(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 201317332 A1
(43)公開日： 中華民國 102 (2013) 年 05 月 01 日

(21)申請案號：101134527 (22)申請日： 中華民國 101 (2012) 年 09 月 20 日
(51)Int. Cl.： *C09K3/10 (2006.01)* *C03C27/10 (2006.01)*
(30)優先權：2011/09/22 美國 13/240,372
(71)申請人：柯瑞山谷科技 美國 有限責任公司 (美國) CRAY VALLEY USA, LLC (US)
美國
(72)發明人：趙 赫伯特 心一 CHAO, HERBERT SHIN-I (US) ；田楠 TIAN, NAN (CN)
(74)代理人：詹銘文；葉璟宗
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：31 項 圖式數：0 共 39 頁

(54)名稱

無異氰酸酯絕緣玻璃密封劑及使用其的絕緣玻璃單元

ISOCYANATE-FREE INSULATED GLASS SEALANT AND INSULATED GLASS UNITS USING THE SAME

(57)摘要

一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質。彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於玻璃薄板之間的間隔物或前述兩者；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，以在玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生所述絕緣玻璃單元。上述密封劑維持傳統聚氨酯密封劑優秀的屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，且在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明亦提供製造上述密封劑的方法以及以這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板(諸如玻璃窗)的方法及其所得的製品。

(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 201317332 A1
(43)公開日： 中華民國 102 (2013) 年 05 月 01 日

(21)申請案號：101134527 (22)申請日： 中華民國 101 (2012) 年 09 月 20 日
(51)Int. Cl.： *C09K3/10 (2006.01)* *C03C27/10 (2006.01)*
(30)優先權：2011/09/22 美國 13/240,372
(71)申請人：柯瑞山谷科技 美國 有限責任公司 (美國) CRAY VALLEY USA, LLC (US)
美國
(72)發明人：趙 赫伯特 心一 CHAO, HERBERT SHIN-I (US) ；田楠 TIAN, NAN (CN)
(74)代理人：詹銘文；葉璟宗
申請實體審查：無 申請專利範圍項數：31 項 圖式數：0 共 39 頁

(54)名稱

無異氰酸酯絕緣玻璃密封劑及使用其的絕緣玻璃單元

ISOCYANATE-FREE INSULATED GLASS SEALANT AND INSULATED GLASS UNITS USING THE SAME

(57)摘要

一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質。彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於玻璃薄板之間的間隔物或前述兩者；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，以在玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生所述絕緣玻璃單元。上述密封劑維持傳統聚氨酯密封劑優秀的屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，且在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明亦提供製造上述密封劑的方法以及以這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板(諸如玻璃窗)的方法及其所得的製品。

201317332

發明專利說明書

（本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫）

※ 申請案號：101134527

※ 申請日期：101.9.20　　※IPC 分類：C09K 3/10 (2006.01)
C03C 27/10 (2006.01)

一、發明名稱：（中文/英文）

無異氰酸酯絕緣玻璃密封劑及使用其的絕緣玻璃單元 / ISOCYANATE-FREE INSULATED GLASS SEALANT AND INSULATED GLASS UNITS USING THE SAME

二、中文發明摘要：

一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質。彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於玻璃薄板之間的間隔物或前述兩者；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，以在玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生所述絕緣玻璃單元。上述密封劑維持傳統聚氨酯密封劑優秀的屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，且在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明亦提供製造上述密封劑的方法以及以這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板（諸如玻璃窗）的方法及其所得的製品。

三、英文發明摘要：

An insulated glass sealant includes an elastomeric matrix that is the reaction product of a carboxyl-terminated polymer and a polycarbodiimide. A method of sealing an insulated glass unit includes applying the insulated glass sealant to one or more glass sheets, a spacer to be disposed between the glass sheets, or both; and contacting the one or more glass sheets with the spacer to define an annular space between the glass sheets and to produce the insulated glass unit. The sealants maintain the excellent attributes of traditional polyurethane sealants, such as low water swell, low moisture vapor transmission, good adhesion to the window frame, low migration of the insulating gas, and good workability, but without the use of polyisocyanates in the curing process. Methods for making the sealant and for sealing insulated glass panels, such as glass windows, with these rugged sealants, and the resulting articles, are also provided.

四、指定代表圖：

（一）本案之指定代表圖：無

（二）本代表圖之元件符號簡單說明：

無

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明是有關於一種可採用作為絕緣玻璃密封劑的組成物、此種密封劑的製造方法、以及在絕緣玻璃單元構造中利用此種密封劑的方法。具體地說，本發明是有關於聚碳二醯亞胺（polycarbodiimide）與端羧基（carboxyl-terminated）聚合物（諸如端羧基聚丁二烯（carboxyl-terminated ploybutadiene））的反應產物型的耐用密封劑。在固化製程中（curing process）不使用聚異氰酸酯的情形下，本發明的密封劑維持傳統聚氨酯（polyurethane）密封劑的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架（window frame）之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性。本文亦揭露使用這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板（諸如玻璃窗）的方法以及所得的製品。

【先前技術】

絕緣玻璃單元（insulated glass unit，IGU）通常包括一對玻璃薄板（藉由隔離構件而維持彼此分開的關係）、以及密封構件，此密封構件延展於上述玻璃薄板的內部相對表面的周邊周圍，以在玻璃薄板之間定義密封且絕緣的空氣間隙。通常情況下，隔離構件是延展於玻璃薄板的內部相對表面的周邊周圍且填滿吸水性材料（諸如分子篩或另一脫水元件）的鏤空形式，進而保持乾燥的封閉空氣間隙。藉由密封劑或附著劑的方式，將玻璃薄板的內部表面附加

於隔離構件的外部表面。一般來說，亦將密封劑或附著劑使用於密封絕緣玻璃單元的邊緣，從而建立阻障，進而防止濕氣穿透進入上述單元的內部環形間隙。

密封劑應當具有滿足使用的性質的組合。例如，密封劑應當具有非常低的水蒸氣穿透（moisture vapor transmission，MVT）率，從而防止濕氣進入玻璃窗片（pane）之間的乾燥的環形間隙。在此間隙中的濕氣趨向於在窗片的內部表面上凝結，產生能見度及美觀方面的問題。若密封劑不具有令人滿意的 MVT 率，可能大幅減少絕緣單元的壽命。密封劑應該具有好的延伸性及可撓性，以使其在絕緣玻璃結構的收縮及膨脹的期間「適應（yields）」，（例如）以抒解在溫度改變時在玻璃上所造成的應力。密封劑亦需要與玻璃形成優秀的接合，其在暴露於陽光、濕氣、以及大的溫度改變時，經過長時間的使用不會劣化。拉伸附著強度是接合強度的重要指標。

在絕緣玻璃工業中，現今所使用的兩種主要類型的密封劑為：（A）部分熱塑性的熱熔性丁基型（thermoplastic one-part hot melt butyl type）密封劑；以及（B）通常來自聚硫化物、聚氨酯及矽酮（silicone）之通用族群的化學固化的熱固性密封劑產品。在絕緣玻璃工業中，已適度成功地使用熱熔丁基絕緣玻璃密封劑有數年的時間。然而，在技術上仍存在顯著的缺點，因此限制熱熔丁基絕緣玻璃密封劑的應用。主要地說，熱熔丁基為熱塑性材料而非熱固性材料。已熟知當熱塑性密封劑暴露於熱時，熱塑性密封

劑會軟化。因此，當市售之採用熱塑性密封劑的絕緣玻璃單元被放置在負載下時，其將流動或變形以抒解此應力。此特徵在高溫時將更為明顯（可能發生在絕緣玻璃單元中的溫度），尤其是對那些利用太陽能控制玻璃的絕緣玻璃單元來說。因此，以熱熔丁基密封劑所構成的絕緣玻璃單元並不容易通過一般工業中的應力及溫度的測試，並且經常被限制使用於相對輕小的絕緣玻璃單元中。此外，在操作、運輸及安裝期間，需要十分地注意來支撐絕緣玻璃單元，從而導致了額外的花費。再者，早先所採用的熱熔性密封劑必須在超過 300°F 的溫度下塗佈於絕緣玻璃單元。這些高溫的需求經常代表所增加的製造成本，成本例如來自較高的能源消耗及專門的高溫設備，還有操作及安全的挑戰。已知企圖利用低溫熱熔物會造成密封劑流動性的問題。

