



# 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)

電子裝置

## 【技術領域】

[0001] 本發明係關於電子裝置。更詳言之，本發明係關於具備包含基材 (X)、積層於前述基材 (X) 上之層 (Y) 之多層構造物之保護片之電子裝置。且，本發明係關於包含具備包含基材 (X)、積層於前述基材 (X) 上之層 (Y) 之多層構造物之保護片之含量子點螢光體之電子裝置。

## 【先前技術】

[0002] 過去，已提案顯示裝置內之液晶等電子裝置所用之例如具有藉由使氧化鋁粒子與磷化合物之反應產物構成之透明氣體阻隔層之複合構造物作為具有含鋁之氣體阻隔層之複合構造物 (參照專利文獻 1)。

[0003] 形成該氣體阻隔層之方法之一，於專利文獻 1 中揭示將包含氧化鋁粒子與磷化合物之塗覆液塗佈於塑膠膜上，接著進行乾燥及熱處理之方法。

[0004] 然而，前述過去之氣體阻隔層在承受變形或衝擊等物理性應變時有產生龜裂或針孔之缺陷之情況，且有長時間之氣體阻隔性不足之情況。

[0005] 且，近年來，發光二極體（LED）等電子裝置中，已使用量子點作為改變入射光之波長並放射之螢光體。量子點（QD）係發光性之半導體奈米粒子，且直徑範圍通常相當於 1~20nm。而且，使電子量子性地閉鎖於輪廓明確之 3 次元且奈米規模大之半導體結晶中。如此之量子點螢光體由於易於引起凝聚，因氧等而劣化，故一般係分散於樹脂等中使用。

[0006] 專利文獻 2 中記載使複數個量子點分散於以 PMMA（聚甲基丙烯酸甲酯）、聚苯乙烯、聚碳酸酯、溶膠・凝膠、UV 硬化樹脂及環氧樹脂等熱硬化性樹脂構成之基質材中之快閃模組。

[0007] 然而，即使是分散於樹脂中之量子點螢光體，亦有因大氣中所含之氧或水等而劣化之問題。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[0008]

[專利文獻 1] 日本特開 2003-251732 號公報

[專利文獻 2] 日本特開 2006-114909 號公報

**【發明內容】**

[發明欲解決之課題]

[0009] 本發明之目的係提供一種具備對物理應變之耐性高之氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性優異之保護片之電子

裝置。又，本發明之目的係提供一種包含氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性優異之多層構造物，且在大氣下長期使用之劣化受抑制之電子裝置。又，本說明書中，所謂「氣體阻隔性」只要未特別說明，則意指阻隔水蒸氣以外之氣體之性能。另外，本說明書中，僅記載為「阻隔性」時，意指氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性之兩阻隔性。

[用以解決課題之手段]

[0010] 本發明人等積極檢討之結果，發現藉由以包含特定層之多層構造物被覆之含量子點螢光體之電子裝置可達成前述目的，終於完成本發明。

[0011] 本發明提供一種電子裝置，其係以保護片 3 被覆電子裝置本體 1 之表面而成之電子裝置，其中保護片 3 包含含有基材 (X) 與積層於基材 (X) 上之層 (Y) 之多層構造物。層 (Y) 含有金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及離子價 ( $F_z$ ) 為 1 以上 3 以下之陽離子 (Z)。磷化合物 (B) 係含有可與金屬氧化物 (A) 反應之部位之化合物。層 (Y) 中，構成金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 之莫耳數 ( $N_M$ ) 與源自磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數 ( $N_P$ )，與陽離子 (Z) 之莫耳數 ( $N_Z$ )、及陽離子 (Z) 之離子價 ( $F_z$ ) 滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，前述層 (Y) 中，前述莫耳數 ( $N_M$ )、前述陽離子 (Z) 之莫耳數 ( $N_Z$ ) 及前述陽離子 (Z) 之離子價 ( $F_z$ ) 滿足  $0.001 \leq F_z \times N_Z/N_M \leq 0.60$  之關係，且抑制因大氣中所含氧

或水等造成之劣化。

[0012] 前述陽離子 (Z) 係選自由鋰離子、鈉離子、鉀離子、鎂離子、鈣離子、鈦離子、鋯離子、鑷系離子、釩離子、錳離子、鐵離子、鈷離子、鎳離子、銅離子、鋅離子、硼離子、鋁離子及銨離子所組成之群之至少一種陽離子。

[0013] 電子裝置亦可為包含量子點螢光體者。

[0014] 前述保護片亦可配置於包含量子點螢光體之層之單側或兩側。

[0015] 前述層 (Y) 中，前述莫耳數 ( $N_M$ )、前述莫耳數 ( $N_Z$ )、與前述離子價 ( $F_Z$ ) 亦可滿足  $0.01 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係。

[0016] 前述層 (Y) 中，前述磷化合物 (B) 之至少一部分亦可與前述金屬氧化物 (A) 反應。另，前述磷化合物 (B) 係選自由磷酸、聚磷酸、亞磷酸、麟酸、亞麟酸、次麟酸、次亞麟酸及該等之衍生物所組成之群之至少一種化合物。

[0017] 前述層 (Y) 之紅外線吸收光譜中，在  $800 \sim 1,400 \text{ cm}^{-1}$  之範圍中之最大吸收波數亦可在  $1,080 \sim 1,130 \text{ cm}^{-1}$  之範圍。

[0018] 前述基材 (X) 亦可包含熱可塑性樹脂薄膜。

[0019] 前述層 (Y) 亦可包含聚合物 (C)，該聚合物 (C) 含有選自由羰基、羥基、羧基、羧酸酐基及羧基之鹽所組成之群之至少一種官能基。

[0020] 本發明之電子裝置中，前述多層構造物亦可進而包含與前述層（Y）鄰接配置之層（W）。前述層（W）亦可包含具有含有磷原子之官能基之聚合物（G1）。

[0021] 前述聚合物（G1）亦可為聚（乙烯膦酸）或聚（甲基丙烯酸 2-膦氧基乙酯）。

[0022] 本發明之電子裝置係包含下列步驟：混合金屬氧化物（A）、含有可與前述金屬氧化物（A）反應之部位之磷化合物（B）、及離子價（ $F_z$ ）為 1 以上 3 以下之陽離子（Z）之離子性化合物（E）而調製第 1 塗覆液（U）之步驟[I]，

將前述第 1 塗覆液（U）塗佈於前述基材（X）上，而於前述基材（X）上形成前述層（Y）之前驅物層之步驟[II]，

在 110°C 以上之溫度下熱處理前述前驅物層之步驟[III]，

前述第 1 塗覆液（U）中，構成前述金屬氧化物（A）之金屬原子（M）之莫耳數（ $N_M$ ）、與源自前述磷化合物（B）之磷原子之莫耳數（ $N_P$ ）滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，且

前述第 1 塗覆液（U）中，前述莫耳數（ $N_M$ ）、前述陽離子（Z）之莫耳數（ $N_Z$ ）、與前述離子價（ $F_z$ ）滿足  $0.001 \leq F_z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係。

**[發明效果]**

[0023] 依據本發明，獲得具備對物理應變之耐性高之氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性優異之保護片之電子裝置。又，依據本發明可獲得具備氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性優異之保護片，且在大氣下長期使用之劣化受抑制之電子裝置。再者，依據本發明，可獲得具備氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性優異之保護片，且即使在大氣下長期使用（例如，連續發光 2,000 小時）劣化亦少之性能保持率優異之含量子點螢光體之電子裝置。

**【圖式簡單說明】**

[0024]

圖 1 係本發明之實施形態之電子裝置之部分剖面圖。

圖 2 係顯示密封材之至少一部分使用本發明之實施形態 1 之該含量子點螢光體之組成物之發光裝置的例之剖面圖。

圖 3 係顯示使用本發明之實施形態 1 之該量子點螢光體分散樹脂成形體之發光裝置的例之剖面圖。

圖 4 係顯示使用本實施形態 1 之該含量子點螢光體之組成物及量子點螢光體分散樹脂成形體之發光裝置的例之剖面圖。

圖 5 係本發明之實施形態 2 之該含量子點螢光體之構造物之一例之剖面圖。

圖 6 係應用本發明之實施形態 2 之該含量子點螢光體

之構造物之發光裝置的一例之剖面圖。

圖 7 係應用本發明之實施形態 2 之該含量子點螢光體之構造物之發光裝置的另一例之剖面圖。

### 【實施方式】

[0025] 針對本發明，列舉以下之例加以說明。又，以下說明中，有例示物質、條件、方法、數值範圍等之情況，但本發明並不限於該等例示。且，例示之物質只要未特別註明，則可單獨使用 1 種亦可併用 2 種以上。

[0026] 只要未特別註明，則本說明書中，如「於特定之構件（基材或層等）上積層特定之層」之記載之意義，除了以與該構件接觸之方式積層該特定之層之情況以外，亦包含隔著其他層而將該特定之層積層於該構件上方之情況。如「於特定構件（基材或層等）上形成特定之層」、「於特定之構件（基材或層等）上配置特定之層」之記載亦相同。此外，只要未特別註明，則如「於特定之構件（基材或層等）上塗佈液體（塗覆液等）」之記載之意義，除了將該液體直接塗佈於該構件上之情況以外，亦包含將該液體塗佈於形成於該構件上之其他層上之情況。

[0027] 本說明書中，有時有如「層（Y）」之附加符號（Y）之層（Y）而與其他層區別之情況。只要未特別註明，則符號（Y）在技術上不具意義。針對基材（X）、化合物（A）、及其他符號亦相同。但，如氫原子（H）般之明顯是表示特定元素之情況除外。

[0028]

[電子裝置]

使用本發明之多層構造物之電子裝置具備電子裝置本體、用以保護電子裝置本體表面之保護片。本發明之電子裝置所用之保護片包含基材（X）、及積層於基材（X）上之層（Y）之多層構造物。以下說明中，只要未特別指明，則所謂「多層構造物」一詞意指包含基材（X）與層（Y）之多層構造物。另外，「本發明之多層構造物」一詞意指「本發明所用之多層構造物」。針對多層構造物之細節說明於後。保護片可僅以多層構造物構成，亦可包含其他構件或其他層。以下，只要沒有特別註明，則係針對保護片具備多層構造物之情況加以說明。

[0029] 本發明之電子裝置之一例之部分剖面圖示於圖 1。圖 1 之電子裝置 11 具備電子裝置本體 1、用以密封電子裝置本體 1 之密封材 2、用以保護電子裝置本體 1 表面之保護片（多層構造物）3。密封材 2 係覆蓋電子裝置本體 1 之表面整體。保護片 3 係介隔密封材 2 配置於電子裝置本體 1 之一表面上。保護片 3 只要以可保護電子裝置本體 1 表面之方式配置即可，可直接配置於電子裝置本體 1 之表面上（未圖示），亦可如圖 1 般介隔密封材 2 等其他構件配置於電子裝置本體 1 之表面上。如圖 1 所示，第 2 保護片亦可配置於與配置第 1 保護片之表面相反側之表面。該情況下，配置於其相反側表面之第 2 保護片可與第 1 保護片相同亦可不同。

[0030] 較佳之保護片係保護量子點螢光體材料免於受高溫、氧及濕氣等之環境條件之影響。較佳之保護片列舉為具有疏水性且與量子點螢光體材料具有化學及機械適合性，且顯示光及化學安定性，具有高溫耐熱性，且為非黃化之透明光學材料。較好，一個以上之保護片之折射率與量子點螢光體材料整合。較佳之實施形態中，量子點螢光體材料之基質材料及 1 個以上之鄰接保護片之折射率經整合為具有類似折射率，結果，通過保護片朝向量子點螢光體材料傳送之光的大半自保護面傳送到螢光體材料內。藉由該折射率整合，而減少保護片與基質材料間之界面的光學損失。

[0031] 本發明之量子點螢光體材料之基質材料列舉為聚合物、有機及無機氧化物等。較佳之實施形態中，聚合物實質上為半透明或實質上為透明。較佳之基質材料除後樹脂分散用樹脂以外，列舉為例如環氧樹脂、丙烯酸酯、降冰片烯、聚乙烯、聚（乙烯丁縮醛）；聚（乙酸乙酯）、聚脲、聚胺基甲酸酯；胺基聚矽氧（AMS）、聚苯基甲基矽氧烷、聚苯基烷基矽氧烷、聚二苯基矽氧烷、聚二烷基矽氧烷、倍半矽氧烷、氟化聚矽氧、以及乙烯及氫化物取代之聚矽氧等聚矽氧及聚矽氧衍生物；由甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸丁酯及甲基丙烯酸月桂酯等單體形成之丙烯酸聚合物及共聚物；聚苯乙烯、胺基聚苯乙烯（APS）及聚（丙烯腈乙炔苯乙烯）（AES）等苯乙烯系聚合物；與二乙烯基苯等二官能性單體交聯之聚合物；適

合與配位基材料交聯之交聯劑、與配位基胺（例如 APS 或 PEI 配位基胺）鍵結形成環氧之環氧化物等。

[0032] 保護片較好為固體材料，亦可為經硬化之液體、凝膠或聚合物。保護片亦可依據特定用途，包含可撓性或非可撓性材料。保護片較好為平面層，亦可依據特定之照明用途，包含任意較佳之形態及表面積構造。較佳之保護片材料除後述之多層構造物之材料以外，亦可使用該技術領域中已知之任意較佳之保護片材料。具備後述之多層構造物之保護片以外之保護片所用之較佳阻隔材料列舉為例如玻璃、聚合物及氧化物。聚合物列舉為聚對苯二甲酸乙二酯（PET）等。氧化物列舉為  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Si}_2\text{O}_3$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  等。該等可使用 1 種，亦可組合 2 種以上使用。較好，含量子點螢光體之電子裝置之各保護片包含含不同材料或組成物之至少 2 層（例如，基材（X）與層（Y）），結果，多層狀之保護片可排除或減少保護片內之針孔缺陷排列，可提供對於氧及濕氣侵入到量子點螢光體材料內之有效阻隔。含量子點螢光體之電子裝置亦可包含任意較佳之材料或材料之組合、以及量子點螢光體材料之任一或二側面上之任意較佳數之保護片。保護片之材料、厚度及數依存於具體用途，較好選擇為一面使含量子點螢光體之電子裝置之厚度最小化，一面使量子點螢光體之阻隔保護及亮度最大化。較佳之實施形態中，各保護片包含積層體（積層薄膜），較好包含雙層積層體（雙層積層薄膜），各保護片之厚度為輥對輥或積層製造製程時可

排除起皺之充分厚度。保護片之數或厚度進而在量子點螢光體材料包含重金屬或其他毒性材料之實施形態中，依存於法的毒性指標，該指標有需要更多或更厚保護片之情況。阻隔之進一步探討事項舉例為費用、取得可能性及機械強度。

[0033] 較佳之實施形態中，含量子點螢光體之電子裝置包含具備與量子點螢光體材料之各側面鄰接之 2 層以上之本發明之多層構造物之保護片。且，各側面上亦可具備 1 層以上之具備前述本發明之多層構造物之保護片以外之保護片。亦即，前述各側面亦可包含 2 或 3 層（保護片）。更佳之實施形態中，含量子點螢光體之電子裝置係於量子點螢光體材料之各側面上包含具備本發明之多層構造物之保護片，包含 2 層保護片。

[0034] 本發明之含量子點螢光體之層可為任意期望之尺寸、形狀、構造及厚度。量子點螢光體可以適於期望功能之任意填充率，埋入基質材料內。含量子點螢光體之層之厚度及寬度可藉由濕式塗佈、塗裝、旋轉塗布、網版印刷等該技術領域中已知之任意方法控制。特定量點螢光體薄膜之實施形態中，量子點螢光體材料可具有  $500\mu\text{m}$  以下，較好  $250\mu\text{m}$  以下，更好  $200\mu\text{m}$  以下，又更好為  $50\sim 150\mu\text{m}$ ，最好為  $50\sim 100\mu\text{m}$  之厚度。

[0035] 較佳之實施形態中，本發明之含量子點螢光體之電子裝置之上部及底部保護片層經機械密封。如圖 1 所示之實施形態所示般，上部保護片層及/或底部保護片

層係一起被壓縮，而密封量子點螢光體。為了使量子點螢光體材料暴露於環境內之氧及濕氣最小化，端部較好在量子點螢光體及保護片層之被覆後立即壓縮。阻隔端部可藉由壓縮、壓模、熔融、輥壓、加壓等而密封。

[0036] 較佳之實施形態中，機械密封本發明之含量子點螢光體之電子裝置之上部及底部保護片層時，宜使用任意接著劑，但基於端部接著容易性、保持量子點之高光學特性之觀點，較好使用環氧樹脂等之較佳光學接著材料。

[0037] 本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體可使用於例如液晶顯示器（LCD）、電視、電腦、行動電話、智慧型手機、攜帶資訊終端（PDA）、遊戲機、電子閱讀裝置、數位相機等之顯示裝置用之背光單元（BLU）、屋內或戶外之照明、舞台照明、裝飾照明、輔助照明（accent lighting）、博物館照明、園藝的、生物學的及其他用途之包含高度特殊波長之照明之任意較佳之用途，以及針對本說明書所記載之發明調查時，本技藝者可了解之照明用途中。

[0038] 本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體適合於光發電用途中之使用，亦可使用作為量子點降頻轉換層或薄膜。本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體可利用太陽能電池之活性層吸收太陽光之一部分，並轉換成更低能量之光。該經轉換之光之波長係藉由本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體經如此之降頻轉換（down-

converted) )，而無法被活性層吸收及轉換成電力者。因此，採用本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體之太陽能電池可具有增加之太陽光轉換效率。

[0039] 本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體包含作為光源、濾光器及／或一次光之降頻轉換器之用途。某特定實施形態中，本發明之含量子點螢光體之電子裝置本體為一次光源，含量子點螢光體之電子裝置係包含電刺激時能釋出光子之電子發光性量子點螢光體之電子發光性裝置。某特定實施形態中，含量子點螢光體之電子裝置為濾光器，量子點螢光體吸收具有某特定波長或波長範圍之光。含量子點螢光體之電子裝置可使特定波長或波長範圍光之通過並吸收或濾除其他者。某特定實施形態中，含量子點螢光體之電子裝置為降頻轉換器，藉此，來自一次光源之一次光之至少一部分在含量子點螢光體之電子裝置內被量子點螢光體吸收，且作為具有比一次光更低能量或更長波長之二次光再釋出。較佳實施形態中，含量子點螢光體之電子裝置為濾光器或一次光降頻轉換器兩者，藉此，可使一次光之第 1 部分不被含量子點螢光體之電子裝置內之量子點螢光體吸收，而通過含量子點螢光體之電子裝置，且一次光之至少第 2 部分被量子點螢光體吸收，並降頻轉換成具有比一次光更低能量或更長波長之二次光。

[0040] 密封材 2 係根據電子裝置本體 1 之種類及用途等而適當附加之任意構件。密封材 2 列舉為乙烯-乙酸乙烯酯共聚物或聚乙烯丁縮醛等。

[0041] 本發明之含量子點螢光體之電子裝置之保護片亦可具有可撓性。該說明書中，所謂可撓性意指可捲繞於直徑為 50cm 之輥上。例如，意指即使捲繞至直徑 50cm 之輥，以目視仍未見到破損。可捲繞至直徑小於 50cm 之輥時，由於電子裝置或保護片之柔軟性更高故較佳。

[0042] 包含多層構造物之保護片具有優異之氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性。因此，藉由使用該保護片，而獲得即使於過度嚴苛環境下劣化亦少之電子裝置。且，保護片由於具有高的透明性，故獲得光之透過性高的電子裝置。

[0043] 多層構造物亦可使用作為 LCD 用基板薄膜、有機 EL 用基板薄膜、電子紙用基板薄膜等之稱為基板薄膜之薄膜。該情況下，多層構造物亦可兼作基板與保護膜。又，成為保護片保護對象之電子裝置並不限於前述例示者，亦可為例如 IC 標籤、光通訊用裝置、燃料電池等。

[0044] 保護片亦可包含例如配置於多層構造物之一表面或二表面上之表面保護層。表面保護層較好係由不易損傷之樹脂所成之層。且，如太陽能電池之在室外利用之裝置之表面保護層較好由耐候性（例如耐光性）高之樹脂所成。又，保護必須使光透過之面時，較好為透光性高之表面保護層。表面保護層（表面保護薄膜）之材料列舉為例如丙烯酸樹脂、聚碳酸酯、聚對苯二甲酸乙二酯、聚萘二甲酸乙二酯、乙烯-四氟乙烯共聚物、聚四氟乙烯、4-氟化乙烯-全氯烷氧基共聚物、4-氟化乙烯-6-氟化丙烯共

