



(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 202313887 A

(43) 公開日：中華民國 112 (2023) 年 04 月 01 日

(21) 申請案號：111122638

(22) 申請日：中華民國 111 (2022) 年 06 月 17 日

(51) Int. Cl. :

*C09J7/30 (2018.01)**C09J129/14 (2006.01)**B32B7/12 (2006.01)**B32B17/10 (2006.01)**G02F1/1333 (2006.01)**G06F3/041 (2006.01)*

(30) 優先權：2021/06/18 日本

2021-102044

(71) 申請人：日商積水化學工業股份有限公司 (日本) SEKISUI CHEMICAL CO., LTD. (JP)

日本

(72) 發明人：大東裕司 OOHIGASHI, YUJI (JP)；石川由貴 ISHIKAWA, YUKI (JP)；寺口祐美

子 TERAGUCHI, YUMIKO (JP)；鴨志田尚輝 KAMOSHIDA, NAOKI (JP)

(74) 代理人：閻啓泰；林景郁

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：14 項 圖式數：4 共 46 頁

(54) 名稱

黏著膜、積層體、液晶顯示器及層合玻璃

(57) 摘要

本發明之黏著膜包含熱塑性樹脂，且上述黏著膜於 85°C 之剪切儲存模數為  $0.06 \times 10^6 \text{Pa}$  以上  $1.00 \times 10^6 \text{Pa}$  以下，不含塑化劑，或相對於熱塑性樹脂 100 質量份包含未達 20 質量份之塑化劑，上述黏著膜之凝膠分率為 15% 以下。本發明之積層體具備：本發明之黏著膜、第 1 有機材料基材、以及第 2 有機材料基材及無機材料基材之至少 1 種基材。本發明之液晶顯示器及本發明之層合玻璃包含本發明之積層體。根據本發明，能夠提供一種階差追隨性、滲出性及再利用性優異之黏著膜、具備該黏著膜之積層體以及包含該積層體之液晶顯示器及層合玻璃。

無



## 【發明摘要】

【中文發明名稱】 黏著膜、積層體、液晶顯示器及層合玻璃

【英文發明名稱】 無

### 【中文】

本發明之黏著膜包含熱塑性樹脂，且上述黏著膜於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下，不含塑化劑，或相對於熱塑性樹脂100質量份包含未達20質量份之塑化劑，上述黏著膜之凝膠分率為15%以下。本發明之積層體具備：本發明之黏著膜、第1有機材料基材、以及第2有機材料基材及無機材料基材之至少1種基材。本發明之液晶顯示器及本發明之層合玻璃包含本發明之積層體。根據本發明，能夠提供一種階差追隨性、滲出性及再利用性優異之黏著膜、具備該黏著膜之積層體以及包含該積層體之液晶顯示器及層合玻璃。

### 【英文】

無

【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】 黏著膜、積層體、液晶顯示器及層合玻璃

【英文發明名稱】 無

### 【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種黏著膜、具備黏著膜之積層體以及包含積層體之液晶顯示器及層合玻璃。

### 【先前技術】

【0002】 於液晶顯示器、有機EL顯示器、附帶觸控面板之顯示器等各種顯示器中，為了將表面保護面板、偏光板、附帶觸控感測器之膜、附帶觸控感測器之玻璃等重疊並固定，而廣泛使用有黏著膜。作為黏著膜，就透明性、黏著性等觀點而言，以往廣泛使用有（甲基）丙烯酸系樹脂。又，除（甲基）丙烯酸系樹脂以外，亦正在研究使用聚乙烯縮醛系樹脂。

【0003】 已知於使用聚乙烯縮醛系樹脂之情形時，例如，如專利文獻1、2中所揭示，使用摻合有一定量以上之塑化劑之塑化聚乙烯縮醛系樹脂。又，亦正在研究於塑化聚乙烯縮醛系樹脂中摻合會藉由光照射而硬化之反應性稀釋劑，以可藉由光照射提升儲存模數。

【0004】 又，近年來，正嘗試向構成窗玻璃之層合玻璃導入調光膜，以能夠調整透光性等。於導入調光膜之情形時，層合玻璃例如已知如下構成：於2片玻璃板之間配置調光膜，將調光膜與各玻璃板介隔樹脂膜而接合。正研究將含有塑化聚乙烯縮醛系樹脂之黏著膜應用於樹脂膜。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】 專利文獻1：日本特許第6046811號公報

專利文獻2：日本特許第6116772號公報

## 【發明內容】

### [發明所欲解決之課題]

【0006】 且說，於顯示器、或導入調光膜之層合玻璃中，有時於表面保護面板、層合玻璃構件、調光膜等上貼附有各種構件，而有與黏著膜之接著面存在階差之情形。例如於車載用顯示器中，於構成表面保護面板之玻璃側具有所謂黑色陶瓷點階差。因此，於使用黏著膜之貼合步驟中，黏著膜之階差追隨性較為重要。又，有時在黏著膜之保管過程中塑化劑自黏著膜滲出而導致作業環境污染。進而，為了降低環境負荷，較理想為可再利用黏著膜。

【0007】 因此，本發明之課題在於提供一種階差追隨性、滲出性及再利用性優異之黏著膜、具備該黏著膜之積層體以及包含該積層體之液晶顯示器及層合玻璃。

### [解決課題之技術手段]

【0008】 本發明人等進行積極研究，結果發現，藉由於包含熱塑性樹脂之黏著膜中，一面降低塑化劑之含量，一面使儲存模數為特定範圍內，並使凝膠分率為特定值以下，可解決上述課題，從而完成了以下本發明。

即，本發明提供以下之[1]~[32]。

[1]一種黏著膜，其包含熱塑性樹脂，且

上述黏著膜於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下，

上述黏著膜不含塑化劑，或相對於上述熱塑性樹脂100質量份包含未達20質量份之塑化劑，

上述黏著膜之凝膠分率為15%以下。

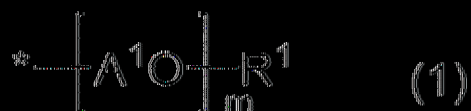
[2]如上述[1]記載之黏著膜，其中，上述熱塑性樹脂之重量平均分子量(Mw)為600,000以下。

[3]如上述[1]或[2]記載之黏著膜，其厚度為100  $\mu\text{m}$ 以上2000  $\mu\text{m}$ 以下。

[4]如上述[1]至[3]中任一項記載之黏著膜，其 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度為10°C以上52°C以下。

[5]如上述[1]至[4]中任一項記載之黏著膜，其中，上述熱塑性樹脂為聚乙烯縮醛系樹脂。

[6]如上述[5]記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂具有以下式(1)所示之聚環氧烷(polyalkylene oxide)結構。



(式(1)中，A<sup>1</sup>O為碳數2~6之氧仲烷基，m為平均重複數，為1~200；R<sup>1</sup>為碳數1~8之烷基或氫原子；再者，氧仲烷基可為單獨1種，亦可混合存在2種以上；\*為與其他基之鍵結位置)

[7]如上述[5]記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂具有聚環氧烷結構。

[8]如上述[6]或[7]記載之黏著膜，其中，上述聚環氧烷結構中之氧仲烷基包含氧仲乙基及氧仲丙基之至少任二者。

[9]如上述[6]至[8]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚環氧烷結構中之氧仲烷基包含氧仲乙基及氧仲丙基兩者。

[10]如上述[6]至[9]中任一項記載之黏著膜，其縮醛化度為60莫耳%以上。

[11]如上述[6]至[10]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚環氧烷結構係經由單鍵、或醚鍵、醇鍵、醯胺鍵、及可具有該等鍵中之至少任二者之烷基之任二者而連結於主鏈。

[12]如上述[6]至[11]中任一項記載之黏著膜，其中，利用上述聚環氧烷結構

之改質量為0.1莫耳%以上10莫耳%以下。

[13]如上述[5]至[12]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂之縮醛化度為60莫耳%以上90莫耳%以下。

[14]如上述[5]至[13]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂之羥基量為5莫耳%以上35莫耳%以下。

[15]如上述[5]至[14]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂之乙醯化度為0.01莫耳%以上50莫耳%以下。

[16]如上述[5]至[15]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂為聚乙烯縮丁醛系樹脂。

[17]如上述[5]至[16]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂之重量平均分子量（Mw）為50,000以上600,000以下。

[18]如上述[5]至[17]中任一項記載之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂之含量以黏著膜所含有之熱塑性樹脂總量為基準，為50質量%以上100質量%以下。

[19]如上述[1]至[18]中任一項記載之黏著膜，其不含有分子量未達1000之低分子量化合物、或相對於上述熱塑性樹脂100質量份含有未達20質量份之分子量未達1000之低分子量化合物。

[20]如上述[1]至[19]中任一項記載之黏著膜，其中，上述塑化劑為選自由有機酯塑化劑、有機磷系塑化劑、有機醚系塑化劑、及醇系塑化劑所組成之群中之至少1種。

[21]如上述[1]至[20]中任一項記載之黏著膜，其中，上述黏著膜包含選自由二醇與一元性有機酸之酯、及碳數4~12之二元性有機酸與碳數4~10之醇之酯化合物、聚伸烷基二醇（polyalkylene glycol）系塑化劑、及聚氧伸烷基醚（polyoxyalkylene ether）系塑化劑所組成之群中之至少1種作為塑化劑。

[22]如上述[1]至[21]中任一項記載之黏著膜，其用於接合一對基材。

[23]如上述[22]記載之黏著膜，其係在將第1有機材料基材、與第2有機材料基材或者無機材料基材接合時使用，且上述第1有機材料基材及上述第2有機材料基材為選自由偏光膜、聚對苯二甲酸乙二酯膜、聚碳酸酯板、及（甲基）丙烯酸（（meth）acrylate）板所組成之群中之至少1種有機材料基材。

[24]一種積層體，其具備上述[1]至[23]中任一項記載之黏著膜、及一對基材，且上述黏著膜配置於一對基材之間。

[25]如上述[24]記載之積層體，其中，上述基材構成觸控面板、調光元件、及顯示元件之至少一部分。

[26]如上述[25]或[26]記載之積層體，其具備配置於上述一對基材之間之中間構件、及配置於各基材與上述中間構件之間之接著用膜，上述接著用膜之至少任一者為上述黏著膜。

[27]如上述[26]記載之積層體，其中，在上述中間構件之上述黏著膜接著之位置處配置無機材料基材、及有機材料基材之至少任一者。

[28]如上述[26]或[27]記載之積層體，其中，上述中間構件為觸控面板及調光元件之任一者。

[29]一種液晶顯示器，其包含上述[24]至[28]中任一項記載之積層體。

[30]一種層合玻璃，其包含上述[24]至[28]中任一項記載之積層體。

[31]一種上述[1]至[23]中任一項記載之黏著膜之用途，其用於顯示器。

[32]一種上述[1]至[23]中任一項記載之黏著膜之用途，其用於層合玻璃。

[發明之效果]

**【0009】** 根據本發明，可提供一種階差追隨性、滲出性及再利用性優異之黏著膜、具備該黏著膜之積層體以及包含該積層體之液晶顯示器及層合玻璃。

**【圖式簡單說明】****【0010】**

[圖1]係表示第1實施方式之積層體之剖視圖。

[圖2]係表示第2實施方式之積層體之剖視圖。

[圖3]係表示第3實施方式之積層體之剖視圖。

[圖4]係表示第4實施方式之積層體之剖視圖。

**【實施方式】****【0011】** <黏著膜>

本發明之黏著膜包含熱塑性樹脂，且上述黏著膜於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下，不含塑化劑，或相對於熱塑性樹脂100質量份包含未達20質量份之塑化劑，上述黏著膜之凝膠分率為15%以下。