現今所使用的熱固性產品一般為雙成分（two-component）的密封劑，其可在室溫的應用點下混合。接著，藉由與所供應的催化劑或經由與濕氣反應來將密封劑緩慢地固化。此緩慢的固化需要將絕緣玻璃單元保存在倉庫中數個小時至數天，以等待密封劑硬化。市場上亦可獲得數種單成分密封劑，諸如包括部分交聯熱熔性丁基橡膠密封劑之密封劑。然而，一般需要將溫度升高到約 325°F 至約 425°F 來處理這些單成份密封劑以將密封劑交聯。其他在本技術中所採用密封劑是利用氨酯固化化學（urethane-curing chemistry），但因為在製程中產生的二氧化碳（CO_2）成為氣泡而會被捕捉於密封劑與玻璃的界面

處，其會對絕緣玻璃單元的能見度及美觀有不利的影響，故上述密封劑不適用於絕緣玻璃工業。

更近期以來，聚氨酯化學型的密封劑已使用於絕緣玻璃單元。這些聚氨酯型的密封劑採用聚醇類（polyol）（諸如端羥基聚丁二烯）與異氰酸酯反應以形成密封劑。然而，由於利用異氰酸酯的緣故，這些密封劑具有環保性及安全性的考量。如本技術領域中具有通常知識者所習知，異氰酸酯為高反應性、低分子量化學性的族群。異氰酸酯對於眼睛與腸胃道及呼吸道的黏膜有強大的刺激性。異氰酸酯直接與皮膚接觸亦會造成顯著的發炎症狀。長時間的暴露會使得工作者過敏，若工作者再次暴露於異氰酸酯中，甚至會哮喘發作或死亡。因此，高度需要具有已知絕緣玻璃密封劑之有益性質的組成物，而不具有傷害安全性考量及不利的副產物。

【發明內容】

現在已發現聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）反應的反應產物提供了使用於絕緣玻璃應用中的耐用密封劑。本發明的密封劑維持了傳統聚氨酯密封劑（諸如基於端羥基聚丁二烯與異氰酸酯的反應的聚氨酯密封劑）的優秀屬性，其包括低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用異氰酸酯。因為本發明的密封劑採用在不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的

溫度下塗佈上述密封劑，且因此相較於傳統化學固化產品而言亦更快地提供了單元足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者中的最佳性質而成為用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。本發明的密封劑經設計以在 70°F 至 300°F 的溫度範圍內以液體或膠狀的形式塗佈，並經由固化而成為固體。上述之本發明的優點及其他本發明的優點將顯而易見於以下的描述、討論及實例中。

已進一步地發現可將密封劑塗佈於絕緣玻璃單元的面板（諸如面板的邊緣），以將單元的成分附著在一起，並從而將單元密封以防隨後的濕氣穿透。更具體地說，本發明是有關於用於絕緣玻璃單元的單一成分邊緣密封劑，密封劑在高溫下可作為液體或膠體塗佈。接著，經由冷卻後，密封劑能夠可逆並快速地固體化。繼之，將密封劑暴露於大氣環境之後，不可逆地固化密封劑。因此，本發明是有關於密封劑、以上述密封劑密封諸如玻璃窗之絕緣玻璃面板的方法、以及所得之絕緣玻璃單元的製品。

在本發明的第一實施例中，絕緣玻璃密封劑包括彈性基質，彈性基質是端羧基聚合物及聚碳二醯亞胺的反應產物。彈性基質不是凝膠，而是比凝膠更硬且更具有彈性的物質（橡膠）。例如，可選擇反應物及反應/製程條件的相對比例以提供在 25°C 下邵氏 00 硬度（Shore 00 hardness）至少為約 30、至少為約 35、至少為約 40、至少為約 45、或至少為約 50 的彈性基質。密封劑更可包括一種以上添加物。添加物選自由無機填料、塑化劑、鏈延展劑、以及上

述物質的混合物所組成的族群中。在至少一個實施例中，端羧基聚合物為疏水性。適當的端羧基聚合物的玻璃溫度轉換溫度（glass transition temperature，Tg）可小於約 32°F（0°C）。端羧基聚合物的聚合部分例如是諸如丁二烯或異戊二烯之一種以上二烯單體的均聚物（homopolymer）或共聚物、或一種以上二烯單體與一種以上非二烯單體(諸如苯乙烯及/或丙烯腈）的共聚物。適當的聚碳二醯亞胺包括（但不受限於）芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、以及雜環碳二醯亞胺、以及兩者以上的上述物質中的混合物。例如，適當的聚碳二醯亞胺的平均官能度（functionality）可等於或大於 2（意指聚碳二醯亞胺在一分子中包含至少兩個碳二醯亞胺官能基）。

在另一實施例中，本發明是有關於絕緣玻璃單元的密封方法。上述方法包括將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板上、待配置於玻璃薄板之間的間隔物（spacer）上、或上述兩者之上；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，藉此在玻璃薄板之間定義環形的間隙及產生絕緣玻璃單元。可使用多種設備並以數種不同的方法（為本技術領域中具有通常知識者所易於理解的）來塗佈密封劑。例如，可將密封劑以釘珠狀（bead）塗佈在一個以上的玻璃基板上、間隔物上、或上述兩者之上。在上述接觸步驟之前或同時，此方法可更包括將絕緣氣體引入產生於第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間的環形間隙的步驟示例性的絕緣氣體包括氬氣及氪氣（krypton）。

在另一實施例中，本發明關於絕緣玻璃單元。此單元包括：第一玻璃薄板，其具有內部表面及外部表面；第二玻璃薄板，其具有內部表面及外部表面，其中將第一玻璃薄板及第二玻璃薄板定位，以使得玻璃基板的內部表面彼此相對；間隔物，位於第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間，間隔物具有第一側及第二側，間隔物的第一側鄰近第一玻璃薄板內部表面且間隔物的第二側鄰近第二玻璃薄板內部表面；絕緣玻璃密封劑，其連接第一玻璃薄板及第二玻璃薄板至間隔物。第一玻璃薄板及第二玻璃薄板及間隔物可經組態以在玻璃薄板之間提供環形間隙。絕緣玻璃單元在環形間隙中，更可包括絕緣氣體。

以下將更詳細地描述，絕緣玻璃密封劑的彈性基質可直接由端羧基聚合物及聚碳二醯亞胺的反應所直接形成。或者，彈性基質可藉由以下方法形成：首先將端羥基聚合物與酸酐及（選擇性地）與鏈延展劑反應，以產生端羧基聚合物；並接著將端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺反應。相似地，彈性基質可藉由將端羥基聚合物與酸酐及（選擇性地）與鏈延展劑反應，並臨場（in situ）與聚碳二醯亞胺反應所形成。可以採用任何適當的酸酐（諸如4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（4-methylhexahydrophthalic anhydride，HHMPA））以及鏈延展劑（諸如N,N-二異丙醇（N,N-diisopropanol aniline，DIPA）及2-乙基-1,3-己二醇（2-ethyl-1,3-hexanediol），EHD）。本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，可在此發明的研究中利用數種其

他的反應物，以在與聚碳二醯亞胺的反應之前或同時臨場產生端羧基聚合物。

【實施方式】

本發明是針對可採用作為絕緣玻璃密封劑的組成物以及將此種密封劑於絕緣玻璃單元的構造中的製造方法及利用方法。密封劑的目的是提供單元結構的完整性，並同時將濕氣密封在外及防止氣體的交換。邊緣密封劑亦抵抗來自水、紫外線（ultraviolet，UV）及極端溫度的環境損害。