聚物、2-乙烯-4-氟化乙烯共聚物、聚 3-氟化氯化乙烯、聚偏氟化乙烯、聚氟化乙烯等。保護片之一例包含配置於一表面上之丙烯酸樹脂層。

[0045] 為提高表面保護層之耐久性，亦可將各種添加劑（例如紫外線吸收劑）添加於表面保護層中。耐候性高之表面保護層之較佳一例為添加紫外線吸收劑之丙烯酸樹脂層。紫外線吸收劑列舉為例如苯并三唑系、二苯甲酮系、水楊酸酯系、氰基丙烯酸酯系、鎳系、三嗪系之紫外線吸收劑，但並不限於該等。又，亦可併用其他安定劑、光安定劑、抗氧化劑等。

[0046] 保護片接合於密封含量子點螢光體之電子裝置本體之密封材時，保護片較好包含與密封材之接著性較高之接合用樹脂層。密封材由乙烯-乙酸乙烯酯共聚物所成時，接合用樹脂層列舉為例如提高與乙烯-乙酸乙烯酯共聚物之接著性之聚對苯二甲酸乙二酯。構成保護片之各層亦可使用習知之接著劑或上述之接著層而接著。

[0047]

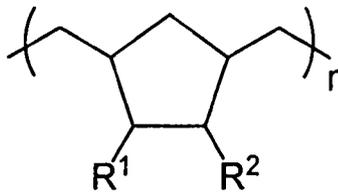
[實施形態 1]

本發明之實施形態 1 中之該含量子點螢光體之電子裝置係使用量子點螢光體分散樹脂成形體。量子點螢光體分散樹脂成形體係藉由使量子點螢光體分散於樹脂中獲得分散液（組成物），且使用該分散液成形而得。成形方法並無特別限制，可使用習知方法。分散用樹脂較好為環烯烴（共）聚合物。環烯烴（共）聚合物列舉為例如以下述式

[Q-1]表示之環烯烴聚合物 (COP) 或以下述式 [Q-2]表示之環烯烴共聚物 (COC)。作為該環烯烴 (共) 聚合物可使用市售品。作為市售品例如 COP 類列舉為 ZEONEX (註冊商標) 系列 (日本 ZEON 股份有限公司製)、COC 類列舉為 ALP5014DP (三井化學股份有限公司製, 化學構造:  $-(C_2H_4)_x(C_{12}H_{16})_y-$ , 下標之  $x$ 、 $y$  為大於 0 且小於 1 之實數, 表示共聚合比) 等。

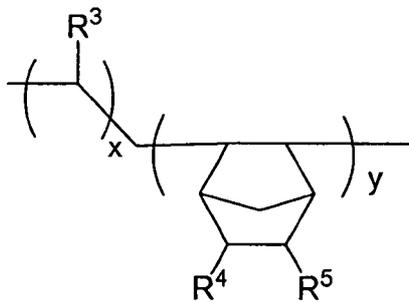
[0048]

【化1】



[Q-1]

【化2】



[Q-2]

式 [Q-1] 中,  $R^1$ 、 $R^2$  各獨立為相同或不同且表示自氫原子; 碳數 1~6 之直鏈狀或分支狀之飽和烴基; 氯或氟之鹵原子; 及鹵原子為氯原子或氟原子之三鹵甲基所組成之群選出之一價基。且,  $R^1$ 、 $R^2$  之烴基亦可於相鄰取代部位相互鍵結形成至少一個 5~7 員環之飽和烴之環狀構造。 $r$  為正整數。

式 [Q-2] 中,  $R^3$  表示由氫原子; 碳數 1~6 之直鏈狀或

分支狀之飽和烴基（烷基）；氯或氟之鹵原子；及鹵原子為氯原子或氟原子之三鹵甲基所組成之群選出之一價基。 $R^4$ 、 $R^5$ 各獨立相同或不同，且表示由氫原子；碳數 1~6 之直鏈狀或分支狀之飽和烴基；氯或氟之鹵原子；及鹵原子為氯原子或氟原子之三鹵甲基所組成之群選出之一價基。且， $R^4$  或  $R^5$  之烴基亦可於相鄰之取代部位相互鍵結形成至少一個 5~7 員環之飽和烴之環狀構造。 $x$ 、 $y$  為大於 0 且小於 1 之實數，且滿足  $x+y=1$  之關係。

[0049] 以式 [Q-1] 表示之環烯烴聚合物（COP）可藉由例如以降冰片烯類為原料，利用格拉布（Grubbs）觸媒進行開環複分解聚合後，氫化而獲得。以式 [Q-2] 表示之環烯烴共聚物（COC）係藉由例如以降冰片烯類為原料，利用茂金屬觸媒等與乙烯等共聚合而獲得。

[0050] 使量子點螢光體分散於樹脂中之方法並無特別限制，較好在惰性體氛圍下將量子點螢光體分散於分散介質中而成之分散液添加於在性氣體氛圍下使樹脂溶解於溶劑中而成之溶液中並混練。此時使用之分散介質較好為可溶解樹脂之溶劑，更好分散介質與溶劑為相同。前述溶劑及分散介質可無限制地使用，但可較好地使用甲苯、二甲苯（鄰-、間-或對-）、乙基苯、四氫萘等烴系溶劑。又，亦可使用氯苯、二氯苯（鄰-、間-或對-）、三氯苯等氯系烴溶劑。且，以上步驟中使用之惰性氣體列舉為氮氣、氫氣、氬氣。該等可單獨使用，亦可以任意之比例混合使用。

[0051] 又，實施形態 1 中應用之量子點螢光體係其粒徑指定 1~100nm，且為數十 nm 以下時，展現量子效果之螢光體。量子點螢光體之粒徑較好為 2~20nm 之範圍內。

[0052] 量子點螢光體之構造係由無機螢光體芯及配位於該無機螢光體表面之外覆層（例如，具有脂肪族烴基之有機不動態層）構成，無機螢光體之芯部（金屬部）由有機不動態層所被覆。一般，量子點螢光體粒子之表面，主要以防止凝聚等為目的而將有機不動態層配位於芯表面。再者，有機不動態層（亦稱為殼）除防止凝聚以外，亦具有下列角色：保護芯粒子免受周圍化學環境之影響、對表面賦予電安定性、與控制對特定溶劑系之溶解性。且，有機不動態可根據目的選擇化學構造，但例如可為具有直鏈狀或分支鏈狀之碳數 6~18 左右之脂肪族烴（例如烷基）之有機分子。

[0053]

[無機螢光體]

無機螢光體列舉為例如 II 族-VI 族化合物半導體之奈米結晶、III 族-V 族化合物半導體之奈米結晶等。該等奈米結晶之形態並無特別限制，列舉為例如具有於 InP 奈米結晶之芯部分被覆由 ZnS/ZnO 等所成之殼部分之芯・殼（core-shell）構造之結晶，或具有芯・殼之交界不明確地使組成梯度（gradient）變化之構造之結晶，或相同結晶內部分地分成 2 種以上之化合物結晶而存在之混合結晶或

2 種以上之奈米結晶化合物之合金等。

[0054]

[外覆劑]

接著，作為配位於無機螢光體表面之外覆劑（用以形成有機不動態層之試劑）列舉為具有碳數 2~30，較好碳數 4~20，更好碳數 6~18 之具有直鏈構造或分支構造之脂肪族烴基之有機分子。配位於無機螢光體表面之外覆劑（用以形成有機不動態層之試劑）具有用於配位於無機螢光體之官能基。此種官能基列舉為例如羧基、胺基、醯胺基、腓基、羥基、醚基、羰基、磺醯基、磷醯基或巯基等。該等中，以羧基較佳。

[0055] 實施形態 1 之含量子點螢光體之電子裝置中該量子點螢光體分散樹脂成形體之製造所用之組成物係以 0.01~20 質量%之濃度範圍使量子點螢光體均勻分散於樹脂（例如，環烯烴（共）聚合物）中。且，實施形態 1 之含量子點螢光體之組成物較好以超過 0.1 質量%未達 15 質量%，更好為超過 1 質量%未達 10 質量%之濃度範圍使量子點螢光體均勻分散於環烯烴（共）聚合物中。量子點螢光體之濃度未達 0.01 質量%時，無法獲得作為發光元件用之量子點螢光體分散樹脂成形體之充分發光強度故而不佳。另一方面，量子點螢光體之濃度超過 20 質量%時，有引起量子點螢光體凝聚之可能性，無法獲得量子點螢光體經均勻分散之量子點螢光體分散樹脂成形體故而不佳。

[0056]

## [量子點螢光體之調製方法]

實施形態 1 中使用之螢光體係使用能獲得期望之化合物半導體之奈米結晶之金屬前驅物製造奈米結晶後，接著進而使之分散於有機溶劑中。接著，以特定之反應性化合物（殼部分之化合物）處理奈米結晶，藉此可調製具有於無機螢光體表面配位烴基之構造之量子點螢光體。處理方法並無特別限制，列舉為例如在反應性化合物存在下使奈米結晶之分散液回流之方法。又，量子點螢光體之製造方法可使用例如日本特開 2006-199963 號公報所揭示之方法。

[0057] 本實施形態中使用之量子點螢光體中，構成被覆無機螢光體（芯部）表面之有機不動態層之烴基之量並無特別限制，但通常相對於無機螢光體 1 粒子（芯），烴基之烴鏈為 20~500 莫耳，較好為 10~400 莫耳，更好為 20~300 莫耳之範圍。烴鏈未達 2 莫耳時，無法賦予作為有機不動態層之功能，例如亦使螢光體粒子凝縮。另一方面，烴鏈超過 500 莫耳時，不僅使來自芯部之發光強度下降，且存在有未配位於無機螢光體之過量烴基，而有容易引起液狀密封樹脂之性能下降之傾向。且，會使量子點螢光體之成本上升。

[0058] 此外，實施形態 1 中該量子點螢光體分散樹脂成形體亦可使含量子點螢光體之組成物成形為成形物而製造。該成形物可作為吸收自光源照射之光之至少一部分，並自成形物中所含脂量子點螢光體發出 2 次光之成形

物而有效作用。含量子點螢光體之組成物之成形方法有例如將該組成物塗佈於基材上或填充於模具後，在前述惰性氣體氛圍下利用熱乾燥去除溶劑，且視需要自基材或模具剝離之方法等。此外，亦可使用含量子點螢光體之組成物作為密封 LED 晶片之密封材。

[0059] 量子點螢光體分散樹脂成形體之製造方法列舉為例如具備下列步驟之方法：將環烯烴系（共）聚合物溶解於溶劑中調製溶液之步驟，以使所得成形體中之量子點螢光體之濃度成為 0.01~20 質量%之範圍之方式，使量子點螢光體分散於前述溶液中，再經混練而製造含量子點螢光體之組成物之步驟，與將含前述量子點螢光體之組成物塗佈於基材上或填充於模具中並加熱乾燥之步驟。溶劑及分散介質係如前述。

[0060] 藉由前述加熱乾燥等製造量子點螢光體分散樹脂成形體，或進一步隨後藉由加壓成形，可製造樹脂透鏡、樹脂板及樹脂薄膜等。

[0061] 圖 2 中顯示於密封材之至少一部分使用實施形態 1 之含量子點螢光體之組成物之發光裝置之例之剖面圖。圖 2 中，發光裝置 100 包含 LED 晶片 10、導線電極 12、杯 14、密封材 16、17 之構成。視需要，於發光裝置 100 之上部配置樹脂透鏡 20。杯 14 可以適當之樹脂或陶瓷形成。且，LED 晶片 10 並無限定，可使用與量子點螢光體一起作用且構成適宜波長之光源之發光二極體。此外，密封材 16 可使用分散有量子點螢光體 18 之含量子點

螢光體之組成物而形成。藉此，可形成例如使用來自 LED 晶片 10 之發光而自密封材 16 發出白色光之白色光源等。此外，密封材 17 係密封 LED、導線等，係以環氧樹脂或聚矽氧樹脂等通常使用作為 LED 之密封樹脂之樹脂所構成。該等密封材 16 及密封材 17 之製造可藉由在惰性氣體（例如氬氣）氛圍下，首先於杯 14 內注入特定量之樹脂（例如，環氧樹脂或聚矽氧樹脂）等，藉由習知方法固化而形成密封材 17，隨後將含量子點螢光體之組成物注入密封材 17 上，經加熱乾燥而形成密封材 16 予以實施。

[0062] 且，亦可為於收容於杯 14 中之密封材 16 之上方配置以前述量子點螢光體分散樹脂成形體所形成之透鏡狀之樹脂（樹脂透鏡 20）或者至少其一部分具有凸狀部之薄膜或具有均勻膜厚之薄膜，且自樹脂透鏡 20 發射光之構成。該情況下，密封材 16 中亦可未分散量子點螢光體 18。又，LED 晶片之密封材之至少一部分使用含量子點螢光體之組成物時之該密封材 16 之厚度較好為 0.01mm 以上未達 0.4mm。該密封材 16 之厚度超過 0.4mm 時，雖亦與杯 14 之凹部內之深度有關，但將該密封材 16 密封於杯 14 之凹部內時會對與導線電極 12 連接之金屬線造成過大負荷而不佳。此外，LED 晶片之密封材之至少一部分使用含量子點螢光體之組成物時之該密封材 16 之厚度未達 0.01mm 時，作為含螢光體之密封材並不充分。

[0063] 密封材 16 中未分散量子點螢光體 18 時，較好配置以量子點螢光體分散樹脂成形體形成之透鏡狀之樹

脂 20（樹脂透鏡 20）。

[0064] 圖 3 顯示使用實施形態 1 之該量子點螢光體分散樹脂成形體之發光裝置之例之剖面圖，與圖 2 相同要素賦予相同符號。圖 3 為在密封材中未使用實施形態 1 之該含量子點螢光體之組成物之發光裝置之例。該情況下，透鏡狀之樹脂（樹脂透鏡 20）係藉由使以濃度 0.01~20 質量%之範圍使量子點螢光體 18 分散於環烯烴（共）聚合物中之組成物成形而成之量子點螢光體分散樹脂成形體所形成。

[0065] 圖 4 顯示使用實施形態 1 之該含量子點螢光體之組成物及量子點螢光體分散樹脂成形體之發光裝置之例之剖面圖，與圖 1 相同之要素賦予相同符號。圖 4 為密封材之一部分使用實施形態 1 之該含量子點螢光體之組成物，且於其上部配置由量子點螢光體分散樹脂成形體所成之樹脂透鏡 20 之發光裝置之例。即使該情況下，所有樹脂亦均使量子點螢光體 18 以濃度 0.01~20 質量%之範圍分散於環烯烴（共）聚合物中而形成。

[0066] 又，圖 2、圖 3 及圖 4 所示之發光裝置由於可抑制量子點螢光體之消光，且可維持作為發光裝置安定的動作，故組裝有該發光裝置之行動電話、電視、顯示器、面板類等電子設備，或組裝其電子設備之汽車、電腦、遊戲機等設備裝置類可長時間安定地驅動。

[0067]

[實施形態 2]

圖 5 係顯示實施形態 2 之該含量子點螢光體之構造物之一例之剖面圖。圖 5 中，含量子點螢光體之構造物係構成為包含以濃度 0.01~20 質量%之範圍於分散用樹脂中分散量子點螢光體 18 而成之量子點螢光體分散樹脂成形體 22，與被覆量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之整面而減低氧等對量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之透過的氣體阻隔層（保護片）。又，另一實施形態中，氣體阻隔層 24 亦可為被覆量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之表面之一部分之構成（參照圖 6、7）。又，前述氣體阻隔層 24 較好為可減低氧以及水蒸氣之透過者。

[0068] 此處，所謂氣體阻隔層 24 係指可保護量子點螢光體 18 免於受氧之影響而使在含量子點螢光體之構造物附近使發光二極體（LED）連續發光 2,000 小時時之量子點螢光體 18 之分光放射能量可維持為初期值之 80.0% 以上之程度之層。且，本發明之電子裝置係連續發光 2,000 小時時之量子點螢光體 18 之分光放射能量較好為初期值之 85.0% 以上者，更好為 89.0% 以上者，又更好為 90.0% 以上者。又，前述分光放射能量為量子點螢光體之螢光波長之放射能量。

[0069] 構成前述量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之分散用樹脂可使用例如實施形態 1 中說明之環烯烴（共）聚合物。又，量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之製造方法可使用實施形態 1 中說明之量子點螢光體分散樹脂成形體之製造方法。

[0070] 又，氣體阻隔層 24 可由本發明之多層構造物構成。該等材料由於氣體阻隔性均高，故藉由使用該等構成氣體阻隔層 24，可保護量子點螢光體 18 免於氧及水等之影響。

[0071] 又，以上之量子點螢光體分散樹脂成形體 22 及構成氣體阻隔層 24 之本發明之多層構造物均具有光透過性，可使發光二極體產生之光到達量子點螢光體 18，且使在量子點螢光體 18 轉換波長之光透過到量子點螢光體分散樹脂成形體 22 之外部。

[0072] 圖 6 顯示應用實施形態 2 之該含量子點螢光體之構造物之發光裝置之一例之剖面圖。圖 6 中，發光裝置 100 係構成為包含 LED 晶片 10、導線電極 12、杯 14、分散有量子點螢光體 18 之密封材 16、未分散量子點螢光體 18 之密封材 17 及氣體阻隔層 24。圖 6 之例係使用前述氣體阻隔層 24 作為杯 14 之蓋。且，密封材 16 係以由實施形態 1 中說明之含量子點螢光體之組成物成形而成之前述量子點螢光體分散樹脂成形體 22 構成。前述密封材 16 及密封材 17 可與圖 1 之情況同樣製造。該等構成要素中，量子點螢光體 18、量子點螢光體分散樹脂成形體 22、氣體阻隔層 24 係如上述。LED 晶片 10 並無限制，但可使用與量子點螢光體一起作用且構成適當波長之光源之發光二極體。此外，杯 14 可藉由適宜之樹脂或陶瓷形成。且，密封材 17 係以環氧樹脂或聚矽氧樹脂形成，並密封 LED 晶片 10、導線電極 12 等。

[0073] 圖 7 係顯示應用實施形態 2 之該含量子點螢光體之構造物之發光裝置之另一例之剖面圖，與圖 6 相同之要素賦予相同符號。圖 7 之例中，以氣體阻隔層 24 被覆杯 14 之表面（包含圖 6 之蓋的部分），與露出於杯 14 外之導線電極 12 之表面。又，導線電極 12 之表面其一部分未被氣體阻隔層 24 被覆而露出。此係為了使例如與安裝基板上之電源供給路徑之間電性導通。本例中氣體阻隔層 24 亦被覆密封材 16 之圖中之上面。藉此，可避免或降低氧等浸透至分散於密封材 16 中之量子點螢光體 18。且，來自 LED 晶片 10 之光之一部分在分散於密封材 16 中之量子點螢光體 18 被轉換成其他波長之光後，與來自 LED 晶片 10 之光混合，透過氣體阻隔層 24 取出至外部。

[0074] 圖 6 所示之構成係以氣體阻隔層 24 形成杯 14 之蓋，且被覆密封材 16 之圖中之上面。藉此，可避免或降低氧等浸透至分散於密封材 16 中之量子點螢光體 18。

[0075] 又，以上所述之量子點螢光體分散樹脂組成物或其成形體或含量子點螢光體之構造物亦可使用於例如植物育成用照明、有色照明、白色照明、LED 背光光源、加入螢光體之液晶濾光器、含螢光體之樹脂板、育毛機器用光源、通訊用光源等。

[0076]

[多層構造物]

本發明之電子裝置（較好為含量子點螢光體之電子裝置）所使用之多層構造物包含基材（X）與積層於基材

(X) 上之層 (Y)。層 (Y) 含有金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及離子價 ( $F_z$ ) 為 1 以上 3 以下之陽離子 (Z)。磷化合物 (B) 係含有可與前述金屬氧化物 (A) 反應之部位。層 (Y) 中，構成金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 之莫耳數 ( $N_M$ ) 與源自磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數 ( $N_P$ ) 滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係。層 (Y) 中，構成金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 之莫耳數 ( $N_M$ )、陽離子 (Z) 之莫耳數 ( $N_Z$ )、與陽離子 (Z) 之離子價 ( $F_z$ ) 滿足  $0.001 \leq F_z \times N_Z/N_M \leq 0.60$  之關係。又，金屬原子 (M) 意指金屬氧化物 (A) 中所含所有金屬原子。