本發明之黏著膜藉由具有以上之構成，能夠使階差追隨性、滲出性及再利用性變得良好。

**【0012】** 以下，對本發明之一實施方式之黏著膜詳細地進行說明。

## [剪切儲存模數]

本發明之黏著膜於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下。若剪切儲存模數未達 $0.06 \times 10^6$  Pa，則有時於貼附時發泡，從而有時貼附性降低。若剪切儲存模數超過 $1.00 \times 10^6$  Pa，則有時黏著膜之階差追隨性變差，在階差部分殘存氣泡，而使得視認性或貼附性降低。

就黏著膜之貼附性之觀點而言，上述85°C之剪切儲存模數較佳為 $0.08 \times 10^6$  Pa以上，更佳為 $0.09 \times 10^6$  Pa以上。

**【0013】** 黏著膜於85°C之剪切儲存模數較佳為 $0.70 \times 10^6$  Pa以下，更佳為 $0.50 \times 10^6$  Pa以下，進而較佳為 $0.30 \times 10^6$  Pa以下。

再者，剪切儲存模數可藉由如下方式進行測定：於頻率1 Hz下使用動態黏彈性測定裝置，以剪切模式進行黏彈性測定，對85°C之儲存模數（G'）進行檢測。

#### 【0014】 [凝膠分率]

本發明之黏著膜之凝膠分率為15%以下。若凝膠分率大於15%，則黏著膜之再利用性變差。即，若凝膠分率大於15%，則於將使用過之黏著膜進行再利用，而再次用作黏著膜之情形時，凝膠成分會成為黏著膜中之光學瑕疵，由於此光學瑕疵變多，因此有再利用之黏著膜無法用於顯示器或層合玻璃等用途之情形。就再利用性之觀點而言，凝膠分率較佳為10%以下，更佳為5%以下，進而較佳為3%以下，進而更佳為1%以下，尤佳為0%。

再者，凝膠分率能夠以如下方式進行測定。使約0.1 g之黏著膜溶解於40 g之THF（四氫呋喃）中，取出未溶解成分後，乾燥未溶解成分。然後，根據以下之式算出凝膠分率。

$$\text{凝膠分率 (\%)} = (\text{未溶解物之乾燥後重量}) / (\text{溶解前之黏著膜之重量}) \times 100$$

#### 【0015】 [tanδ之極大峰值溫度]

於本發明中，黏著膜之tanδ之極大峰值溫度較佳為10°C以上52°C以下。若將tanδ之極大峰值溫度設為52°C以下，則樹脂膜變得足夠柔軟，可使階差追隨性變得良好。又，容易使對於各種樹脂材料或無機玻璃之接著性變得良好。就階差追隨性之觀點而言，樹脂組成物之tanδ之極大峰值溫度更佳為48°C以下，進而較佳為44°C以下，進而更佳為42°C以下。

又，若tanδ之極大峰值溫度為10°C以上，則可防止黏著性變得高至必要以上而導致操作性降低。樹脂組成物之tanδ之極大峰值溫度較佳為12°C以上，更佳為20°C以上。

再者，樹脂膜之tanδ之極大峰值溫度可藉由如下方式檢測：使用動態黏彈性

測定裝置進行黏彈性測定，讀取根據黏彈性測定之結果所獲得之損耗正切 $\tan\delta$ 達到最大值的峰值溫度。

**【0016】** 再者，上述之剪切儲存模數、凝膠分率、及 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度可藉由適當選擇樹脂之種類、樹脂之分子量、有無摻合塑化劑及其含量等來調整。

**【0017】** [熱塑性樹脂]

黏著膜如上所述，含有熱塑性樹脂。就降低凝膠分率之觀點而言，熱塑性樹脂可不具有交聯結構，或具有較少之交聯結構。作為黏著膜所使用之熱塑性樹脂，例如可例舉：(甲基)丙烯酸系樹脂、聚乙烯縮醛系樹脂、聚乙烯醇系樹脂(PVA)、聚胺酯(polyurethane)系樹脂(PU)、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物樹脂(EVA)、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物皂化物(EVOH)、乙烯-甲基丙烯酸共聚物樹脂、離子聚合物樹脂、異丁烯樹脂、苯乙烯-異戊二烯共聚物樹脂、苯乙烯-丁二烯共聚物樹脂等。

於黏著膜中，熱塑性樹脂可單獨使用1種，亦可併用2種以上。

上述之中，熱塑性樹脂較佳為聚乙烯縮醛系樹脂。藉由使用聚乙烯縮醛系樹脂，變得容易使階差追隨性變得良好。又，容易降低凝膠分率，且使接著性亦變得良好。以下，對熱塑性樹脂所使用之聚乙烯縮醛系樹脂詳細地進行說明。

**【0018】** 熱塑性樹脂之重量平均分子量(Mw)較佳為600,000以下。藉由將重量平均分子量調整至上述範圍內，可改善黏著膜之柔軟性，使黏著膜之階差追隨性進一步變得良好。就此種觀點而言，熱塑性樹脂之重量平均分子量(Mw)更佳為500,000以下，進而較佳為400,000以下。又，就機械強度等觀點而言，熱塑性樹脂之重量平均分子量(Mw)較佳為50,000以上，更佳為100,000以上，進而較佳為120,000以上，進而更佳為150,000以上。

再者，重量平均分子量(Mw)係藉由凝膠滲透層析法進行測定。

(0019) 聚乙稀縮醛系樹脂

如上所述，熱塑性樹脂較佳為聚乙稀縮醛系樹脂。聚乙稀縮醛系樹脂可為改質聚乙稀縮醛樹脂，亦可為未改質聚乙稀縮醛樹脂。改質聚乙稀縮醛樹脂如下所示，只要具有除縮醛基、羰基、及乙醯基以外之結構（改質基）即可，較佳為於側鏈具有改質基。

聚乙稀縮醛系樹脂係藉由利用醛使聚乙稀醇縮醛化，進而視需要與改質劑反應，或進行再乙醯化（re-acetylation）處理而獲得。又，為了獲得改質聚乙稀縮醛樹脂，亦可使用改質聚乙稀醇作為原料聚乙稀醇。

(0020) 上述除縮醛基、羰基、及乙醯基以外之結構較佳為聚環氧烷結構。聚環氧烷結構具體而言，如以下之式（1）所示。

(0021)



（式（1）中，A<sup>1</sup>O為碳數2～6之氧仲烷基，m為平均重複數，為1～200。R<sup>1</sup>為碳數1～8之烷基或氫原子。再者，氧仲烷基可為單獨1種，亦可混合存在2種以上。\*為與其他基之鍵結位置）

(0022) A<sup>1</sup>O中之氧仲烷基為碳數2～6之氧仲烷基，較佳為碳數2～4之氧仲烷基，更佳為碳數2或3之氧仲烷基。若氧仲烷基之碳數為上述範圍內，則容易使附著追隨性變得良好。又，容易使對於樹脂材料之接著性等亦變得良好。

氧仲烷基中之仲烷基可為直鏈，亦可具有分支結構。作為氧仲烷基，例如可例舉：氧仲乙基、氧仲丙基、或氧仲丁基，較佳為氧仲乙基、氧仲丙基。氧仲烷基可單獨使用1種，亦可併用2種以上。於併用2種以上之情形時，各氧仲烷基可無規地加成，亦能夠以依段加成，但更佳為無規地加成。

(0023) 聚環氧烷結構中之氧仲烷基較佳為包含氧仲乙基及氧仲丙基之至少任二者，亦較佳為包含氧仲乙基及氧仲丙基兩者。於包含氧仲乙基及氧仲丙

基兩者之情形時，其等可構成嵌段結構，但更佳為構成無規結構。於包含氧伸乙基（EO）及氧伸丙基（PO）之情形時，氧伸丙基向對於氧伸乙基之比（PO/EO）以莫耳比計，例如為1/9以上9/1以下，較佳為2/8以上8/2以下，更佳為3/7以上7/3以下。

【0024】 式（1）中， $m$ 表示氧伸烷基之平均重複數，為4~200，較佳為5~100，更佳為10~80，進而較佳為15~50。

又， $R^1$ 中之烷基可為直鏈，亦可具有分支結構。

作為 $R^1$ 中之烷基，可例舉：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基等分支丁基、正戊基、分支戊基、正己基、分支己基、正庚基、異庚基、3-庚基等分支庚基、正辛基、異辛基、2-乙基己基等分支辛基等。

$R^1$ 較佳為碳數1~6之烷基或氫原子，更佳為碳數1~4之烷基或氫原子。

【0025】 上述聚環氧烷結構可經由單鍵連結於主鏈，但較佳為經由單鍵以外之連結基而連結於主鏈。

作為單鍵以外之連結基，可例舉：醚鍵（-O-）、酯鍵（-COO-）、醯胺鍵（-CONR-；R為氫原子或碳數1~4之烷基，較佳為氫原子）、或可具有該等鍵中之至少任一者之烴基。其中，更佳為醚鍵（-O-）、酯鍵（-COO-）、或可具有該等鍵中之至少任一者之烴基。該烴基之碳數並無特別限定，例如為1~10左右即可，較佳為1~4。又，其中，上述聚環氧烷結構更佳為經由醚鍵或-CH<sub>2</sub>O-之任一者鍵結於主鏈。聚環氧烷結構藉由經由其等之任一者鍵結於主鏈而容易製造。再者，於-CH<sub>2</sub>O-中，氧原子可鍵結於上述聚環氧烷結構。

【0026】 聚乙烯縮醛系樹脂典型而言，具有縮醛基、羥基、及乙醯基。但是，聚乙烯縮醛系樹脂亦可因為被官能基改質，或進行再乙醯化反應，故而不含有羥基。再者，縮醛基、羥基、及乙醯基如下述式（3-1）~式（3-3）所示，為直接或經由氧原子鍵結於主鏈之基，不包含聚環氧烷結構所具有之烴基等。

又，聚乙烯縮醛系樹脂較佳為藉由進行改質，而如上所述，具有上述式(1)所示之聚環氧烷結構。再者，以下，對於具有聚環氧烷結構之聚乙烯縮醛系樹脂，為了與其他聚乙烯縮醛系樹脂區分說明，而有時作為改質聚乙烯縮醛樹脂(A)進行說明。

**【0027】** 改質聚乙烯縮醛樹脂(A)之利用聚環氧烷結構(即，式(1)所示之官能基)之改質量較佳為0.1莫耳%以上10莫耳%以下。若使上述改質量為上述範圍內，則85°C之剪切儲存模數變高，可使階差追隨性進一步變得良好。又，容易使接著性亦變得良好。

就此種觀點而言，利用聚環氧烷結構之改質量較佳為0.2莫耳%以上，更佳為0.3莫耳%以上，進而較佳為0.4莫耳%以上，尤佳為0.5莫耳%以上，又，較佳為8莫耳%以下，更佳為6莫耳%以下，進而較佳為4莫耳%以下。

**【0028】** 再者，利用官能基之改質量表示官能基相對於構成聚乙烯縮醛系樹脂之全部乙烯系單體單位之比率。可對於聚乙烯縮醛系樹脂進行質子NMR測定，根據所獲得之光譜而算出改質量。下述之縮醛化度、羥基量、及乙醯化度亦可同樣地進行質子NMR測定，根據所獲得之光譜而算出。

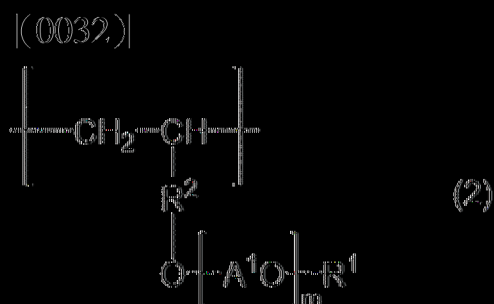
**【0029】** 聚乙烯縮醛系樹脂亦可不具有上述聚環氧烷結構。此種聚乙烯縮醛系樹脂可為具有式(1)所示之官能基以外之改質基之改質聚乙烯縮醛樹脂，亦可為未改質聚乙烯縮醛樹脂。即便為未改質聚乙烯縮醛樹脂，藉由再乙醯化反應等而如下述般使羥基量變少，藉此變得容易降低tan $\delta$ 之最大峰值溫度等，而使階差追隨性變得良好。