具體地說，本發明是有關於基於聚碳二醯亞胺及端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）的反應產物的耐用密封劑。本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明更有關於使用這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板的方法，以及所得的絕緣玻璃製品。

現在市售的絕緣玻璃密封劑採用聚醇類（諸如端羥基聚丁二烯），聚醇類與聚異氰酸酯反應以形成聚氨酯密封劑。然而，本發明的實施例是將端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）與聚碳二醯亞胺反應，而不是將端羧基聚合物與聚異氰酸酯反應。因為端羧基聚合物（例如聚丁二烯）的聚合部分的疏水性對於最終的密封劑是有益處的，本發明採用端羧基聚合物作為彈性密封劑基質中的連續相。然

而，將聚碳二醯亞胺取代聚異氰酸酯作為交聯劑的使用提供一定的環保性、監管性、以及安全性方面的益處。此外，本發明採用聚丁二烯為端羧基聚丁二烯取代更常使用於絕緣玻璃密封劑技術中的端羥基聚丁二烯。「端羧基」意指羧酸基（carboxylic acid group，$-CO_2H$）存在於沿著聚合物鏈的某處，例如突出聚合物鏈骨幹或在聚合物鏈的末端。在一實施例中，聚合物的各個末端承載一個羧酸基。在另一實施例中，羧酸基僅存在於聚合物鏈的末端。

藉由包括聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物反應的製程來形成本發明的彈性體（elastomer matrix）基質。端羧基聚合物較佳包括主成分。通常情況下，主成分構成端羧基聚合物的至少 90 重量%，且主成分是選自由聚合端羧基物質（諸如端酸基聚丁二烯、聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的共聚物、丁二烯與苯乙烯的共聚物、異戊二烯與丙烯腈的共聚物、異戊二烯與苯乙烯的共聚物、以及兩者以上的上述物質的混合物）所組成的族群中。選擇性的次成分是選自由單體或二聚體端羧基化合物（諸如己二酸、壬二酸、異鄰二甲苯酸及二聚體脂肪酸）所組成的族群中。

本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑（polyurethane）的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用異氰酸酯。因為本密封劑採用不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的溫度

下塗佈本發明，且相較於傳統化學固化產品而言亦更快地對單元提供了足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者中的最佳性質而成為用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。本發明的密封劑經設計以在 70°F 至 300°F 的溫度範圍內以在固化後而成為固體的液體或膠狀的形式塗佈。接著，本發明的密封劑化學固化以提供永久彈性及溫度抗性，其提供絕緣玻璃單元結構的完整性。

本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，流體相（即液體或膠體）中的絕緣玻璃密封劑的強度性質可以藉由端羧基聚合物的類型或量及（選擇性地）任意的添加物來控制。邊緣密封劑的最終強度是藉由聚碳二醯亞胺的類型及經交聯的密度來控制。一般來說，適當的端羧基聚合物的玻璃轉換溫度（Tg）小於約 32°F（0°C）。適當的聚合物可使用為端羧基聚合物的聚合部分，其包括例如丁二烯及異戊二烯之二烯類的均聚物及共聚物以及一種以上的二烯單體與一種以上非二烯單體（諸如苯乙烯及丙烯腈）的共聚物。再者，適當的疏水性端羧基聚合物包括端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、異戊二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物以及上述物質的混合物。端羧基聚合物較佳的數量平均分子量介於 500 至 30,000 的範圍內。端羧基聚合物的數量平均分子量可更具體地介於 750 至 25,000 的範圍內、且更佳地介於 1,000 至 20,000 的範圍內。端羧基聚合物可例如是

直鏈型或支鏈型。支鏈型的端羧基聚合物可包含 3、4、5、6 或甚至更多的末端（支鏈）。這些物質的聚合片段（若由兩個以上的不同單體組成）可為隨機形狀、塊狀、或錐狀的共聚物。此外，聚合物每一分子可包含任意數量的羧基，其諸如一分子至少包含 2 個以上的羧基。羧基（$-CO_2H$）可出現在聚合物中的任何地方，例如突出聚合物鏈的骨幹及/或（在較佳的實施例中）在聚合物鏈的各個末端處。在本發明的一個態樣中，聚合物承載僅在聚合物鏈的末端位置的羧酸基。在一實施例中，端羧基聚合物的聚合部分為飽和或實質上飽和。例如，若此種聚合部分是藉由二烯單體的聚合作用而衍生，則可將烯烴點（olefinic site）氫化。若有相當需要時，可採用不同端羧基聚合物的混合物。

適於本發明使用的端羧基聚合物可由商業來源獲得，諸如由美國克雷芬利有限公司（Cray Valley USA, LLC）購得。

較佳的端羧基聚丁二烯可選自與化學計量數量的酸酐（諸如 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（HHMPA））反應的端羥基聚丁二烯中。其他適當的酸酐例如包括脂肪族及芳香族酸酐，其諸如鄰二甲苯酸酐、琥珀酸酐（succinic anhydride）、馬來酸酐（maleic anhydride）、苯三甲酸酐（trimellitic anhydride）、六氫鄰二甲苯酸酐、氯橋酸酐（chlorendic anhydride）、四氯鄰二甲苯酸酐、甲基四氫鄰二甲苯酸酐、伊康酸酐（itaconic anhydride）、苯均四酸二酐（pyromellitic dianhydride）、苯並苯酮四羧酸二酐、

或環戊烷四羧酸二酐。因此，可在反應製程中直接利用上述聚合物作為端羧基聚合物，或者可採用上述聚合物作為與酸酐反應以產生端羧基聚合物的端羥基聚合物。如下所示，端羥基聚合物與酸酐之間的反應可在添加聚碳二醯亞胺之前發生或可在與聚碳二醯亞胺反應時同時(諸如臨場)發生。此外，可於一種以上的這些反應製程期間，利用鏈延展劑（諸如 2-乙基-1,3-己二醇）。端羧基聚合物亦可藉由本技術中任何其他已知的方法來製備，例如端羥基聚合物的羥基與二酸類的酯化反應。

本發明的實施例可利用眾多適當的聚碳二醯亞胺，例如包括芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、及雜環碳二醯亞胺、以及上述物質兩種以上的混合物。所使用的聚碳二醯亞胺較佳藉由使多官能基(較佳為二官能基）的脂肪族或（較佳為）芳香族異氰酸酯形成碳二醯亞胺。雖然所採用的單官能基異氰酸酯或三官能基異氰酸酯及高官能基異氰酸酯的量應該在異氰酸酯總量的 20 重量%以下（且較佳為重量為 10 重量%以下），仍可使用單官能基異氰酸酯或三官能基異氰酸酯及高官能基異氰酸酯作為聚碳二醯亞胺的鏈終止劑（chain terminator）或接枝劑（branching agent）。聚碳二醯亞胺較佳的平均官能度等於或大於 2。本發明的密封劑包括彈性基質，彈性基質具有碳二醯亞胺：羧酸的一當量比。此當量比藉由聚碳二醯亞胺及端羧基聚合物分別提供。聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比較佳為約 0.25：1 至約 2：1。更具體

地說，此當量比於 0.5：1 至約 1.5：1 的範圍內，且更佳於 0.7：1 至約 1.4：1 的範圍內。

適當的異氰酸酯包括異氰酸烷酯，其諸如異氰酸甲酯、異氰酸烯丙酯、異氰酸丁酯、異氰酸硬脂基酯；二異氰酸烷酯，其諸如二異氰酸乙烯酯、二異氰酸四亞甲酯、二異氰酸六亞甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯（isophorone diisocyanate）；芳香族單官能基及雙官能基異氰酸酯，其諸如二異氰酸苯酯、二異氰酸伸苯酯、同分異構的二異氰酸甲苯酯、二異氰酸二苯基甲酯、二異氰酸二甲基二苯基甲酯、以及可選擇性地包含多核二異氰酸酯或三官能基異氰酸酯的商業級二苯基甲烷二異氰酸酯混合物。較佳的異氰酸酯為二異氰酸六亞甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯、二異氰酸甲苯酯及二異氰酸二苯基甲酯。二異氰酸甲苯酯的同分異構物為較佳。