[0077] 層 (Y) 中所含金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 亦可反應。且，陽離子 (Z) 在層 (Y) 中亦可與磷化合物 (B) 形成鹽。層 (Y) 中金屬氧化物 (A) 反應時，將反應產物中之由金屬氧化物 (A) 所構成之部分視同金屬氧化物 (A)。且，層 (Y) 中磷化合物 (B) 反應時，反應產物中之源自磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數包含於源自磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數 ( $N_P$ ) 中。層 (Y) 中陽離子 (Z) 形成鹽時，構成鹽之陽離子 (Z) 之莫耳數包含於陽離子 (Z) 之莫耳數 ( $N_Z$ ) 中。

[0078] 本發明之多層構造物在層 (Y) 中，藉由滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，而顯示優異之阻隔性。又，本發明之多層構造物在層 (Y) 中，藉由滿足  $0.001 \leq F_z \times N_Z/N_M \leq 0.60$  之關係，使本發明之電子裝置所使用之多層

構造物即使遭受延伸處理等物理應變後仍顯示優異之阻隔性。

[0079] 層 (Y) 中之  $N_M$ 、 $N_P$  及  $N_Z$  之比 (莫耳比) 可視為與第 1 塗覆液 (U) 之製作所用之該等之比相等。

[0080]

[基材 (X)]

基材 (X) 之材質並無特別限制，可使用由各種材質所成之基材。基材 (X) 之材質列舉為例如熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂等樹脂；木材；玻璃；金屬；金屬氧化物等。該等中，以熱可塑性樹脂及纖維集合體較佳，更好為熱可塑性樹脂。基材 (X) 之形態並無特別限制，可為薄膜或薄片等之層狀。基材 (X) 較好包含由熱可塑性樹脂薄膜層及無機蒸鍍層所組成之群選出之至少一種。該情況之基材可為單層，亦可為複數層。基材 (X) 更好包含熱可塑性樹脂薄膜層，亦可除熱可塑性樹脂薄膜層外進一步包含無機蒸鍍層 (X')。

[0081] 基材 (X) 所用之熱可塑性樹脂較好為例如聚乙烯、聚丙烯等聚烯烴系樹脂；聚對苯二甲酸乙二酯 (PET)、聚 2,6-萘二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯或該等之共聚物等聚酯系樹脂；尼龍-6、尼龍-66、尼龍-12 等聚醯胺系樹脂；聚乙烯醇、乙烯-乙醇共聚物等含羥基之聚合物；聚苯乙烯；聚(甲基)丙烯酸酯；聚丙烯腈；聚乙酸乙烯酯；聚碳酸酯；聚芳酸酯；再生纖維素；聚醯亞胺；聚醚醯亞胺；聚砜；聚醚砜；聚醚醯酮；離子

聚合物樹脂等。基材 (X) 之材料較好為由聚乙烯、聚丙烯、聚對苯二甲酸乙二酯、尼龍-6 及尼龍-66 所組成之群選出之至少一種熱可塑性樹脂。

[0082] 使用由前述熱可塑性樹脂所成之薄膜作為基材 (X) 時，基材 (X) 可為延伸薄膜亦可為無延伸薄膜。基於所得多層構造物之加工適性（例如對印刷或層合之適性）優異，較好為延伸薄膜，尤其是二軸延伸薄膜。二軸延伸薄膜亦可為以同時二軸延伸法、逐次二軸延伸法及管狀延伸法之任一種方法製造之二軸延伸薄膜。

[0083]

[無機蒸鍍層 (X') ]

無機蒸鍍層 (X') 較好為對氧或水蒸氣具有阻隔性者，更好為具有透明性者。無機蒸鍍層 (X') 可藉由蒸鍍無機物形成。無機物列舉為例如金屬（例如，鋁）、金屬氧化物（例如，氧化矽、氧化鋁）、金屬氮化物（例如，氮化矽）、金屬氮氧化物（例如氧氮化矽）、或金屬碳化氮化物（例如，碳氮化矽）等。該等中，基於對氧或水蒸氣之阻隔性優異之觀點，較好為以氧化鋁、氧化矽、氧化鎂、或氮化矽形成之無機蒸鍍層。

[0084] 無機蒸鍍層 (X') 之形成方法並無特別限制，可使用真空蒸鍍法（例如，電阻加熱蒸鍍、電子束蒸鍍、分子束磊晶法等）、濺鍍法或離子電鍍法等物理氣相成長法、熱化學氣相成長法（例如，觸媒化學氣相成長法）、光化學氣相成長法、電漿化學氣相成長法（例如，

電容耦合電漿、感應耦合電漿、表面波電漿、電子回旋加速器 ( cyclotron ) 共振、雙頻電磁管、原子層堆積法等)、有機金屬氣相成長法等化學氣相成長法。

[0085] 無機蒸鍍層 ( X' ) 之厚度隨著構成無機蒸鍍層 ( X' ) 之成分種類而不同，但較好為  $0.002\sim 0.5\mu\text{m}$  之範圍，更好為  $0.005\sim 0.2\mu\text{m}$  之範圍，又更好為  $0.01\sim 0.1\mu\text{m}$  之範圍。在該範圍內，只要選擇多層構造物之阻隔性或機械物性良好之厚度即可。無機蒸鍍層 ( X' ) 之厚度未達  $0.002\mu\text{m}$  時，會有無機蒸鍍層對氧或水蒸氣之阻隔性展現之再現性降低之傾向，且，也有無機蒸鍍層無法展現充分阻隔性之情況。又，無機蒸鍍層 ( X' ) 之厚度超過  $0.5\mu\text{m}$  時，在拉伸歪曲多層構造物時會有無機蒸鍍層 ( X' ) 之阻隔性易於下降之傾向。

[0086] 基材 ( X ) 為層狀時，其厚度基於所得多層構造物之機械強度及加工性良好之觀點，較好為  $1\sim 1,000\mu\text{m}$  之範圍，更好為  $5\sim 500\mu\text{m}$  之範圍，又更好為  $9\sim 200\mu\text{m}$  之範圍。

[0087]

[金屬氧化物 ( A ) ]

構成金屬氧化物 ( A ) 之金屬原子 ( M ) 較好原子價為 2 價以上。金屬原子 ( M ) 可列舉例如鎂、鈣等之週期表第 2 族之金屬原子；鈦、鋯等週期表之第 4 族之金屬原子；鋅等之週期表第 12 族之金屬原子；硼、鋁等之週期表第 13 族之金屬原子；矽等之週期表第 14 族之金屬原子

等。又，硼及矽有時歸類為半金屬原子，但本說明書中係將該等包含於金屬原子者。金屬原子 (M) 可為一種，亦可為 2 種以上。該等中，就金屬氧化物 (A) 之生產性或所得多層構造物之氣體阻隔性或水蒸氣阻隔性更優異方面而言，金屬原子 (M) 較好為由鋁、鈦及銳所組成之群選出之至少一種，更好為鋁。亦即，金屬原子 (M) 較好包含鋁。

[0088] 金屬原子 (M) 中所佔之鋁、鈦及銳之合計比例通常為 60 莫耳%以上，亦可為 100 莫耳%。且，金屬原子 (M) 中所佔之鋁之比例通常為 50 莫耳%以上，亦可為 100 莫耳%。金屬氧化物 (A) 係以液相合成法、氣相合成法、固體粉碎等方法製造。

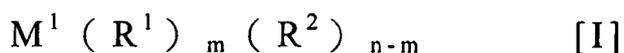
[0089] 金屬氧化物 (A) 亦可為具有鍵結可水解之特性基之金屬原子 (M) 之化合物 (L) 的水解縮合物。該特性基之例包含後述通式 [I] 之  $R^1$ 。化合物 (L) 之水解縮合物實質上可僅為金屬氧化物 (A)。因此，本說明書中，「金屬氧化物 (A)」可替換讀成「化合物 (L) 之水解縮合物」，且「化合物 (L) 之水解縮合物」亦可替換讀成「金屬氧化物 (A)」。

[0090]

[含有鍵結可水解之特性基之金屬原子 (M) 之化合物 (L)]

就與磷化合物 (B) 之反應控制較容易，所得多層構造物之氣體阻隔性優異而言，化合物 (L) 較好包含至少

一種以下述通式 [I] 表示之化合物 ( $L^1$ )。



式中， $M^1$  選自由鋁、鈦及鋯所組成之群。 $R^1$  為具有鹵原子（氟原子、氯原子、溴原子、碘原子）、 $NO_3$ 、可具有取代基之碳數 1~9 之烷氧基、可具有取代基之碳數 1~9 之醯氧基、可具有取代基之碳數 3~9 之烯氧基、可具有取代基之碳數 5~15 之  $\beta$ -二酮基（diketonato）、或可具有取代基之碳數 1~9 之醯基之二醯基甲基。 $R^2$  為可具有取代基之碳數 1~9 之烷基、可具有取代基之碳數 7~10 之芳烷基、可具有取代基之碳數 2~9 之烯基、或可具有取代基之碳數 6~10 之芳基。 $m$  為 1~ $n$  之整數。 $n$  等於  $M^1$  之原子價。 $R^1$  複數存在時， $R^1$  可彼此相同亦可不同。 $R^2$  複數存在時， $R^2$  可彼此相同亦可不同。

[0091]  $R^1$  之烷氧基列舉為例如甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第二丁氧基、第三丁氧基、苄氧基、二苯基甲氧基、三苯甲氧基（trityloxy）、4-甲氧基苄氧基、甲氧基甲氧基、1-乙氧基乙氧基、苄氧基甲氧基、2-三甲基矽烷基乙氧基、2-三甲基矽烷基乙氧基甲氧基、苯氧基、4-甲氧基苯氧基等。

[0092]  $R^1$  之醯氧基列舉為例如乙醯氧基、乙基羰氧基、正丙基羰氧基、異丙基羰氧基、正丁基羰氧基、異丁基羰氧基、第二丁基羰氧基、第三丁基羰氧基、正辛基羰氧基等。

[0093]  $R^1$  之烯氧基列舉為例如烯丙氧基、2-丙烯氧

基、2-丁烯氧基、1-甲基-2-丙烯氧基、3-丁烯氧基、2-甲基-2-丙烯氧基、2-戊烯氧基、3-戊烯氧基、4-戊烯氧基、1-甲基-3-丁烯氧基、1,2-二甲基-2-丙烯氧基、1,1-二甲基-2-戊烯氧基、2-甲基-2-丁烯氧基、3-甲基-2-丁烯氧基、2-甲基-3-丁烯氧基、3-甲基-3-丁烯氧基、1-乙炔基-2-丙烯氧基、5-己烯氧基等。

[0094]  $R^1$  之  $\beta$ -二酮基列舉為例如 2,4-戊二酮基、1,1,1-三氟-2,4-戊二酮基、1,1,1,5,5,5-六氟-2,4-戊二酮基、2,2,6,6-四甲基-3,5-戊二酮基、1,3-丁二酮基、2-甲基-1,3-丁二酮基、2-甲基-1,3-丁二酮基、苯甲醯基丙酮基等。

[0095]  $R^1$  之二醯基甲基之醯基列舉為例如甲醯基、乙醯基、丙醯基 (propionyl)、丁醯基 (butanoyl)、戊醯基 (pentanoyl)、己醯基等碳數 1~6 之脂肪族醯基；苯甲醯基、甲苯醯基等芳香族醯基 (芳醯基) 等。

[0096]  $R^2$  之烷基列舉為例如甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基、正戊基、異戊基、正己基、異己基、3-甲基戊基、2-甲基戊基、1,2-二甲基丁基、環丙基、環戊基、環己基等。

[0097]  $R^2$  之芳烷基列舉為例如苄基、苯基乙基 (苯乙基) 等。

[0098]  $R^2$  之烯基列舉為例如乙炔基、1-丙炔基、2-丙炔基、異丙炔基、3-丁炔基、2-丁炔基、1-丁炔基、1-甲基-2-丙炔基、1-甲基-1-丙炔基、1-乙基-1-乙炔基、2-甲

基-2-丙烯基、2-甲基-1-丙烯基、3-甲基-2-丁烯基、4-戊烯基等。

[0099]  $R^2$  之芳基列舉為例如苯基、1-萘基、2-萘基等。

[0100]  $R^1$  及  $R^2$  中之取代基列舉為例如碳數 1~6 之烷基；甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、正丁氧基、異丁氧基、第二丁氧基、第三丁氧基、正戊氧基、異戊氧基、正己氧基、環丙氧基、環丁氧基、環戊氧基、環己氧基等碳數 1~6 之烷氧基；甲氧基羰基、乙氧基羰基、正丙氧基羰基、異丙氧基羰基、正丁氧基羰基、異丁氧基羰基、第二丁氧基羰基、第三丁氧基羰基、正戊氧基羰基、異戊氧基羰基、環丙氧基羰基、環丁氧基羰基、環戊氧基羰基等碳數 1~6 之烷氧基羰基；苯基、甲苯基、萘基等芳香族烴基；氟原子、氯原子、溴原子、碘原子等鹵原子；碳數 1~6 之醯基；碳數 7~10 之芳烷基；碳數 7~10 之芳烷氧基；碳數 1~6 之烷基胺基；具有碳數 1~6 之烷基之二烷基胺基。

[0101]  $R^1$  較好為鹵原子、 $\text{NO}_3$ 、可具有取代基之碳數 1~6 之烷氧基、可具有取代基之碳數 1~6 之醯氧基、可具有取代基之碳數 5~10 之  $\beta$ -二酮基、或具有可具有取代基之碳數 1~6 之醯基之二醯基甲基。

[0102]  $R^2$  較好為可具有取代基之碳數 1~6 之烷基。 $M^1$  較好為鋁。 $M^1$  為鋁時， $m$  較好為 3。

[0103] 化合物 ( $L^1$ ) 之具體例列舉為例如硝酸鋁、

乙酸鋁、參(2,4-戊二酸)鋁、三甲氧基鋁、三乙氧基鋁、三正丙氧基鋁、三異丙氧基鋁、三正丁氧基鋁、三-第二丁氧基鋁、三-第三丁氧基鋁等鋁化合物；肆(2,4-戊二酸)鈦、四甲氧基鈦、四乙氧基鈦、四異丙氧基鈦、四正丁氧基鈦、肆(2-乙基己氧基)鈦等鈦化合物；肆(2,4-戊二酸)鋯、四正丙氧基鋯、四正丁氧基鋯等鋯化合物。該等中，化合物(L<sup>1</sup>)較好為選自三異丙氧基鋁及三-第二丁氧基鋁之至少一種化合物。化合物(L)可單獨使用1種，亦可併用2種以上。

[0104] 化合物(L)中，只要能獲得本發明之效果，則化合物(L)中所佔之化合物(L<sup>1</sup>)之比例並無特別限制。化合物(L<sup>1</sup>)以外之化合物於化合物(L)中所佔之比例較好為例如20莫耳%以下，更好為10莫耳%以下，又更好為5莫耳%以下，亦可為0莫耳%。

[0105] 藉由使化合物(L)水解，使化合物(L)所具有之可水解之特性基之至少一部分轉換成羥基。進而，藉由使該水解物縮合，而形成金屬原子(M)透過氧原子(O)鍵結之化合物。重複該縮合時，形成實質上視為金屬氧化物之化合物。又，如此形成之金屬氧化物(A)之表面通常存在羥基。

[0106] 本說明書中係於金屬氧化物(A)中包含[僅鍵結於金屬原子(M)之氧原子(O)之莫耳數]/[金屬原子(M)之莫耳數]之比為0.8以上之化合物。此處，僅鍵結於金屬原子(M)之氧原子(O)係以M-O-M表示之構

造中之氧原子 (O)，如以 M-O-H 表示之構造中之氧原子 (O) 中鍵結於金屬原子 (M) 與氫原子 (H) 之氧原子除外。金屬氧化物 (A) 中之前述比，較好為 0.9 以上，更好為 1.0 以上，又更好為 1.1 以上。該比之上限並無特別限制，但將金屬原子 (M) 之原子價設為  $n$  時，通常以  $n/2$  表示。

[0107] 為了引起前述水解縮合，重要的是化合物 (L) 具有可水解之特性基。未鍵結該等基時，不會引起水解縮合反應或極度緩慢，故難以調製目標之金屬氧化物 (A)。

[0108] 化合物 (L) 之水解縮合物亦可例如以習知之溶凝膠法中採用之手法自特定原料製造。前述原料可使用由化合物 (L)、化合物 (L) 之部分水解物、化合物 (L) 之完全水解物、化合物 (L) 之部分水解縮合物及化合物 (L) 之完全水解物之一部份經縮合而成者所組成之群選出之至少一種。

[0109]

[磷化合物 (B)]

磷化合物 (B) 含有可與金屬氧化物 (A) 反應之部位，典型上含有複數個該部位。磷化合物 (B) 較好為無機磷化合物。磷化合物 (B) 較好為含有 2~20 個可與金屬氧化物 (A) 反應之部位 (原子團或官能基) 之化合物。此部位中包含可與存在於金屬氧化物 (A) 表面上之官能基 (例如，羥基) 縮合反應之部位。此部位列舉為例如與

磷原子直接鍵結之鹵原子、與磷原子直接鍵結之氧原子等。存在於金屬氧化物 (A) 表面之官能基 (例如羥基) 通常與構成金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 鍵結。

[0110] 磷化合物 (B) 列舉為例如磷酸、4 分子以上之磷酸經縮合而成之聚磷酸、亞磷酸、麟酸、亞麟酸、次麟酸、次亞麟酸等磷之含氧酸、及該等之鹽 (例如磷酸鈉)、以及該等之衍生物 (例如, 鹵化物 (例如氯化磷)、脫水物 (例如五氧化二磷)) 等。

[0111] 磷化合物 (B) 可單獨使用 1 種, 亦可併用 2 種以上。該等磷化合物 (B) 中, 較好單獨使用磷酸, 或併用磷酸與其以外之磷化合物 (B)。藉由使用磷酸, 而提高後述之第 1 塗覆液 (U) 之安定性與所得多層構造物之氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性。

[0112]

[金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 之比率]

本發明之多層構造物係層 (Y) 中,  $N_M$  與  $N_P$  滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係者, 較好為滿足  $1.0 \leq N_M/N_P \leq 3.6$  之關係者, 更好為滿足  $1.1 \leq N_M/N_P \leq 3.0$  之關係者。 $N_M/N_P$  之值超過 4.5 時, 金屬氧化物 (A) 對磷化合物 (B) 為過量, 使金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 之鍵結不完全, 且存在於金屬氧化物 (A) 表面之羥基之量變多, 故有氣體阻隔性及其安定性下降之傾向。另一方面,  $N_M/N_P$  之值未達 0.8 時, 磷化合物 (B) 對金屬氧化物 (A) 為過量, 未參與與金屬化合物 (A) 之鍵結之過量磷化合物

(B) 變多，且源自磷化合物 (B) 之羥基量容易變多，仍有氣體阻隔性與其安定性下降之傾向。

[0113] 又，前述比可依據用以形成層 (Y) 之第 1 塗覆液 (U) 中之金屬氧化物 (A) 之量與磷化合物 (B) 之量之比而調整。層 (Y) 中之莫耳數 ( $N_M$ ) 與莫耳數 ( $N_P$ ) 之比通常與第 1 塗覆液 (U) 中之比的構成金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 之莫耳數與構成磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數之比相同。

[0114]

[反應產物 (D)]

反應產物 (D) 係由金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 之反應而得。此處，使金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 與進而其他化合物反應生成之化合物亦包含於反應產物 (D) 中。反應產物 (D) 亦部分地包含未參與反應之金屬氧化物 (A) 及/或磷化合物 (B)。

[0115]

[陽離子 (Z)]

陽離子 (Z) 之離子價 ( $F_Z$ ) 為 1 以上 3 以下。陽離子 (Z) 為包含週期表第 2~7 週期之元素之陽離子。陽離子 (Z) 列舉為例如選自由鋰離子、鈉離子、鉀離子、鎂離子、鈣離子、鈦離子、鋯離子、鑷系離子 (例如，鑷離子)、釩離子、錳離子、鐵離子、鈷離子、鎳離子、銅離子、鋅離子、硼離子、鋁離子及銨離子等，其中以鋰離子、鈉離子、鉀離子、鎂離子、鈣離子、鋅離子較佳。陽