**【0030】** 作為式(1)所示之官能基以外之改質基，可例舉烷基。烷基可為直鏈，亦可具有分支結構。烷基之碳數例如為2~30，較佳為3~24，更佳為5~20，進而較佳為7~18，進而更佳為碳數11~18。烷基可直接鍵結於主鏈，較佳為直接鍵結於構成主鏈之源自乙烯基之結構單元，但較佳為經由醚鍵(-O-)、

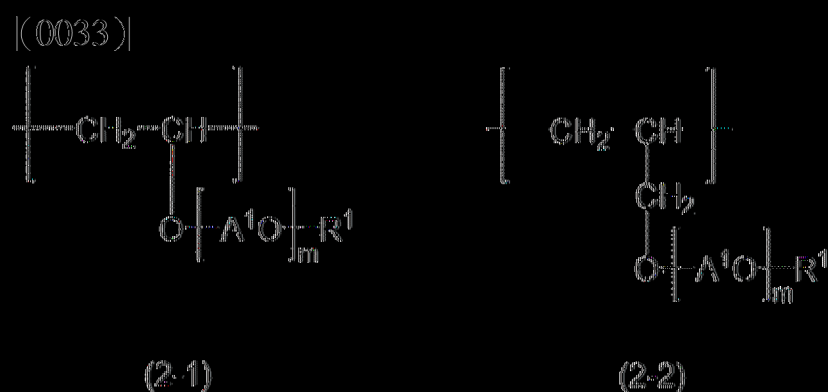
醇鍵 (\*-COO-\*\*)、胺醇鍵 (urethane bond, \*-NHCOO-\*\*) 鍵結，更佳為經由醇鍵、或胺醇鍵鍵結。

再者，於醇鍵、胺醇鍵中，「\*」及「\*\*」係鍵結於烷基或主鏈之鍵結位置，各鍵中較佳為「\*」為鍵結於烷基之鍵結位置，「\*\*」為鍵結於主鏈之鍵結位置。又，胺醇鍵中，R較佳為氫原子。

〔0031〕 聚乙烯縮醛系樹脂係具有源自乙烯基之結構單元作為主鏈者，式(1)所示之官能基可為與構成主鏈之源自乙烯基之結構單元鍵結者。因此，聚乙烯縮醛系樹脂較佳為具有以下式(2)所示之結構單元，其中，更佳為具有以下式(2.1)及式(2.2)所示之結構單元之任一者。



(式(2)中，A<sup>1</sup>O、R<sup>1</sup>、m與上述相同。R<sup>2</sup>為單鍵、或可具有醇鍵或醚鍵之至少任一者之烴基之任一者)



(式(2.1)、(2.2)中，A<sup>1</sup>O、R<sup>1</sup>、m係與上述相同)

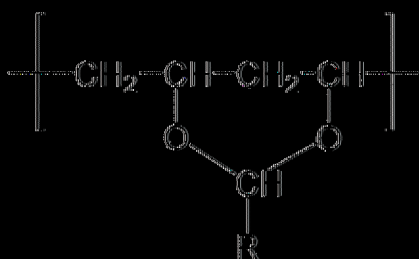
〔0034〕 式(2)、(2.1)、(2.2)中之A<sup>1</sup>O、R<sup>1</sup>、m係如上所述，因此省略其等之說明。式(2)中之R<sup>2</sup>之碳數例如為1~10，較佳為1~4。R<sup>2</sup>之烴基如上所

述，可具有醇鍵或醚鍵，但較佳為不具有醇鍵或醚鍵。

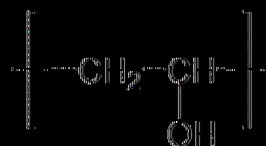
[(0035)] 聚乙稀縮醛系樹脂與型而言，具有縮醛基、羧基、及乙醯基，即，聚乙稀縮醛系樹脂與型而言，具有以下式(3-1)、式(3-2)及式(3-3)所示之結構單元。因此，改質聚乙稀縮醛樹脂較佳為具有以下之式(3-1)、式(3-2)及式(3-3)所示之結構單元、及上述式(2)所示之結構單元。

但是，於聚乙稀縮醛系樹脂例如為未改質聚乙稀縮醛樹脂等之情形時，如上所述，可不具有羧基，亦可不具有式(3-2)所示之結構單元。即，未改質聚乙稀縮醛樹脂可具有以下之式(3-1)及式(3-3)所示之結構單元，還可進而任意地具有以下式(3-2)所示之結構單元。

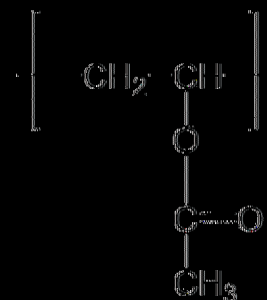
[(0036)]



(3-1)



(3-2)



(3-3)

(式(3-1)中，R表示氫原子或碳數1~19之烷基)

[(0037)] 聚乙稀縮醛系樹脂如上所述，係利用醛，對聚乙稀醇、或使聚乙稀醇改質而成之改質聚乙稀醇進行縮醛化，其後視需要進行改質而獲得者，作為聚乙稀醇，一般使用鹼化度80~99.8莫耳%之聚乙稀醇。

[(0038)] 聚乙稀縮醛系樹脂中所含之縮醛基之碳數並無特別限定，如上述式(3-1)中所示，例如為1~20，但較佳為2~10，更佳為2~6，進而較佳為2、3或4。因此，上述式(3-1)所示之R之碳數較佳為1~9，更佳為1~5，進而較佳為1~3。

作為縮醛基，具體而言，尤佳為縮丁醛基，因此，作為聚乙稀縮醛系樹脂，

較佳為聚乙烯縮丁醛系樹脂。聚乙烯縮醛系樹脂之縮醛化度（即，縮醛量）例如為40%以上，較佳為60莫耳%以上。又，縮醛化度更佳為65莫耳%以上，進而較佳為70莫耳%以上，又，較佳為90莫耳%以下，更佳為88莫耳%以下，進而較佳為85莫耳%以下。藉由使縮醛化度為上述範圍內，而變得容易使羥基量為適度之量，並且含有一定量之式（1）所示之官能基。又，若使縮醛化度為60%以上，則容易使85°C之剪切儲存模數為上述範圍內，使階差追隨性變得良好。

再者，所謂縮醛化度，於聚乙烯縮醛系樹脂之縮醛基為乙醯縮醛基（acetoacetal group）之情形時，意味著乙醯縮醛化度，於縮醛基為縮丁醛基之情形時，意味著縮丁醛化度。

又，縮醛化度表示經縮醛化之乙烯醇單位相對於構成聚乙烯縮醛系樹脂之全部乙烯系單體單位的比率。

**【0039】** 聚乙烯縮醛系樹脂之羥基量較佳為35莫耳%以下，更佳為33莫耳%以下，進而較佳為30莫耳%以下。若使羥基量為上述上限值以下，則變得容易使 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度為適宜值，而使階差追隨性進一步變得良好。

又，聚乙烯縮醛系樹脂之羥基量可為0莫耳%以上，但於改質聚乙烯縮醛樹脂（A）之情形時，就防止黏著膜變得過於柔軟之觀點而言，可含有一定量之羥基量，例如為5莫耳%以上，較佳為9莫耳%以上，更佳為10莫耳%以上，進而較佳為12莫耳%以上。

**【0040】** 又，於聚乙烯縮醛系樹脂例如為未改質聚乙烯縮醛樹脂之情形時，為了降低 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度，使階差追隨性進一步變得良好，需要減少羥基量。因此，未改質聚乙烯縮醛樹脂之羥基量較佳為15莫耳%以下，更佳為10莫耳%以下，進而較佳為5莫耳%以下，進而更佳為3莫耳%以下，最佳為0莫耳%。

再者，羥基量表示羥基相對於構成聚乙烯縮醛系樹脂之全部乙烯系單體單位的比率。

【0041】 上述聚乙烯縮醛系樹脂之乙醯化度（乙醯基量）例如為0.01莫耳%以上50莫耳%以下，但於改質聚乙烯縮醛樹脂（A）之情形時，為了使利用式（1）所示之官能基之改質量為一定值以上，使乙醯化度亦為一定值以下為宜。因此，改質聚乙烯縮醛樹脂（A）之乙醯化度較佳為20莫耳%以下，更佳為15莫耳%以下，進而較佳為12莫耳%以下，進而更佳為5莫耳%以下。

又，改質聚乙烯縮醛樹脂（A）之乙醯化度如上所述，例如為0.01莫耳%以上，但較佳為0.1莫耳%以上，更佳為0.3莫耳%以上。

【0042】 又，就降低經基量，降低 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度，改善階差追隨性之觀點而言，於未改質聚乙烯縮醛樹脂之情形時，其乙醯化度設為一定值以上為宜，較佳為15莫耳%以上，更佳為25莫耳%以上，進而較佳為30莫耳%以上。又，未改質聚乙烯縮醛樹脂之乙醯化度如上所述，例如為50莫耳%以下，但較佳為45莫耳%以下，進而較佳為42莫耳%以下。

再者，乙醯化度表示乙醯基相對於構成聚乙烯縮醛系樹脂之全部乙烯系單體單位的比率。

【0043】 製造聚乙烯縮醛系樹脂時所使用之醛並無特別限定，例如為碳數1~20之醛，一般而言，可適宜地使用碳數為2~10之醛。上述碳數為2~10之醛並無特別限定，例如可例舉：乙醛、丙醛、正丁醛、異丁醛、正戊醛、2-乙基丁醛、正己醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛、苯甲醛等。其中，較佳為乙醛、正丁醛、正己醛、正戊醛等碳數2~6之醛，更佳為碳數2、3、4之醛，進而較佳為正丁醛。該等醛可單獨地使用，亦可併用2種以上。

本發明中所使用之聚乙烯縮醛系樹脂可單獨地使用1種，亦可併用2種以上。

【0044】 於本發明之黏著膜使用聚乙烯縮醛系樹脂作為熱塑性樹脂之情形時，只要發揮本發明之效果，則亦可具有聚乙烯縮醛系樹脂以外之熱塑性樹脂。但是，聚乙烯縮醛系樹脂為主成分較佳。聚乙烯縮醛系樹脂以外之熱塑性樹

脂如上所述。

具體而言，聚乙烯縮醛系樹脂之含量以黏著膜所含有之熱塑性樹脂總量基準計，例如為50質量%以上，較佳為70質量%以上，更佳為90質量%以上，最佳為100質量%。因此，本發明之黏著膜所含有之熱塑性樹脂亦可為僅由聚乙烯縮醛系樹脂所構成。

#### 【0045】 (塑化劑)

本發明之黏著膜亦可含有塑化劑。黏著膜藉由含有塑化劑而變得柔軟，可降低黏著膜之 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度，使階差追隨性進一步變得良好。但是，本發明之黏著膜不含有塑化劑，或者含有少量之塑化劑。藉由僅含有少量塑化劑或不含有塑化劑，可使滲出性變得良好。

又，本發明之黏著膜即便含有少量塑化劑或不含有塑化劑，藉由使用上述特定之熱塑性樹脂，亦可使階差追隨性進一步變得良好。

【0046】 黏著膜中之塑化劑之含量相對於黏著膜所包含之熱塑性樹脂100質量份，未達20質量份。若塑化劑為20質量份以上，則有黏著膜之滲出性變差之情形。

就黏著膜之滲出性之觀點而言，塑化劑之上述含量較佳為15質量份以下，更佳為10質量份以下，進而較佳為5質量份以下，進而更佳為1質量份以下。塑化劑之含量之下限為0質量份。

於本發明之樹脂組成物使用改質聚乙烯縮醛樹脂(A)之情形時，可不含有塑化劑，亦可含有塑化劑，藉由含有塑化劑，容易使階差追隨性變得良好。另一方面，於樹脂組成物使用未改質聚乙烯縮醛樹脂之情形時，就提升樹脂膜之接著性之觀點而言，含有塑化劑為宜。

