



(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 202225355 A

(43) 公開日：中華民國 111 (2022) 年 07 月 01 日

(21) 申請案號：110142518

(22) 申請日：中華民國 110 (2021) 年 11 月 16 日

(51) Int. Cl. :

*C09J4/02 (2006.01)**C09J11/04 (2006.01)**C09J11/06 (2006.01)**B32B7/12 (2006.01)**B32B37/12 (2006.01)*

(30) 優先權：2020/11/17

世界智慧財產權組織

PCT/JP2020/042820

(71) 申請人：日商昭和電工材料股份有限公司 (日本) SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.

(JP)

日本

(72) 發明人：田中徹 TANAKA, TORU (JP)；川守崇司 KAWAMORI, TAKASHI (JP)；松永昌

大 MATSUNAGA, MASAHIRO (JP)；藤安陽介 FUJIYASU, YOSUKE (JP)

(74) 代理人：李世章

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：4 項 圖式數：2 共 26 頁

(54) 名稱

接著劑套組以及接著體及其製造方法

(57) 摘要

揭示了一種接著劑套組。該接著劑套組具備：主劑，含有解絡劑；及起始劑，含有有機硼烷錯合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑。主劑及起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。



## 【發明摘要】

【中文發明名稱】 接著劑套組以及接著體及其製造方法

【中文】

揭示了一種接著劑套組。該接著劑套組具備：主劑，含有解絡劑；及起始劑，含有有機硼烷錯合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑。主劑及起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。

【指定代表圖】 無。

【代表圖之符號簡單說明】

## 【發明說明書】

【中文發明名稱】 接著劑套組以及接著體及其製造方法

【技術領域】

【0001】 本發明有關一種接著劑套組、以及接著體及其製造方法。

【先前技術】

【0002】 作為聚乙烯、聚丙烯等塑膠彼此的接著劑，揭示了含有有機硼烷錯合物之接著劑組成物（例如，專利文獻 1）。有機硼烷錯合物藉由與解絡劑混合而解絡以賦予有機硼烷。有機硼烷藉由與氧反應而發揮產生自由基之起始劑之作用。此處產生之硼酸自由基發揮一邊抑制具有自由基聚合性基之化合物的鏈轉移或停止反應，一邊維持包含表面接枝化之生長反應之原子移動自由基聚合（ATRP）的休眠種之作用。

【0003】 [專利文獻 1]日本特表 2005-514489 號公報

【0004】 然而，在含有有機硼烷錯合物之接著劑組成物中，研究了藉由添加鹵化金屬鹽等聚合控制劑來提高接著強度。推測如下：藉由添加這種聚合控制劑，聚合控制劑進一步發揮 ATRP 的休眠種之作用，並且不足的休眠種得到補充而具有自由基聚合性基之化合物的生長反應加速，結果顯示出提高接著強度之效果。

【0005】 然而，依據本發明的發明人等的研究，發現獲得充分的接著強度為止之時間（固化時間）變長。若固化時間變長，則有可能導致製程適用性降低。

**【發明內容】**

**【0006】** 因此，本發明的主要目的為提供一種能夠製備具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物之接著劑套組。

**【0007】** 如上所述，有機硼烷藉由與氧反應而作為產生自由基之起始劑發揮作用。本發明的發明人等為了解決上述課題而進行研究之結果，發現在反應中氧因反應而消耗，導致系統中的溶氧不足，從而抑制自由基的產生，進而發現這成為固化時間加長之原因。進一步反覆研究之結果，發現藉由添加過氧化物，能夠具有充分的接著強度，並且縮短固化時間，以至完成了本發明。

**【0008】** 本發明的一個方面有關一種接著劑套組。該接著劑套組具備：主劑，含有解絡劑；及起始劑，含有有機硼烷錯合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑。聚合控制劑可以係選自由鹵化金屬鹽及具有硫代羰基硫結構之化合物組成的組中的至少一種。主劑及起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。依據這種接著劑套組，能夠製備具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物。顯示出這種效果之原因推測如下：藉由添加過氧化物而從過氧化物中提供氧以繼續地產生自由基，從而一邊由聚合控制劑來控制生長反應，一邊進行表面接枝化。認為藉此顯示出由接著劑套組製備之接著劑組成物的接著強度，亦進一步縮短了固化時間。

**【0009】** 本發明的另一個方面有關一種接著體。該接著體具備將第 1

被接著體、第 2 被接著體、第 1 被接著體及第 2 被接著體相互接著之接著劑層。接著劑層含有上述的接著劑套組中的包含主劑及起始劑之接著劑組成物的固化物。

**【0010】** 本發明的另一個方面有關一種接著體之製造方法。該接著體之製造方法具備：藉由包含主劑及起始劑之接著劑組成物，使第 1 被接著體和第 2 被接著體貼合之步驟。

[發明效果]

**【0011】** 依據本發明，提供一種能夠製備具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物之接著劑套組。又，依據本發明，提供一種使用了這種接著劑套組之接著體及其製造方法。

**【圖式簡單說明】**

**【0012】** 圖 1 係表示相對於實施例 1、2 及比較例 1 的固化時間的剪切強度的變化之圖表。

圖 2 係表示相對於實施例 1~6 的固化時間的剪切強度的變化之圖表。

**【實施方式】**

**【0013】** 以下，對本發明的實施形態進行說明。其中，本發明並不限定於以下實施形態。

**【0014】** 關於本發明的數值及其範圍亦相同，並不限制本發明。本說明書中，使用“~”表示之數值範圍表示將記載於“~”前後之數值分別作為最小值及最大值而包含之範圍。在本說明書中階段性地記載之數值範圍中，

在一個數值範圍中所記載之上限值或下限值可以替換為其他階段性記載之數值範圍的上限值或下限值。又，在本說明書中所記載之數值範圍中，其數值範圍的上限值或下限值可以置換為實施例中所示出之值。