離子 (Z) 可為 1 種，亦可包含 2 種以上。關於陽離子 (Z) 之作用目前並不明確。其一假設認為係陽離子 (Z) 藉由與金屬氧化物 (A) 或磷化合物 (B) 之羥基之相互作用，抑制無機化合物例子之肥大化，且藉由更小粒子之充填而提高阻隔層之緻密性之結果，抑制含量子點螢光體之電子裝置之性能下降。因此，需要更高的性能下降抑制功能時，較好使用可形成離子鍵之離子價 ( $F_z$ ) 較小之陽離子。

[0116] 又，陽離子 (Z) 包含離子價不同之複數種陽離子時， $F_z \times N_z$  之值為藉由對每個陽離子計算之值予以合計而獲得。例如，陽離子 (Z) 包含 1 莫耳之鈉離子 ( $\text{Na}^+$ ) 與 2 莫耳之鈣離子 ( $\text{Ca}^{2+}$ ) 時， $F_z \times N_z = 1 \times 1 + 2 \times 2 = 5$ 。

[0117] 陽離子 (Z) 可藉由使溶解於溶劑時產生陽離子 (Z) 之離子性化合物 (E) 溶解於第 1 塗覆液 (U) 中而添加於層 (Y) 中。陽離子 (Z) 之抗衡離子列舉為例如氫氧化物離子、氯化物離子、硫酸離子、硫酸氫離子、硝酸離子、碳酸離子、碳酸氫離子等無機陰離子；乙酸離子、硬脂酸離子、草酸離子、酒石酸離子等有機酸陰離子等。陽離子 (Z) 之離子性化合物 (E) 亦可為藉由溶解而產生陽離子 (Z) 之金屬化合物 ( $\text{Ea}$ ) 或金屬氧化物 ( $\text{Eb}$ ) (金屬氧化物 (A) 除外)。

[0118]

[金屬氧化物 (A) 與陽離子 (Z) 之比率]

本發明之多層構造物為於層 (Y) 中， $F_Z$  與  $N_Z$  與  $N_M$  滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係者，較好為滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.30$  之關係者，更好為滿足  $0.01 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.30$  之關係者。

[0119]

[磷化合物 (B) 與陽離子 (Z) 之比率]

本發明之多層構造物為於層 (Y) 中， $F_Z$  與  $N_Z$  與  $N_P$  滿足  $0.0008 \leq F_Z \times N_Z / N_P \leq 1.35$  之關係者，較好為滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z / N_P \leq 1.00$  之關係者，更好為滿足  $0.0012 \leq F_Z \times N_Z / N_P \leq 0.35$  之關係者，最好為滿足  $0.012 \leq F_Z \times N_Z / N_P \leq 0.29$  之關係者。

[0120]

[聚合物 (C)]

層 (Y) 亦可進而包含特定之聚合物 (C)。聚合物 (C) 為例如含有由羰基、羥基、羧基、羧酸酐基及羧基之鹽所組成之群選出之至少一種官能基之聚合物。

[0121] 具有羥基之聚合物 (C) 之具體例列舉為例如聚酮；聚乙烯醇、含有 1~50 莫耳%之碳數 4 以下之  $\alpha$ -烯烴單位之改質聚乙烯醇、聚乙烯縮醛（例如聚乙烯丁縮醛）等聚乙烯醇系聚合物；纖維素、澱粉、環糊精等多醣類；聚（甲基）丙烯酸羥基乙酯、聚（甲基）丙烯酸、乙烯-丙烯酸共聚物等（甲基）丙烯酸系聚合物；乙烯-馬來酸酐共聚物之水解物、苯乙烯-馬來酸酐共聚物之水解物、異丁烯-馬來酸酐交替共聚物之水解物等之馬來酸系

聚合物等。該等中，以聚乙烯醇系聚合物較佳，具體而言較好為聚乙烯醇及含有 1~15 莫耳%之碳數 4 以下之  $\alpha$ -烯烴單位之改質聚乙烯醇。

[0122] 聚乙烯醇系聚合物之皂化度並無特別限制，較好為 75.0~99.85 莫耳%，更好為 80.0~99.5 莫耳%。聚乙烯醇系聚合物之黏度平均聚合度較好為 100~4,000，更好為 300~3,000。且，聚乙烯醇系聚合物之 20°C 之 4 質量%水溶液之黏度較好為 1.0~200mPa·s，更好為 11~90mPa·s。前述皂化度、黏度平均聚合度及 4 質量%水溶液之黏度係依據 JIS K 6726 (1994 年) 求出之值。

[0123] 聚合物 (C) 可為具有聚合性基之單體 (例如乙酸乙烯酯、丙烯酸) 之均聚物，亦可為 2 種以上之單體之共聚物，亦可為具有羰基、羥基及 / 或羧基之單體與不具有該基之單體之共聚物。

[0124] 聚合物 (C) 之分子量並無特別限制。為獲得具有更優異阻隔性及力學物性 (例如，落下衝擊強度) 之多層構造物，聚合物 (C) 之數平均分子量較好為 5,000 以上，更好為 8,000 以上，又更好為 10,000 以上。聚合物 (C) 之數平均分子量上限並無特別限制，為例如 1,500,000 以下。

[0125] 為進一步提高阻隔性，層 (Y) 中之聚合物 (C) 之含量以層 (Y) 之質量為基準 (100 質量%)，較好為 50 質量%以下，更好為 40 質量%以下，又更好為 30 質量%以下，亦可為 20 質量%以下。聚合物 (C) 可與層

(Y) 中之其他成分反應，亦可不反應。

[0126]

[層 (Y) 中之其他成分]

多層構造物中之層 (Y) 除金屬氧化物 (A)、化合物 (L)、磷化合物 (B)、反應產物 (D)、陽離子 (Z) 或其化合物 (E)、酸 (水解縮合所使用之酸觸媒、解膠時之酸等) 及聚合物 (C) 以外，亦可含其他成分。其他成分列舉為例如不含陽離子 (Z) 之碳酸鹽、鹽酸鹽、硝酸鹽、碳酸氫鹽、硫酸鹽、硫酸氫鹽、硼酸鹽等無機酸金屬鹽；不含陽離子 (Z) 之乙酸鹽、硬脂酸鹽、草酸鹽、酒石酸鹽等有機酸金屬鹽；層狀黏土化合物；交聯劑；聚合物 (C) 以外之高分子化合物；可塑劑；抗氧化劑；紫外線吸收劑；難燃劑等。多層構造物中之層 (Y) 中之前述其他成分之含量相對於層 (Y) 之質量較好為 50 質量%以下，更好為 20 質量%以下，又更好為 10 質量%以下，最好為 5 質量%以下，亦可為 0 質量% (不含其他成分)。

[0127]

[層 (Y) 之厚度]

層 (Y) 之厚度 (多層構造物具有 2 層以上之層 (Y) 時為各層 (Y) 之厚度之合計) 較好為 0.05~4.0 $\mu\text{m}$ ，更好為 0.1~2.0 $\mu\text{m}$ 。藉由使層 (Y) 變薄，可將印刷、層合等加工時之多層構造物之尺寸變化抑制在較低。此外，為增加多層構造體之柔軟性，亦可使其力學特性接

近基材本身之力學特性。本發明之多層構造物具有 2 層以上之層 (Y) 時，基於氣體阻隔性之觀點，層 (Y) 每一層之厚度較好為  $0.05\mu\text{m}$  以上。層 (Y) 之厚度可藉由層 (Y) 之形成所用之後述第 1 塗覆液 (U) 之濃度、或其塗佈方法加以控制。

[0128]

[層 (Y) 之紅外線吸收光譜]

層 (Y) 之紅外線吸收光譜中， $800\sim 1,400\text{cm}^{-1}$  之區域中之最大吸收波數較好於  $1,080\sim 1,130\text{cm}^{-1}$  之範圍。金屬氧化物 (A) 與磷化合物 (B) 反應成為反應產物 (D) 之過程中，源自金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 與源自磷化合物 (B) 之磷原子 (P) 透過氧原子 (O) 鍵結而形成以 M-O-P 表示之鍵。結果，於紅外線吸收光譜中產生源自該鍵結之特性吸收帶。依據本發明人等檢討之結果了解，基於 M-O-P 鍵而於  $1,080\sim 1,130\text{cm}^{-1}$  之區域見到吸收帶時，所得多層構造物展現優異之氣體阻隔性。尤其可知，該特性吸收帶在一般源自各種原子與氧原子之鍵結之吸收所見之  $800\sim 1,400\text{cm}^{-1}$  之區域中為最強之吸收時，所得之多層構造物展現更優異之氣體阻隔性。

[0129] 相對於此，預先混合金屬烷氧化物或金屬鹽等金屬化合物與磷化合物 (B) 後進行水解縮合時，源自金屬化合物之金屬原子與源自磷化合物 (B) 之磷原子大致均勻混合反應而獲得複合體。該情況下，紅外線吸收光譜中， $800\sim 1,400\text{cm}^{-1}$  之區域中最大吸收波數偏離  $1,080\sim$

1,130 $\text{cm}^{-1}$ 之範圍外。

[0130] 層 (Y) 之紅外線吸收光譜中，800~1,400 $\text{cm}^{-1}$ 之區域中之最大吸收帶之半值寬，基於所得多層構造物之氣體阻隔性之觀點，較好為 200 $\text{cm}^{-1}$  以下，更好為 150 $\text{cm}^{-1}$  以下，又更好為 100 $\text{cm}^{-1}$  以下，最好為 50 $\text{cm}^{-1}$  以下。

[0131] 層 (Y) 之紅外線吸收光譜可藉實施例所記載之方法測定。但，無法以實施例中所記載之方法測定時，可藉反射吸收法、外部反射法、衰減全反射法等反射測定，亦可自多層構造物取得層 (Y)，藉石蠟糊法 (nujol mull method)、錠劑法等之透過測定之方法測定，但並不限於該等。

[0132]

[層 (W) ]

本發明之多層構造物亦可進一步包含層 (W)。層 (W) 包含具有含有磷原子之官能基之聚合物 (G1)。層 (W) 較好與層 (Y) 鄰接配置。亦即，層 (W) 與層 (Y) 較好配置為相互接觸。又，層 (W) 較好隔著層 (Y) 配置於與基材 (X) 相反側 (較好為相反側之表面) 上。換言之，較好在基材 (X) 與層 (W) 之間配置層 (Y)。較佳之一例為層 (W) 隔著層 (Y) 配置於與基材 (X) 相反側 (較好相反側之表面) 上，且與層 (Y) 鄰接配置。層 (W) 亦可進一步包含具有羥基及/或羧基之聚合物 (G2)。聚合物 (G2) 可使用與聚合物 (C) 相同者。針對聚合物 (G1) 說明於下。

[0133]

[聚合物 (G1)]

具有含磷原子之官能基之聚合物 (G1) 所具有之含磷原子之官能基列舉為例如磷酸基、亞磷酸基、膦酸基、亞膦酸基、次膦酸基、次亞膦酸基、及該等之鹽、以及由該等之所衍生之官能基 (例如, (部分) 酯化合物、鹵化物 (例如氯化物)、脫水物) 等。其中, 以磷酸基及/或膦酸基較佳, 更好為膦酸基。

[0134] 聚合物 (G1) 列舉為例如丙烯酸 6-[(2-膦基乙醯基) 氧基]己酯、甲基丙烯酸 2-膦基氧基乙酯、甲基丙烯酸膦基甲酯、甲基丙烯酸 11-膦基十一烷酯、甲基丙烯酸 1,1-二膦基乙酯等膦基 (甲基) 丙烯酸酯類之聚合物; 乙烯基膦酸、2-丙烷-1-膦酸、4-乙烯基苄基膦酸、4-乙烯基苯基膦酸等膦酸類之聚合物; 乙烯基次膦酸、4-乙烯基苄基次膦酸等次膦酸類之聚合物; 磷酸澱粉等。聚合物 (G1) 可為具有至少一種前述含磷原子之官能基之單體之均聚物, 亦可為 2 種以上之單體之共聚物。此外, 亦可混合 2 種以上之由單一之單體所成之聚合物作為聚合物 (G1) 使用。其中, 以膦基 (甲基) 丙烯酸酯類之聚合物及/或乙烯基膦酸類之聚合物較佳, 更好為乙烯基膦酸類之聚合物。聚合物 (G1) 較好為聚 (乙烯基膦酸) 或聚 (2-膦氧基乙基甲基丙烯酸酯), 亦可為聚 (乙烯基膦酸)。此外, 聚合物 (G1) 亦可藉由使乙烯基膦酸鹵化物或乙烯基膦酸酯等乙烯基膦酸衍生物均聚合或共聚合後,

進行水解而獲得。

[0135] 且，聚合物（G1）亦可為具有至少一種含磷原子之官能基之單體與其他乙烯基單體之共聚物。可與具有含磷原子之官能基之單體共聚合之其他乙烯基單體列舉為例如（甲基）丙烯酸、（甲基）丙烯酸酯類、丙烯腈、甲基丙烯腈、苯乙烯、核取代之苯乙烯類、烷基乙烯基醚類、烷基乙烯酯類、全氟烷基乙烯基醚類、全氟烷基丙烯酸酯類、馬來酸、馬來酸酐、富馬酸、衣康酸、馬來醯亞胺、苯基馬來醯亞胺等。該等中，以（甲基）丙烯酸酯類、丙烯腈、苯乙烯、馬來醯亞胺及苯基馬來醯亞胺較佳。

[0136] 為了獲得具有更優異耐歪曲性之多層構造物，源自具有含磷原子之官能基之單體之構成單位佔聚合物（G1）之全部構成單位之比例較好為 10 莫耳%以上，更好為 20 莫耳%以上，又更好為 40 莫耳%以上，最好為 70 莫耳%以上，亦可為 100 莫耳%。

[0137] 聚合物（G1）之分子量並無特別限制，但較好數平均分子量為 1,000~100,000 之範圍。數平均分子量在該範圍內時，可以高的程度兼顧藉由積層層（W）之耐歪曲性之改善效果，與後述之第 2 塗覆液（V）之黏度安定性。此外，積層後述之層（Y）時，每 1 個磷原子之聚合物（G1）之分子量為 100~500 之範圍時可更提高耐歪曲性之改善效果。

[0138] 層（W）可僅以聚合物（G1）構成，亦可僅

以聚合物 (G1) 及聚合物 (G2) 構成，亦可進而含有其他成分。層 (W) 中所含之其他成分列舉為例如碳酸鹽、鹽酸鹽、硝酸鹽、碳酸氫鹽、硫酸鹽、硫酸氫鹽、硼酸鹽等無機酸金屬鹽；乙酸鹽、硬脂酸鹽、草酸鹽、酒石酸鹽等有機酸金屬鹽；環戊二烯基金屬錯合物（例如二茂鈦 (titanocene)）、氘基金屬錯合物（例如普魯士藍）等之金屬錯合物；層狀黏土化合物；交聯劑；聚合物 (G1) 及聚合物 (G2) 以外之高分子化合物；可塑劑；抗氧化劑；紫外線吸收劑；難燃劑等。層 (W) 中之前述其他成分之含量較好為 50 質量%以下，更好為 20 質量%以下，又更好為 10 質量%以下，最好為 5 質量%以下，亦可為 0 質量%（不含其他成分）。層 (W) 不含金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及陽離子 (Z) 中之至少一種。典型上，層 (W) 至少不含金屬氧化物 (A)。

[0139] 基於良好保持多層構造物外觀之觀點，層 (W) 中之聚合物 (G2) 之含量以層 (W) 之質量為基準 (100 質量%)，較好為 85 質量%以下，更好為 50 質量%以下，又更好為 20 質量%以下，最好為 10 質量%以下。聚合物 (G2) 可與層 (W) 中之成分反應，亦可不反應。聚合物 (G1) 與聚合物 (G2) 之質量比係聚合物 (G1) : 聚合物 (G2) 較好為 15 : 85~100 : 0 之範圍，更好為 15 : 85~99 : 1 之範圍。

[0140] 層 (W) 之每一層厚度基於使本發明之多層構造物對於物理應變（例如歪曲）之耐性更良好之觀點，較

好為  $0.003\mu\text{m}$  以上。層 (W) 之厚度上限並無特別限制，但  $1.0\mu\text{m}$  以上時對於物理應變之耐性改善效果已達到飽和。因此，層 (W) 之合計厚度之上限，基於經濟性觀點較好設為  $1.0\mu\text{m}$ 。層 (W) 之厚度可藉由層 (W) 之形成所用之後述第 2 塗覆液 (V) 之濃度、或其塗佈方法加以控制。

[0141]

[多層構造物之製造方法]

依據本發明之製造方法，可容易地製造本發明之多層構造物。針對本發明之多層構造物說明之事項由於可應用於本發明之製造方法，故有省略重複說明之情況。此外，針對本發明之製造方法說明之事項可應用於本發明之多層構造物。

[0142] 本發明之多層構造物之製造方法包含步驟 [I]、[II] 及 [III]。步驟 [I] 係藉由混合金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及陽離子 (Z) 之離子性化合物 (E)，而調製包含金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及陽離子 (Z) 之第 1 塗覆液 (U)。步驟 [II] 係藉由將第 1 塗覆液 (U) 塗佈於基材 (X) 上，而於基材 (X) 上形成層 (Y) 之前驅物層。步驟 [III] 係在  $110^\circ\text{C}$  以上之溫度熱處理該前驅物層，而於基材 (X) 上形成層 (Y)。

[0143]

[步驟 [I] (第 1 塗覆液 (U) 之調製)]

步驟 [I] 係混合金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及

陽離子 (Z) 之離子性化合物 (E)。混合該等時亦可添加溶劑。第 1 塗覆液 (U) 中，自離子性化合物 (E) 生成陽離子 (Z)。第 1 塗覆液 (U) 除金屬氧化物 (A)、磷化合物 (B) 及陽離子 (Z) 外，亦可包含其他化合物。

[0144] 第 1 塗覆液 (U) 中， $N_M$  與  $N_P$  較好滿足前述之關係式。且， $N_M$  與  $N_Z$  與  $F_Z$  較好滿足前述關係式。另外， $N_P$  與  $N_Z$  與  $F_Z$  較好滿足前述關係式。

[0145] 步驟 [I] 較好包含以下步驟 [I-a]~[I-c]。

步驟 [I-a]：調製含金屬氧化物 (A) 之液體之步驟，

步驟 [I-b]：調製含磷化合物 (B) 之溶液之步驟，

步驟 [I-c]：混合前述步驟 [I-a] 及 [I-b] 所得之含金屬氧化物 (A) 之液體與含磷化合物 (B) 之溶液之步驟。

[0146] 步驟 [I-b] 可在步驟 [I-a] 之前或之後任一時間進行，亦可與步驟 [I-a] 同時進行。以下，針對各步驟更具體加以說明。

[0147] 步驟 [I-a] 係調製含金屬氧化物 (A) 之液體。該液體為溶液或分散液。該液體可例如根據習知之溶凝膠法中採用之手法，混合例如上述之化合物 (L)、水及視需要之酸觸媒或有機溶劑，使化合物 (L) 縮合或水解縮合而調製。藉由使化合物 (L) 縮合或水解縮合獲得金屬化合物 (A) 之分散液時，亦可視需要對該分散液進行特定處理（如前述之解膠或用以控制濃度之溶劑之增減等）。步驟 [I-a] 亦可包含使由化合物 (L) 及化合物 (L) 之水解物所組成之群選出之至少一種進行縮合（例如脫水

縮合)之步驟。步驟[I-a]中可使用之有機溶劑之種類並無特別限制，較好為例如甲醇、乙醇、異丙醇等醇類、水及該等之混合溶劑。該溶劑中之金屬氧化物(A)之含量較好為0.1~30質量%之範圍，更好為1~20質量%之範圍，又更好為2~15%之範圍。

[0148] 例如，金屬氧化物(A)為氧化鋁時，氧化鋁之分散液之調製首先視需要藉由在以酸觸媒經pH調整之水溶液中使烷氧化鋁進行水解縮合而獲得氧化鋁之漿液。接著，在特定量之酸存在下使該漿液解膠，藉此獲得氧化鋁之分散液。又，含鋁以外之金屬原子之金屬氧化物(A)之分散液亦可藉相同方法製造。至於酸較好為例如鹽酸、硫酸、硝酸、乙酸、乳酸及丁酸，更好為硝酸及乙酸。

