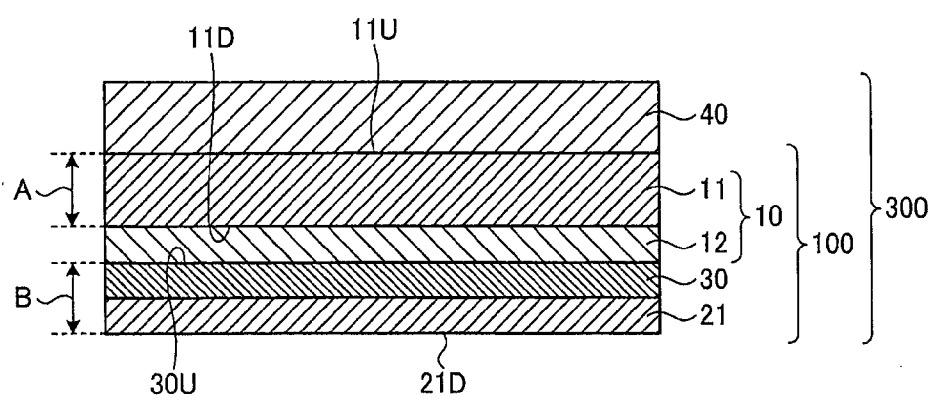
圖式



第 1 圖



第 2 圖



第 3 圖

又，將複合氣體阻障層積體以彎曲直徑 25.4mm Φ 折彎，目視觀察彎曲處的狀態時，無法觀察到產生龜裂等。

而且，將所得到的複合氣體阻障層積體配置在容積 100cm³ 的處理室中，使用真空幫浦(ULVAC 公司製「GHD-030」)將空氣從處理室排氣時，約 18 小時後，處理室內壓力係到達 1×10^{-4} torr。

而且，將所得到的複合氣體阻障層積體，進行以彎曲直徑 25.4mm Φ 使其彎曲 250 次的彎曲試驗之後，測定水蒸氣透過率時，水蒸氣透過率係 1.3×10^{-2} g/m²·day，與彎曲試驗前變化不大。

而且，觀察 Re 時，係在全體為均勻。

【0153】 <實施例 2>

(2-1.層積體(A2)及薄膜(b2))

將捲物狀的脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a2)(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製，ZEONORFILM ZD16、厚度 40 μ m、Re=140nm、Tg 163 $^{\circ}$ C)拉出，藉由電漿 CVD 裝置在其一表面上形成厚度 1 μ m 的 SiOC 膜而得到氣體阻障層積體(A2)。所得到的氣體阻障層積體(A2)係具有翹曲量 16mm 的翹曲。

另外，準備捲物狀的薄膜(b2)(含有降冰片烯聚合物之薄膜、日本 ZEON 公司製 ZEONFILM ZF16、厚度 25 μ m、Re=20nm、Tg 163 $^{\circ}$ C)。

【0154】 (2-2.熱熔融樹脂的薄膜(c))

又，與實施例 1 的步驟(1-2)同樣地進行而準備由厚度 35 μ m

25.4mm Φ 使其彎曲 250 次的彎曲試驗之後，測定水蒸氣透過率時，水蒸氣透過率係 $1.3 \times 10^{-2} \text{g/m}^2 \cdot \text{day}$ ，與彎曲試驗前變化不大。

而且，觀察 Re 時，全體係均勻。

【0157】 <比較例 1>

在與實施例 1 的步驟(1-1)所準備者相同薄膜(b1)的一面，塗布無溶劑的丙烯酸系 UV 硬化樹脂(大同化成公司製、商品名「Daioretto PS3A」)而形成 50 μm 的 UV 硬化樹脂之層。在此，將在實施例 1 的步驟(1-1)所準備者相同氣體阻障層積體(A1)，以 SiOC 膜朝向 UV 硬化樹脂之層側而相向的方式疊合。藉由對如此進行而重疊的氣體阻障層積體(A1)、UV 硬化樹脂之層及薄膜(b1)照射紫外線 500mJ，而將氣體阻障層積體(A1)、UV 硬化樹脂之層、及薄膜(b1)接著，來得到具有脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a1)-SiOC 膜-UV 硬化樹脂之層-脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b1)之層構成之複合氣體阻障層積體。將所得到的複合氣體阻障層積體，與實施例 1 同樣地以彎曲直徑 25.4mm Φ 折彎時，容易地產生龜裂。

【0158】 <比較例 2>

在與實施例 1 的步驟(1-1)所準備者相同薄膜(b1)的一面，進行 2 次貼附丙烯酸系黏著劑的薄片(日東電工公司製「CS9621」、厚度 25 μm)之操作，而形成厚度 50 μm 的黏著片之層。

在此，將在實施例 1 的步驟(1-1)所準備者相同氣體阻障層積體(A1)，以 SiOC 膜朝向黏著片之層側而相向的方式疊合。

申請專利範圍

1. 一種有機電激發光元件用的複合氣體阻障層積體，係具備：
氣體阻障層積體(A)，其具備脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)、及直接設置在前述薄膜(a)的至少一面上的無機阻障層(a)；
脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)，其具有前述薄膜(a)的厚度以下之厚度；及
熱熔融層，其介於前述無機阻障層(a)及前述薄膜(b)之間，且使前述無機阻障層與前述薄膜(b)貼合；
前述熱熔融層的玻璃轉移溫度 TgA ，與構成前述薄膜(a)之脂環式聚烯烴樹脂薄膜的玻璃轉移溫度及構成前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度之中較低的玻璃轉移溫度 TgB 之差($TgB-TgA$)為 $25^{\circ}C$ 以上。
2. 如申請專利範圍第 1 項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述熱熔融層為苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂之層。
3. 如申請專利範圍第 2 項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述苯乙烯系熱可塑性彈性體樹脂係含有苯乙烯-共軛二烯嵌段共聚物氫化物。
4. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述薄膜(a)及前述薄膜(b)的任一者在波長 $550nm$ 時的面內方向的遲滯值為 $115\sim 160nm$ ，另一者在波長 $550nm$ 時的面內方向的遲滯值為 $0\sim 25nm$ 。
5. 如申請專利範圍第 1 至 3 項中任一項所述之複合氣體阻障層積體，其中前述薄膜(b)的厚度為 $30\mu m$ 以下，前述複合氣體阻障層積體的厚度為 $100\mu m$ 以下。

6. 一種複合氣體阻障層積體的製造方法，包含以下的步驟：
- 在脂環式聚烯烴樹脂薄膜(a)的至少一面上，直接形成無機阻障層(a)而得到氣體阻障層積體(A)之步驟；以及
- 將前述氣體阻障層積體(A)、前述具有薄膜(a)的厚度以下的厚度之脂環式聚烯烴樹脂薄膜(b)、及熱熔融樹脂的薄膜(c)，以成為前述薄膜(a)、前述無機阻障層(a)、前述薄膜(c)、及前述薄膜(b)的順序之方式使其重疊、加熱壓黏之步驟；
- 前述熱熔融樹脂的玻璃轉移溫度 TgA 、與構成前述薄膜(a)之脂環式聚烯烴樹脂薄膜的玻璃轉移溫度及構成前述薄膜(b)之脂環式聚烯烴樹脂的玻璃轉移溫度之中較低的玻璃轉移溫度 TgB 之差($TgB-TgA$)為 $25^{\circ}C$ 以上。