適當的聚碳二醯亞胺在一個分子中具有至少 2 個碳二醯亞胺基，較佳為一分子具有至少 3 個碳二醯亞胺基。聚碳二醯亞胺中的詞彙「聚」意指聚二醯亞胺包含多個碳二醯亞胺基（多官能基的碳二醯亞胺），而不需要意指聚碳二醯亞胺具有聚合物的特徵。聚碳二醯亞胺的分子量並不受限，但其較佳於 250 至 10,000 的範圍內。所有本文中分子量的參考為數量平均分子量。聚碳二醯亞胺較佳於存在碳二醯亞胺促進劑（promoting agent）的情形下而藉由有機聚異氰酸酯的聚縮反應來製備。有機聚異氰酸酯可例如是芳香族聚異氰酸酯，其諸如二異氰酸 2,4-甲苯酯或二異

氰酸 2,6-甲苯酯、1,5-二異氰酸萘酯及 4,4'-二異氰酸二苯基甲酯；以及脂肪族或脂環族聚異氰酸酯，其諸如二異氰酸六亞甲酯、經氫化的 4,4'-二異氰酸二苯基甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯、以及經氧化的二異氰酸 2,4-甲苯酯或經氧化的二異氰酸 2,6-甲苯酯。可採用的碳二醯亞胺促進劑包括：1-苯基-伸磷基-1-氧化物（1-phenyl-phosphorene-1-oxide）、1-苯基 3-甲基-伸磷酸-2-氧化物、1-乙基-伸磷酸-1-氧化物或任何本技術已知的適當的促進劑。

在製備聚碳二醯亞胺時，可以藉由以有機單異氰酸酯終止聚縮反應來控制分子量（例如應用聚合物科學雜誌（J. Appl. Polym. Sci.）第 21 期的第 1999 頁（L.N. Alberine 所著，1977 年發行）中所揭露之）。有機單異氰酸酯的實例為異氰酸苯酯、異氰酸甲苯酯、異氰酸環己酯、異氰酸丁酯及上述物質的相似物。一種以含活性氫的化合物（阻擋劑（blocking agent））來阻擋終端異氰酸酯基的阻擋技術亦可以控制聚碳二醯亞胺的分子量。此阻擋技術例如詳細地揭露於有機塗料發展（Progress in Organic Coatings）第三期的第 73 頁（1975 年發行）之中。阻擋劑的典型實例為醇、酚、內醯胺、N-羥醯亞胺（N-hydroxyimide）、肟（oxime）、咪唑（imidazole）、三唑（triazole）、活性亞甲基化合物（例如乙醯丙酮及丙二酸二乙酯）、芳香族二級胺、酸性亞硫酸鈉、以及以上述物質的相似物。

彈性基質可選擇性地包括不會參與多元酸（polyacid）

與碳二醯亞胺之間的交聯反應的成份。如本技術中已知，包括此些「非活性」成分或添加物的物質如下：填料、塑化劑、穩定劑、顏料、殺菌劑、耐氣候性改良劑、催化劑、以及其相似物。流體相中的絕緣玻璃密封劑的強度性質亦可受到添加物的類型及量影響。例如，填料的範圍可由本技術領域中具有通常知識者選擇，並添加足夠填料的量以給予液體相適合的強度，添加填料亦可給予密封劑所需要的應用性質。一種較佳的填料為碳酸鈣。可以使用其他的填料(如本技術中已知)。本發明的密封劑應該易於操作及塗佈於絕緣玻璃單元。可以使用任意的方法及設備以塗佈或提供上述密封劑於絕緣玻璃單元，諸如藉由噴塗法、釘珠法（beading）、或沈積法。

此外，絕緣玻璃密封劑可包括一種以上的鏈延展劑。習知上，為了加強彈性基質的相容性及物理性質，建議使用 N,N-二異丙醇苯胺（N,N-diisopropanol aniline，DIPA）及 2-乙基-1,3-己二醇（2-ethyl-1,3-hexanediol，EHD）。本技術領域中具有通常知識者應理解的是，已知聚丁二烯聚醇型的彈性基質具有優秀的疏水性、水解性及化學抗性、電絕緣性質、以及低溫時的可撓性。因為小的二醇可臨場反應及形成硬鏈段區域（hard domain）以作為用於聚氨酯系統的物理交聯劑，因此將鏈延展劑（諸如低分子的二醇）併入膠料（gum stock）配方中以加強所得基質的彈性。傳統上來說，1,4-丁二醇（1,4-butanediol）是商業上聚醚型或聚酯聚醇型的聚氨酯彈性體中所使用的最重要的鏈延展劑

之一。已發現某些鏈延展劑（諸如 EHD 及 DIPA，例如 Voranol® 220-530）可有效率地使用於由 Poly bd ®樹脂（Poly bd® resin，其為具有約 2.5 羥基官能度的完全性經聚合的產品）或 Krasol®的 LBH 及 LBH-P 的聚丁二烯二醇樹脂（其為具有非常窄的分子量分佈的陰離子聚合的產品）所衍生的彈性基質，上述鏈延展劑皆不包括官能度大於 2.0 的種類。Poly bd®樹脂及 Krasol®樹脂皆可從位於賓州的艾斯頓市（Exton, Pennsylvania）的美國克雷芬利有限公司購得。可利用其他的固化添加物，包括六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（hexahydro-4-methylphthalic anhydride，HHMPA）、塑化劑、及聚碳二醯亞胺交聯劑。在一些例子中，亦需要添加額外的填料、顏料、流變劑（rheological agent）及上述物質的相似物。

可用以下方式製備本發明的密封劑。例如，首先可在混合容器中配置端羧基聚合物。混合容器能夠在真空下進行混合，且混合容器更可包括混合器。上述混合器包括可變速度多軸（multi-shaft）單元，其具有低速掃刀、高速分散器、以及低速鑽頭（auger）。接著可在上述聚合物中添加填料（若有利用填料時）。繼之，可添加聚碳二醯亞胺或其混合物於上述混合物並隨後開啟真空。在添加聚碳二醯亞胺的時間點，可在真空下進行混合，從而排除混合物暴露於大氣條件下的情況，並亦可由原物質上移除殘留的水，從而提升密封劑的穩定性。可以在引入聚碳二醯亞胺之前或是在添加聚碳二醯亞胺之後，添加諸如染料及耐氣

候性改良劑及其相似物的小量添加物。將彈性基質維持實質上的乾燥條件下，直到可將彈性基質塗佈於絕緣玻璃單元為止。在其他較佳的實施例中，可在乾燥及惰性氣體的環境下進行混合。

在約 70°F 至 300°F 的溫度下，以液體或膠體的形式將本明的絕緣玻璃密封劑塗佈於絕緣玻璃單元。繼之，將密封劑逐漸地固化為交聯的固體。將本發明的密封劑作為單一材料塗佈於單元上，從而排除在塗佈點上將多種成分結合在一起的需求。

可利用本發明的絕緣玻璃密封劑以製造絕緣玻璃單元。本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，絕緣玻璃單元一般經組態以具有第一玻璃薄板，其藉由間隔框架而與第二玻璃薄板間隔開。間隔框架一般具有一個基底及兩個分離的支部（leg），上述兩個支部與基底接合以提供實質上 U 形的形狀。由第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間的間隔框架所產生的間隙定義絕緣玻璃單元的內部環形間隙。間隔框架（可為可撓性間隔框架）具有第一側及第二側，且第一側位於鄰近第一玻璃薄板的內表面而第二側位於鄰近第二玻璃薄板的內表面。提供絕緣玻璃密封劑（例如將其塗佈）於間隔框架的各側上，藉以將玻璃薄板固持於間隔框架。如以上所討論，密封劑可作為濕氣阻障材料或抗濕氣滲入材料以防止濕氣穿透進入單元的內部環形間隙。然而，此為絕緣玻璃單元已熟知的組態，本發明亦可利用及結合具有通常技能的工藝者所知悉的其他組態。