[0149] 步驟[I-b]係調製含磷化合物(B)之溶液。前述溶液可藉由使磷化合物(B)溶解於溶劑中而調製。磷化合物(B)之溶解性低時，亦可藉由施以加熱處理或超音波處理而促進溶解。溶劑只要依據磷化合物(B)之種類適當選擇即可，但較好包含水。只要不妨礙磷化合物(B)之溶解，則溶劑亦可包含有機溶劑(例如甲醇)。

[0150] 含磷化合物(B)之溶液中之磷化合物(B)之含量較好為0.1~99質量%之範圍，更好為45~95質量%之範圍，又更好為55~90質量%之範圍。

[0151] 步驟[I-c]係混合含金屬氧化物(A)之液體與含磷化合物(B)之溶液。藉由使混合時之溫度維持在30

°C 以下（例如，20°C），而有可獲得保存安定性優異之第 1 塗覆液（U）之情況。

[0152] 含陽離子（Z）之化合物（E）亦可在由步驟 [I-a]、步驟 [I-b] 及步驟 [I-c] 所組成之群選出之至少一步驟中添加，亦可在該等中之任一步驟中添加。例如，化合物（E）可添加於步驟 [I-a] 之含金屬氧化物（A）之液體中或添加於步驟 [I-b] 之含磷化合物（B）之溶液中，亦可添加於步驟 [I-c] 中之含金屬氧化物之液體與含磷化合物（B）之溶液之混合液中。

[0153] 又，第 1 塗覆液（U）亦可包含聚合物（C）。第 1 塗覆液（U）中包含聚合物（C）之方法並無特別限制。例如，聚合物（C）可作為溶液添加，混合於含金屬氧化物（A）之液體、含磷化合物（B）之溶液及該等之混合液之任一者中，亦可以粉末或顆粒之狀態添加後溶解。藉由於含磷化合物（B）之溶液中含有聚合物（C），在混合含金屬氧化物（A）之液體與含磷化合物（B）之溶液時可使金屬氧化物（A）與磷化合物（B）之反應速度變慢，結果，會有獲得經時安定性優異之第 1 塗覆液（U）之情況。

[0154] 第 1 塗覆液（U）亦可視需要包含由鹽酸、硝酸、乙酸、三氟乙酸及三氯乙酸選出之至少一種之酸化合物（J）。酸化合物（J）之含量較好為 0.1~5.0 質量%之範圍，更好為 0.5~2.0 質量%之範圍。在該等範圍中獲得酸化合物（J）之添加效果，且酸化合物（J）之去除容

易。含金屬氧化物 (A) 之液體中殘留酸成分時，只要考慮其殘留量而決定酸化合物 (J) 之添加量即可。

[0155] 步驟 [I-c] 中獲得之混合亦可直接使用作為第 1 塗覆液 (U)。該情況下，通常以含金屬氧化物 (A) 之液體或含磷化合物 (B) 之液體中所含之溶劑作為第 1 塗覆液 (U) 之溶劑。此外，亦可於前述混合液中進行有機溶劑之添加、pH 之調製、黏度之調製、添加物之添加等之處理而調製第 1 塗覆液 (U)。有機溶劑列舉為例如含磷化合物 (B) 之溶液之調製所使用之溶劑等。

[0156] 基於第 1 塗覆液 (U) 之保存安定性、及第 1 塗物液 (U) 對基材 (X) 之塗佈性之觀點，第 1 塗覆液 (U) 之固體成分濃度較好為 1~20 質量%之範圍，更好為 2~15 質量%之範圍，又更好為 3~10 質量%之範圍。第 1 塗覆液 (U) 之固體成分濃度可藉由例如將特定量之第 1 塗覆液 (U) 添加於玻璃皿中，加熱該玻璃皿去除溶劑等揮發成分，且將殘留之固體成分之質量除以最初添加之第 1 塗覆液 (U) 之質量而算出。

[0157] 第 1 塗覆液 (U) 之以 Brookfield 型旋轉黏度計 (SB 形黏度計：轉子 No.3，旋轉速度 60rpm) 測定之黏度，在塗佈時之溫度較好為 3,000mPa·s 以下，更好為 2,500mPa·s 以下，又更好為 2,000mPa·s 以下。藉由使該黏度為 3,000mPa·s 以下，可提高第 1 塗覆液 (U) 之調平性，且可獲得外觀更優異之多層構造物。且，第 1 塗覆液 (U) 之黏度較好為 50mPa·s 以上，更好為 100mPa

- s 以上，又較好為 100mPa · s 以上，又更好為 200mPa · s 以上。

[0158] 第 1 塗覆液 (U) 中， $N_M$  與  $N_P$  滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係。且，第 1 塗覆液 (U) 中， $N_M$  與  $N_Z$  與  $F_Z$  滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z/N_M \leq 0.60$  之關係。另外，第 1 塗覆液 (U) 中， $F_Z$  與  $N_Z$  與  $N_P$  較好為滿足  $0.0008 \leq F_Z \times N_Z/N_P \leq 1.35$  之關係者。

[0159]

[步驟 [II] (第 1 塗覆液 (U) 之塗佈)]

步驟 [II] 係藉由將第 1 塗覆液 (U) 塗佈在基材 (X) 上，而於基材 (X) 上形成層 (Y) 之前驅物層。第 1 塗覆液 (U) 亦可直接塗佈於基材 (X) 之至少一面上。此外，塗佈第 1 塗覆液 (U) 之前，亦可以習知之錨定塗覆劑處理基材 (X) 表面，將習知之接著劑塗佈於基材 (X) 之表面等，而於基材 (X) 之表面形成接著層 (H)。

[0160] 將第 1 塗覆液 (U) 塗佈於基材 (X) 上之方法並無特別限制，可採用習知之方法。塗佈方法列舉為例如澆鑄法、浸漬法、輥塗法、凹版塗佈法、網版印刷法、逆轉輥塗法、噴塗法、接觸塗佈法、模嘴塗佈法、金屬棒塗佈法、併用刮刀腔 (chamber doctor) 之塗佈法、簾幕塗佈法等。

[0161] 通常，步驟 [II] 中，藉由去除第 1 塗覆液 (U) 中之溶劑，而形成層 (Y) 之前驅物層。溶劑之去

除方法並無特別限制，可應用習知之乾燥方法。乾燥方法列舉為例如熱風乾燥法、熱輥接觸法、紅外線加熱法、微波加熱法等。乾燥處理溫度較好為比基材（X）之流動開始溫度低 0~15°C 以上。第 1 塗覆液（U）包含聚合物（C）時，乾燥處理溫度較好比聚合物（C）之熱分解起始溫度低 15~20°C 以上。乾燥處理溫度較好為 70~200°C 之範圍，更好為 80~180°C 之範圍，又更好為 90~160°C 之範圍。溶劑之去除可在常壓或減壓之任一者下實施。且，藉由後述之步驟[III]中之熱處理亦可去除溶劑。

[0162] 於層狀之基材（X）之兩面積層層（Y）時，亦可於基材（X）之一面塗佈第 1 塗覆液（U）後，藉由去除溶劑而形成第 1 層（第 1 之層（Y）之前驅物層），接著，將第 1 塗覆液（U）塗佈於基材（X）之另一面後，去除溶劑而形成第 2 層（第 2 之層（Y）之前驅物層）。塗佈於各面上之第 1 塗覆液（U）之組成可相同亦可不同。

[0163]

[步驟[III]（層（Y）之前驅物層之處理）]

步驟[III]係藉由在 140°C 以上之溫度熱處理步驟[II]中形成之前驅物層（層（Y）之前驅物層），而形成層（Y）。該熱處理溫度較好比第 1 塗覆液（U）塗佈後之乾燥處理溫度高。

[0164] 步驟[III]係進行使金屬氧化物（A）彼此經由磷原子（源自磷化合物（B）之磷原子）鍵結之反應。基

於另一觀點，步驟 [III] 係進行反應產物 (D) 之生成反應。為使該反應充分地進行，熱處理溫度較好為 140°C 以上，更好為 170°C 以上，又更好為 180°C 以上。熱處理溫度低時，獲得充分反應度之時間變長，成為生產性下降之原因。熱處理溫度之較佳上限隨基材 (X) 之種類而不同。例如使用由聚醯胺系樹脂所成之熱可塑性樹脂薄膜作為基材 (X) 時，熱處理之溫度較好為 270°C 以下。且，使用由聚酯系樹脂所成之熱可塑性樹脂薄膜作為基材 (X) 時，熱處理之溫度較好為 240°C 以下。熱處理可在空氣中、氮氣氛圍下或氫氣氛圍下等實施。

[0165] 熱處理時間較好為 0.1 秒~1 小時之範圍，更好為 1 秒~15 分鐘之範圍，又更好為 5~300 秒之範圍。

[0166] 用以製造多層構造物之本發明之方法亦包含對層 (Y) 之前驅物層或層 (Y) 照射紫外線之步驟。例如，紫外線照射可在步驟 [II] 之後 (例如，塗佈之第 1 塗覆液 (U) 之溶劑去除大致結束後) 進行。

[0167] 為了於基材 (X) 與層 (Y) 之間配置接著劑層 (H)，在塗佈第 1 塗覆液 (U) 之前，亦可藉習知之錨定塗覆劑處理基材 (X) 之表面，將習知之接著劑塗佈於基材 (X) 之表面。

[0168] 本發明之多層構造物之製造方法亦可進一步包含步驟 [i] 及 [ii]。步驟 [i] 係調製包含含磷原子之聚合物 (G1) 與溶劑之第 2 塗覆液 (V)。步驟 [ii] 係使用第 2 塗覆液 (V) 形成與層 (Y) 鄰接配置之層 (W)。步驟

[i]之順序並無特別限制，可與步驟[I]、[II]或[III]並行進行，亦可在步驟[I]、[II]或[III]之後進行。步驟[ii]可在步驟[II]或[III]之後進行。藉由將第2塗覆液(V)塗佈於層(Y)或層(Y)之前驅物層上，可形成以與層(Y)鄰接之方式積層於層(Y)之層(W)。形成包含聚合物(G2)之層(W)時，第2塗覆液(V)包含聚合物(G2)。第2塗覆液(V)中，聚合物(G1)與聚合物(G2)之質量比，較好為使聚合物(G1)：聚合物(G2)為15：85~100：0之範圍，更好為15：85~99：1之範圍。藉由使用該質量比之第2塗覆液(V)，可形成聚合物(G1)與聚合物(G2)之質量比在該範圍之層(W)。第2塗覆液(V)可藉由使聚合物(G1)（及視需要之聚合物(G2)）溶解於溶劑中而調製。

[0169] 第2塗覆液(V)所用之溶劑只要依據所含聚合物之種類適當選擇即可，較好為水、醇類或該等之混合溶劑。只要不妨礙聚合物之溶解，則溶劑亦可包含四氫呋喃、二噁烷、三噁烷、二甲氧基乙烷等之醚；丙酮、甲基乙基酮等之酮；乙二醇、丙二醇等之二醇；甲基溶纖素、乙基溶纖素、正丁基溶纖素等之二醇衍生物；丙三醇；乙腈；二甲基甲醯胺等之醯胺；二甲基亞砷；環丁砷等。

[0170] 第2塗覆液(V)中之固體成分（聚合物(G1)等）之濃度，基於溶液之保存安定性或塗佈性之觀點，較好為0.01~60質量%之範圍，更好為0.1~50質量%之範圍，又更好為0.2~40質量%之範圍。固體成分濃度可

以與第 1 塗覆液 (U) 之相關記載方法相同之方法求出。

[0171] 通常，步驟 [ii] 中，藉由去除第 2 塗覆液 (V) 中之溶劑而形成層 (W)。第 2 塗覆液 (V) 之溶劑之去除方法並無特別限制，可使用習知之乾燥方法。乾燥方法列舉為例如熱風乾燥法、熱輥接觸法、紅外線加熱法、微波加熱法等。乾燥溫度較好為比基材 (X) 之流動開始溫度低 0~15°C 以上。乾燥溫度較好為 70~200°C 之範圍，更好為 150~200°C 之範圍。溶劑之去除可在常壓或減壓之任一者下實施。且，在前述步驟 [II] 與步驟 [III] 之間實施步驟 [ii] 時，亦可藉步驟 [III] 中之熱處理去除溶劑。

[0172] 亦可介隔層 (Y)，於基材 (X) 之兩面形成層 (W)。該情況之一例係在一面上塗佈第 2 塗覆液 (V) 後去除溶劑而形成第 1 之層 (W)。接著，將第 2 塗覆液 (V) 塗佈於另一面上後去除溶劑而形成第 2 之層 (W)。塗佈於各面上之第 2 塗覆液 (V) 之組成可相同亦可不同。

[0173] 經過步驟 [III] 之熱處理獲得之多層構造物可直接使用作為本發明之多層構造物。然而，亦可將如前述之其他構件 (例如其他層) 進而接著或形成於該多層構造物上而成之積層體作為本發明之多層構造物。該構件之接著亦可藉習知方法進行。

[0174]

[接著層 (H)]

本發明之多層構造物中，層 (Y) 亦可與基材 (X)

直接接觸之方式積層。且，層（Y）亦可介隔其他層積層於基材（X）上。例如，層（Y）亦可介隔接著層（H）積層於基材（X）上。依據該構成，有可提高基材（X）與層（Y）之接著性之情況。接著層（H）亦可由接著性樹脂形成。由接著性樹脂所成之接著層（H）可藉習知之錨定塗覆劑處理基材（X）表面，或藉由將習知接著劑塗佈於基材（X）之表面而形成。接著劑較好為混合聚異氰酸酯成分與多元醇成分並反應之 2 液反應型聚胺基甲酸酯系接著劑。且，藉由將習知之矽烷偶合劑等之少量添加劑添加於錨定塗覆劑或接著劑中，而有可進一步提高接著性之情況。矽烷偶合劑列舉為例如具有異氰酸酯基、環氧基、胺基、脲基、巰基等反應性基之矽烷偶合劑，但並不限於該等。藉由透過接著層（H）強力接著基材（X）與層（Y），在對本發明之多層構造物施以印刷或層合等之加工時，可更有效地抑制阻隔性或外觀之惡化，另外，可提高使用本發明之多層構造物之包裝材之落下強度。接著層（H）之厚度較好為 0.01~10.0 $\mu\text{m}$ ，更好為 0.03~5.0 $\mu\text{m}$ 。

[0175]

[其他層]

本發明之多層構造物亦包含用以提高各種特性，例如賦予熱密封性，提高阻隔性或力學物性之其他層。如此本發明之多層構造物可藉由例如直接或介隔接著層（H）將層（Y）積層於基材（X）上後，進而直接或介隔接著層（H）接著或形成該其他層而製造。其他層列舉為例如油

墨層或聚烯烴層等，但並不限於該等。

[0176] 本發明之多層構造物亦可包含用以印刷商品名或花樣之油墨層。如此本發明之多層構造物可藉由例如直接或介隔接著層（H）將層（Y）積層於基材（X）上後，進而直接形成該油墨層而製造。油墨層列舉為例如使包含顏料（例如二氧化鈦）之聚胺基甲酸酯樹脂分散於溶劑中之液體乾燥而成之皮膜，但亦可為使不含顏料之聚胺基甲酸酯樹脂、或以其他樹脂作為主劑之油墨或電子電路配線形成用阻劑乾燥而成之皮膜。油墨層對層（Y）之塗佈方法除凹版印刷法外，亦可使用金屬棒、旋塗器、模嘴塗佈器等各種塗佈方法。油墨層之厚度較好為 0.5~10.0  $\mu\text{m}$ ，更好為 1.0~4.0  $\mu\text{m}$ 。

[0177] 本發明之多層構造物中，層（W）中含聚合物（G2）時，由於具有提高與接著層（H）或其他層（例如油墨層）之親和性之官能基，故提高層（W）與其他層之密著性。因此，承受延伸處理等物理應變後可維持阻隔性能，同時可抑制脫層等之外觀不良。

[0178] 藉由使本發明之多層構造物之最表面層成為聚烯烴層，可對多層構造物賦予熱密封性，且提高多層構造物之力學特性。基於提高熱密封性或力學特性等之觀點，聚烯烴較好為聚丙烯或聚乙烯。且，為提高多層構造物之力學特性，較好積層自由聚酯所成之薄膜、由聚醯胺所成之薄膜、及由含羥基之聚合物所成之薄膜所組成之群選出之至少一種薄膜。基於提高力學特性之觀點，聚酯較

好為聚對苯二甲酸乙二酯，聚醯胺較好為尼龍-6，含羥基之聚合物較好為乙烯-乙烯醇共聚物。又，各層間亦可視需要設置由錨定塗覆層或接著劑層所成之層。

[0179]

[多層構造物之構成]

本發明之多層構造物之構成之具體例示於下。多層構造物亦可具有接著層（H）等之接著層，但以下具體例中，省略該接著層或其他層之記載。

- (1) 層（Y）/聚酯層、
- (2) 層（Y）/聚酯層/層（Y）、
- (3) 層（Y）/聚醯胺層、
- (4) 層（Y）/聚醯胺層/層（Y）、
- (5) 層（Y）/聚烯烴層、
- (6) 層（Y）/聚烯烴層/層（Y）、
- (7) 層（Y）/含羥基之聚合物層、
- (8) 層（Y）/含羥基之聚合物層/層（Y）、
- (9) 層（Y）/無機蒸鍍層/聚酯層、
- (10) 層（Y）/無機蒸鍍層/聚醯胺層、
- (11) 層（Y）/無機蒸鍍層/聚烯烴層、
- (12) 層（Y）/無機蒸鍍層/含羥基之聚合物層、
- (13) 層（Y）/聚酯層/聚醯胺層/聚烯烴層、
- (14) 層（Y）/聚酯層/層（Y）/聚醯胺層/聚烯烴層、
- (15) 聚酯層/層（Y）/聚醯胺層/聚烯烴層、

- (16) 層 (Y) / 聚醯胺層 / 聚酯層 / 聚烯烴層、
- (17) 層 (Y) / 聚醯胺層 / 層 (Y) / 聚酯層 / 聚烯烴層、
- (18) 聚醯胺層 / 層 (Y) / 聚酯層 / 聚烯烴層、
- (19) 層 (Y) / 聚烯烴層 / 聚醯胺層 / 聚烯烴層、
- (20) 層 (Y) / 聚烯烴層 / 層 (Y) / 聚醯胺層 / 聚烯烴層、
- (21) 聚烯烴層 / 層 (Y) / 聚醯胺層 / 聚烯烴層、
- (22) 層 (Y) / 聚烯烴層 / 聚烯烴層、
- (23) 層 (Y) / 聚烯烴層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (24) 聚烯烴層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (25) 層 (Y) / 聚酯層 / 聚烯烴層、
- (26) 層 (Y) / 聚酯層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (27) 聚酯層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (28) 層 (Y) / 聚醯胺層 / 聚烯烴層、
- (29) 層 (Y) / 聚醯胺層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (30) 聚醯胺層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、
- (31) 無機蒸鍍層 / 層 (Y) / 聚酯層、
- (32) 無機蒸鍍層 / 層 (Y) / 聚酯層 / 層 (Y) / 無機蒸鍍層、
- (33) 無機蒸鍍層 / 層 (Y) / 聚醯胺層、
- (34) 無機蒸鍍層 / 層 (Y) / 聚醯胺層 / 層 (Y) / 無機蒸鍍層、
- (35) 無機蒸鍍層 / 層 (Y) / 聚烯烴層、

(36) 無機蒸鍍層/層(Y)/聚烯烴層/層(Y)/無機蒸鍍層。

[實施例]

[0180] 接著，列舉實施例更具體說明本發明，但本發明並不受該等實施例之任何限制，在本發明之技術思想內由該領域中具有通常之知識者可作出各種變化。以下之實施例及比較例中之分析及評價係如下述般進行。

[0181]

(1) 層(Y)之紅外線吸收光譜

使用傅立葉轉換紅外線分光光度計，以衰減全反射法測定。測定條件如下。

裝置：Perkin Elmer 股份有限公司製之 Spectrum One

測定模式：衰減全反射法

測定區域：800~1,400 $\text{cm}^{-1}$

[0182]