【0047】 作為塑化劑，例如可例舉：有機酯塑化劑、以及有機磷酸酯塑化劑及有機亞磷酸酯塑化劑等有機磷系塑化劑、聚仲烷基二醇系塑化劑、聚氧仲烷

基醚系塑化劑等有機醚系塑化劑、醇系塑化劑等。

塑化劑可單獨使用1種，亦可併用2種以上。上述之中，較佳為有機酯塑化劑。作為較佳之有機酯塑化劑，可例舉：一元性有機酸酯及多元性有機酸酯等。

**【0048】** 作為一元性有機酸酯，可例舉二醇與一元性有機酸之酯。作為二醇，可例舉：各伸烷基單位為碳數2~4、較佳為碳數2或3且伸烷基單位之重複數為2~10、較佳為2~4之聚伸烷基二醇。又，作為二醇，亦可為碳數2~4、較佳為碳數2或3之單伸烷基二醇（即，重複單位為1）。

作為二醇，具體而言，可例舉：乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、丙二醇、二丙二醇、三丙二醇、四丙二醇、丁二醇等。

作為一元性有機酸，可例舉碳數3~10之有機酸，具體而言，可例舉：丁酸、異丁酸、己酸、2-乙基丁酸、庚酸、正辛酸、2-乙基己酸、正壬酸及癸酸等。

**【0049】** 作為具體之一元性有機酸，可例舉：三乙二醇二-2-乙基丁酸酯、三乙二醇二-2-乙基己酸酯、三乙二醇二辛酸酯、三乙二醇二正辛酸酯、三乙二醇二正庚酸酯、四乙二醇二正庚酸酯、四乙二醇二-2-乙基己酸酯、二乙二醇二-2-乙基丁酸酯、二乙二醇二-2-乙基己酸酯、二丙二醇二-2-乙基丁酸酯、三乙二醇二-2-乙基戊酸酯、四乙二醇二-2-乙基丁酸酯、二乙二醇二辛酸酯、三乙二醇二正庚酸酯、四乙二醇二正庚酸酯、三乙二醇二-2-乙基丁酸酯、乙二醇二-2-乙基丁酸酯、1,2-丙二醇二-2-乙基丁酸酯、1,3-丙二醇二-2-乙基丁酸酯、1,4-丁二醇二-2-乙基丁酸酯、1,2-丁二醇二-2-乙基丁酸酯等。

**【0050】** 又，作為多元性有機酸酯，例如可例舉：己二酸、癸二酸、壬二酸等碳數4~12之二元性有機酸、與碳數4~10之醇之酯化合物。碳數4~10之醇可為直鏈，亦可具有分支結構，亦可具有環狀結構。

具體而言，可例舉：癸二酸二丁酯、壬二酸二辛酯、己二酸二己酯、己二酸二辛酯、己二酸己酯環己酯、己二酸二異壬酯、己二酸庚酯壬酯、二丁基卡必醇

己二酸酯、混合型己二酸酯等。又，亦可為油改質癸二酸醇酸等。作為混合型己二酸酯，可例舉：由選自碳數4~9之烷基醇及碳數4~9之環狀醇中之2種以上之醇製作的己二酸酯。

作為上述有機磷系塑化劑，可例舉：磷酸三丁氧基乙酯、磷酸異癸基苯酯及磷酸三異丙酯等磷酸酯等。

**【0051】** 作為有機酯塑化劑，並不限定於上述各酯之完全酯，亦可為部分酯。例如可為二醇與一元性有機酸之部分酯，亦可為二元性有機酸與醇之部分酯。具體而言，可例舉三乙二醇-單-2-乙基己酸酯等。

進而，可為甘油等3元以上之醇、與一元性有機酸之部分酯等。作為一元性有機酸，可例舉碳數3~24、較佳為碳數6~18之一元性有機酸。作為3元以上之醇、與一元性有機酸之部分酯之具體例，可例舉：甘油與硬脂酸之單或二酯、甘油與2-乙基己酸之單或二酯等。

作為有機酯塑化劑，上述中，可尤其適宜地使用三乙二醇-二-2-乙基己酸酯(3GO)。

**【0052】** 作為聚伸烷基二醇系塑化劑，可例舉聚乙二醇、聚丙二醇、聚(環氧乙烷/環氧丙烷)嵌段共聚物、聚(環氧乙烷/環氧丙烷)無規共聚物、聚四亞甲基二醇等，其中，較佳為聚丙二醇。

**【0053】** 聚氧伸烷基醚系塑化劑係一元或多元醇與聚氧伸烷基之醚化合物。

作為具體之聚氧伸烷基醚系塑化劑，例如可例舉：聚氧伸乙基己醚、聚氧伸乙基庚醚、聚氧伸乙基辛醚、聚氧伸乙基-2-乙基己醚、聚氧伸乙基壬醚、聚氧伸乙基癸醚、聚氧伸乙基烯丙醚、聚氧伸丙基烯丙醚、聚氧伸乙基甘油醚、聚氧伸丙基甘油醚、聚氧伸乙基二甘油醚、聚氧伸丙基二甘油醚、聚氧伸烷基新戊四醇醚等。

聚氧伸烷基醚系塑化劑較佳為多元醇與聚氧伸烷基之醚化合物，更佳為甘油或二甘油與聚氧伸烷基之醚化合物，進而較佳為甘油或二甘油與聚氧伸丙基之醚化合物。

作為醇系塑化劑，可例舉：丁二醇、己二醇、三羥甲基丙烷、新戊四醇等各種多元醇。其中，較佳為三羥甲基丙烷。

**【0054】** 黏著膜除塑化劑以外，還可適當含有與熱塑性樹脂併用之公知添加劑。即，黏著膜可為由聚乙烯縮醛系樹脂等熱塑性樹脂所構成者，但除熱塑性樹脂以外，還可含有視需要摻合之塑化劑、或除塑化劑以外之添加劑。

除塑化劑以外之添加劑具體而言，可例舉：紫外線吸收劑、紅外線吸收劑、抗氧化劑、光穩定劑、接著力調整劑、顏料、染料、螢光增白劑、結晶成核劑等。又，本發明之樹脂組成物亦可被溶劑稀釋而以稀釋液之形態使用。

**【0055】** 又，黏著膜較佳為不含有低分子量化合物、或僅含有少量之低分子量化合物。藉由僅含有少量之低分子量化合物或不含有低分子量化合物，可防止低分子量化合物滲出，使滲出性變得良好。

再者，低分子量化合物係指分子量未達1000之化合物，可例舉：上述塑化劑、或藉由光照射會硬化之反應性稀釋劑等。作為反應性稀釋劑，例如可例舉：(甲基)丙烯酸系單體或(甲基)丙烯酸系低聚物等(甲基)丙烯酸系反應性稀釋劑；環氧單體、環氧低聚物等環氧系反應性稀釋劑；烷氧基矽烷單體、烷氧基矽烷低聚物等聚矽氧系反應性稀釋劑等。關於黏著膜中之低分子量化合物之含量，就滲出性之觀點而言，相對於黏著膜所包含之熱塑性樹脂100質量份，例如未達20質量份。關於低分子量化合物之含量，就滲出性之觀點而言，較佳為15質量份以下，更佳為10質量份以下，進而較佳為5質量份以下，進而更佳為1質量份以下。又，上述之反應性稀釋劑有時會在光硬化後發生交聯而形成交聯結構，因此，就此方面而言，亦較佳為減少低分子量化合物之含量。低分子量化合物之含量之下限為

0質量份。

**【0056】 [聚乙烯縮醛系樹脂之製造方法]**

本發明之黏著膜中所使用之聚乙烯縮醛系樹脂係藉由「利用醛使聚乙烯醇（亦稱為「原料聚乙烯醇」）縮醛化，其後視需要與改質劑反應，或進行再乙醯化處理」而獲得者。作為原料聚乙烯醇，亦可為未改質聚乙烯醇，於獲得改質聚乙烯縮醛樹脂之情形時，亦可使用改質聚乙烯醇作為原料聚乙烯醇。

例如，於製造具有聚環氧烷結構之改質聚乙烯縮醛樹脂（A）時，較佳為藉由以下之製造方法（1）進行製造。

**【0057】 （製造方法（1））**

本製造方法（1）中，首先製造作為原料聚乙烯醇之聚氧伸烷基改質聚乙烯醇。具體而言，可藉由使乙烯酯、與包含具有聚氧伸烷基之乙烯系單體之單體聚合而獲得聚合物後，使聚合物皂化而獲得。皂化時一般使用鹼或酸，但較佳為使用鹼。作為聚氧伸烷基改質聚乙烯醇，可僅使用1種，亦可併用2種以上。

繼而，可利用醛，對上述中所獲得之聚氧伸烷基改質聚乙烯醇進行縮醛化，而獲得改質聚乙烯縮醛樹脂（A）。縮醛化之方法可藉由公知之方法來進行。

**【0058】** 作為製造方法（1）中所使用之乙烯酯，可使用乙酸乙烯酯、甲酸乙烯酯、丙酸乙烯酯、丁酸乙烯酯、異丁酸乙烯酯、三甲基乙酸乙烯酯、新癸酸（versatic acid）乙烯酯、己酸乙烯酯、辛酸乙烯酯、月桂酸乙烯酯、棕櫚酸乙烯酯、硬脂酸乙烯酯、油酸乙烯酯、苯甲酸乙烯酯等。其中，較佳為乙酸乙烯酯。

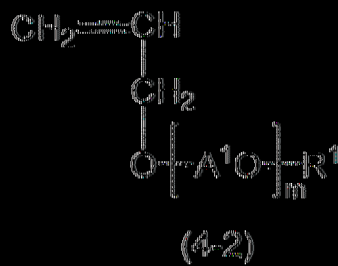
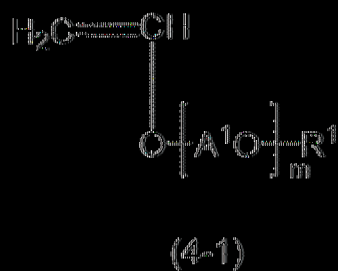
**【0059】** 又，作為製造方法（1）中所使用之具有聚氧伸烷基之乙烯系單體，具體而言，可例舉以下式（4）所示之化合物。其中，較佳為以下式（4-1）所示之聚氧伸烷基乙烯醚、式（4-2）所示之聚氧伸烷基烯丙醚。

**【0060】**



(式(4)中， $\text{A}^1\text{O}$ 、 $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $m$ 係與上述相同)

(0061)



(式(4-1)、(4-2)中， $\text{A}^1\text{O}$ 、 $m$ 、及 $\text{R}^1$ 分別與上述相同)

(0062) 作為具有聚氧仲烷基之乙烯系單體之較佳具體例，可例舉：聚氧

仲乙基單乙烯醚、聚氧仲乙基聚氧仲丙基單乙烯醚、聚氧仲丙基單乙烯醚、聚氧仲乙基單烯丙醚、聚氧仲乙基聚氧仲丙基單烯丙醚、聚氧仲丙基單烯丙醚、聚氧仲乙基烷基乙烯醚、聚氧仲乙基聚氧仲丙基烷基乙烯醚、聚氧仲丙基烷基乙烯醚、聚氧仲乙基烷基烯丙醚、聚氧仲乙基聚氧仲丙基烷基烯丙醚、聚氧仲丙基烷基烯丙醚等。

(0063) 又，於未改質聚乙烯縮醛樹脂之情形時，較佳為藉由以下之製造方法(2)來製造。

(製造方法(2))

於本製造方法(2)中，利用醛使原料聚乙醇縮醛化，而獲得聚乙醇縮醛系樹脂(以下，亦稱為原料聚乙醇縮醛系樹脂)。此處，作為原料聚乙醇，使用使聚乙醇離皂化而獲得之未改質聚乙醇。繼而，可對於原料聚乙醇縮醛系樹脂，進行再乙醯化處理，而獲得未改質聚乙醇縮醛樹脂。作為再乙醯化處理，可利用先前公知之方法來進行，但只要使用乙酸酐，於吡啶等鹼存在下進行即可。又，再乙醯化處理例如可加熱至 $50^\circ\text{C}$ 以上 $100^\circ\text{C}$ 以下、較佳為 $70^\circ\text{C}$ 以上 $90^\circ\text{C}$ 以下