上述兩個玻璃薄板並可為透明的玻璃（例如透明的浮板玻璃（float glass）），或者玻璃薄板中的一者或兩者並可為彩色的玻璃。此外，可以任何習知的方式（諸如MSVD、CVD、熱解法、溶膠-凝膠法等）進行功能性塗覆（諸如太陽能控制或低輻射率塗覆）於玻璃薄板中的至少一者的表面（例如內表面）。間隔框架可為習知剛性或盒形間隔框架，如同本技術領域中已知的一樣。然而，間隔框架較佳為具有可撓型間隔框架，其可由一片金屬（諸如201不銹鋼或304不銹鋼、或鍍錫鋼（tin plated steel））所形成，且為彎曲並成形為實質上U形的連續間隔框架。間隔框架藉由絕緣玻璃密封劑而黏著式地接合於分離的玻璃薄板的周邊及邊緣周圍。

可將絕緣玻璃密封劑塗佈於間隔框架的各側，以固持玻璃薄板於間隔框架。此外，抑或可將絕緣玻璃密封劑塗佈於各個玻璃薄板。可採用本技術領域具有通常知識者已理解的數種方法來將密封劑塗佈於間隔框架及/或玻璃薄板。例如，可將密封劑以連續、非連續、均勻、或非均勻的釘珠狀而塗佈於間隔框架。密封劑可類似地塗佈於一個以上的玻璃薄板。接著，可藉由密封劑來將玻璃薄板固定於間隔框架。如上所述，可採用數種其他的組態及方法來使用絕緣玻璃密封劑密封絕緣玻璃單元。

易於理解的是，可以任何便利的方式來製造絕緣玻璃單元及間隔框架的構件，但接著在本文中所討論的改良方式將包括本發明的絕緣玻璃密封劑。例如，可藉由習知的

輥軋、彎曲或成形技術來形成基底（諸如201不銹鋼或304不銹鋼的金屬薄板，其厚度、長度及寬度足夠製造所需尺寸的間隔框架）。雖然可在成形之前將密封劑提供於基底上，但較佳為在間隔框架成形之後再塗佈密封劑。藉由以任何便利的方式將玻璃薄板定位及利用密封劑將玻璃薄板附著於間隔框架來組裝絕緣玻璃單元。可以任何便利的方式將絕緣氣體（諸如氬氣或氪氣）引入第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間所產生的環形間隙。密封劑材料釘珠可作用以將玻璃薄板附加於間隔框架。本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑的優秀屬性，包括低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用異氰酸酯。因為本發明的密封劑採用在不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的溫度下塗佈本發明，且因此相較於傳統化學固化產品而言亦更快地對單元提供了足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者的最佳性質至用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。

本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，可以在不違背上述所揭露的概念的情形下改良本發明。例如，雖然以上所描述的示範實施例是利用兩個附加於間隔物的玻璃薄板，但正如本技術領域中已知的一般，本發明並不受限於僅具有兩個玻璃薄板的絕緣玻璃單元，更可以製作具有兩個以上的玻璃薄板的絕緣玻璃單元。進一步地說，在

本發明的至少一個實施例中，密封劑可用於具有一般U形剖面的間隔框架。然而，本發明可用於具有任何類型剖面的間隔物。相似地，以上所描述的本發明在間隔物、一個以上的玻璃薄板或間隔物及一個以上的玻璃薄板兩者上形成密封劑釘珠。然而，除了利用密封劑釘珠之外，本技術領域中具有通常知識者應理解的是，亦可利用數種其他的塗佈方式。再進一步地說，可以任何便利的方式將密封劑的膜層塗佈或流動於間隔物的外部表面及或玻璃薄板上，例如一個以上的膜層。因此，本文中詳細描述的特殊實施例僅為例示性，且並不用於限制本發明的範疇。本發明的範疇是以下所附之申請專利範圍的全部廣度及其任何或全部的相等物件。

實例

以下列非限制實例的觀點將最能理解本發明。

實例 1

測試三個不同的反應製程以評估端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應性。

將端羧基聚丁二烯聚合物與聚碳二醯亞胺反應。在本發明的一實施例中，由美國克雷芬利有限公司以 Poly bd® R45HTLO 的商品名所售的端基聚丁二烯與愛蝶公司（Aldrich）所售的六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（HHMPA）反應，以形成端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT）。並且採用由皮卡西公司（Piccassian Company ）以 XL-725 的商品名所售的聚碳二醯亞胺（其為含 76 重量%的聚碳二醯

亞胺及 24 重量%的三丁氧基乙基磷酸酯（tributoxyethyl phosphate，一種塑化劑）的溶液）。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45CT（當量重=1374）	100
XL-725（當量重=921）	67.03

首先，將端羧基聚丁二烯加熱至 149°F（65°C）。接著，在離心杯中，將聚碳二醯亞胺加入溫的端羧基聚丁二烯中，並在室溫下預先以手工混合。混合物在約 2 至 3 秒內瞬間凝膠化。發現此製程途徑產生交聯反應，其發生太快以至於所得的彈性基質無法具有較佳的性質及所需的性質。

實例 2

除了不同的成分添加順序之外，實例 2 中所使用的密封劑成分與實例 1 中相同。於此實例中，在混合物中添加六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（HHMPA）之前，先將基端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）與聚碳二醯亞胺充分混合。因此，在本發明的此實施例中，臨場製備端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT），並同時使端羧基聚丁二烯與聚碳二醯亞胺反應。使用由皮卡西公司以 XL-701 的商品名所售的聚碳二醯亞胺，而不使用 XL-725。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45HTLO（當量重=1220）	100
XL-701（純度100%，當量重=590)	48.36
HHMPA（當量重=168.19）	13.79

首先，藉由旋轉蒸發器（rotary evaporator）去除一般存在於 XL-701 聚碳二醯亞胺中的乙酸丙二醇單甲醚酯（propylene glycol monomethyl ether acetate）溶劑，藉以得到純的聚碳二醯亞胺。在 194°F（90°C）的真空中，將聚碳二醯亞胺及端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）混合並脫水 1.5 個小時。混合物表現出一些視覺朦朧性（visual haziness）。將溫的混合物（158°F，70°C）及 HHMPA（73.4°F，23°C）裝入離心杯中並在高速混合器中混合 30 秒。接著，在 257°F（125°C）下，將混合物倒入金屬模具中固化 1 小時。隨後，在 194°F（90°C）將混合物隔夜放置。經約 3 到 4 分鐘的製程時間區間（window time）後，發現此樣本已充分固化。

實例 3

首先，將聚碳二醯亞胺（XL-725）與 HHMPA 混合以查看是否有凝膠化作用發生，並依此測試第三製程方法。隨後，添加端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45HTLO（當量重= 1220）	100
XL-725（當量重= 921）	75.49
HHMPA（當量重= 168.19）	13.79

首先，在室溫下將 XL-725 及 HHMPA 裝入離心杯中並在高速混合器中充分混合。混合物不會凝膠化，且混合物會表現清晰/黃色的顏色。將溫的（95°F 至 104°F（35°C 至 40°C））端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO）添加於混合物中，並在 73.4°F（23°C）下用高速混合器將上述混合物混合 1 分鐘。因此，在此實施例中，在端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT）被臨場且同時與聚碳二醯亞胺反應而製備。接著，將上述混合物倒入金屬模具，並在 203°F（95°C）烤箱中固化隔夜。發現在 194°F（90°C）時，反應產物的適用期（pot life）為約 20 分鐘。