(2) 各層之厚度測定

使用聚焦離子束(FIB)切削多層構造物，製作剖面觀察用之切片(厚度 0.3 $\mu\text{m}$ )。以碳帶將製作之切片固定於試料台座上，以加速電壓 30kV 進行鉑離子濺鍍 30 秒。使用電場釋出形透過型電子顯微鏡觀察多層構造物之剖面，算出各層厚度。測定條件如下。

裝置：日本電子股份有限公司製之 JEM-2100F

加速電壓：200kV

倍率：250,000 倍

[0183]

### (3) 金屬離子之定量

將分析等級之高純度硝酸 5mL 添加於多層構造物 1.0g 中進行微波分解處理，所得溶液以超純水定容成 50mL，獲得鋁離子以外之金屬離子之定量分析用溶液。且，以超純水將該溶液 0.5mL 定容成 50mL，藉此獲得鋁離子之定量分析用溶液。使用感應耦合電漿發光分光分析裝置，以內部標準法定量前述方法所得溶液中所含之金屬離子量。各金屬離子之檢測下限為 0.1ppm。測定條件如下。

裝置：Perkin Elmer 股份有限公司製之 Optima 4300DV

RF 功率：1,300W

泵流量：1.50mL/分鐘

輔助氣體流量（氬氣）：0.20L/分鐘

載氣流量（氬氣）：0.70mL/分鐘

冷卻劑氣體：15.0L/分鐘

[0184]

### (4) 鉍離子之定量

將多層構造物裁切成 1cm×1cm 之尺寸，並冷凍粉碎。所得粉體以公稱尺寸 1mm 之篩網（以標準篩網規格 JIS-Z8801-1~3 為準）進行篩分。將通過前述篩網之粉體 10g 分散於離子交換水 50mL 中，在 95℃ 進行萃取操作 10

小時。使用陽離子層析裝置定量所得萃取液中所含之銨離子。檢測下限為 0.02ppm。測定條件如下。

裝置：Dionex 公司製之 ICS-1600

保護管柱：Dionex 公司製之 IonPAC CG-16 (5φ×50mm)

分離管柱：Dionex 公司製之 IonPAC CS-16 (5φ×250mm)

檢測器：電傳導度檢測器

溶離液：30 毫莫耳/L 甲烷磺酸水溶液

溫度：40°C

溶離液流速：1mL/分鐘

分析量：25μL

[0185]

#### (5) 氧透過度之測定

將樣品以基材層朝向載氣側之方式安裝於氧透過量測定裝置，藉由等壓法測定氧透過度。測定條件如以下。

裝置：MODERN CONTROL 公司製之 MOCON OX-TRAN2/20

溫度：20°C

氧供給側之濕度：85%RH

載氣側之濕度：85%RH

氧氣壓：1 大氣壓

載氣壓力：1 大氣壓

[0186]

(6) 水蒸氣透過度之測定 (等壓法)

將樣品以基材層朝向載氣側之方式安裝於水蒸氣透過量測定裝置，藉由等壓法測定透濕度 (水蒸氣透過度)。測定條件如以下。

裝置：MODERN CONTROL 公司製之 MOCON FERMATRAN W3/33

溫度：40°C

水蒸氣供給側之濕度：90%RH

載氣側之濕度：0%RH

[0187]

(7) 水蒸氣透過度之測定 (壓差法) (實施例 1-36~1-39；比較例 1-7 之透濕度測定)

將樣品以基材層朝向水蒸氣供給側之方式安裝於水蒸氣透過量測定裝置，藉由壓差法測定透濕度 (水蒸氣透過度)。測定條件如以下。

裝置：Technolox 公司製之 Deltaperm

溫度：40°C

水蒸氣供給 (上室) 側之壓力：50Torr (6,665Pa)

水蒸氣透過 (下室) 側之壓力：0.003Torr (0.4Pa)

[0188]

〈聚合物 (G1-1) 之合成例〉

在氮氣氛圍下，使甲基丙烯酸 2-膦氧基乙酯 8.5g 及偶氮雙異丁腈 0.1g 溶解於甲基乙基酮 17g 中，在 80°C 攪拌 12 小時。使所得聚合物溶液冷卻後，添加於 1,2-二氯

乙烷 170g 中，藉由傾析以沉澱物回收聚合物。接著，使聚合物溶解於四氫呋喃中，使用 1,2-二氯乙烷作為弱溶劑進行再沉澱純化。進行再沉澱純化 3 次後，在 50°C 下真空乾燥 24 小時，藉此獲得聚合物 (G1-1)。聚合物 (G1-1) 為甲基丙烯酸 2-膦氧基乙酯之聚合物。GPC 分析之結果，該聚合物之數平均分子量以聚苯乙烯換算為 10,000。

[0189]

〈聚合物 (G1-2) 之合成例〉

在氮氣氛圍下，使乙烯基膦酸 10g 及 2,2'-偶氮雙(2-脒基丙烷) 2 鹽酸鹽 0.025g 溶解於水 5g 中，在 80°C 攪拌 3 小時。冷卻後，將水 15g 添加於聚合溶液中稀釋，使用纖維素膜之 Spectrum Laboratories 公司製之「Spectra/Por」(註冊商標) 過濾。餾除濾液中之水後，在 50°C 真空乾燥 24 小時，獲得聚合物 (G1-2)。聚合物 (G1-2) 為聚(乙烯基膦酸)。GPC 分析之結果，該聚合物之數平均分子量以聚乙二醇換算為 10,000。

[0190]

〈第 1 塗覆液 (U-1) 之製造例〉

邊攪拌蒸餾水 230 質量份邊升溫至 70°C。在 1 小時內將三異丙氧基鋁 88 質量份滴加於該蒸餾水中，使液溫緩慢上升至 95°C，餾出所產生之異丙醇藉以進行水解縮合。於所得液體中添加 60 質量%之硝酸水溶液 4.0 質量份，在 95°C 攪拌 3 小時使水解縮合物之粒子之凝聚體解膠。隨後，將濃度 1.0 莫耳%之氫氧化鈉水溶液 2.24 質量

份添加於該液體中，濃縮成固體成分濃度以氧化鋁換算為 10 質量%。對如此獲得之液體 18.66 質量份添加蒸餾水 58.19 質量份、甲醇 19.00 質量份及 5 質量%之聚乙烯醇水溶液（KURARAY 股份有限公司製之 PVA124；皂化度 98.5 莫耳%，黏度平均聚合度 2,400，20℃之 4 質量%水溶液黏度 60mPa·s）0.50 質量份，均勻攪拌，獲得含金屬氧化物（A）之液體之分散液。接著，在使液溫維持在 15℃之狀態下邊攪拌前述分散液邊滴加含磷化合物（B）之溶液的 85 質量%之磷酸水溶液 3.66 質量份，滴加完成後再持續攪拌 30 分鐘，獲得具有表 1 所記載之  $N_M/N_P$ 、 $F_Z \times N_Z/N_M$  及  $F_Z \times N_Z/N_P$  之值之目的第 1 塗覆液（U-1）。

[0191]

〈第 1 塗覆液（U-2）~（U-5）之製造例〉

第 1 塗覆液（U-2）~（U-5）之調製係在分散液之調製中，以使  $F_Z \times N_Z/N_M$  及  $F_Z \times N_Z/N_P$  之值成為後述表 1 所示之值之方式改變 1.0 莫耳%之氫氧化鈉水溶液之添加量。除此之外以與第 1 塗覆液（U-1）之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液（U-2）~（U-5）。

[0192]

〈第 1 塗覆液（U-6）之製造例〉

第 1 塗覆液（U-6）之調製係在分散液之調製中，未添加氫氧化鈉水溶液，且將添加之蒸餾水量設為 58.09 質量份（第 1 塗覆液（U-1）之調製中為 58.19 質量份）。且，將磷酸水溶液滴加於分散液後，添加 1.0 莫耳%之氫

氧化鈉水溶液 0.10 質量份。除此之外以與第 1 塗覆液 (U-1) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-6)。

[0193]

〈第 1 塗覆液 (U-8) 之製造例〉

含磷化合物 (B) 之溶液中，除了使用磷酸三甲酯代替磷酸以外，餘以與第 1 塗覆液 (U-5) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-8)。

[0194]

〈第 1 塗覆液 (U-9) 之製造例〉

分散液之調製中，除使用 5 質量%之聚丙烯酸水溶液取代 5 質量%之聚乙烯醇水溶液外，餘以與第 1 塗覆液 (U-5) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-9)。

[0195]

〈第 1 塗覆液 (U-7) 及 (U-10) ~ (U-18) 之製造例〉

分散液之調製中，除使用各種金屬鹽之水溶液取代 1.0 莫耳%之氫氧化鈉水溶液外，餘以與第 1 塗覆液 (U-5) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-7) 及 (U-10) ~ (U-18)。至於金屬鹽水溶液，第 1 塗覆液 (U-7) 係 1.0 莫耳%之氯化鈉水溶液，第 1 塗覆液 (U-10) 係 1.0 莫耳%之氫氧化鋰水溶液，第 1 塗覆液 (U-11) 係 1.0 莫耳%之氫氧化鉀水溶液，第 1 塗覆液 (U-12) 係 0.5 莫耳%之氯化鈣水溶液，第 1 塗覆液 (U-13) 係 0.5 莫耳%之氯化鈷水溶液，第 1 塗覆液 (U-14) 係 0.5 莫耳%之氯化鋅水溶液，第 1 塗覆液 (U-15) 係 0.5 莫耳%之氯化鎂水

準備包含 91 質量%之合成例 1 中獲得之聚合物 (G1-1)、9 質量%之聚乙烯醇 (KURARAY 股份有限公司製之 PVA124; 皂化度 98.5 莫耳%, 黏度平均聚合度 2,400, 20 °C 之 4 質量%水溶液黏度 60mPa·s) 之混合物。使該混合物溶解於水與甲醇之混合溶劑 (以質量比計為水: 甲醇 = 7: 3) 中, 獲得固體成分濃度為 1 質量%之第 2 塗覆液 (V-2)。又, 準備包含 91 質量%之合成例 1 中獲得之聚合物 (G1-1) 及 9 質量%之聚丙烯酸 (數平均分子量 210,000, 重量平均分子量 1,290,000) 之混合物。使該混合物溶解於水與甲醇之混合溶劑 (以質量比計為水: 甲醇 = 7: 3) 中, 獲得固體成分濃度為 1 質量%之第 2 塗覆液 (V-3)。進而, 除將聚合物 (G1-1) 變更為聚合物 (G1-2) 以外, 餘以與第 2 塗覆液 (V-1) ~ (V-3) 之調製相同之方法, 獲得第 2 塗覆液 (V-4) ~ (V-6)。

[0202] 實施例及比較例中使用之薄膜之細節如下。

1) PET12: 延伸聚對苯二甲酸乙二酯薄膜: TORAY 股份有限公司製, 「Lumirror P60」(商品名), 厚度 12 $\mu$ m

2) PET125: 延伸聚對苯二甲酸乙二酯薄膜: TORAY 股份有限公司製, 「Lumirror S10」(商品名), 厚度 125 $\mu$ m

3) PET50: 提高與乙烯-乙酸乙烯酯共聚物之接著性之聚對苯二甲酸乙二酯薄膜; 東洋紡股份有限公司製, 「SHINEBEAM Q1A15」(商品名), 厚度 50 $\mu$ m

4) ONY：延伸尼龍薄膜；UNICHIKA 股份有限公司製，「EMBLEM ONBC」（商品名），厚度  $15\mu\text{m}$

5) CPP50：無延伸聚丙烯薄膜；三井化學東賽璐股份有限公司製，RXC-21」（商品名），厚度  $50\mu\text{m}$

6) CPP60：無延伸聚丙烯薄膜；三井化學東賽璐股份有限公司製，RXC-21」（商品名），厚度  $60\mu\text{m}$

7) CPP70：無延伸聚丙烯薄膜；三井化學東賽璐股份有限公司製，RXC-21」（商品名），厚度  $70\mu\text{m}$

8) CPP100：無延伸聚丙烯薄膜；三井化學東賽璐股份有限公司製，RXC-21」（商品名），厚度  $100\mu\text{m}$

[0203]

[實施例 1]

首先，準備 PET12 作為基材（X）。使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為  $0.5\mu\text{m}$  之方式將第 1 塗覆液（U-1）塗佈於該基材上，使塗佈後之薄膜在  $100^\circ\text{C}$  乾燥 5 分鐘藉此於基材上形成層（Y）之前驅物層。接著，在  $180^\circ\text{C}$  熱處理 1 分鐘形成層（Y）。據此，獲得具有層（Y）（ $0.5\mu\text{m}$ ）/PET 之構造之多層構造物（1-1）。

[0204] 測定多層構造物（1-1）之紅外線吸收光譜之結果，在  $800\sim 1,400\text{ cm}^{-1}$  之區域中之最大吸收波數為  $1,107\text{ cm}^{-1}$ ，前述區域中之最大吸收帶之半值寬為  $37\text{ cm}^{-1}$ 。結果示於表 1。

[0205] 多層構造物（1-1）所含之鈉離子經定量分析之結果，為 {（鈉離子之離子價）×（鈉離子之莫耳數）}/

(鋁離子之莫耳數) = 0.005。結果示於表 1。

[0206] 自多層構造物 (1-1) 切出 21cm×30cm 大小之樣品，使該樣品在 23°C、50%RH 之條件下靜置 24 小時後，在相同條件下朝長軸方向延伸 50%，且保持延伸狀態 10 秒，作成延伸處理後之多層構造物 (1-1)。接著，測定多層構造物 (1-1) 之延伸處理前後之氧透過度及透濕度。結果示於表 2。

[0207]

〈實施例 1-2~1-23〉

除使用第 1 塗覆液 (U-2) ~ (U-23) 取代第 1 塗覆液 (U-1) 以外，餘以與實施例 1 之多層構造物 (1-1) 之製作同樣，製作實施例 1~2~1-23 之多層構造物 (1-2) ~ (1-23)。分析實施例 1-4 之多層構造物 (1-4) 之金屬離子含量之結果，{ (鈉離子之離子價) × (鈉離子之莫耳數) } / (鋁離子之莫耳數) = 0.240。

[0208]

〈實施例 1-24〉

使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為 0.5μm 之方式將第 1 塗覆液 (U-4) 塗佈於 PET12 上，使塗佈後之薄膜在 110°C 乾燥 5 分鐘藉此於基材上形成層 (Y) 之前驅物層。接著，對所得之積層體在 160°C 熱處理 1 分鐘形成層 (Y)。據此，獲得具有層 (Y) (0.5μm) /PET 之構造之多層構造物。使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為 0.3μm 之方式將第 2 塗覆液 (V-1) 塗佈於該多層構造物

之層 (Y) 上，在 200°C 乾燥 1 分鐘藉此形成層 (W) 。  
據此，獲得具有層 (W) (0.3 $\mu\text{m}$ ) /層 (Y) (0.5 $\mu\text{m}$ )  
/PET 之構造之實施例 1-24 之多層構造物 (1-24) 。

[0209]

〈實施例 1-25~1-29〉

除使用第 2 塗覆液 (V-2) ~ (V-6) 取代第 2 塗覆液 (V-1) 以外，餘以與實施例 1-24 之多層構造物 (1-24) 之製作同樣之方法，獲得實施例 1-25~1-29 之多層構造物 (1-25) ~ (1-29) 。

[0210]

〈實施例 1-30〉

以真空蒸鍍法於 PET12 上形成厚度 0.03 $\mu\text{m}$  之氧化鋁之蒸鍍層 (X') 。使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為 0.5 $\mu\text{m}$  之方式將第 1 塗覆液 (U-4) 塗佈於該蒸鍍層上，使塗佈後之薄膜在 110°C 乾燥 5 分鐘藉此於基材上形成層 (Y) 之前驅物層。接著，對所得積層體，在 180°C 熱處理 1 分鐘而形成層 (Y) 。據此，獲得具有層 (Y) (0.5 $\mu\text{m}$ ) /蒸鍍層 (X') (0.03 $\mu\text{m}$ ) /PET 之構造之多層構造物 (1-30) 。

[0211]

〈實施例 1-31〉

以真空蒸鍍法，於實施例 1-4 中獲得之多層構造物 (1-4) 之層 (Y) 上形成厚度 0.03 $\mu\text{m}$  之氧化鋁之蒸鍍層 (X') ，獲得具有蒸鍍層 (X') (0.03 $\mu\text{m}$ ) /層 (Y)

( $0.5\mu\text{m}$ ) /PET ( $12\mu\text{m}$ ) 之構造之多層構造物 (1-31)。

[0212]

〈實施例 1-32〉

以蒸空蒸鍍法於 PET12 之兩面形成厚度  $0.03\mu\text{m}$  之氧化鋁之蒸鍍層 (X')。隨後，使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為  $0.5\mu\text{m}$  之方式將第 1 塗覆液 (U-4) 塗佈於兩蒸鍍層上，使塗佈後之薄膜在  $110^\circ\text{C}$  乾燥 5 分鐘，藉此形成層 (Y) 之前驅物層。接著，對所得積層體，使用乾燥機在  $180^\circ\text{C}$  熱處理 1 分鐘而形成層 (Y)。藉此，獲得具有層 (Y) ( $0.5\mu\text{m}$ ) /蒸鍍層 (X') ( $0.03\mu\text{m}$ ) /PET/蒸鍍層 (X') ( $0.03\mu\text{m}$ ) /層 (Y) ( $0.5\mu\text{m}$ ) 之構造之多層構造物 (1-32)。

[0213]

〈實施例 1-33〉

使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度分別成為  $0.5\mu\text{m}$  之方式將第 1 塗覆液 (U-4) 塗佈於 PET12 之兩面上，使塗佈後之薄膜在  $110^\circ\text{C}$  乾燥 5 分鐘，藉此於基材上形成層 (Y) 之前驅物層。接著，對所得積層體，使用乾燥機在  $180^\circ\text{C}$  熱處理 1 分鐘而形成層 (Y)。以真空蒸鍍法於該積層體之 2 層之層 (Y) 上形成厚度  $0.03\mu\text{m}$  之氧化鋁之蒸鍍層 (X')。如此，獲得具有蒸鍍層 (X') ( $0.03\mu\text{m}$ ) /層 (Y) ( $0.05\mu\text{m}$ ) /PET/層 (Y) ( $0.05\mu\text{m}$ ) /蒸鍍層 (X') ( $0.03\mu\text{m}$ ) 之構造之多層構造物 (1-33)。

[0214]

〈實施例 1-34〉

除使用第 1 塗覆液 (U-34) 取代第 1 塗覆液 (U-1) 以外，餘以與實施例 1-1 之多層構造物 (1-1) 之製作同樣之方法，獲得實施例 1-34 之多層構造物 (1-34)。

[0215]

〈實施例 1-35〉

除使用第 1 塗覆液 (U-34) 取代第 1 塗覆液 (U-1)，使用第 2 塗覆液 (V-4) 取代第 2 塗覆液 (V-1) 以外，餘以與實施例 1-24 之多層構造物 (1-24) 之製作同樣之方法，獲得實施例 1-35 之多層構造物 (1-35)。

[0216]

〈實施例 1-36〉

使用棒塗佈器，以使乾燥後之厚度成為  $0.3\mu\text{m}$  之方式將第 1 塗覆液 (U-36) 塗佈於 PET125 上，在  $110^\circ\text{C}$  乾燥 5 分鐘後，在  $180^\circ\text{C}$  進行熱處理 1 分鐘。如此獲得多層構造物 (1-36)。

[0217]

〈實施例 1-37~1-39〉

除使用第 1 塗覆液 (U-37)、(U-34) 及 (U-39) 取代第 1 塗覆液 (U-36) 以外，餘以與實施例 1-36 之多層構造物 (1-36) 之製作同樣，獲得實施例 1-37~1-39 之多層構造物 (1-37) ~ (1-39)。

[0218]

〈比較例 1-1~1-6〉

除使用第 1 塗覆液 (CU-1) ~ (CU-6) 取代第 1 塗覆液 (U-1) 以外，餘以與實施例 1-1 之多層構造物 (1-1) 之製作同樣，製作比較例 1-1~1-6 之多層構造物 (C1-1) ~ (C1-6)。分析比較例 1-1 之多層構造物 (C1-1) 之金屬離子含量之結果，未達檢測下限 ( $\{(\text{鈉離子之離子價}) \times (\text{鈉離子之莫耳數})\} / (\text{鋁離子之莫耳數}) = \text{未達 } 0.001$ )。