**【0015】** 本說明書中，(甲基)丙烯酸酯表示丙烯酸酯或與其對應之甲基丙烯酸酯。(甲基)丙烯酸醯基、(甲基)丙烯酸類共聚物等其他類似表述亦相同。又，以下例示之材料只要沒有特別指定，則可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。在組成物中相當於各成分之物質存在複數個之情況下，只要沒有特別指定，組成物中的各成分的含量則表示於組成物中存在之該複數個物質的合計量。

**【0016】** [接著劑套組]

一實施形態的接著劑套組具備含有解絡劑、之主劑及含有有機硼烷錯合物之起始劑。本實施形態的接著劑套組能夠藉由混合主劑及起始劑而獲得包含主劑及起始劑之接著劑組成物。依據這種接著劑套組，藉由混合主劑及起始劑而能夠製備具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物。

**【0017】** 主劑含有解絡劑。起始劑含有有機硼烷錯合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物。主劑及起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑。主劑及起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。主劑及起始劑的至少一者可以進一步含有填充劑、塑化劑、交聯劑等中的任一種。以下，對各成分進行說明。

**【0018】** (有機硼烷錯合物)

起始劑含有有機硼烷錯合物。有機硼烷錯合物表示將路易斯鹼配位到

有機硼烷而錯合化之有機硼烷-路易斯鹼錯合物。有機硼烷-路易斯鹼錯合物係與後述的解絡劑反應而賦予有機硼烷之化合物。有機硼烷因在氧環境下發生自由基分裂，並且發生休眠種亦即硼酸自由基等，從而能夠作為活性自由基聚合的起始劑發揮作用。有機硼烷例如可以係烷基硼烷（ $BR_3$ 、 $R$ ：烷基）。路易斯鹼例如可以係胺。胺例如可以係具有複數個胺基之化合物，或者至少具有構成胺之胺基及除了該胺基的氮原子以外，包含能夠與硼配位之原子（例如，氧原子等）之基團（例如，烷氧基等）之化合物。因該等化合物發揮相對於有機硼烷多牙配位子之作用，從而能夠稱為多牙胺。

**【0019】** 有機硼烷錯合物可以係烷基硼烷-胺錯合物，亦可以係烷基硼烷-多牙胺錯合物。作為有機硼烷錯合物，例如，可以舉出三乙基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物、三乙基硼烷-二伸乙基三胺錯合物、三-正丁基硼烷-3-甲氧基-1-丙胺錯合物、三-正丁基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物、三異丁基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物、三乙基硼烷-1,6-二胺基己烷錯合物、三異丁基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物、三異丁基硼烷-1,6-二胺基己烷錯合物。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。在該等之中，有機硼烷錯合物可以係三乙基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物或三-正丁基硼烷-3-甲氧基-1-丙胺錯合物。有機硼烷錯合物可以使用市售品，亦可以使用合成品。

**【0020】** 從顯示接著強度之觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以起始劑的總量為基準，可以為 0.1 質量%以上、1 質量%以上、3 質量%以上或 5 質量%以上。從保存穩定性的觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以起始劑的總量為基準，可以為 30 質量%以下、20 質量%以下、15 質量%以下或 10 質量%以下。

【0021】 從顯現接著強度之觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.05 質量%以上、0.1 質量%以上或 0.2 質量%以上。從接著劑層的韌性的觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 10 質量%以下、5 質量%以下、3 質量%以下或 1 質量%以下。

【0022】 從顯現接著強度之觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以具有自由基聚合性基之化合物的總量為基準，可以為 0.01 莫耳%以上、0.05 莫耳%以上、0.08 莫耳%以上或 0.1 莫耳%以上。從接著劑層的韌性的觀點考慮，有機硼烷錯合物的含量以具有自由基聚合性基之化合物的總量為基準，可以為 10 莫耳%以下、5 莫耳%以下、2 莫耳%以下或 1 莫耳%以下。

【0023】 (解絡劑)

主劑含有解絡劑。解絡劑係指，能夠藉由使有機硼烷錯合物（有機硼烷-路易斯鹼錯合物）中的路易斯鹼解離而產生有機硼烷之化合物。因此，藉由使起始劑中所含有之有機硼烷錯合物及主劑中所含有之解絡劑混合並反應而能夠產生能夠成為活性自由基聚合的起始劑之有機硼烷。

【0024】 作為解絡劑，例如，可以舉出酸、酸酐、醛、 $\beta$ -酮化合物等。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。作為酸，例如，可以舉出  $\text{SnCl}_4$ 、 $\text{TiCl}_4$  等路易斯酸、脂肪族羧酸、芳香族羧酸等不忍斯特酸 (Broensted acid) 等。作為酸酐，例如，可以舉出乙酸酐、丙酸酐、琥珀酸酐、順丁烯二酸酐、鄰苯二甲酸酐等。作為醛，例如，可以舉出苯甲醛、鄰、間及對硝基苯甲醛等。作為  $\beta$ -酮化合物，例如，可以舉出乙醯乙酸甲酯、乙醯乙酸乙酯、乙醯乙酸第三丁基酯、乙醯乙酸 2-甲基醯氧基乙酯等。在

該等之中，從與有機硼烷錯合物的解絡反應性及起始劑的保存穩定性的觀點考慮，解絡劑可以係酸酐，從抑制解絡劑的配合質量之觀點考慮，可以係琥珀酸酐。

**【0025】** 從縮短接著劑層固化而顯示接著強度為止之固化時間的觀點考慮，解絡劑的含量以主劑的總量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.1 質量%以上、0.2 質量%以上或 0.3 質量%以上。從確保自將接著劑組成物塗佈於被接著體到貼合為止的工作時間的觀點考慮，解絡劑的含量以主劑的總量為基準，可以為 10 質量%以下、5 質量%以下、3 質量%以下或者 2 質量%以下。