第21頁，共42頁(發明說明書)

左右來進行。對於聚乙烯縮醛系樹脂，藉由進行再乙醯化處理，而使得羥基量變少，變得容易降低 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度，使階差追隨性進一步變得良好。

**【0064】** 又，於側鏈具有作為改質基之烷基之改質聚乙烯縮醛樹脂可藉由以下製造方法來製造。

首先，利用醛使原料聚乙烯醇縮醛化，而獲得聚乙烯縮醛系樹脂（以下，亦稱為原料聚乙烯縮醛系樹脂）。此處所使用之原料聚乙烯醇係使聚乙烯酯皂化所獲得者，較佳為未改質聚乙烯醇。

繼而，使具有烷基之改質劑與上述原料聚乙烯縮醛系樹脂反應，向原料聚乙烯縮醛系樹脂導入烷基。作為改質劑，可為具有「與原料聚乙烯縮醛系樹脂所具有之羥基反應而形成胺酯鍵或酯鍵之反應性基」的化合物。具體而言，可例舉：異氰酸正十八烷基酯等烷基之碳數為2~30之異氰酸烷基酯。又，可例舉：碳數3~31之羧酸、或上述羧酸之酸酐、羧酸酯、羧醯鹵化物等羧酸衍生物。作為羧酸衍生物，較佳為2-乙基己醯氯、月桂醯氯、肉豆蔻氯、棕櫚醯氯、硬脂醯氯等羧醯氯（carboxylic chloride）。

**【0065】** 本發明之黏著膜不僅指黏著膜單獨體，還廣泛包括於其他構件上進行積層、覆膜等而成為層狀、膜狀之形態的情形，一般而言，稱為片之厚度相對較大者亦稱為黏著膜。就黏著膜之強度及階差追隨性之觀點而言，黏著膜之厚度較佳為100  $\mu\text{m}$ 以上2000  $\mu\text{m}$ 以下，更佳為100  $\mu\text{m}$ 以上1500  $\mu\text{m}$ 以下。又，就黏著膜之強度之觀點而言，黏著膜之厚度進而較佳為200  $\mu\text{m}$ 以上，進而更佳為300  $\mu\text{m}$ 以上。又，就階差追隨性之觀點而言，黏著膜之厚度進而較佳為500  $\mu\text{m}$ 以下。

**【0066】** 本發明之黏著膜可為由單層所構成者。構成單層膜之層可具有如上述黏著膜中所述之組成。即，構成單層膜之層可含有熱塑性樹脂，且不含有塑化劑，或者以如上述之含量含有塑化劑。進而，如上所述，亦可適當摻合添加劑。

**【0067】** 又，本發明之黏著膜亦可為2層以上之多層膜。多層膜只要膜整

體之組成如上述黏著膜中所述即可，但各層（以下，亦稱為「第1層」）可具有如上述黏著膜中所述之組成。即，各第1層可如上述黏著膜中所述，包含熱塑性樹脂，且不含有塑化劑，或者以如上所述之含量含有塑化劑。進而，亦可如上所述，適當摻合添加劑。多層膜之各第1層中之熱塑性樹脂、塑化劑、及添加劑之詳情、及各成分之含量之詳情係如上述黏著膜中所述。但是，作為含量基準之熱塑性樹脂係各第1層所含有之熱塑性樹脂。多層膜中，各第1層可為相同組成，亦可為不同組成。

又，多層膜亦可為上述第1層、與第1層以外之層（以下，亦稱為「第2層」）的積層體。具體而言，例如可例舉：第1層/第2層/第1層之3層結構等。

再者，於本發明之黏著膜為2層以上之多層膜之情形時，較佳為各層分別為上述黏著膜中所述之組成。

#### 【0068】 [黏著膜之製造方法]

本發明之黏著膜可藉由「利用公知之方法將包含聚乙烯縮醛系樹脂等熱塑性樹脂之樹脂組成物成形為膜狀」來製造。樹脂組成物可至少包含以上述方式製造之聚乙烯縮醛系樹脂等熱塑性樹脂，並視需要添加塑化劑、添加劑等來製備。又，樹脂組成物亦可適當於溶劑中進行稀釋來使用。

【0069】 更具體而言，關於單層之黏著膜，可將樹脂組成物塗佈於脫模片等支持體上，或者使之流入至模框中，視需要適當進行加熱、乾燥而成形為膜狀，亦可藉由擠製成形、加壓成形等而成形為膜狀。

又，如上所述，於使原料聚乙烯縮醛系樹脂與改質劑反應而獲得聚乙烯縮醛系樹脂之情形時，亦可以如下方式成形。即，亦可將包含原料聚乙烯縮醛系樹脂、改質劑、及其他視需要摻合之塑化劑等添加劑之組成物塗佈於剝離片等支持體上，或者使之流入至模框，其後進行加熱，藉此使改質劑與原料聚乙烯縮醛系樹脂反應並且成形為膜狀。

【0070】 進而，於黏著膜為多層膜之情形時，可準備構成各層之樹脂組成物，由構成其各層之樹脂組成物獲得多層膜之各層。於多層結構之情形時，可將各層適當重疊而獲得，亦可藉由共擠製等而成形多層結構。

【0071】 本發明之黏著膜可用於各種用途，並無特別限定，較佳為用於各種顯示器用途、層合玻璃用途等。顯示器較佳為車載用，但並無特別限定。又，顯示器可例舉：液晶顯示器、有機EL顯示器等，其中，較佳為液晶顯示器。

層合玻璃係用於汽車、電車等車輛、船舶、飛行器等各種交通工具；或者高樓、公寓、獨立住宅、大廳、體育館等各種建築物；或者切削、研磨等機床、挖掘機或起重機等建設機械等的窗玻璃，其中，較佳為汽車等車輛用途。本發明之黏著膜由於階差追隨性及滲出性良好，故而適宜用於車載用顯示器等各種顯示器或車輛用窗玻璃。

再者，應用本發明之黏著膜之層合玻璃及顯示器可具備下述積層體。

【0072】 <積層體>

本發明之黏著膜較佳為與有機材料基材、無機材料基材等基材一同使用而用作積層體之一部分，但並無特別限定。本發明之積層體具體而言，可具備：上述黏著膜、及無機材料基材與有機材料基材之至少任一者。又，黏著膜較佳為以接著於無機材料基材、及有機材料基材之至少任一者之方式進行配置，更佳為配置在接著於有機材料基材之位置處。黏著膜由於對於各種樹脂材料之接著力較高，故而可藉由配置在接著於有機材料基材之位置處，而以高接著力接著於基材。

又，較佳為在接著黏著膜之至少一個基材之表面設置階差。

本發明中，即便基材表面設有階差，由於黏著膜之階差追隨性良好，故而亦可防止視認性或貼附性降低。

再者，具有階差之基材之詳情如下所述，但階差之高度並無特別限制，例如

為10~500  $\mu\text{m}$ ，較佳為10~300  $\mu\text{m}$ 。

【0073】 較佳為根據階差之高度來調整黏著膜之厚度。藉此，可使黏著膜之階差追隨性進一步變得良好。就黏著膜之階差追隨性之觀點而言，黏著膜之厚度較佳為階差高度之1.5倍以上，更佳為2.0倍以上。

【0074】 作為有機材料基材，可例舉有機樹脂板、樹脂膜等。有機樹脂板亦被稱為有機玻璃板。作為有機樹脂板，並無特別限定，可例舉：聚碳酸酯板、聚甲基丙烯酸甲酯板等（甲基）丙烯酸板、丙烯腈苯乙烯共聚物板、丙烯腈丁二烯苯乙烯共聚物板、聚對苯二甲酸乙二酯板等聚酯板、氟系樹脂板、聚氯乙烯板、氯化聚氯乙烯板、聚丙烯板、聚苯乙烯板、聚砒板、環氧樹脂板、酚樹脂板、不飽和聚酯樹脂板、聚醯亞胺樹脂板等各種有機玻璃板。有機樹脂板亦可適當進行表面處理等。

上述之中，就透明性、耐衝擊性優異之方面而言，較佳為聚碳酸酯板，就透明性較高，耐候性、機械強度優異之方面而言，較佳為（甲基）丙烯酸板，其中，更佳為聚碳酸酯板。

有機樹脂板之厚度並無特別限定，較佳為0.1 mm以上，進而較佳為0.4 mm以上，又，較佳為5.0 mm以下，進而較佳為3.0 mm以下。

【0075】 樹脂膜並無特別限定，可例舉：（甲基）丙烯酸樹脂膜、聚碳酸酯膜、聚對苯二甲酸乙二酯（PET）膜、聚萘二甲酸乙二酯（PEN）膜等聚酯樹脂膜、聚乙烯膜、聚丙烯膜等聚烯烴樹脂膜、環狀聚烯烴（COP）膜、三乙醯纖維素（TAC）膜、聚醚砒（PES）樹脂膜、聚醯亞胺樹脂膜等。又，亦可於樹脂膜之表面設置表面層，該表面層由「以（甲基）丙烯酸系樹脂等所構成」之硬塗層等所構成。

樹脂膜之厚度並無特別限定，較佳為30  $\mu\text{m}$ 以上，進而較佳為50  $\mu\text{m}$ 以上，又，較佳為500  $\mu\text{m}$ 以下，進而較佳為450  $\mu\text{m}$ 以下。

再者，將厚度相對較大，柔軟性較低，一般無法彎折者稱為有機樹脂板，另一方面，將厚度相對較小，一般能夠彎折者大致稱為樹脂膜，其等並未得到明確區分。

**【0076】** 作為無機材料基材，可例舉無機玻璃板。無機玻璃板並無特別限定，例如可例舉：浮法平板玻璃、強化玻璃、著色玻璃、拋光板玻璃、壓花玻璃、夾網平板玻璃、夾線平板玻璃、紫外線吸收板玻璃、紅外線反射板玻璃、紅外線吸收板玻璃、綠色玻璃等各種玻璃板。無機玻璃亦可進行表面處理等。無機玻璃之厚度並無特別限定，較佳為0.1 mm以上，進而較佳為1.0 mm以上，又，較佳為5.0 mm以下，進而較佳為3.0 mm以下。

**【0077】** 有機材料基材、或無機材料基材亦可為適當附有電極、感測器等者。電極係由積層於上述各基材之導電層所構成。

作為感測器，可例舉觸控感測器。觸控感測器係感測手指、觸控筆、其他物體接近或接觸基材之觸控輸入的感測器，係由積層於上述基材之導電層所構成。觸控感測器會因手指、觸控筆、其他物體接近或接觸基材而使導電層產生靜電電容、電流、電壓等電性變化，根據該電性變化來感測觸控輸入。

導電層並無特別限定，只要為先前公知之具有透明性之電極材料，則可無特別限定地使用，例如可例舉：銦錫氧化物（ITO）導電膜、氧化錫導電膜、氧化鋅導電膜、高分子導電膜等。

**【0078】** 上述中，無機材料基材較佳為選自由無機玻璃板、以及附有電極或感測器之至少任一者之無機玻璃板所組成之群。有機材料基材較佳為選自由聚碳酸酯板、（甲基）丙烯酸板、以及PET膜、COP膜、聚碳酸酯膜、及於該等膜上附有電極或感測器之至少任一者之膜所組成之群中之至少1種。