[0219]

〈比較例 1-7〉

除使用第 1 塗覆液 (CU-7) 取代第 1 塗覆液 (U-36) 以外，餘以與實施例 1-36 之多層構造物 (1-36) 之製作同樣，獲得比較例 1-7 之多層構造物 (CA7)。

[0220] 實施例中之層 (Y)、對應於層 (Y) 之比較例之層 (CY) 及層 (W) 之形成條件示於表 1。又，表 1 中之簡寫表示以下物質。

PVA：聚乙烯醇 (KURARAY 股份有限公司製之 PVA124)

PAA：聚丙烯酸 (東亞合成股份有限公司製之 ARON-15H)

PPEM：聚 (甲基丙烯酸 2-膦氧基乙酯)

PVPA：聚 (乙烯基膦酸)

[0221]

[表1]

	基材 (X)	層(Y)							層(W)			最大吸收波數 (cm <sup>-1</sup> )
		塗覆液 (U)編號	陽離子(Z)	磷化合物 (B)	聚合物 (C)	$F_z \times N_z / N_M$	$N_M / N_P$	$F_z \times N_z / N_P$	塗覆液 (V)編號	聚合物 (G1)	聚合物 (G2)	
實施例 1-1	PET12	U-1	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.005	1.15	0.0058	—	—	—	1,107
實施例 1-2	PET12	U-2	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.280	1.15	0.3220	—	—	—	1,107
實施例 1-3	PET12	U-3	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.050	1.15	0.0575	—	—	—	1,108
實施例 1-4	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	—	—	—	1,107
實施例 1-5	PET12	U-5	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-6	PET12	U-6	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-7	PET12	U-7	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-8	PET12	U-8	Na <sup>+</sup>	磷酸三甲酯	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-9	PET12	U-9	Na <sup>+</sup>	磷酸	PAA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-10	PET12	U-10	Li <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-11	PET12	U-11	K <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-12	PET12	U-12	Ca <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-13	PET12	U-13	Co <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-14	PET12	U-14	Zn <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-15	PET12	U-15	Mg <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-16	PET12	U-16	NH <sup>4+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-17	PET12	U-17	Na <sup>+</sup> , Ca <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
實施例 1-18	PET12	U-18	Ca <sup>2+</sup> , Zn <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,108
實施例 1-19	PET12	U-19	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	2.60	0.5200	—	—	—	1,111
實施例 1-20	PET12	U-20	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.06	0.2120	—	—	—	1,110
實施例 1-21	PET12	U-21	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	3.07	0.6140	—	—	—	1,113
實施例 1-22	PET12	U-22	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	0.88	0.1760	—	—	—	1,107
實施例 1-23	PET12	U-23	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	3.99	0.7980	—	—	—	1,118
實施例 1-24	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-1	PPEM	—	1,107
實施例 1-25	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-2	PPEM	PVA	1,107
實施例 1-26	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-3	PPEM	PAA	1,107
實施例 1-27	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-4	PVPA	—	1,107
實施例 1-28	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-5	PVPA	PVA	1,107
實施例 1-29	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	V-6	PVPA	PAA	1,107
實施例 1-30	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	—	—	—	1,107
實施例 1-31	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	—	—	—	1,107
實施例 1-32	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	—	—	—	1,107
實施例 1-33	PET12	U-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.240	1.15	0.2760	—	—	—	1,107
實施例 1-34	PET12	U-34	Zn <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.10	1.15	0.1150	—	—	—	1,107
實施例 1-35	PET12	U-34	Zn <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.10	1.15	0.1150	V-4	PVPA	—	1,107
實施例 1-36	PET125	U-36	Mg <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.26	1.15	0.2990	—	—	—	1,107
實施例 1-37	PET125	U-37	B <sup>3+</sup>	磷酸	PVA	0.50	1.15	0.5750	—	—	—	1,107
實施例 1-38	PET125	U-34	Zn <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.10	1.15	0.1150	—	—	—	1,107
實施例 1-39	PET125	U-39	Ca <sup>2+</sup>	磷酸	PVA	0.10	1.15	0.1150	—	—	—	1,107
比較例 1-1	PET12	CU-1	—	磷酸	PVA	—	1.15	—	—	—	—	1,107
比較例 1-2	PET12	CU-2	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.0005	1.15	0.0006	—	—	—	1,108
比較例 1-3	PET12	CU-3	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	0.34	0.0680	—	—	—	1,136
比較例 1-4	PET12	CU-4	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.200	5.77	1.1540	—	—	—	1,145
比較例 1-5	PET12	CU-5	Si <sup>4+</sup>	磷酸	PVA	0.200	1.15	0.2300	—	—	—	1,107
比較例 1-6	PET12	CU-6	Na <sup>+</sup>	磷酸	PVA	0.620	1.15	0.7130	—	—	—	1,107
比較例 1-7	PET12	CU-1	—	磷酸	PVA	—	1.15	—	—	—	—	1,107

[0222] 針對實施例 1-2~1-39 及比較例 1-1~1-7 之多層構造物，進行與實施例 1-1 之多層構造物（1-1）同樣之評價。實施例及比較例中之多層構造物之構成及該等評價結果示於表 2。又，表 2 中之「-」表示未進行測定。

[0223]

[表2]

	多層構造體		氧透過度 mL/(m <sup>2</sup> ·天·atm)		透濕度 g/(m <sup>2</sup> ·天)	
	編號	構成	延伸前	延伸後	延伸前	延伸後
實施例 1-1	1-1	(X)/(Y)	0.4	1.1	0.2	1.6
實施例 1-2	1-2	(X)/(Y)	0.7	1.0	0.5	1.5
實施例 1-3	1-3	(X)/(Y)	0.3	0.9	0.2	1.3
實施例 1-4	1-4	(X)/(Y)	0.4	0.6	0.2	0.8
實施例 1-5	1-5	(X)/(Y)	0.4	0.8	0.3	1.0
實施例 1-6	1-6	(X)/(Y)	0.4	1.2	0.3	1.5
實施例 1-7	1-7	(X)/(Y)	0.4	1.1	0.3	1.6
實施例 1-8	1-8	(X)/(Y)	0.5	1.0	0.3	1.4
實施例 1-9	1-9	(X)/(Y)	0.4	0.9	0.3	1.3
實施例 1-10	1-10	(X)/(Y)	0.4	1.0	0.3	1.3
實施例 1-11	1-11	(X)/(Y)	0.4	0.8	0.3	0.9
實施例 1-12	1-12	(X)/(Y)	0.4	0.9	0.3	1.3
實施例 1-13	1-13	(X)/(Y)	0.5	1.0	0.4	1.4
實施例 1-14	1-14	(X)/(Y)	0.4	1.0	0.3	1.3
實施例 1-15	1-15	(X)/(Y)	0.4	0.9	0.3	1.4
實施例 1-16	1-16	(X)/(Y)	0.4	0.8	0.3	1.5
實施例 1-17	1-17	(X)/(Y)	0.4	0.7	0.3	1.0
實施例 1-18	1-18	(X)/(Y)	0.4	0.8	0.3	1.0
實施例 1-19	1-19	(X)/(Y)	0.7	1.1	0.8	1.4
實施例 1-20	1-20	(X)/(Y)	0.9	1.3	1.0	1.8
實施例 1-21	1-21	(X)/(Y)	0.9	1.2	1.1	1.5
實施例 1-22	1-22	(X)/(Y)	1.0	1.4	1.2	2.0
實施例 1-23	1-23	(X)/(Y)	1.1	1.6	1.2	1.9
實施例 1-24	1-24	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.5
實施例 1-25	1-25	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.6
實施例 1-26	1-26	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.7
實施例 1-27	1-27	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.4
實施例 1-28	1-28	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.5
實施例 1-29	1-29	(X)/(Y)/(W)	0.4	0.5	0.2	0.7
實施例 1-30	1-30	(X)/(X')/(Y)	<0.1	0.3	<0.1	0.2
實施例 1-31	1-31	(X)/(Y)/(X')	<0.1	0.4	<0.1	0.3
實施例 1-32	1-32	(Y)/(X')/(X)/(X')/(Y)	<0.1	0.1	<0.1	0.1
實施例 1-33	1-33	(X')/(Y)/(X)/(Y)/(X')	<0.1	0.2	<0.1	0.1
實施例 1-34	1-34	(X)/(Y)	0.3	0.8	0.2	1.1
實施例 1-35	1-35	(X)/(Y)/(W)	0.3	0.5	0.2	0.7
實施例 1-36	1-36	(X)/(Y)	—	—	4.5×10 <sup>-3</sup>	—
實施例 1-37	1-37	(X)/(Y)	—	—	4.4×10 <sup>-3</sup>	—
實施例 1-38	1-38	(X)/(Y)	—	—	8.1×10 <sup>-3</sup>	—
實施例 1-39	1-39	(X)/(Y)	—	—	5.1×10 <sup>-3</sup>	—
比較例 1-1	C1-1	(X)/(CY)	0.2	6.1	0.2	7.2
比較例 1-2	C1-2	(X)/(CY)	0.2	6.0	0.2	7.0
比較例 1-3	C1-3	(X)/(CY)	5.6	8.6	>50	>50
比較例 1-4	C1-4	(X)/(CY)	4.2	9.8	>50	>50
比較例 1-5	C1-5	(X)/(CY)	0.4	6.0	0.2	7.8
比較例 1-6	C1-6	(X)/(CY)	1.8	3.2	5.3	6.2
比較例 1-7	C1-7	(X)/(CY)	—	—	1.0×10 <sup>-2</sup>	—

[0224] 由表 2 可了解，實施例之多層構造物即使承受強的物理應變，仍可維持高程度的氣體阻隔性及水蒸氣阻隔性二者。且，除包含層（Y）以外亦包含層（W）之多層構造物相較於僅含層（Y）之多層構造物，延伸後之阻隔性更高。且，除包含層（Y）以外亦包含層（W）及無機蒸鍍層（X'）之多層構造物相較於僅含層（Y）之多層構造物，延伸後之阻隔性更高。

[0225]

〈實施例 1-40〉

使用實施例 1-1 中獲得之多層構造物（1-1）作為保護片，製作太陽能電池模組。以厚度  $450\mu\text{m}$  之 2 片乙烯-乙酸乙烯酯共聚物薄片夾持設置在  $10\text{cm}$  見方之強化玻璃上之非晶系之矽太陽能電池單元。接著，使多層構造物（1-1）之聚對苯二甲酸乙二酯朝外側之方式貼合於成為光入射側之乙烯-乙酸乙烯酯共聚物薄片上。如此製作太陽能電池模組。貼合係在  $150^\circ\text{C}$  抽真空進行 3 分鐘後，進行壓著 9 分鐘而實施。所製作之太陽能電池模組顯示良好作動，且長時間顯示良好的電輸出特性。

[0226] 以下實施例及比較例中，量子效率及分光放射能量係以大塚電子製量子效率測定裝置 QE-1000 測定。又，前述分光放射能量係本實施例中使用之量子點螢光體之螢光波長下之放射能量。

[0227]

[含量子點螢光體之電子裝置]

〈實施例 2-1〉

在氬氣氛圍下，於 50mL 玻璃製螺旋蓋瓶中饋入含環烯烴聚合物（日本 ZEON 股份有限公司製，ZEONEX（註冊商標）480R；含構造式[Q-1]之非晶質樹脂）5g，與經真空冷凍脫氣後在氬氣氛圍下保存之脫水甲苯（合光純藥工業股份有限公司製）5g，在室溫下於滾筒式攪拌機上攪拌溶解，獲得樹脂溶液 1。

[0228] 在氬氣氛圍下，將調製成 82mg/mL 之量子點螢光體之甲苯分散液 3.05g 添加於所得之樹脂溶液 1 中。此處係使用量子點螢光體之分子構造具有芯・殼構造，且芯為 InP，殼為 ZnS，使用肉荳蔻酸作為外覆劑之奈米粒子，且直徑 2.1nm 者。隨後，使用 THINKY 股份有限公司製之自轉・公轉式攪拌裝置 ARV310-LED 充分混練，獲得相對於環烯烴聚合物含有 5 質量%之量子點螢光體之分散液（含量子點螢光體之組成物）1。將該分散液注入於置於聚甲基戊烯製之皿上之聚矽氧環（外徑 55mm×內徑 50mm×厚度 1mm）之內側。直接在氬氣氛圍下風乾獲得板狀之成形物後，在氬氣氛圍下，在 40°C 乾燥 5 小時藉此完全去除溶劑，獲得量子點螢光體分散樹脂成形體 1。

[0229] 接著，為了保護量子點螢光體免於受大氣影響，而使用接著性樹脂將實施例 1-1 所記載之多層構造物（1-1）貼合於前述量子點螢光體分散樹脂成形體 1 之表面，形成氣體阻隔層，獲得含量子點螢光體之構造物 1。氣體阻隔層之厚度為 12.5 $\mu$ m。使用大塚電子股份有限公

司製之量子效率測定裝置 QE-1000 測定該含量子點螢光體之構造物 1 之量子效率為 74%。該值與以原本之量子點螢光體甲苯分散液進行相樣測定時所得之量子效率 80%相比為毫不遜色之結果。

[0230] 且，將含量子點螢光體之構造物 1 配置於 22mW、450nm 之藍色 LED 封裝上，在大氣下連續發光 2,000 小時。相對於 LED 發光初期之量子點螢光體之分光放射能量為 0.42mW/nm，經過 2,000 小時後之分光放射能量為 0.40mW/nm。據此，經過 2,000 小時後之分光放射能量相對於初期值係保持在 95.2%之高的值。

[0231]

〈實施例 2-2〉

將實施例 2-1 所得之量子點螢光體分散樹脂成形體 1 加熱至 180°C，使用加壓機，以 20MPa 之加壓壓力加工，獲得具有 100 $\mu$ m 厚之含量子點螢光體之樹脂薄膜 1。

[0232] 接著，為了保護量子點螢光體免於受大氣影響，而使用接著性樹脂將實施例 1-1 所記載之多層構造物 (1-1) 貼合於前述含量子點螢光體之樹脂薄膜 1 之表面，形成氣體阻隔層，獲得含量子點螢光體之構造物 2。氣體阻隔層之厚度為 12.5 $\mu$ m。

[0233] 對前述構造物 2，實施與實施例 1 同樣測定，顯示量子效率為 76%之良好值。結果示於表 3。又，對構造物 2，與實施例 2-1 同樣測定之發光初期之分光放射能量為 0.39mW/nm，經過 2,000 小時後之分光放射能量為

0.37mW/nm。據此，經過 2,000 小時後之分光放射能量相對於初期值係保持在 94.9%之高的值。

[0234]

〈比較例 2〉

為了保護量子點螢光體免於受大氣影響，除了於前述量子點螢光體分散樹脂成形體 2 之表面使用比較例 1-1 所記載之多層構造物以外，以與實施例 2-1 同樣方法獲得含量子點螢光體之構造物 3。使用大塚電子股份有限公司製之量子效率測定裝置 QE-1000 測定該含量子點螢光體之構造物 3 之量子效率為 76%。該值相較於以原本之量子點螢光體甲苯分散液進行相同測定時獲得之量子效率 82%為毫不遜色之結果。

[0235] 且，將含量子點螢光體之構造物 1 配置於 22mW、450nm 之藍色 LED 封裝上，在大氣下連續發光 2,000 小時。相對於 LED 發光初期之量子點螢光體之分光放射能量為 0.42mW/nm，經過 2,000 小時後之分光放射能量為 0.33mW/nm。據此，經過 2,000 小時後之分光放射能量相對於初期值減少至 78.5%。

[0236]

〈比較例 3〉

為了保護量子點螢光體免受於大氣影響，除了於前述量子點螢光體分散樹脂成形體 2 之表面使用 EVOH 薄膜（將日本合成化學工業股份有限公司製之「Soarnol D2908」（商品名）以共擠出法而製作之厚度 15 $\mu$ m 之薄

膜，氧透過度  $0.5\text{mL}/(\text{m}^2 \cdot \text{天})$ ，透濕度  $130\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hrs}$ ) 以外，餘以與實施例 2-1 同樣方法獲得含量子點螢光體之構造物 4。使用大塚電子股份有限公司製之量子效率測定裝置 QE-1000 測定該含量子點螢光體之構造物 4 之量子效率為 76%。該值相較於以原本之量子點螢光體甲苯分散液進行相同測定時獲得之量子效率 82% 為毫不遜色之結果。

[0237] 此外，將含量子點螢光體之構造物 1 配置於  $22\text{mW}$ 、 $450\text{nm}$  之藍色 LED 封裝上，在大氣下連續發光 2,000 小時。相對於 LED 發光初期之量子點螢光體之分光放射能量為  $0.42\text{mW}/\text{nm}$ ，經過 2,000 小時後之分光放射能量為  $0.30\text{mW}/\text{nm}$ 。據此，經過 2,000 小時後之分光放射能量相對於初期值減少至 71.4%。

[0238]

[表 3]

	氣體阻隔層	量子效率 (%)	初期分光放射能量( $\text{mW}/\text{nm}$ )	連續點亮 2,000 小時後之分光放射能量( $\text{mW}/\text{nm}$ )	性能保持率 (%)
實施例 2-1	實施例 1-1	74	0.42	0.40	95.2
實施例 2-2	實施例 1-1	76	0.39	0.37	94.9
比較例 2	比較例 1-1	76	0.42	0.33	78.5
比較例 3	EVOH	76	0.42	0.30	71.4

[產業上之可利用性]

[0239] 依據本發明，使用具備氣體阻隔性及水蒸氣

阻隔性優異，且對物理應變之耐性高之多層構造物之保護片可獲得電子裝置。因此，依據本發明，除了製造階段及流通階段以外，即使長時間於多個使用階段中，仍可獲得可維持高的特性之電子裝置。再者，依據本發明，可提供量子效率之下降受抑制，且在大氣下長期使用（例如，連續發光 2,000 小時）時性能保持率亦高之含量子點螢光體之電子裝置。

### 【符號說明】

[0240]

- 11：含量子點螢光體之電子裝置
- 1：含量子點螢光體之電子裝置本體
- 2：密封材
- 3：保護片（多層構造物）
- 10：LED 晶片
- 12：導線電極
- 14：杯
- 16、17：密封材
- 18：量子點螢光體
- 20：樹脂透鏡
- 22：量子點螢光體分散樹脂成形體
- 24：氣體阻隔層（保護片）
- 100：螢光裝置

I650389

## 發明摘要

※申請案號：104108648

※申請日：104年03月18日

※IPC分類：

【發明名稱】(中文/英文)

電子裝置

【中文】

本發明係關於一種電子裝置，其係以保護片被覆電子裝置本體（1）之表面而成之電子裝置，保護片包含含有基材（X）與積層於基材（X）上之層（Y）之多層構造物，且層（Y）含有金屬氧化物（A）、磷化合物（B）及離子價（ $F_z$ ）為1以上3以下之陽離子（Z），磷化合物（B）係含有可與金屬氧化物（A）反應之部位之化合物，層（Y）中，構成金屬氧化物（A）之金屬原子（M）之莫耳數（ $N_M$ ）與源自前述磷化合物（B）之磷原子之莫耳數（ $N_P$ ）滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，且  $N_M$ 、陽離子（Z）之莫耳數（ $N_Z$ ）、與  $F_z$  滿足  $0.001 \leq F_z \times N_Z/N_M \leq 0.60$  之關係。