**【0026】** 從縮短接著劑層固化而顯示接著強度為止之固化時間之觀點考慮，解絡劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.1 質量%以上、0.2 質量%以上或 0.3 質量%以上。從確保自將接著劑組成物塗佈於被接著體到貼合為止之工作時間之觀點考慮，解絡劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 10 質量%以下、7 質量%以下、5 質量%以下或 3 質量%以下。

**【0027】** 解絡劑相對於有機硼烷錯合物的莫耳量比(解絡劑的莫耳量/有機硼烷錯合物的莫耳量)例如可以為 0.3 以上、0.5 以上、0.8 以上或 1 以上。若該莫耳量比為 1 以上，則傾向於可獲得更充分的接著強度。解絡劑相對於有機硼烷錯合物的莫耳量比(解絡劑的莫耳量/有機硼烷錯合物的莫耳量)例如可以為 50 以下、30 以下、10 以下、7 以下、5 以下或 3 以下。該莫耳量比越小，則越傾向於能夠更充分地確保自將接著劑組成物塗佈於被接著體到貼合為止的工作時間之傾向。

**【0028】**（具有自由基聚合性基之化合物）

主劑及起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物。具有自由基聚合性基之化合物係具有因自由基反應之聚合性基之化合物。作為自由基聚合性基，例如，可以舉出（甲基）丙烯醯基、乙烯基、烯丙基、苯乙烯基、烯基、伸烯基、順丁烯二醯亞胺基等。

**【0029】** 具有自由基聚合性基之化合物例如可以含有具有（甲基）丙烯醯基之化合物。作為具有（甲基）丙烯醯基之化合物，例如，可以舉出：具有 1 個（甲基）丙烯醯基之單官能（甲基）丙烯酸酯、具有 2 個以上之（甲基）丙烯醯基之多官能（甲基）丙烯酸酯、（甲基）丙烯醯胺衍生物等。

**【0030】** 作為單官能（甲基）丙烯酸酯，可以舉出：（甲基）丙烯酸；（甲基）丙烯酸甲酯、乙基（甲基）丙烯酸酯、正丁基（甲基）丙烯酸酯、（甲基）丙烯酸異丁酯、（甲基）丙烯酸第三丁基酯、正（甲基）丙烯酸戊酯、正己基（甲基）丙烯酸酯、正辛基（甲基）丙烯酸酯、異辛基（甲基）丙烯酸酯、2-乙基己基（甲基）丙烯酸酯、異癸基（甲基）丙烯酸酯、十二基（甲基）丙烯酸酯（正十二烷基（甲基）丙烯酸酯）、（甲基）丙烯酸異肉荳蔻酯、硬脂基（甲基）丙烯酸酯、丙烯酸異硬脂酯等具有烷基之烷基（甲基）丙烯酸酯；3-丁烯基（甲基）丙烯酸酯等具有烯基之（甲基）丙烯酸烯基酯；苄基（甲基）丙烯酸酯、苯氧基乙基（甲基）丙烯酸酯等具有芳香族基之（甲基）丙烯酸酯；甲氧基四乙二醇（甲基）丙烯酸酯、甲氧基六乙二醇（甲基）丙烯酸酯、甲氧基八乙二醇（甲基）丙烯酸酯、甲氧基九乙二醇（甲基）丙烯酸酯、甲氧基聚乙二醇（甲基）丙烯酸酯、甲氧基七丙二醇（甲基）丙烯酸酯、乙氧基四乙二醇（甲基）丙烯酸酯、丁氧

基乙二醇（甲基）丙烯酸酯、丁氧基二乙二醇（甲基）丙烯酸酯等烷氧基聚仲烷基二醇（甲基）丙烯酸酯；（甲基）丙烯酸環己酯、（甲基）丙烯酸異冰片酯、二環戊基（甲基）丙烯酸酯等具有脂環式基之（甲基）丙烯酸酯；2-羥基乙基（甲基）丙烯酸酯、3-羥基丙基（甲基）丙烯酸酯、4-羥基（甲基）丙烯酸丁酯等具有羥基之（甲基）丙烯酸酯；N,N-二甲胺基乙基（甲基）丙烯酸酯等具有胺基之（甲基）丙烯酸酯；2-（2-甲基丙烯醯氧基乙氧基）乙基異氰酸酯、2-（甲基）丙烯醯氧乙基異氰酸酯等具有異氰酸酯基之（甲基）丙烯酸酯；四乙二醇單（甲基）丙烯酸酯、六乙二醇單（甲基）丙烯酸酯、六丙二醇單（甲基）丙烯酸酯、二丙二醇單（甲基）丙烯酸酯、三丙二醇單（甲基）丙烯酸酯、六丙二醇單（甲基）丙烯酸酯等聚仲烷基二醇單（甲基）丙烯酸酯；具有矽氧烷骨架之（甲基）丙烯酸酯。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。

**【0031】** 作為多官能（甲基）丙烯酸酯，例如，可以舉出：乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、二乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、三乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、四乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、聚乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、二丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、三丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、四丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、聚丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化聚丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、1,3-丁二醇二（甲基）丙烯酸酯、1,4-丁二醇二（甲基）丙烯酸酯、新戊基乙二醇二（甲基）丙烯酸酯、3-甲基-1,5-戊二醇二（甲基）丙烯酸酯、1,6-己二醇二（甲基）丙烯酸酯、2-丁基-2-乙基-1,3-丙二醇二（甲基）丙烯酸酯、1,9-壬烷二醇二（甲基）丙烯酸酯、1,10-癸烷二醇二（甲基）丙烯酸酯、甘油二（甲基）丙烯