又，積層有電極、感測器等導電層之有機材料基材（尤其是膜）亦可在設置有導電層之面之相反側面上形成上述硬塗層。設置有導電層之面通常為與黏著

膜之接著面，但本發明之黏著膜對於設置有硬塗層之面亦可具有高接著力。

**【0079】** 又，有機材料基材、或無機材料基材亦可為適當附有印刷部者。印刷部係為了加飾各種基材、或保護用來固定基材之周邊部之樹脂免受紫外線影響而形成者，例如可例舉黑色印刷部。黑色印刷部亦被稱為黑色陶瓷點，較佳為由黑色陶瓷所構成。黑色陶瓷點係一般為了確保遮光性而形成之印刷部。黑色陶瓷點例如可藉由將黑色陶瓷點印刷用油墨印刷於基材表面，對黑色陶瓷點印刷用油墨進行烘烤而成形。

有機材料基材、或無機材料基材有時因其表面附有導電層、印刷部而具有階差，但典型而言，因附有印刷部而具有階差。

印刷部較佳為附於無機玻璃板、有機玻璃板等玻璃上。

**【0080】** 積層體並無特別限定，較佳為具備選自無機材料基材及有機材料基材中之一對基材、以及配置於該等一對基材之間之接著用膜，並且具有3層以上之多層結構。

於此種多層結構中，接著用膜例如可接著於一對基材之兩者，藉此介隔接著用膜將一對基材接合。於該情形時，接著用膜可為上述本發明之黏著膜。

**【0081】** 又，積層體亦可具有於上述一對基材之間進而配置其他中間構件之結構，於此種結構中，可於各基材與中間構件之間配置接著用膜，具有5層以上之多層結構。此處，接著用膜可接著於各基材與中間構件，藉此可介隔接著用膜將基材與中間構件接合。又，於以上說明之5層以上之多層結構中，基材與中間構件之間之接著用膜為樹脂膜，只要至少一者為本發明之黏著膜即可，但較佳為兩者為本發明之黏著膜。

中間構件可具有上述無機材料基材及有機材料基材之至少任一者，可於本發明之黏著膜接著之位置處配置無機材料基材及有機材料基材之至少任一者。

**【0082】** 以上說明之積層體只要構成顯示器、層合玻璃等即可，但並不限

定於其等。又，如下所述，中間構件亦可為觸控面板或調光元件等，但並不限定於其等。又，上述無機材料基材或有機材料基材只要構成觸控面板、調光元件、構成顯示器之顯示元件等之一部分即可。

**【0083】** 本發明之積層體例如可藉由準備接著用膜，介隔準備好之接著用膜將各構件進行壓接來製造。例如可藉由依序重疊基材、接著用膜、及基材並將其等進行壓接來製造。又，於設置中間構件之情形時，可藉由依序重疊基材、接著用膜、中間構件、接著用膜及基材並將其等進行壓接來製造。

**【0084】** 繼而，參照圖式對積層體之具體例進行說明。圖1係表示第1實施方式之積層體。於第1實施方式中，將積層體30A應用於附帶觸控面板之顯示器。附帶觸控面板之顯示器較佳為車載用顯示器。本實施方式之積層體30A具備顯示元件31、表面保護面板32、及配置於顯示元件31與表面保護面板32之間之觸控面板33，且於觸控面板33與顯示元件31之間、及表面保護面板32與觸控面板33之間分別配置接著用膜34A、34B。

**【0085】** 表面保護面板32較佳為有機樹脂板或無機玻璃板之任一者，但較佳為無機玻璃板。

又，作為顯示元件31，可例舉有機EL顯示元件、液晶顯示元件。顯示元件31較佳為於其表面側之最外面設置有偏光板（偏光膜）。再者，表面側之最外面係指表面保護面板側之最外面，其相反側亦稱為背面側。

偏光板（偏光膜）一般而言具有於聚乙烯醇樹脂膜等偏光元件之兩面設置有保護膜之構成。保護膜由上述樹脂膜所構成，較佳為PET膜、COP膜、或TAC膜之任一者。因此，於顯示元件31之表面側之最外面一般配置有機材料基材。

又，顯示元件31即便在其表面側之面未設置有偏光板（偏光膜）之情形時，亦可在表面側之最外面設置保護膜，因此，於此種情形時，顯示元件31之表面側之最表面亦由有機材料基材所構成。

【0086】 觸控面板33可由附帶觸控感測器之無機玻璃、有機樹脂板、或樹脂膜之任一者所構成，但較佳為附帶觸控感測器之無機玻璃或樹脂膜。

又，於觸控面板33中，無機玻璃、有機樹脂板、或樹脂膜亦可其等中之2者以上積層而為多層結構體。於此情形時，於觸控面板33中，可於無機玻璃、有機樹脂板、或樹脂膜之任一者上附帶觸控感測器。

又，觸控面板33亦可於表面側之最表面、背面側之最表面之任一面上配置由樹脂膜所構成之保護膜。因此，觸控面板33與接著用膜34A、34B之接著面成為無機玻璃、有機玻璃、及樹脂膜之任一者。

【0087】 表面保護面板32較佳為有機樹脂板或無機玻璃板之任一者，但較佳為無機玻璃板。又，較佳為於表面保護面板32之背面之一部分上設置印刷部。印刷部例如為黑色陶瓷點，在表面保護面板32之外緣部例如設置成框狀，在設置有印刷部之部分、與未設置有印刷部之部分具有階差。表面保護面板32之背面成為與接著用膜34B之接著面。

【0088】 接著用膜34A、34B係分別接著於顯示元件31及觸控面板33、觸控面板33及表面保護面板32，而將其等接合者。接著用膜34A、34B中之任一者可為上述本發明之黏著膜，較佳為兩者均為本發明之黏著膜。

本發明之黏著膜不僅對於無機材料基材具有高接著力，對於各種樹脂材料（即，有機材料基材）亦具有高接著力。因此，顯示元件33、表面保護面板32、及觸控面板33與接著用膜34A、34B之接著面有時由有機材料基材所構成，但即便於此種情形時，亦能夠以高接著力使顯示元件31與觸控面板33、及表面保護面板32與觸控面板33接合。

又，接著用膜34由於階差追隨性較高，故而即便接著於有階差之基材（表面保護面板32等），亦可防止視認性或貼附性降低。進而，由於滲出性亦較高，故而亦可防止顯示元件31之污染等。

【0089】 圖2係表示第2實施方式之積層體。第2實施方式之積層體亦應用於顯示器，但積層體30B省略觸控面板33，因此，積層體30B具備：顯示元件31、表面保護面板32、及配置於其等間之接著用膜34。

顯示元件31、及表面保護面板32之詳情係如第1實施方式中所述。

本實施方式中，接著用膜34由本發明之黏著膜所構成。接著用膜34(黏著膜)係接著於顯示元件31及表面保護面板32，將其等接合，因此，與第1實施方式同樣地，顯示元件31與表面保護面板32以高接著力接合。

又，本發明之黏著膜由於階差追隨性較高，故而如上所述，即便接著於有階差之基材(表面保護面板32)，亦可防止視認性或貼附性降低。進而，由於滲出性亦較高，故而亦可防止顯示元件31之污染等。

【0090】 再者，於第2實施方式中，表面保護面板32亦可為OGS(one glass solution，單片玻璃方案)面板，於表面保護面板32上亦可設置觸控感測器等感測器。因此，表面保護面板32亦可由附帶感測器之無機玻璃等所構成。

【0091】 圖3係表示第3實施方式之積層體。第3實施方式之積層體30C係應用於附帶調光功能之層合玻璃。本實施方式之積層體30C具備：一對層合玻璃構件(基材)41、42、及配置於一對層合玻璃構件41、42之間之調光元件43，於一層合玻璃構件41與調光元件43之間、及另一層合玻璃構件42與調光元件43之間分別配置接著用膜34A、34B。

層合玻璃構件41、42可為無機玻璃板、有機樹脂板之任一者，其等之詳情如上述中所說明。

又，層合玻璃構件41、42與第1及第2實施方式同樣地，較佳為在與接著用膜34A、34B之接著面之至少任一面上設置黑色陶瓷點等印刷部，而具有階差部。

【0092】 調光元件43較佳為具備2片樹脂膜、及配置於2片樹脂膜之間之調光層的調光膜。因此，調光元件43之與接著用膜34A、34B之接著面為樹脂材料。

作為調光元件43所具備之樹脂膜，可例舉：PET膜、PEN膜等聚酯樹脂膜、(甲基)丙烯酸系樹脂膜、TAC膜、PES樹脂膜、聚醯亞胺樹脂膜等。其等之中，就操作性等觀點而言，較佳為聚酯樹脂膜，其中，更佳為PET膜。

又，2片樹脂膜分別於調光層側之面設置構成電極之導電層。

**【0093】** 調光層係藉由切換對2片樹脂膜之導電層間施加電壓及不施加電壓而使得可見光透過率產生變化者。調光層可由聚合物分散型液晶(PDLC)等液晶層所構成。又，調光膜亦可為SPD(Suspended Particle Device, 懸浮粒子裝置)膜、電致變色膜、電泳膜裝置等。因此，調光層可為包含樹脂基質及分散於樹脂基質中之光調整懸浮液之SPD層，亦可為電致變色材料層。又，亦可為具備電泳粒子、及使電泳粒子分散之分散劑的電泳層等。

**【0094】** 本實施方式中，接著用膜34A、34B分別接著於層合玻璃構件41及調光元件43、以及層合玻璃構件42及調光元件43而將其等接合。接著用膜34A、34B為樹脂膜，其中任一者可為上述本發明之黏著膜，但較佳為兩者均為本發明之黏著膜。

本發明之黏著膜不僅對於無機材料基材具有高接著力，對於各種樹脂材料亦具有高接著力，因此能夠以高接著力將層合玻璃構件41、42、與調光元件43接合。

又，本發明之黏著膜由於階差追隨性較高，故而即便接著於有階差之層合玻璃構件41、42，亦可防止視認性或貼附性降低。進而，由於滲出性亦較高，故而可防止因滲出而調光元件43等被污染。

**【0095】** 圖4係表示第4實施方式之積層體。本實施方式之積層體30D係應用於層合玻璃。本實施方式之積層體30D具備一對層合玻璃構件41、42、及配置於一對層合玻璃構件41、42之間之接著用膜34，接著用膜34可由上述本發明之黏著膜所構成。

一對層合玻璃構件41、42係如第3實施方式中所說明。接著用膜34（黏著膜）係接著於層合玻璃構件41、42兩者而將其等接合，因此能夠以高接著力接合層合玻璃構件41、42。

一對層合玻璃構件41、42係如第3實施方式中所說明，較佳為於至少一者上設置印刷部，而具有階差部。接著用膜34（黏著膜）係接著於層合玻璃構件41、42兩者而將其等接合，因此即便層合玻璃構件41、42如上所述具有階差，亦可防止視認性或貼附性降低。又，由於滲出性亦較高，故而亦可防止周邊構件之污染等。

【0096】 再者，於以上之第1～第4實施方式中，假定接著用膜為單層黏著膜之例進行了說明，但作為接著用膜，亦可使用多層膜。多層膜之構成如上述中所說明。

#### [實施例]

【0097】 藉由實施例對本發明進一步詳細地進行說明，但本發明並不受該等例任何限定。再者，本發明之各物性值之測定方法、及評價方法如以下所示。

#### 【0098】 <重量平均分子量（Mw）>

使黏著膜溶解於四氫呋喃中至0.05重量%之濃度，使用注射器過濾器（Merck公司製造，Millex-LH 0.45  $\mu\text{m}$ ）進行過濾後，使用凝膠滲透層析法（Waters公司製造，e2690）來測定分子量。重量平均分子量（Mw）係使用藉由單分散聚苯乙烯標準試樣所製作之分子量校正曲線而算出。又，管柱使用Shodex GPC KF-806L（昭和電工公司製造），析出液使用四氫呋喃。

#### 【0099】 <剪切儲存模數、及 $\tan\delta$ 之最大峰值溫度>

將實施例、比較例中所獲得之黏著膜切成長度10 mm、寬度5 mm，使用動態黏彈性測定裝置（IT計測控制股份有限公司製造，商品名「DVA-200」），於以下之測定條件下測定黏彈性，檢測85°C之剪切儲存模數（G'）。