樣本在 90°C 下隔夜可充分固化，且樣本在室溫下隔夜亦可充分固化。發現依照配方中的比例，HHMPA 將與 XL-725 互溶，但是在 73.4°F（23°C）下隔夜之後，這些成份並不會形成凝膠。

實例 4

進行進一步的測試以確認 HHMPA 是否能與純的聚碳二醯亞胺互溶。若 HHMPA 與純的聚碳二醯亞胺能夠互溶且不會形成凝膠，則認為混合物可以與端羥基聚丁二烯

（Poly bd® R45HTLO）充分混合，以製成固化的聚合反應物產物。在此實例中亦利用鏈延展劑（2-乙基-1,3-已二醇（EHD））。用以下列反應重量比來測試兩個樣本：

密封劑成分	樣本1（重量比）	樣本2（重量比）
Poly bd® R45HTLO(當量重= 1235)	100	75.03
XL-701（純度100%，當量重= 590）	47.77	47.77
HHMPA（當量重= 168.13）	13.61	13.61
EHD（當量重= 73.12）	0	1.48

首先，在真空中藉由旋轉蒸發器將由聚碳二醯亞胺（XL-701）中將溶劑移出，藉以得到純的聚碳二醯亞胺。上述聚碳二醯亞胺（XL-701）一般為在乙酸丙二醇單甲醚酯（PMA）中的 50%的聚碳二醯亞胺溶液。在 HHMPA 中將聚碳二醯亞胺溶解之後，發現聚碳二醯亞胺與 HHMPA 的混合物會互溶。發現這些成份並不會彼此反應，且在混合物的隔夜固化期間或之後並不會發現混合物的凝膠。

將各樣本配方中的所有成分裝入塑膠離心杯中並以高速混合器混合。接著在 194°F（90°C）的烤箱中，將混合物固化於模具中。發現各樣本配方的適用期可約為 3 到 5 分鐘，且各樣本配方的黏度自由時間（tacky free time）小於 30 分鐘。在高溫及室溫下，發現樣本皆可充分固化。

實例 5

進行進一步的測試，以觀察不同類型的原材料在固化反應時的影響及所得之彈性基質產物的物理性質。如上所

述，測試數種端羥基聚丁二烯，並將端羥基聚丁二烯與酸酐反應、及選擇性地與鏈延展劑反應，以產生端羧基聚丁二烯。以下表列所測試的原材料：

原材料	當量重
Poly bd® R45 HTLO	1235
Krasol® LBH 2000L	1110
Krasol® LBH-P2000	1140
EHD （Kyowa Hakko所售）	73.12
XL-725 （於塑化劑中76%的溶液)	921
HHMPA	168.19

使用以上表列的原材料來測試多種樣本配方。以下所示為樣本配方及配方中成分的重量比：

樣本配方	1	2	3	4	5	6	7
Poly bd® R45HTLO	100	100	----	----	----	50	50
Krasol® LBH 2000L	----	----	100	----	----	----	----
Krasol® LBH-P2000	----	-----	----	100	100	50	50
EHD	---	1.97	----	---	2.14	----	2.06
XL-725	74.6	99.43	82.97	80.79	107.72	77.68	103.58
HHMPA	13.63	18.13	15.15	14.75	19.68	14.19	18.92

首先，在室溫下將一種以上的端羥基聚丁二烯、聚碳二醯亞胺、以及 EHD（若存在於樣本配方中的話）裝入塑膠離心杯中並以高速混合器充分混合。隨後，將 HHMPA

添加於杯中並以高速混合器混合。因此，在這些實施例中，可在與聚二醯亞胺反應之前（或臨場及同時）製備端羧基聚丁二烯。接著，分別在 194°F（90°C）與 73.4°F（23°C）下，將各配方的混合物倒入模具中固化。接著，在 194°F（90°C）下將各產物固化，並藉由劭氏 00 儀測試各產物的硬度。以下所示為這些測試的結果：

結果	1	2	3	4	5	6	7
在90°C時固化	好	好	速率慢**	好	好	好	好
硬度	68	55-60	40-46	48-55	40-45	58-62	52
		硬	縮小	軟	軟	硬	軟
在23°C時固化	NA	OK	未固化	OK+	OK+	好	OK+

**表示非常慢的固化速率：在 194°F（90°C）下小於 2 個小時；在 73.4°F（23°C）下隔夜後仍未固化。

實例 6

進行進一步的測試以分析密封劑的濕氣阻障性質（moisture barrier property）。將端羥基聚丁二烯（(Poly bd® R45HTLO 樹脂）與不含溶劑的聚碳二醯亞胺混合以形成溶液。將 HHMPA 添加於上述溶液以產生端羧基聚丁二烯。在進一步的混合之後，將上述溶液倒入開放式的模具中以進行固化。接著，測試所獲得的彈性基質薄板的水蒸

氣穿透性（water-vapor transmission，WVT）。彈性基質薄板的膜厚為 0.284 公分，面積為 50 平方公分。在 73.4°F（23°C）下，將上述薄板承載於型號為 3/33 的 MOCON PERMATRAN-W 測試器上。120 個小時之後，平衡時的穿透速率達到 5.122661 gm/[m^2-day。

如以上所討論，亦可以在一開始就混合聚碳二醯亞胺及 HHMPA 以製備彈性基質薄板。將端羥基聚丁二烯添加於上述混合物以形成端羧基聚丁二烯。或者，如以上所討論，可直接使用端羧基聚合物來與聚碳二醯亞胺反應。連續添加的目的在於延長反應混合物的工作壽命。此外，如以上所討論，可採用鏈延展劑以改善經固化薄板的機械性質。

雖然本文已表示及描述本發明的較佳實施例，應理解的是，提供這些實施例僅是為了舉例而已。對於本技術領域具有技能者而言，在不違背本發明的靈感的情形下，可發生多種變化、改變、及取代。因此，所附申請專利範圍傾向於涵蓋所有以上的變化，且所有以上的變化落於本發明的靈感及範疇內。

因此，本發明適於實行目的及達成所提到之及其他潛在之結果及優點。雖然藉由參考本發明的特殊及較佳實施例已描示、描述、及定義本發明，但是並不意味本發明受限於這些參考資料，亦不能推斷本發明的限制於這些參考資料。如同相關技術中具有通常技能者所理解的一樣，本發明可考慮在形式及功能方面的改良、變動及其相等物

件。所描示及所描述的本發明的較佳實施例僅為示範性質而非本發明之範疇的整體。因此，本發明的限制傾向於其精神及所附申請專利範圍的範疇，且各方面的相等物皆可被認定為本發明。

【圖式簡單說明】

無

【主要元件符號說明】

無

七、申請專利範圍：

1. 一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，更包括一種以上的添加物，所述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

3. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物為疏水性的。

4. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物的玻璃轉換溫度（Tg）小於約 32°F（0°C）。

5. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

6. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於約 0.25：1 至約 2：1 之間。

7. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於約 0.7：1 至約 1.4：1 之間。

8. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其

中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 500 至 30,000 的範圍內。

9. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

10. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於約 0.7：1 至約 1.4：1 之間，且所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

11. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述聚碳二醯亞胺選自於由芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、及雜環碳二醯亞胺及兩種以上的上述物質的混合物所組成的族群中。

12. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述聚碳二醯亞胺的平均官能度等於 2 或大於 2。

13. 一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：

將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於所述玻璃薄板之間的間隔物或上述二者；以及

將一個以上的所述玻璃薄板與所述間隔物接觸，從而在所述玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生絕緣玻璃單元；

其中所述密封劑包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

14. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述密封劑更包括一種以上的添加物，所

述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

15. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述端羧基聚合物為疏水性的，且所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

16. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述密封劑作為釘珠狀以塗佈於一個以上的所述玻璃薄板、所述間隔物或上述二者。

17. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，更包括在接觸步驟之前或接觸步驟的同時，將絕緣氣體引入所述環形間隙之間，所述環形間隙是產生於所述第一玻璃薄板與所述第二玻璃薄板之間，其中所述絕緣氣體選自氬氣或氖氣。

18. 一種絕緣玻璃單元，包括：

第一玻璃薄板，具有內表面及外表面；

第二玻璃薄板，具有內表面及外表面，其中所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板經定位以使得所述第一玻璃薄板的內表面及所述第二玻璃薄板的內表面彼此面對；

間隔物，位於所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板之間，所述間隔物具有第一側及第二側，所述間隔物的所

述第一側位於鄰近所述第一玻璃薄板的內表面，且所述間隔物的所述第二側位於鄰近所述第二玻璃薄板的內表面；以及

絕緣玻璃密封劑，將所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板連接於所述間隔物；

其中所述密封劑包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

19. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述密封劑更包括一種以上的添加物，所述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

20. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述端羧基聚合物為疏水性的，且所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

21. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於約 0.7：1 至約 1.4：1 之間。

22. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

23. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述第一玻璃薄板與所述第二玻璃薄板及所述間隔物經組態以提供環形間隙，所述環形間隙介於所述第一玻璃薄板與所述第二玻璃薄板之間，且其中所述絕緣玻璃單元更包括絕緣氣體，所述絕緣氣體位於所述環形間隙之中。

24. 一種如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是直接由所述端羧基聚合物與所述聚碳二醯亞胺的反應形成。

25. 一種申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是藉由先將端羥基聚合物與酸酐反應並選擇性地與鏈延展劑反應以形成所述端羧基聚合物；以及將所述端羥基聚合物與所述聚碳二醯亞胺反應來形成。

26. 如申請專利範圍第 25 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述酸酐為 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（HHMPA）。

27. 如申請專利範圍第 25 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述鏈延展劑選自 N,N-二異丙醇苯胺（DIPA）或 2-乙基-1,3-己二醇（EHD）。

28. 一種申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是藉由將端羥基聚合物與酸酐反應並選擇性地與鏈延展劑反應以及與聚碳二醯亞胺臨場反應來形成。

29. 如申請專利範圍第 28 項所述之絕緣玻璃密封劑

的製造方法，其中所述酸酐為 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（HHMPA）。

30. 如申請專利範圍第 28 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述鏈延展劑選自 N,N-二異丙醇苯胺（DIPA）或 2-乙基-1,3-己二醇（EHD）。

31. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物為端羥基聚合物及酸酐的反應產物。

爲第 101134527 號中文說明書無劃線修正本　　修正日期:102 年 1 月 17 日

發明專利說明書

（本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫）

※ 申請案號：　　C08K3/10 (2006.01)

※ 申請日期：　　※IPC 分類：C03C27/10 (2006.01)

一、發明名稱：（中文/英文）

無異氰酸酯絕緣玻璃密封劑及使用其的絕緣玻璃單元 / ISOCYANATE-FREE INSULATED GLASS SEALANT AND INSULATED GLASS UNITS USING THE SAME

二、中文發明摘要：

一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質。彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於玻璃薄板之間的間隔物或前述兩者；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，以在玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生所述絕緣玻璃單元。上述密封劑維持傳統聚氨酯密封劑優秀的屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，且在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明亦提供製造上述密封劑的方法以及以這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板（諸如玻璃窗）的方法及其所得的製品。

爲第 101134527 號中文說明書無劃線修正本　　修正日期:102 年 1 月 17 日

發明專利說明書

（本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫）

※ 申請案號：　　C08K3/10 (2006.01)

※ 申請日期：　　※IPC 分類：C03C27/10 (2006.01)

一、發明名稱：（中文/英文）

無異氰酸酯絕緣玻璃密封劑及使用其的絕緣玻璃單元 / ISOCYANATE-FREE INSULATED GLASS SEALANT AND INSULATED GLASS UNITS USING THE SAME

二、中文發明摘要：

一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質。彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於玻璃薄板之間的間隔物或前述兩者；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，以在玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生所述絕緣玻璃單元。上述密封劑維持傳統聚氨酯密封劑優秀的屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，且在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明亦提供製造上述密封劑的方法以及以這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板（諸如玻璃窗）的方法及其所得的製品。

三、英文發明摘要：

An insulated glass sealant includes an elastomeric matrix that is the reaction product of a carboxyl-terminated polymer and a polycarbodiimide. A method of sealing an insulated glass unit includes applying the insulated glass sealant to one or more glass sheets, a spacer to be disposed between the glass sheets, or both; and contacting the one or more glass sheets with the spacer to define an annular space between the glass sheets and to produce the insulated glass unit. The sealants maintain the excellent attributes of traditional polyurethane sealants, such as low water swell, low moisture vapor transmission, good adhesion to the window frame, low migration of the insulating gas, and good workability, but without the use of polyisocyanates in the curing process. Methods for making the sealant and for sealing insulated glass panels, such as glass windows, with these rugged sealants, and the resulting articles, are also provided.

四、指定代表圖：

（一）本案之指定代表圖：無

（二）本代表圖之元件符號簡單說明：

無

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明是有關於一種可採用作為絕緣玻璃密封劑的組成物、此種密封劑的製造方法、以及在絕緣玻璃單元構造中利用此種密封劑的方法。具體地說，本發明是有關於聚碳二醯亞胺（polycarbodiimide）與端羧基（carboxyl-terminated）聚合物（諸如端羧基聚丁二烯（carboxyl-terminated ploybutadiene））的反應產物型的耐用密封劑。在固化製程中（curing process）不使用聚異氰酸酯的情形下，本發明的密封劑維持傳統聚氨酯（polyurethane）密封劑的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架（window frame）之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性。本文亦揭露使用這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板（諸如玻璃窗）的方法以及所得的製品。

【先前技術】

絕緣玻璃單元（insulated glass unit，IGU）通常包括一對玻璃薄板（藉由隔離構件而維持彼此分開的關係）、以及密封構件，此密封構件延展於上述玻璃薄板的內部相對表面的周邊周圍，以在玻璃薄板之間定義密封且絕緣的空氣間隙。通常情況下，隔離構件是延展於玻璃薄板的內部相對表面的周邊周圍且填滿吸水性材料（諸如分子篩或另一脫水元件）的鏤空形式，進而保持乾燥的封閉空氣間隙。藉由密封劑或附著劑的方式，將玻璃薄板的內部表面附加

於隔離構件的外部表面。一般來說，亦將密封劑或附著劑使用於密封絕緣玻璃單元的邊緣，從而建立阻障，進而防止濕氣穿透進入上述單元的內部環形間隙。

密封劑應當具有滿足使用的性質的組合。例如，密封劑應當具有非常低的水蒸氣穿透（moisture vapor transmission，MVT）率，從而防止濕氣進入玻璃窗片（pane）之間的乾燥的環形間隙。在此間隙中的濕氣趨向於在窗片的內部表面上凝結，產生能見度及美觀方面的問題。若密封劑不具有令人滿意的 MVT 率，可能大幅減少絕緣單元的壽命。密封劑應該具有好的延伸性及可撓性，以使其在絕緣玻璃結構的收縮及膨脹的期間「適應（yields）」，（例如）以抒解在溫度改變時在玻璃上所造成的應力。密封劑亦需要與玻璃形成優秀的接合，其在暴露於陽光、濕氣、以及大的溫度改變時，經過長時間的使用不會劣化。拉伸附著強度是接合強度的重要指標。

在絕緣玻璃工業中，現今所使用的兩種主要類型的密封劑為：（A）部分熱塑性的熱熔性丁基型（thermoplastic one-part hot melt butyl type）密封劑；以及（B）通常來自聚硫化物、聚氨酯及矽酮（silicone）之通用族群的化學固化的熱固性密封劑產品。在絕緣玻璃工業中，已適度成功地使用熱熔丁基絕緣玻璃密封劑有數年的時間。然而，在技術上仍存在顯著的缺點，因此限制熱熔丁基絕緣玻璃密封劑的應用。主要地說，熱熔丁基為熱塑性材料而非熱固性材料。已熟知當熱塑性密封劑暴露於熱時，熱塑性密封