酸酯、三環癸烷二甲醇（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化 2-甲基-1,3-丙二醇二（甲基）丙烯酸酯等脂肪族（甲基）丙烯酸酯；乙氧基化雙酚 A 型二（甲基）丙烯酸酯、丙氧基化雙酚 A 型二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化丙氧基化雙酚 A 型二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化雙酚 F 型二（甲基）丙烯酸酯、丙氧基化雙酚 F 型二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化丙氧基化雙酚 F 型二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化萸型二（甲基）丙烯酸酯、丙氧基化萸型二（甲基）丙烯酸酯、乙氧基化丙氧基化萸型二（甲基）丙烯酸酯等芳香族（甲基）丙烯酸酯；雙酚型環氧（甲基）丙烯酸酯、苯酚酚醛清漆型環氧（甲基）丙烯酸酯、甲酚酚醛清漆型環氧（甲基）丙烯酸酯等芳香族環氧（甲基）丙烯酸酯等。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。

**【0032】** 作為（甲基）丙烯醯胺衍生物，例如，可以舉出：N,N-二甲胺基丙基（甲基）丙烯醯胺、N,N-二甲基（甲基）丙烯醯胺、N-異丙基（甲基）丙烯醯胺、N,N-二乙基（甲基）丙烯醯胺、N-羥乙基（甲基）丙烯醯胺、（甲基）丙烯醯嗎啉等。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。

**【0033】** 具有自由基聚合性基之化合物例如除了具有（甲基）丙烯醯基之化合物以外，亦可以包含能夠與該等共聚合之共聚合化合物。作為共聚合化合物，例如，可以舉出：苯乙烯、4-甲基苯乙烯、乙基吡啶、乙基吡咯啉酮、乙酸乙基、環己基順丁烯二醯亞胺、苯基順丁烯二醯亞胺、順丁烯二酸酐等具有除了（甲基）丙烯醯基以外的自由基聚合性基之化合物等。

**【0034】** 具有自由基聚合性基之化合物只要在主劑及起始劑的至少

一者中含有即可，例如，主劑可以含有具有自由基聚合性基之化合物。

**【0035】** 從提高接著劑層的韌性及提高接著強度之觀點考慮，具有自由基聚合性基之化合物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 40 質量%以上、50 質量%以上、60 質量%以上或 65 質量%以上。從抑制所塗佈之接著劑組成物的下垂及抑制接著劑層的韌性降低之觀點考慮，具有自由基聚合性基之化合物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 99 質量%以下、98 質量%以下、95 質量%以下或 90 質量%以下。

**【0036】** 主劑及起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑。作為聚合控制劑，例如，可以舉出：鹵化金屬鹽、具有硫代羰基硫結構之化合物等。聚合控制劑可以係選自由鹵化金屬鹽及具有硫代羰基硫結構之化合物組成的組中的至少一種。

**【0037】** 作為鹵化金屬鹽，例如，可以舉出：溴化銅（II）、氯化銅（II）、溴化鐵（III）、溴化釩（III）、溴化鉻（III）、溴化鈮（III）、溴化銅（I）、溴化鐵（II）、溴化錳（II）、溴化鈷（II）、溴化鎳（II）、溴化鈹（II）等。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。鹵化金屬鹽例如可以為溴化銅（II）。

**【0038】** 具有硫代羰基硫結構之化合物只要具有硫代羰基硫結構，則能夠並無特別限制地使用，例如，能夠適當地使用在 RAFT 聚合（Reversible Addition/Fragmentation Chain Transfer：可逆加法/分片鏈轉移）領域中所使用之鏈轉移劑（RAFT 劑）。

**【0039】** 聚合控制劑只要在主劑及起始劑的至少一者中含有即可，例如，主劑可以含有聚合控制劑。

**【0040】** 從確保自將接著劑組成物塗佈於被接著體到貼合為止的工作時間及提高接著強度之觀點考慮，聚合控制劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.02 質量%以上、0.03 質量%以上或 0.05 質量%以上。從主劑的保存穩定性的觀點考慮，聚合控制劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 5 質量%以下、3 質量%以下、1 質量%以下或 0.5 質量%以下。

**【0041】** 從確保自將接著劑組成物塗佈於被接著體到貼合為止的工作時間及提高接著強度之觀點考慮，聚合控制劑的含量以具有自由基聚合性基之化合物的總量為基準，可以為 0.01 莫耳%以上、0.03 莫耳%以上、0.05 莫耳%以上或 0.08 莫耳%以上。從主劑的保存穩定性之觀點考慮，聚合控制劑的含量以具有自由基聚合性基之化合物的總量為基準，可以為 5 莫耳%以下、3 莫耳%以下、1 莫耳%以下或 0.7 莫耳%以下。

**【0042】** （過氧化物）

主劑及起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。過氧化物只要係具有-O-O-鍵者，則能夠並無特別限制地使用，例如，能夠使用市售品。該等可以單獨使用 1 種，亦可以組合 2 種以上來使用。

**【0043】** 作為过氧化物的市售品，例如，可以舉出 PARLOIL L（1 分鐘半衰期溫度：116°C、NOF CORPORATION）、PERBUTYL O（1 分鐘半衰期溫度：134°C、NOF CORPORATION）、PERBUTYL E（1 分鐘半衰期溫度：161°C、NOF CORPORATION）、PERCUMYL H（1 分鐘半衰期溫度：254°C、NOF CORPORATION）等。在該等之中，從縮短固化時間及保存穩定性的觀點考慮，過氧化物可以係 1 分鐘半衰期溫度為 270°C 以下之