又，讀取根據黏彈性測定之結果所獲得之損耗正切 $\tan\delta$ 之峰值溫度。於-50~150°C之溫度範圍內將上述峰值溫度中 $\tan\delta$ 達到最大值之峰值溫度作為 $\tan\delta$ 之最大峰值溫度。

(測定條件)

變形方式：剪切模式、測定溫度：-50°C~200°C、升溫速度：5°C/分鐘、測定頻率：1 Hz、應變：1%

【0100】 <改質量、縮醛化度、乙醃化度、及羥基量>

使聚乙烯縮醛系樹脂溶解於氯仿-d中，使用<sup>1</sup>H-NMR（核磁共振譜）進行測定，並對各單元之莫耳比進行分析，藉此求出。

【0101】 <凝膠分率>

依據說明書記載之方法，使用各實施例、比較例之黏著膜來測定凝膠分率。

【0102】 <階差追隨性>

準備76 mm×52 mm×厚度1.0~1.2 mm大小之白板玻璃（松浪硝子工業股份有限公司製造，S9112）。

製作在具有大小56 mm×32 mm之開口之76 mm×52 mm×厚度75 μm大小之單面具備黏著劑層的框體。將該框體貼附於白板玻璃而於白板玻璃形成階差。

將黏著膜切成76 mm×52 mm之大小，將所切出之黏著膜貼附於白板玻璃之形成有階差之面。

進而，將塗佈有ITO之聚對苯二甲酸乙二酯膜（ITO-PET，SEKISUI NANO COAT TECHNOLOGY股份有限公司製造）切成76 mm×52 mm之大小並貼附於黏著膜之上，而製作積層體。此時，塗佈有ITO之面之相反側之面成為與黏著膜之接著面。

再者，分別貼附框體、黏著膜及聚對苯二甲酸乙二酯膜時，儘量不使氣泡混入。

然後，使用真空貼合機，於90°C及1 atm之條件下壓接積層體10分鐘後，使用高壓釜，於90°C、0.5 MPa之條件下進行30分鐘處理，其後，停止加熱，在高壓釜之溫度成為30°C以下後，對高壓釜進行減壓，自高壓釜中取出積層體，而製作評價用樣品。

使用數位顯微鏡（基恩士股份有限公司製造），對評價用樣品之階差之界面進行觀察，基於下述基準來進行評價。

（評價基準）

AA：於階差之界面無法確認到氣泡殘存。

B：於階差之界面確認到氣泡殘存。

【0103】 <再利用性>

假定自使用過之各構成體回收黏著膜，使用超高壓水銀燈，對各黏著膜照射4000 mJ/cm<sup>2</sup>之365 nm波長之光。

使用混練機(商品名「Labo Plastomill」,東洋精機製作所股份有限公司製造),將照射光後之黏著膜於160°C、50 rpm之條件下進行10分鐘熔融混練。然後，回收混練黏著膜所獲得之混練物。

將所獲得之混練物於160°C、20 MPa之條件下進行加壓成型，而製作30 cm×30 cm×200 μm之片狀成形體。

使用數位顯微鏡（基恩士股份有限公司製造），觀察5片之片狀成形體之外觀，數出片狀成形體中之光學瑕疵之數量，基於下述基準來進行評價。

（評價基準）

A：5片之片狀成形體中之光學瑕疵之合計數量未達5個。

B：5片之片狀成形體中之光學瑕疵之合計數量為5個以上。

【0104】 <滲出性>

使用紅色之油性標記油墨，於黏著膜上在縱方向及橫方向上各劃2條線，用

4條線在黏著膜上做標記。

以經標記之黏著膜之主面位於與鉛直方向平行之平面內之方式配置經標記之黏著膜，於10°C之條件下放置2個月。

將經標記之黏著膜放置2個月後，針對放置了2個月之經標記之黏著膜，利用目視確認是否因滲出之塑化劑而產生標記之暈開及下垂，基於下述基準來進行評價。

(評價基準)

AA：4條線均未見暈開及下垂，塑化劑未產生滲出。

A：4條線中1條線可見暈開或下垂。但是，其他3條線未見暈開及下垂。

B：4條線中2條以上之線可見暈開或下垂。

【0105】 (實施例1)

[環氧乙烷改質聚乙烯醇之合成]

準備表1中記載之烯丙醚單體(1)。烯丙醚單體(1)係式(4-2)所示之化合物，A<sup>1</sup>O中混合存在氧伸乙基(EO)與氧伸丙基(PO)，且其等為無規結構，其莫耳比、EO與PO之平均重複數、及末端基(R<sup>1</sup>)如表1所示。

向附帶攪拌機、溫度計、滴液漏斗及回流冷凝器之燒瓶中添加乙酸乙烯酯515質量份、烯丙醚單體(1)151質量份、及甲醇333質量份，將系統內氮氣置換後，將溫度升溫至60°C。向該系統中添加2,2-偶氮二異丁腈1.3質量份，使聚合開始。聚合開始後歷時5小時終止聚合。利用烘箱進行加熱，將未反應之單體及甲醇去除後，製備共聚物之40質量%甲醇溶液。

將所獲得之共聚物之甲醇溶液100質量份於40°C進行攪拌，並且添加3質量%之NaOH甲醇溶液7.4質量份，充分混合後進行放置。2小時後，將固化之聚合物利用粉碎機進行粉碎，利用甲醇洗淨後，進行乾燥而獲得聚合物粉末(環氧乙烷改質聚乙烯醇)。

**【0106】 [聚乙烯縮丁醛 (PVB1) 之製備]**

將所獲得之聚合物粉末280 g添加至純水2100 g中，於90°C之溫度攪拌約2小時而使之溶解。將該溶液冷卻至40°C，添加濃度35質量%之鹽酸160質量份及正丁醛130質量份，將液溫降低至20°C，保持溫度，進行縮醛化反應，使反應產物析出。其後，使液溫成為40°C，保持3小時而使反應結束，藉由常規方法進行中和、水洗及乾燥，而獲得聚乙烯縮醛系樹脂 (PVB1) 之白色粉末。

**【0107】 [黏著膜之製作]**

將所獲得之聚乙烯縮醛系樹脂 (PVB1) 於溫度160°C、壓力20 MPa進行加壓成形而獲得厚度200  $\mu\text{m}$ 之黏著膜。針對所獲得之黏著膜，測定 $\tan\delta$ 之極大峰值溫度、剪切儲存模數 ( $G'$ )、及凝膠分率，評價階差追隨性、再利用性、及滲出性。

**【0108】 (實施例2~4)**

除將黏著膜之厚度如表1所示進行調整以外，以與實施例1相同之方式來實施。

**【0109】 (實施例5)**

除將所使用之烯丙醚單體變更為烯丙醚單體 (2)，且變更為乙酸乙烯酯723質量份、烯丙醚單體 (2) 257質量份、及甲醇20質量份、2,2-偶氮二異丁腈1質量份，並將聚合溫度變更為62°C以外，以與實施例1相同之方式實施而獲得PVB2。然後，使用PVB2，並將黏著膜之厚度如表1所示進行調整，除此以外，以與實施例1相同之方式製作黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式測定物性，或進行評價。

再者，烯丙醚單體 (2) 係式 (4-2) 所示之化合物， $A^1O$ 為氧伸丙基 (PO)，其平均重複數、及末端基 ( $R^1$ ) 如表1中所示。

**【0110】 (實施例6)**

除變更為乙酸乙烯酯552質量份、烯丙醚單體 (1) 162質量份、及甲醇286質

量份、2,2-偶氮二異丁腈1.4質量份以外，以與實施例1相同之方式實施，而獲得PVB3，使用PVB3，並將黏著膜之厚度如表1所示進行調整，除此以外，以與實施例1相同之方式製作黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式測定物性，或進行評價。

**【0111】** （實施例7）

除變更為乙酸乙酯572質量份、烯丙醚單體（1）143質量份、及甲醇286質量份、2,2-偶氮二異丁腈0.7質量份以外，以與實施例1相同之方式實施，而獲得PVB4，使用PVB4，並將黏著膜之厚度如表1所示進行調整，除此以外，以與實施例1相同之方式製作黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

**【0112】** （實施例8）

除將所使用之烯丙醚單體變更為烯丙醚單體（3），且變更為乙酸乙酯751質量份、烯丙醚單體（3）230質量份、及甲醇20質量份、2,2-偶氮二異丁腈1質量份以外，以與實施例1相同之方式實施，而獲得PVB5。然後，使用PVB5，並將黏著膜之厚度如表1所示進行調整，除此以外，以與實施例1相同之方式製作黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

再者，烯丙醚單體（3）係式（4-2）所示之化合物，A<sup>1</sup>O混合存在氧伸乙基（EO）與氧伸丙基（PO），其平均重複數、及末端基（R<sup>1</sup>）如表1所示。

**【0113】** （實施例9）

除將所使用之烯丙醚單體變更為烯丙醚單體（4），且變更為乙酸乙酯834質量份、烯丙醚單體（4）147質量份、及甲醇20質量份、2,2-偶氮二異丁腈0.5質量份，並將聚合溫度變更為52°C以外，以與實施例1相同之方式實施，而獲得PVB6。相對於100質量份之PVB6，混合15質量份之塑化劑（3GO）而獲得樹脂組成物，使用所獲得之樹脂組成物，並將黏著膜之厚度如表1所示進行調整，除

此以外，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

再者，烯丙醚單體(4)係式(4-2)所示之化合物，A<sup>1</sup>O為氧伸乙基(EO)，其平均重複數、及末端基(R<sup>1</sup>)如表1所示。

**【0114】** (比較例1)

使用作為未改質聚乙烯縮丁醛之PVB7作為要使用之聚乙烯縮醛系樹脂，且相對於100質量份之PVB7，混合40質量份之塑化劑(3GO)，而獲得樹脂組成物，使用所獲得之樹脂組成物，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

**【0115】** (比較例2)

使用作為未改質聚乙烯縮丁醛之PVB8作為要使用之聚乙烯縮醛系樹脂，且相對於100質量份之PVB8，混合25質量份之塑化劑(3GO)，而獲得樹脂組成物，使用所獲得之樹脂組成物，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

**【0116】** (比較例3)

使用作為未改質聚乙烯縮丁醛之PVB9作為要使用之聚乙烯縮醛系樹脂，且不進行塑化劑之混合，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，以與實施例1相同之方式評價。

**【0117】** (比較例4)

相對於100質量份之PVB7，混合30質量份之塑化劑(3GO)、10質量份之反應性稀釋劑(三羥甲基丙烷三丙烯酸酯：TMPA)、及作為光聚合起始劑之二苯基酮(BP)0.1質量份，而獲得樹脂組成物，使用所獲得之樹脂組成物，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，進行滲出性之評價。又，針對黏著膜，使用超高壓水銀燈，照射4000 mJ/cm<sup>2</sup>之365 nm

波長之光，在光照射後，測定凝膠分率、剪切儲存模數 ( $G'$ )、 $\tan\delta$ 之最大峰值溫度。又，進行再利用性之評價。

針對階差追隨性，使用比較例4中所製作之黏著膜，如上述評價方法中所述來製造積層體，針對該積層體，使用超高壓水銀燈，照射4000 mJ/cm<sup>2</sup>之365 nm波長之光。其後，評價階差追隨性。

**【0118】** (比較例5)

使用作為未改質聚乙烯縮丁醛之PVB8代替PVB1以作為用作原料之聚乙烯縮丁醛。相對於100質量份之PVB8，混合10質量份之塑化劑 (3GO)、20質量份之反應性稀釋劑 (TMPA)、及作為光聚合起始劑之二苯基酮0.2質量份，而獲得樹脂組成物，使用所獲得之樹脂組成物，利用與實施例1相同之方法進行加壓成形，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，進行滲出性之評價。又，針對黏著膜，使用超高壓水銀燈，照射4000 mJ/cm<sup>2</sup>之365 nm波長之光，於光照射後測定凝膠分率、剪切儲存模數 ( $G'$ )、 $\tan\delta$ 之最大峰值溫度。