【英文】

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無

【本代表圖之符號簡單說明】：無

【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

圖 1

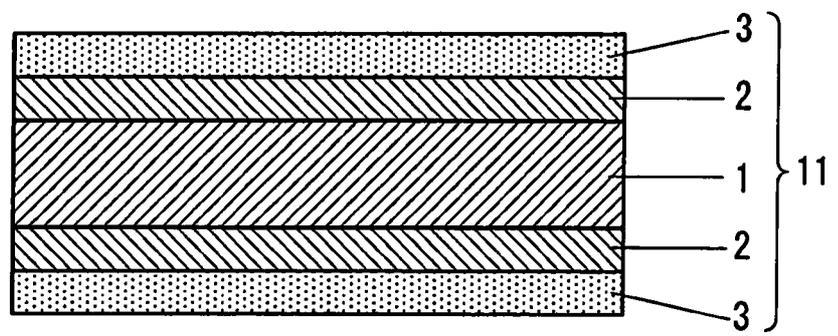


圖 2

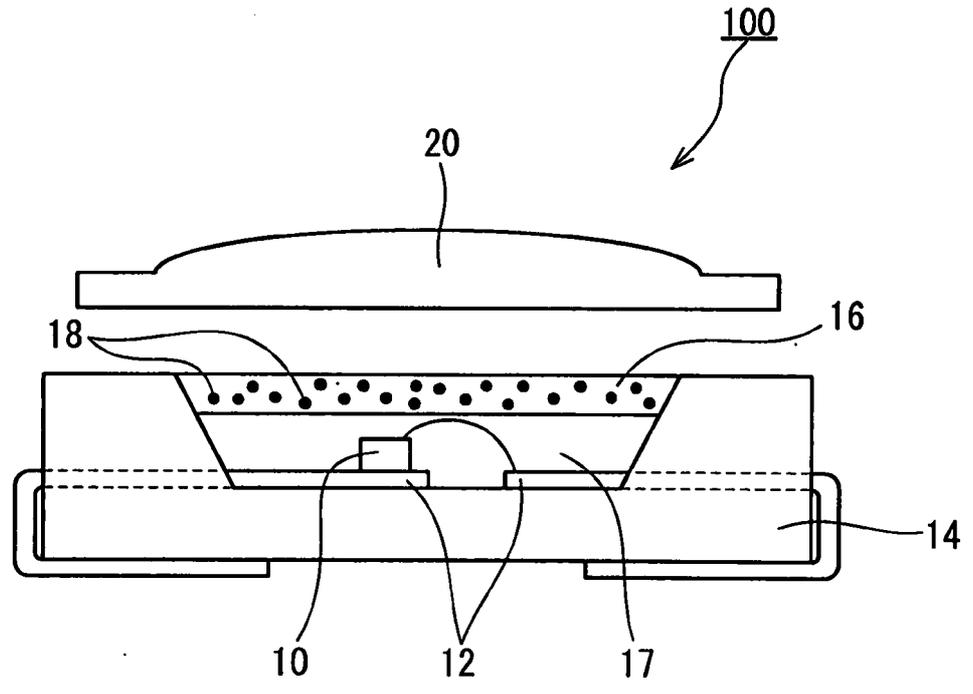


圖 3

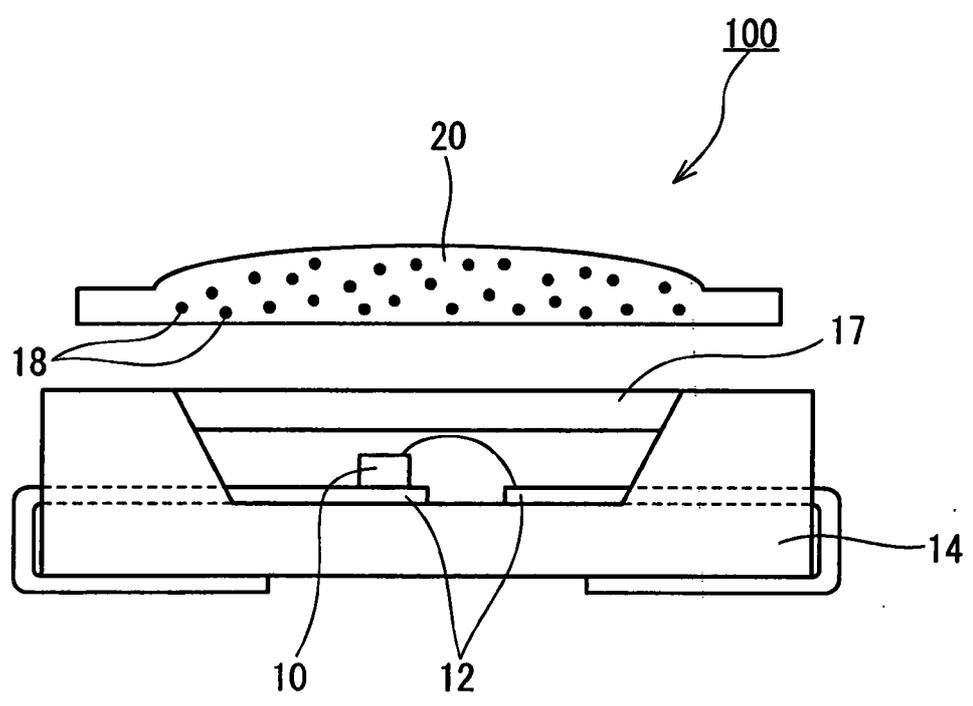


圖 4

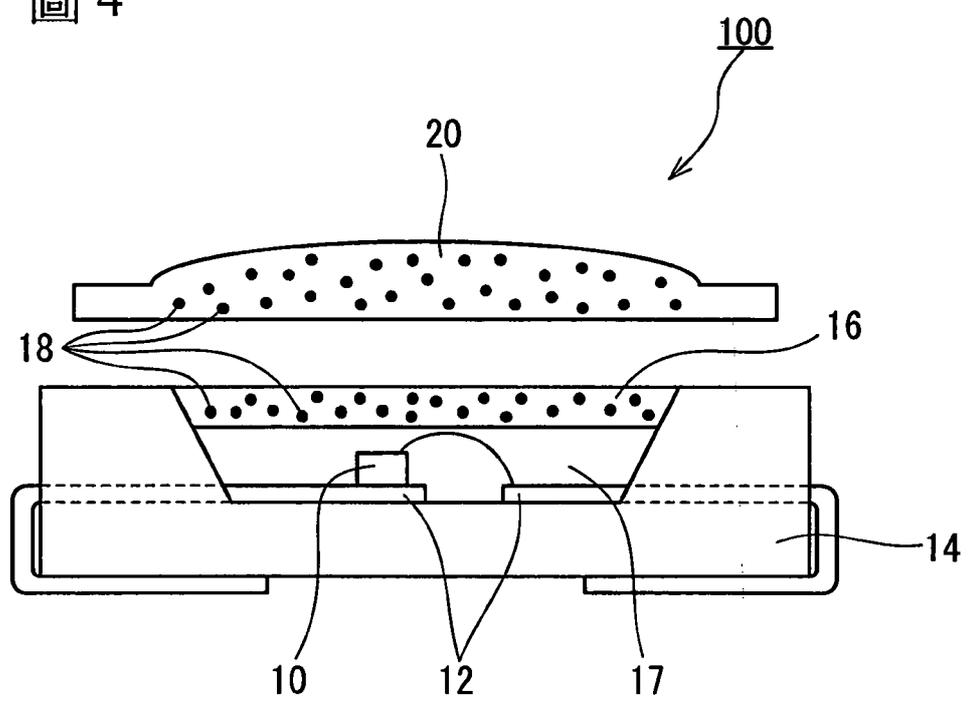


圖 5

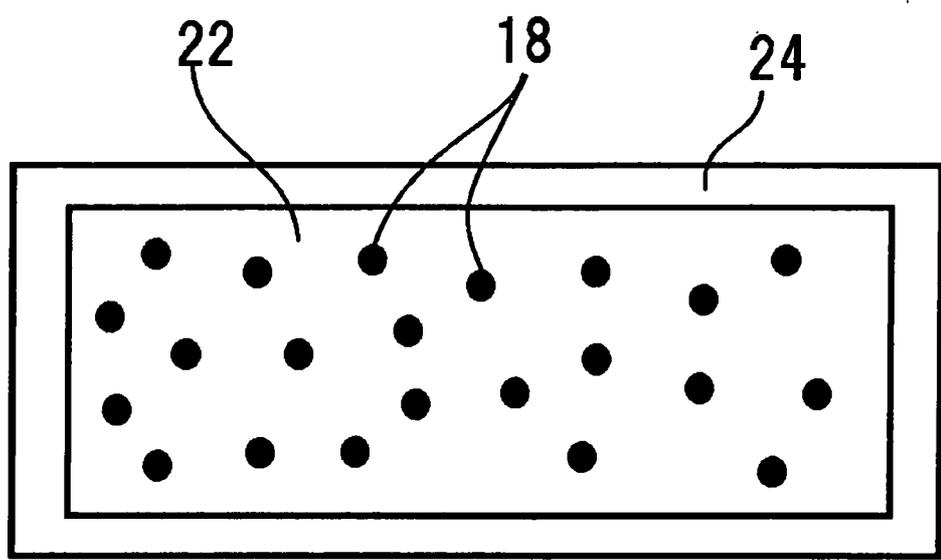


圖 6

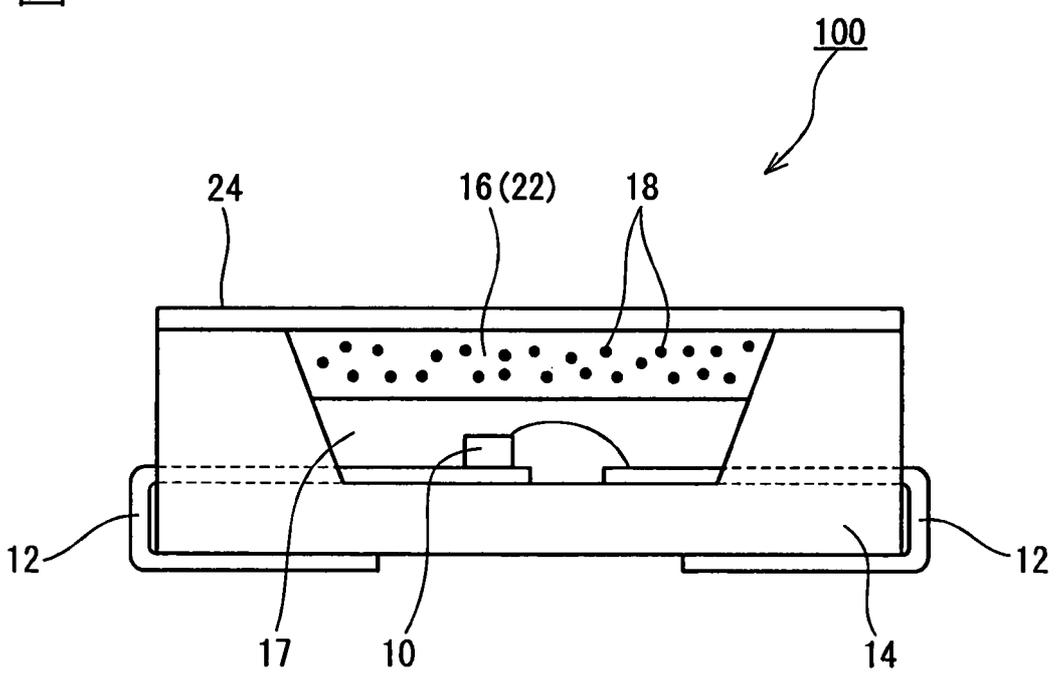
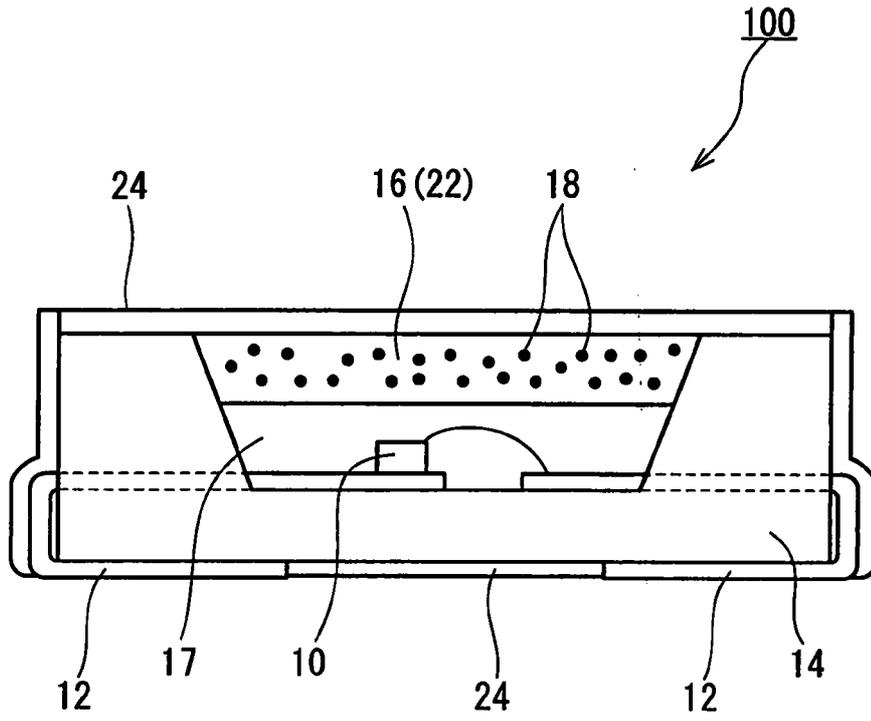


圖 7



溶液，第 1 塗覆液 (U-16) 係 1.0 莫耳%之氨水溶液，第 1 塗覆液 (U-17) 係鹽水溶液 (1.0 莫耳%之氯化鈉水溶液與 0.5 莫耳%之氯化鈣水溶液之混合液)，第 1 塗覆液 (U-18) 係鹽水溶液 (0.5 莫耳%之氯化鋅水溶液與 0.5 莫耳%之氯化鈣水溶液之混合液)。

[0196]

〈第 1 塗覆液 (U-19) ~ (U-23) 之製造例〉

除了依據後述表 1 改變  $N_M/N_P$  及  $F_Z \times N_Z/N_P$  之比率外，餘以與第 1 塗覆液 (U-5) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-19) ~ (U-23)。

[0197]

〈第 1 塗覆液 (U-34)、(U-36)、(U-37)、(U-39) 及 (CU-5) 之製造例〉

分散液之調製中，第 1 塗覆液 (U-34) 中使用 0.19 質量份之氧化鋅、第 1 塗覆液 (U-36) 中使用 0.19 質量份之氧化鎂、第 1 塗覆液 (U-37) 中使用 0.38 質量份之硼酸、第 1 塗覆液 (U-39) 中使用 0.30 質量份之碳酸鈣、第 1 塗覆液 (CU-5) 中使用 0.38 質量份之四乙氧基矽烷代替氫氧化鈉水溶液。該等均係在添加聚乙烯醇水溶液後添加。且，第 1 塗覆液 (U-1) 之調製中添加之蒸餾水量為 58.19 質量份，第 1 塗覆液 (U-34) 及第 1 塗覆液 (U-36) 為 58.00 質量份，第 1 塗覆液 (U-37) 為 57.8 質量份，第 1 塗覆液 (U-39) 及第 1 塗覆液 (CU-5) 為 57.88 質量份。除該等變更以外，餘以與第 1 塗覆液 (U-

1) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (U-34)、第 1 塗覆液 (U-36)、第 1 塗覆液 (U-37)、第 1 塗覆液 (U-39) 及第 1 塗覆液 (CU-5)。

[0198]

〈第 1 塗覆液 (CU-1) 之製造例〉

分散液之調製中除未添加 1.0 莫耳%之氫氧化鈉水溶液以外，餘以與第 1 塗覆液 (U-1) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (CU-1)。

[0199]

〈第 1 塗覆液 (CU-2) 及 (CU-6) 之製造例〉

分散液之調製中，除以使  $F_Z \times N_Z / N_M$  之值成為表 1 所示之值之方式改變 1.0 莫耳%之氫氧化鈉水溶液之添加量以外，餘以與第 1 塗覆液 (U-1) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (CU-2) 及 (CU-6)。

[0200]

〈第 1 塗覆液 (CU-3) 及 (CU-4) 之製造例〉

除根據表 1 改變以  $N_M / N_P$  之值以外，餘以與第 1 塗覆液 (U-5) 之調製相同之方法，調製第 1 塗覆液 (CU-3) 及 (CU-4)。

[0201]

〈第 2 塗覆液 (V-1) ~ (V-6) 之製造例〉

首先，使合成例 1 中獲得之聚合物 (G1-1) 溶解於水與甲醇之混合溶劑 (以質量比計為水：甲醇=7：3)，獲得固體成分濃度為 1 質量%之第 2 塗覆液 (V-1)。且，

## 申請專利範圍

1. 一種電子裝置，其係包含保護片之電子裝置，其特徵為

前述保護片具備包含基材（X）及積層於前述基材（X）之層（Y）之多層構造物，

前述層（Y）含有金屬氧化物（A）、磷化合物（B）及離子價（ $F_Z$ ）為 1 以上 3 以下之陽離子（Z），

構成前述金屬氧化物（A）之金屬原子（M）係選自由鋁、鈦及鋯所組成之群之至少一種，

前述磷化合物（B）係含有可與前述金屬氧化物（A）反應之部位之化合物，

前述陽離子（Z）係選自由鋰離子、鈉離子、鉀離子、鎂離子、鈣離子、鈦離子、鋯離子、鏷系離子、釩離子、錳離子、鐵離子、鈷離子、鎳離子、銅離子、鋅離子、硼離子、鋁離子、及銨離子所組成之群之至少一種陽離子，

前述層（Y）中，構成前述金屬氧化物（A）之金屬原子（M）之莫耳數（ $N_M$ ）與源自前述磷化合物（B）之磷原子之莫耳數（ $N_P$ ）滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，且

前述層（Y）中，前述莫耳數（ $N_M$ ）、前述陽離子（Z）之莫耳數（ $N_Z$ ）、與前述離子價（ $F_Z$ ）滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係。

2. 如請求項 1 之電子裝置，其進而含量子點螢光體。

3. 如請求項 2 之電子裝置，其係於包含量子點螢光體之層之單側或兩側配置前述保護片。

4. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其中前述層 (Y) 中，前述莫耳數 ( $N_M$ )、前述莫耳數 ( $N_Z$ )、與前述離子價 ( $F_Z$ ) 滿足  $0.01 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係。

5. 如請求項 1~3 中任一項之多層構造物，其中前述磷化合物 (B) 係選自由磷酸、聚磷酸、亞磷酸、麟酸、亞麟酸、次麟酸、次亞麟酸、及該等之衍生物所組成之群之至少一種化合物。

6. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其中前述層 (Y) 之紅外線吸收光譜中，在  $800 \sim 1,400 \text{cm}^{-1}$  之範圍中之最大吸收波數落於  $1,080 \sim 1,130 \text{cm}^{-1}$  之範圍。

7. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其中前述基材 (X) 包含熱可塑性樹脂薄膜。

8. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其中前述層 (Y) 包含聚合物 (C)，該聚合物 (C) 含有選自由羰基、羥基、羧基、羧酸酐基、及羧基之鹽所組成之群之至少一種官能基。

9. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其中前述多層構造物進而包含與前述層 (Y) 鄰接配置之層 (W)，前述層 (W) 包含具有含有磷原子之官能基之聚合物 (G1)。

10. 如請求項 1~3 中任一項之電子裝置，其特徵係包含下列步驟：

混合金屬氧化物 (A)、含有可與前述金屬氧化物 (A) 反應之部位之磷化合物 (B)、及離子價 ( $F_Z$ ) 為 1 以上 3 以下之陽離子 (Z) 之離子性化合物 (E) 而調製第 1 塗覆液 (U) 之步驟 [I]，

將前述第 1 塗覆液 (U) 塗佈於前述基材 (X) 上，而於前述基材 (X) 上形成前述層 (Y) 之前驅物層之步驟 [II]，

在  $110^\circ\text{C}$  以上之溫度下熱處理前述前驅物層之步驟 [III]，

構成前述金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 係選自由鋁、鈦及銩所組成之群之至少一種，

前述離子性化合物 (E) 中所含的陽離子 (Z) 係選自由鋰離子、鈉離子、鉀離子、鎂離子、鈣離子、鈦離子、銩離子、鑷系離子、釩離子、錳離子、鐵離子、鈷離子、鎳離子、銅離子、鋅離子、硼離子、鋁離子、及銨離子所組成之群之至少一種陽離子，

前述第 1 塗覆液 (U) 中，構成前述金屬氧化物 (A) 之金屬原子 (M) 之莫耳數 ( $N_M$ )、與源自前述磷化合物 (B) 之磷原子之莫耳數 ( $N_P$ ) 滿足  $0.8 \leq N_M/N_P \leq 4.5$  之關係，且

前述第 1 塗覆液 (U) 中，前述莫耳數 ( $N_M$ )、前述陽離子 (Z) 之莫耳數 ( $N_Z$ )、與前述離子價 ( $F_Z$ ) 滿足  $0.001 \leq F_Z \times N_Z / N_M \leq 0.60$  之關係。