過氧化物。过氧化物的 1 分鐘半衰期溫度例如可以為 250°C 以下、220°C 以下、200°C 以下、180°C 以下、160°C 以下、150°C 以下、140°C 以下、135°C 以下、130°C 以下、125°C 以下或 120°C 以下。过氧化物的 1 分鐘半衰期溫度例如可以為 80°C 以上、90°C 以上或 100°C 以上。

**【0044】** 從縮短固化時間之觀點考慮，过氧化物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.03 質量%以上、0.05 質量%以上或 0.1 質量%以上。從保存穩定性的觀點考慮，过氧化物的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 5 質量%以下、3 質量%以下、2 質量%以下或 1 質量%以下。

**【0045】** 從縮短固化時間之觀點考慮，过氧化物的含量以有機硼烷錯合物的總量為基準，可以為 5 莫耳%以上、10 莫耳%以上、15 莫耳%以上或 20 莫耳%以上。從保存穩定性的觀點考慮，过氧化物的含量以有機硼烷錯合物的總量為基準，可以為 90 莫耳%以下、80 莫耳%以下、70 莫耳%以下或 60 莫耳%以下。

**【0046】** 過氧化物只要在主劑及起始劑的至少一者中含有即可，例如，主劑可以含有過氧化物。

**【0047】** （填充劑）

填充劑例如可以係無機填充劑或有機填充劑中的任一個。作為無機填充劑，例如，可以舉出：氧化矽、氧化鋁、氧化矽-氧化鋁、氧化鈦、氧化鋯、氧化鎂、高嶺土、滑石、碳酸鈣、膨土、雲母、絹雲母、玻璃薄片、玻璃纖維、石墨、氫氧化鎂、氫氧化鋁、三氧化二銻、硫酸鋇、硼酸鋅、矽灰石、硬矽鈣石、晶鬚等無機微粒等。作為有機填充劑，例如，可以舉

出矽酮、丙烯酸矽酮、丙烯酸橡膠、MBS（甲基丙烯酸酯·丁二烯·苯乙烯）、聚醯胺、聚醯亞胺等有機微粒等。該等填充劑（微粒）可以具有均勻的結構，亦可以具有核殼型結構。從能夠更充分地縮短固化時間考慮，填充劑可以包含有機填充劑，亦可以包含丙烯酸系核殼粒子。

**【0048】** 填充劑只要在主劑及起始劑的至少一者中含有即可。例如，從能夠更充分地縮短固化時間考慮，主劑可以含有包含有機填充劑之填充劑，亦可以含有包含丙烯酸系核殼粒子之填充劑。

**【0049】** 有機填充劑有時在該有機填充劑中包含抗氧化劑。依據本發明的發明人等的研究，發現有機填充劑中的抗氧化劑量越少，則越能夠充分地縮短固化時間。有機填充劑中的抗氧化劑的含量例如可以為 15000 質量 ppm 以下、10000 質量 ppm 以下、5000 質量 ppm 以下或 3000 質量 ppm 以下。

**【0050】** 填充劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 1 質量%以上、3 質量%以上或 5 質量%以上，亦可以為 40 質量%以下、30 質量%以下或 30 質量%以下。

**【0051】** （塑化劑）

作為塑化劑，例如，可以舉出鄰苯二甲酸酯系化合物、烷基磺酸酯系化合物、己二酸酯系化合物等。

**【0052】** 塑化劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.1 質量%以上、0.2 質量%以上或 0.3 質量%以上，亦可以為 30 質量%以下、20 質量%以下或 10 質量%以下。

**【0053】** （交聯劑）

作為交聯劑，例如，可以舉出：吡環丙烷系交聯劑、碳二亞胺系交聯劑等。

**【0054】** 交聯劑的含量以主劑及起始劑的合計量為基準，可以為 0.01 質量%以上、0.1 質量%以上或 0.5 質量%以上，亦可以為 5 質量%以下、3 質量%以下或 2 質量%以下。

**【0055】** 主劑及起始劑的至少一者除了上述成分以外，可以進一步含有：紫外線吸收劑、脫水劑、顏料、染料、抗老化劑、抗氧化劑、抗靜電劑、阻燃劑、接著性賦予劑、分散劑、溶劑等。

**【0056】** 本實施形態的接著劑套組能夠藉由混合主劑和起始劑來製備接著劑組成物。將主劑和起始劑混合時的溫度例如可以為 10~35°C。接著劑套組的適用期例如可以為 0.1~3 分鐘。

**【0057】** 在將主劑和起始劑混合之情況下，以主劑中的解絡劑相對於起始劑中的有機硼烷錯合物的莫耳量比（解絡劑的莫耳量/有機硼烷錯合物的莫耳量）成為 0.3 以上、0.5 以上、0.8 以上或 1 以上或者成為 50 以下、30 以下、10 以下、7 以下、5 以下或 3 以下的方式混合為較佳。

**【0058】** 在將主劑和起始劑混合之情況下，以主劑相對於起始劑的質量比（主劑的質量/起始劑的質量）例如為 1 以上、3 以上或 5 以上，或者 200 以下、100 以下或 50 以下的方式混合為較佳。

**【0059】** 將主劑和起始劑混合之方法，只要兩者被混合則並無特別限制。作為混合主劑和起始劑之方法，例如，可以舉出：以手動混合之方法、使用通常的壓膠槍藉由手動塗佈混合之方法、將對原料的液體輸送具有定量性之泵（例如，齒輪泵、柱塞泵等）和節流閥併用，使用機械式旋轉混