針對階差追隨性，使用比較例5中所製作之黏著膜，如上述評價方法中所述來製造積層體，針對該積層體，使用超高壓水銀燈，照射4000 mJ/cm<sup>2</sup>之365 nm波長之光。其後，評價階差追隨性。

**【0119】** (比較例6)

將以表3所示之單體比使單體聚合而獲得之(甲基)丙烯酸系聚合物 (Ac1) 100質量份以固形物分量達到45質量%之方式利用乙酸乙酯進行稀釋，以固形物成分基準計，添加異氰酸酯系交聯劑 (Nippon Polyurethane公司製造之「Coronate L-45」，固形物分量45質量%) 1質量份，而獲得樹脂組成物。於脫模PET膜之脫模處理面上以乾燥後之厚度達到150  $\mu\text{m}$ 之方式塗佈所獲得之樹脂組成物，於80°C進行15分鐘乾燥，而獲得黏著膜。針對所獲得之黏著膜，於23°C進行5天熟化後，以與實施例1相同之方式評價。

## 【0120】 (比較例7)

除將(甲基)丙烯酸系聚合物(Ac1)變更為(甲基)丙烯酸系聚合物(Ac2)以外，以與比較例6相同之方式實施。

## 【0121】 將實施例中用作原料之烯丙醚單體(1)~(4)示於以下表1。

[表1]

烯丙醚單體		(1)	(2)	(3)	(4)
分子量		2500	1500	2000	1500
結構	A <sup>1</sup> O之種類	EO	-	EO	EO
		PO	PO	PO	-
	PO/EO (mol)	50/50	100/0	50/50	0/100
	末端(R <sup>1</sup> )	丁基	氫原子	氫原子	氫原子
平均重複單位數	EO	23.4	-	19.0	32.8
	PO	23.4	24.9	19.0	-

## 【0122】 將實施例及比較例中所使用之PVB1~PVB9示於以下之表2。

[表2]

			PVB1	PVB2	PVB3	PVB4	PVB5	PVB6	PVB7	PVB8	PVB9
聚乙烯縮醛系樹脂	乙醯基	含有率(mol%)	1.8	0.9	2.1	1.8	1.2	3.1	1	1	0.7
		羥基	含有率(mol%)	20.4	27.1	12.4	21.8	18.8	14.5	32	31
	縮醛	含有率(mol%)	74.8	70.1	84	73.7	74.7	80.5	67	68	64.8
		種類	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛	縮丁醛
	環氧烷結構	含有率(mol%)	3.0	1.9	1.5	2.7	5.3	1.9	-	-	-
		種類	EO/PO	PO	EO/PO	EO/PO	EO/PO	EO	-	-	-
		末端(R <sup>1</sup> )	丁基	氫原子	丁基	丁基	氫原子	氫原子	-	-	-
		平均重複單位數(EO)	23	-	23	23	19	33	-	-	-
	平均重複單位數(PO)	23	25	23	23	19	-	-	-	-	

## 【0123】 將比較例中所使用之(甲基)丙烯酸系聚合物示於以下之表3。

[表3]

		Ac1	Ac2	
(甲基)丙烯酸系聚合物	單體 (質量%)	丙烯酸正丁酯	65	25
		甲基丙烯酸甲酯	26	-
		丙烯酸乙酯	4	-
		丙烯酸羥基乙酯	1	-
		丙烯酸2-乙基己酯	-	32
		丙烯酸異丁酯	-	27
		丙烯酸4-羥基丁酯	-	15
	丙烯酸	4	1	

【0124】 將各實施例、比較例之實施條件、物性及評價結果示於表4。

[表4]

		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	實施例5	實施例6	實施例7	實施例8	實施例9	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7
樹脂	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB2	PVB3	PVB4	PVB5	PVB6	PVB7	PVB8	PVB9	PVB7	PVB8	Ac1	Ac2
	分子量Mw ( $\times 10^4$ )	23	23	23	23	17	35	30	22	26	36	19	64	36	19	65	70
塑化劑	3GO (質量份※1)	-	-	-	-	-	-	-	-	15	40	25	-	30	10	-	-
反應性稀釋劑	TMPA (質量份※1)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	10	20	-	-
光聚合起始劑	BP (質量份※2)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1	1	-	-
交聯劑	Coronate L-45 (質量份※1)	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	1	1
厚度	$\mu\text{m}$	200	380	800	1500	380	880	780	780	780	200	200	200	200	200	150	150
tan $\delta$ 極大峰值溫度	溫度 (°C)	33.2	33.2	33.2	33.2	38.2	30.1	41.2	24.1	25.2	26	31	79	35 光照 射前	40 光照 射前	5	-3
G'@85°C	( $10^6$ Pa)	0.16	0.16	0.16	0.16	0.10	0.12	0.24	0.096	0.21	0.25	0.14	1.22	0.21 光照 射前	0.12 光照 射前	0.054	0.005
凝膠分率	%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	16	20	90	70
階差追隨性		AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	B	AA	AA	B	B
再利用性		A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	B	B	B	B
滲出性		AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	AA	B	B	AA	B 光照 射前	B 光照 射前	AA	AA

※1 表示相對於熱塑性樹脂100質量份之質量份。

※2 表示相對於反應性稀釋劑100質量份之質量份。

【0125】 以上之各實施例之黏著膜因為於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下，不含塑化劑、或塑化劑之含量相對於熱塑性樹脂100質量份未達20質量份，且凝膠分率為15%以下，故而階差追隨性、再利用

第41頁，共42頁(發明說明書)

性及滲出性全部良好。

與此相對，於比較例1~3中，由於塑化劑之含量相對於熱塑性樹脂100質量份大於20質量份，故而滲出性較差。又，於比較例3~6中，由於凝膠分率大於15%，故而再利用性較差。進而，於比較例5、6中，85℃之剪切儲存模數過低，階差追隨性亦降低。

### 【符號說明】

#### 【0126】

30A,30B,30C,30D:積層體

31:顯示元件

32:表面保護面板

33:觸控面板

34,34A,34B:接著用膜（黏著膜）

41,42:層合玻璃構件

43:調光元件

## 【發明申請專利範圍】

【請求項1】一種黏著膜，其包含熱塑性樹脂，且上述黏著膜於85°C之剪切儲存模數為 $0.06 \times 10^6$  Pa以上 $1.00 \times 10^6$  Pa以下，上述黏著膜不含塑化劑，或相對於上述熱塑性樹脂100質量份包含未達20質量份之塑化劑，

上述黏著膜之凝膠分率為15%以下。

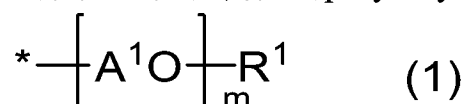
【請求項2】如請求項1之黏著膜，其中，上述熱塑性樹脂之重量平均分子量（Mw）為600,000以下。

【請求項3】如請求項1或2之黏著膜，其厚度為100 μm以上2000 μm以下。

【請求項4】如請求項1至3中任一項之黏著膜，其tanδ之極大峰值溫度為10°C以上52°C以下。

【請求項5】如請求項1至4中任一項之黏著膜，其中，上述熱塑性樹脂為聚乙烯縮醛系樹脂。

【請求項6】如請求項5之黏著膜，其中，上述聚乙烯縮醛系樹脂具有以下式（1）所示之聚環氧烷（polyalkylene oxide）結構，



（式（1）中，A<sup>1</sup>O為碳數2~6之氧伸烷基，m為平均重複數，為4~200；R<sup>1</sup>為碳數1~8之烷基或氫原子；再者，氧伸烷基可為單獨1種，亦可混合存在2種以上；\*為與其他基之鍵結位置）。

【請求項7】如請求項6之黏著膜，其中，上述聚環氧烷結構中之氧伸烷基包含氧伸乙基及氧伸丙基之至少任一者。

【請求項8】如請求項6或7之黏著膜，其中，上述聚環氧烷結構中之氧伸烷基包含氧伸乙基及氧伸丙基兩者。

【請求項9】如請求項6至8中任一項之黏著膜，其縮醛化度為60莫耳%以上。

【請求項10】如請求項1至9中任一項之黏著膜，其用於接合一對基材。

【請求項11】如請求項10之黏著膜，其係在將第1有機材料基材與第2有機材料基材或者無機材料基材接合時使用，且上述第1有機材料基材及上述第2有機材料基材為選自由偏光膜、聚對苯二甲酸乙二酯膜、聚碳酸酯板、及（甲基）丙烯酸（（meth）acrylate）板所組成之群中之至少1種有機材料基材。

【請求項12】一種積層體，其具備請求項1至11中任一項之黏著膜、及一對基材，且上述黏著膜配置於一對基材之間。

【請求項13】一種液晶顯示器，其包含請求項12之積層體。

【請求項14】一種層合玻璃，其包含請求項12之積層體。

(發明圖式)

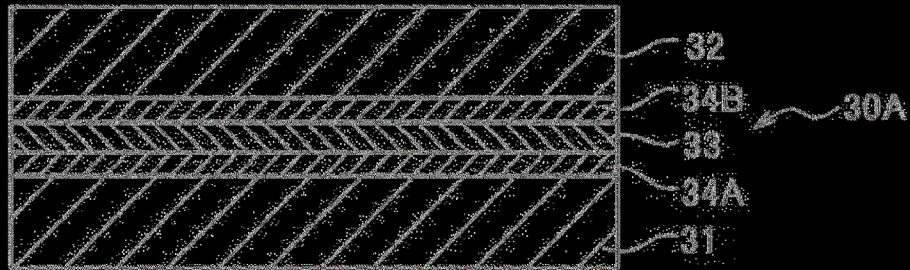


圖1

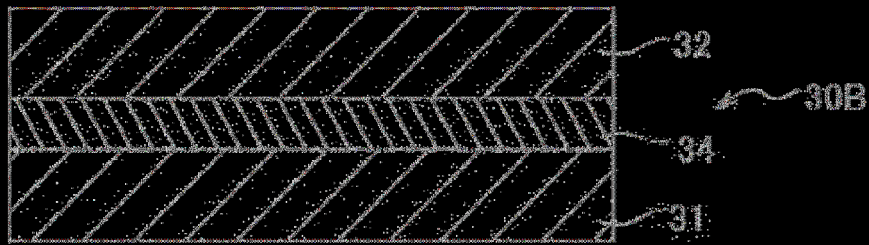


圖2

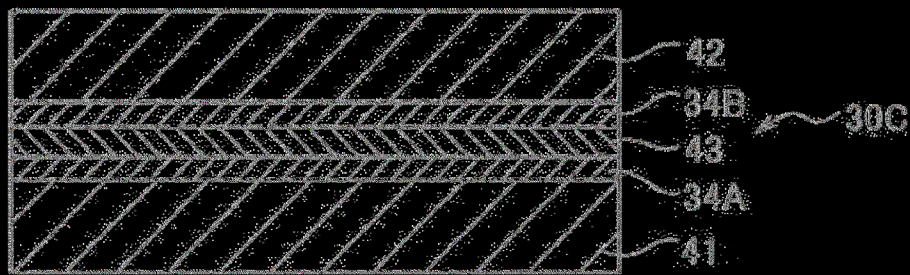


圖3

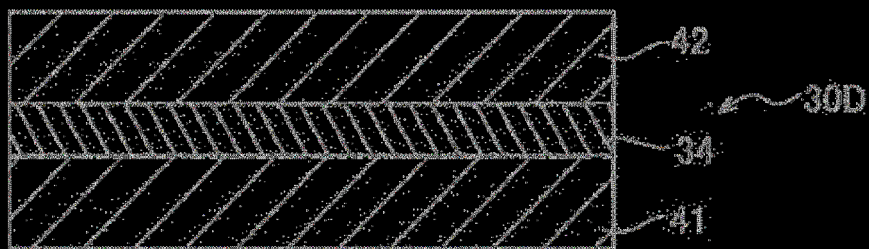


圖4