合器、靜態混合器等混合之方法。

**【0060】** 所製備之接著劑組成物能夠藉由塗佈於既定的位置而形成接著劑層。因具有自由基聚合性基之化合物高分子量化而固化，藉此所形成之接著劑層作為接著基材彼此之接著劑層發揮作用。於既定的位置塗佈之方法能夠適用使用分配器等之方法等先前公知的方法。

**【0061】** 使接著劑組成物固化之條件例如可以為於固化溫度 10~35℃下，且固化時間為 24~96 小時。

**【0062】** [接著體及其製造方法]

一實施形態的接著體具備：第 1 被接著體、第 2 被接著體、將第 1 被接著體及第 2 被接著體彼此接著之接著劑層。接著劑層含有上述的接著劑套組中的包含主劑及起始劑之接著劑組成物的固化物。

**【0063】** 作為第 1 被接著體及第 2 被接著體，例如，可以舉出：聚丙烯（PP）、聚氯乙烯、丙烯腈/丁二烯/苯乙烯共聚物（ABS）、聚碳酸酯（PC）、聚醯胺（PA）、聚（甲基丙烯酸甲酯（PMMA）、聚酯、環氧樹脂、聚胺酯（PUR）、聚甲醛（POM）、聚乙烯（PE）、乙烯/丙烯共聚物（EPM）、乙烯/丙烯/二烯聚合物（EPDM）等塑膠基板、鋁、鋼、銅、不鏽鋼等金屬基板等。

**【0064】** 作為接著體，例如，可以舉出：塑膠層積基板、金屬層積基板、電子元件、半導體零件、顯示器零件等。

**【0065】** 一實施形態的接著體之製造方法具備：藉由包含主劑及起始劑之接著劑組成物，將第 1 被接著體和第 2 被接著體貼合之步驟。將接著劑套組中的主劑及起始劑混合之時的溫度、使接著劑組成物固化之條件等

可以與上述相同。

[實施例]

**【0066】** 以下，關於本發明，舉出實施例進一步詳述。其中，本發明並不限定於該等實施例。

**【0067】** <實施例 1~6 及比較例 1>

[接著劑套組的製作]

(原料的準備)

·有機硼烷錯合物

TEB-DAP：三乙基硼烷-1,3-二胺基丙烷錯合物（分子量：172.1、KIS HIDA CHEMICAL Co.,Ltd.）

·解絡劑

琥珀酸酐（分子量：100.1、FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation）

·具有自由基聚合性基之化合物（聚合性化合物）

FA-513AS：二環戊基丙烯酸酯（分子量：206.3、SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.）

FA-310A：苯氧基丙烯酸乙酯（分子量：192.2、SHOWA DENKO MATERIALS CO., LTD.）

丙烯醯胺：N,N-二甲基甲基丙烯醯胺（分子量：113.2、FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation）

·聚合控制劑

溴化銅（II）（分子量：223.4、FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation）

ation)

·過氧化物

PARLOIL L (分子量：398.6、1 分鐘半衰期溫度：116°C、NOF CORPORATION)

PERBUTYL O (分子量：216.3、1 分鐘半衰期溫度：134°C、NOF CORPORATION)

PERCUMYL H (分子量：152.0、1 分鐘半衰期溫度：254°C、NOF CORPORATION)

·填充劑

RY200S:煙霧狀氧化矽(用矽油進行表面處理之疏水性煙霧狀氧化矽、Nippon Aerosil Co., Ltd.)

B564：MBS 系核殼粒子 (Kaneka Corporation、作為抗氧化劑，含有 Irganox PS 800：7800 質量 ppm、Irganox 245：6000 質量 ppm)

M210：丙烯酸系核殼粒子 (Kaneka Corporation、未檢測到抗氧化劑)

·塑化劑

PN-5090：己二酸聚酯 (ADEKA Corporation)

·交聯劑

三吡環丙烷：三[3-(1-氮丙啶基)丙酸]三羥甲基丙烷 (FUJIFILM Wako Pure Chemical Corporation)

**【0068】** (主劑的製備)

以表 1 及表 2 中所示之種類及比例 (單位：質量份) 將解絡劑、具有自由基聚合性基之化合物、聚合控制劑、過氧化物及填充劑稱取到塑料瓶

中，使用自傳公轉攪拌機（THINKY CORPORATION、Awatori Rentaro），以 2000 轉數/分鐘的條件混合 15 分鐘，進一步以 2000 轉數/分鐘的條件消泡 5 分鐘，製備了實施例 1~6 及比較例 1 的主劑。

**【0069】** （起始劑的製備）

以表 1 及表 2 中所示之種類及比例（單位：質量份）將有機硼烷錯合物、塑化劑、交聯劑及填充劑稱取到塑料瓶中，使用自傳公轉攪拌機（THINKY CORPORATION、Awatori Rentaro），以 2000 旋轉/分鐘的條件混合 15 分鐘，進一步以 2000 旋轉/分鐘的條件消泡 5 分鐘，製備了實施例 1~6 及比較例 1 的起始劑。另外，實施例 1~6 及比較例 1 的起始劑係相同成分。

**【0070】** [接著強度的測量]

在 2 張聚丙烯基板（被接著體）（大小：100mm×25mm、厚度：2mm）之間，以接著劑層的厚度成為 0.5mm 之方式配置了 0.5mm 的間隔件。藉由將各主劑及各起始劑填充到手動分配器來混合了主劑及起始劑。使用手動分配器塗佈於聚丙烯基板之間，使聚丙烯基板彼此貼合而獲得了積層體。製作了複數個積層體。在 25°C 下放置所獲得之積層體，每隔既定的時間測量剪切強度，求出相對於固化時間的剪切強度的變化。將結果示於圖 1 及圖 2。

【0071】 【表 1】

			實施例 1	實施例 2	比較例 1
主劑	解絡劑	琥珀酸酐	0.34	0.35	0.35
	聚合性化合物	FA-513AS	37.68	37.79	37.98
		FA-310A	37.72	37.82	37.98
		丙烯醯胺	1.11	1.41	1.12
	聚合控制劑	溴化銅 (II)	0.08	0.09	0.09
	過氧化物	PARLOIL L	0.69	-	-
		PERBUTYL O	-	0.22	-
		PERCUMYL H	-	-	-
	填充劑	B564	22.38	22.32	22.48
		M210	-	-	-
主劑的合計量			100.00	100.00	100.00
起始劑	有機硼烷錯合物	TEB-DAP	0.60	0.60	0.60
	塑化劑	PN-5090	7.93	7.93	7.93
	交聯劑	三吡環丙烷	1.11	1.11	1.11
	填充劑	RY200S	0.36	0.36	0.36
起始劑的合計量			10.00	10.00	10.00
解絡劑的莫耳量/有機硼烷錯合物的莫耳量			1.0	1.0	1.0
主劑的質量/起始劑的質量			10.0	10.0	10.0

【0072】 圖 1 係表示相對於實施例 1、2 及比較例 1 的固化時間的剪切強度的變化之圖。如圖 1 所示，包含由實施例 1、2 的接著劑套組製備之過氧化物之接著劑組成物與不含由比較例 1 的接著劑套組製備之過氧化物之接著劑組成物相比，獲得充分的接著強度為止之時間縮短。從該等結果可以確認，本發明的接著劑套組能夠製備具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物。

【0073】 【表 2】

			實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6
主劑	解絡劑	琥珀酸酐	0.34	0.35	0.34	0.34
	聚合性化合物	FA-513AS	39.18	39.37	39.54	39.96
		FA-310A	39.11	39.34	39.51	40.18
		丙烯醯胺	2.04	2.12	1.43	0.50
	聚合控制劑	溴化銅 (II)	0.16	0.16	0.25	0.09
	過氧化物	PARLOIL L	0.41	0.55	-	-
		PERBUTYL O	-	-	-	-
		PERCUMYL H	-	-	0.21	0.07
	填充劑	B564	-	-	-	-
		M210	18.76	18.11	18.72	18.86
主劑的合計量			100.00	100.00	100.00	100.00
起始劑	有機硼烷錯合物	TEB-DAP	0.60	0.60	0.60	0.60
	塑化劑	PN-5090	7.93	7.93	7.93	7.93
	交聯劑	三吡環丙烷	1.11	1.11	1.11	1.11
	填充劑	RY200S	0.36	0.36	0.36	0.36
起始劑的合計量			10.00	10.00	10.00	10.00
解絡劑的莫耳量/有機硼烷錯合物的莫耳量			1.0	1.0	1.0	1.0
主劑的質量/起始劑的質量			10.0	10.0	10.0	10.0

【0074】 圖2係表示相對於實施例1~6的固化時間的剪切強度的變化之圖。如圖2所示，包含由實施例3~6的接著劑套組製備之過氧化物之接著劑組成物與包含由實施例1、2的接著劑套組製備之過氧化物之接著劑組成物相同程度地，獲得充分的接著強度為止之時間縮短。從該等結果中亦可確認，能夠製備本發明的接著劑套組具有充分的接著強度，並且能夠縮短固化時間之接著劑組成物。

## 【發明申請專利範圍】

### 【請求項 1】

一種接著劑套組，其具備：

主劑，含有解絡劑；及

起始劑，含有有機硼烷錯合物，

前述主劑及前述起始劑的至少一者進一步含有具有自由基聚合性基之化合物，

前述主劑及前述起始劑的至少一者進一步含有聚合控制劑，

前述主劑及前述起始劑的至少一者進一步含有過氧化物。

### 【請求項 2】

如請求項 1 所述之接著劑套組，其中

前述聚合控制劑係選自由鹵化金屬鹽及具有硫代羰基硫結構之化合物組成的組中的至少一種。

### 【請求項 3】

一種接著體，其具備：

第 1 被接著體；

第 2 被接著體；及

將前述第 1 被接著體及前述第 2 被接著體相互接著之接著劑層，

前述接著劑層含有接著劑組成物的固化物，前述接著劑組成物包含請求項 1 或請求項 2 所述之接著劑套組中的前述主劑及前述起始劑。

### 【請求項 4】

一種接著體之製造方法，其係請求項 3 所述之接著體之製造方法，其

具備：

藉由包含前述主劑及前述起始劑之接著劑組成物，使前述第 1 被接著體和前述第 2 被接著體貼合之步驟。

## 【發明圖式】

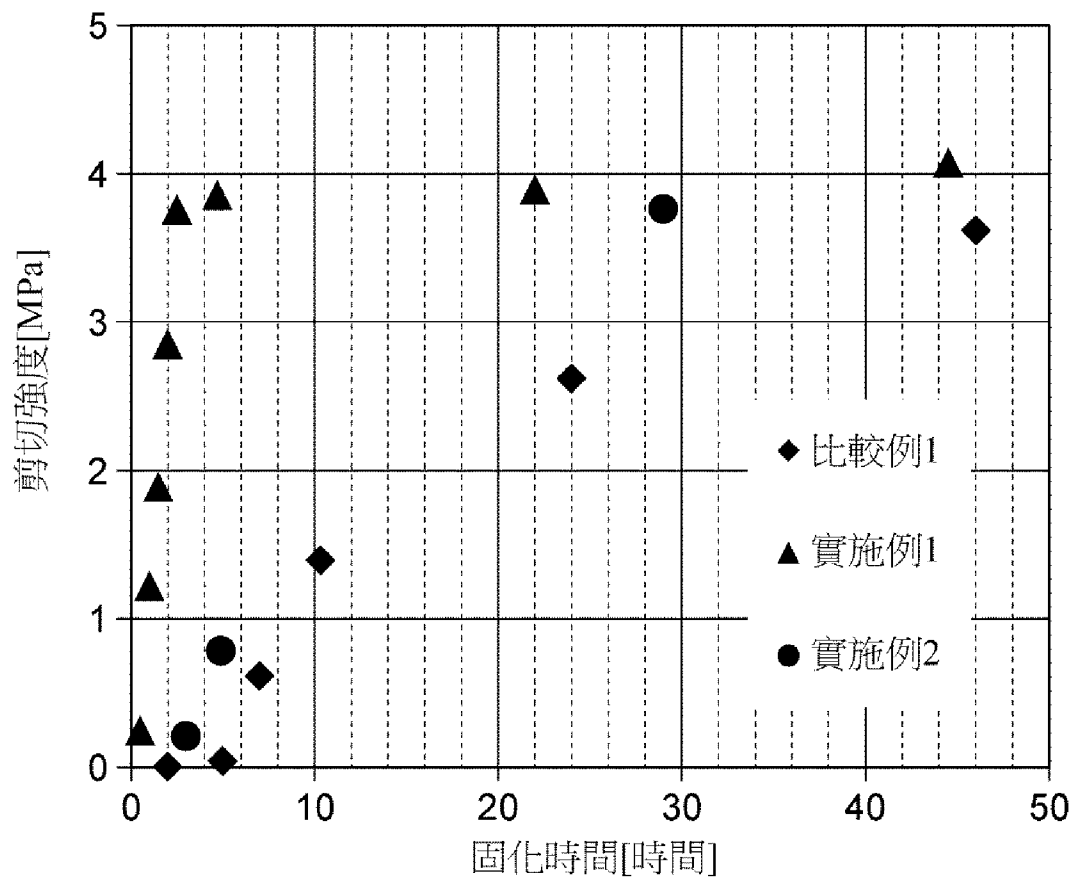


圖 1

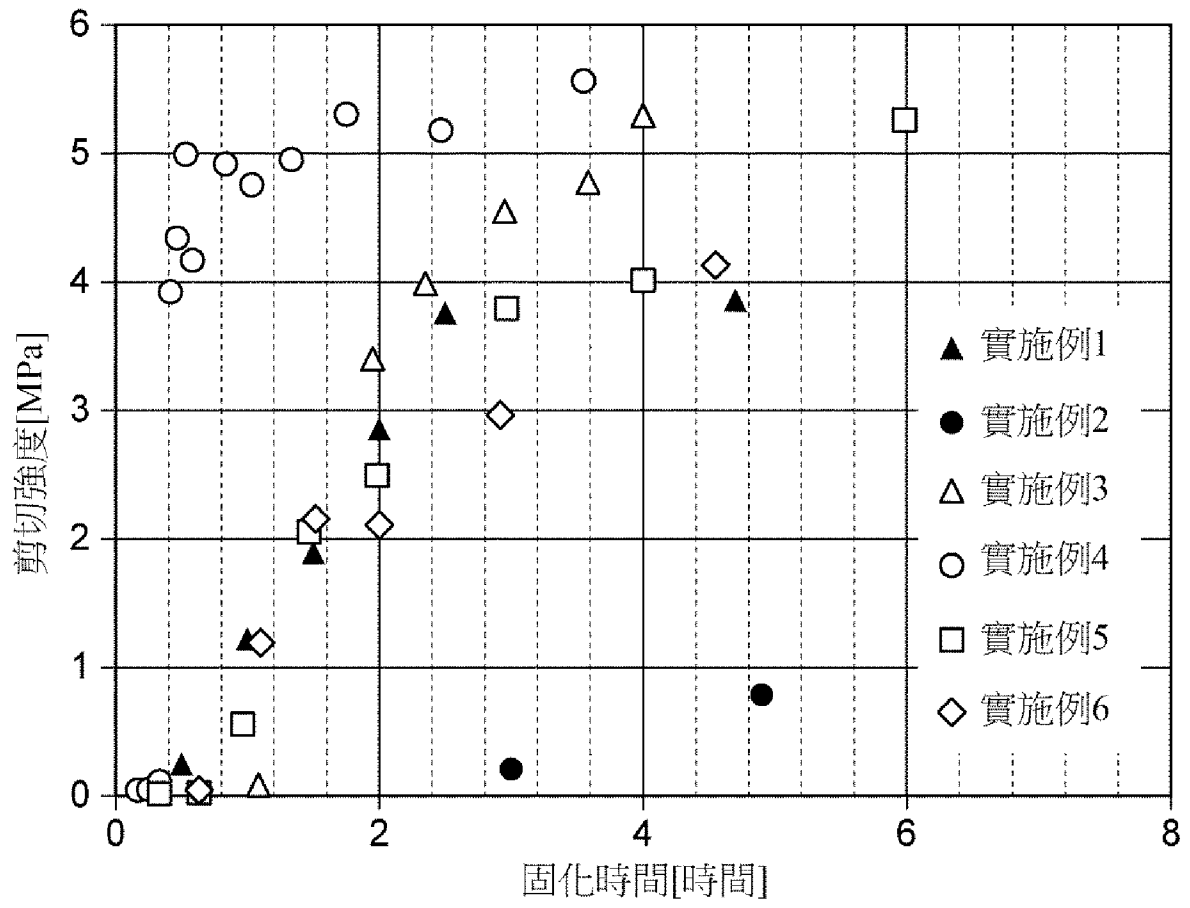


圖 2