劑會軟化。因此，當市售之採用熱塑性密封劑的絕緣玻璃單元被放置在負載下時，其將流動或變形以抒解此應力。此特徵在高溫時將更為明顯（可能發生在絕緣玻璃單元中的溫度），尤其是對那些利用太陽能控制玻璃的絕緣玻璃單元來說。因此，以熱熔丁基密封劑所構成的絕緣玻璃單元並不容易通過一般工業中的應力及溫度的測試，並且經常被限制使用於相對輕小的絕緣玻璃單元中。此外，在操作、運輸及安裝期間，需要十分地注意來支撐絕緣玻璃單元，從而導致了額外的花費。再者，早先所採用的熱熔性密封劑必須在超過 300°F 的溫度下塗佈於絕緣玻璃單元。這些高溫的需求經常代表所增加的製造成本，成本例如來自較高的能源消耗及專門的高溫設備，還有操作及安全的挑戰。已知企圖利用低溫熱熔物會造成密封劑流動性的問題。

現今所使用的熱固性產品一般為雙成分（two-component）的密封劑，其可在室溫的應用點下混合。接著，藉由與所供應的催化劑或經由與濕氣反應來將密封劑緩慢地固化。此緩慢的固化需要將絕緣玻璃單元保存在倉庫中數個小時至數天，以等待密封劑硬化。市場上亦可獲得數種單成分密封劑，諸如包括部分交聯熱熔性丁基橡膠密封劑之密封劑。然而，一般需要將溫度升高到約 325°F 至約 425°F 來處理這些單成份密封劑以將密封劑交聯。其他在本技術中所採用密封劑是利用氨酯固化化學（urethane-curing chemistry），但因為在製程中產生的二氧化碳（CO_2）成為氣泡而會被捕捉於密封劑與玻璃的界面

處，其會對絕緣玻璃單元的能見度及美觀有不利的影響，故上述密封劑不適用於絕緣玻璃工業。

更近期以來，聚氨酯化學型的密封劑已使用於絕緣玻璃單元。這些聚氨酯型的密封劑採用聚醇類（polyol）（諸如端羥基聚丁二烯）與異氰酸酯反應以形成密封劑。然而，由於利用異氰酸酯的緣故，這些密封劑具有環保性及安全性的考量。如本技術領域中具有通常知識者所習知，異氰酸酯為高反應性、低分子量化學性的族群。異氰酸酯對於眼睛與腸胃道及呼吸道的黏膜有強大的刺激性。異氰酸酯直接與皮膚接觸亦會造成顯著的發炎症狀。長時間的暴露會使得工作者過敏，若工作者再次暴露於異氰酸酯中，甚至會哮喘發作或死亡。因此，高度需要具有已知絕緣玻璃密封劑之有益性質的組成物，而不具有傷害安全性考量及不利的副產物。

【發明內容】

現在已發現聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）反應的反應產物提供了使用於絕緣玻璃應用中的耐用密封劑。本發明的密封劑維持了傳統聚氨酯密封劑（諸如基於端羥基聚丁二烯與異氰酸酯的反應的聚氨酯密封劑）的優秀屬性，其包括低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用異氰酸酯。因為本發明的密封劑採用在不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的

溫度下塗佈上述密封劑，且因此相較於傳統化學固化產品而言亦更快地提供了單元足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者中的最佳性質而成為用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。本發明的密封劑經設計以在 70°F 至 300°F 的溫度範圍內以液體或膠狀的形式塗佈，並經由固化而成為固體。上述之本發明的優點及其他本發明的優點將顯而易見於以下的描述、討論及實例中。

已進一步地發現可將密封劑塗佈於絕緣玻璃單元的面板（諸如面板的邊緣），以將單元的成分附著在一起，並從而將單元密封以防隨後的濕氣穿透。更具體地說，本發明是有關於用於絕緣玻璃單元的單一成分邊緣密封劑，密封劑在高溫下可作為液體或膠體塗佈。接著，經由冷卻後，密封劑能夠可逆並快速地固體化。繼之，將密封劑暴露於大氣環境之後，不可逆地固化密封劑。因此，本發明是有關於密封劑、以上述密封劑密封諸如玻璃窗之絕緣玻璃面板的方法、以及所得之絕緣玻璃單元的製品。

在本發明的第一實施例中，絕緣玻璃密封劑包括彈性基質，彈性基質是端羧基聚合物及聚碳二醯亞胺的反應產物。彈性基質不是凝膠，而是比凝膠更硬且更具有彈性的物質（橡膠）。例如，可選擇反應物及反應/製程條件的相對比例以提供在 25°C 下邵氏 00 硬度（Shore 00 hardness）至少為約 30、至少為約 35、至少為約 40、至少為約 45、或至少為約 50 的彈性基質。密封劑更可包括一種以上添加物。添加物選自由無機填料、塑化劑、鏈延展劑、以及上

述物質的混合物所組成的族群中。在至少一個實施例中，端羧基聚合物為疏水性。適當的端羧基聚合物的玻璃溫度轉換溫度（glass transition temperature，Tg）可小於約 32°F（0°C）。端羧基聚合物的聚合部分例如是諸如丁二烯或異戊二烯之一種以上二烯單體的均聚物（homopolymer）或共聚物、或一種以上二烯單體與一種以上非二烯單體(諸如苯乙烯及/或丙烯腈）的共聚物。適當的聚碳二醯亞胺包括（但不受限於）芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、以及雜環碳二醯亞胺、以及兩者以上的上述物質中的混合物。例如，適當的聚碳二醯亞胺的平均官能度（functionality）可等於或大於 2（意指聚碳二醯亞胺在一分子中包含至少兩個碳二醯亞胺官能基）。

在另一實施例中，本發明是有關於絕緣玻璃單元的密封方法。上述方法包括將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板上、待配置於玻璃薄板之間的間隔物（spacer）上、或上述兩者之上；以及將一個以上的玻璃薄板與間隔物接觸，藉此在玻璃薄板之間定義環形的間隙及產生絕緣玻璃單元。可使用多種設備並以數種不同的方法（為本技術領域中具有通常知識者所易於理解的）來塗佈密封劑。例如，可將密封劑以釘珠狀（bead）塗佈在一個以上的玻璃基板上、間隔物上、或上述兩者之上。在上述接觸步驟之前或同時，此方法可更包括將絕緣氣體引入產生於第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間的環形間隙的步驟示例性的絕緣氣體包括氬氣及氪氣（krypton）。

在另一實施例中，本發明關於絕緣玻璃單元。此單元包括：第一玻璃薄板，其具有內部表面及外部表面；第二玻璃薄板，其具有內部表面及外部表面，其中將第一玻璃薄板及第二玻璃薄板定位，以使得玻璃基板的內部表面彼此相對；間隔物，位於第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間，間隔物具有第一側及第二側，間隔物的第一側鄰近第一玻璃薄板內部表面且間隔物的第二側鄰近第二玻璃薄板內部表面；絕緣玻璃密封劑，其連接第一玻璃薄板及第二玻璃薄板至間隔物。第一玻璃薄板及第二玻璃薄板及間隔物可經組態以在玻璃薄板之間提供環形間隙。絕緣玻璃單元在環形間隙中，更可包括絕緣氣體。

以下將更詳細地描述，絕緣玻璃密封劑的彈性基質可直接由端羧基聚合物及聚碳二醯亞胺的反應所直接形成。或者，彈性基質可藉由以下方法形成：首先將端羥基聚合物與酸酐及（選擇性地）與鏈延展劑反應，以產生端羧基聚合物；並接著將端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺反應。相似地，彈性基質可藉由將端羥基聚合物與酸酐及（選擇性地）與鏈延展劑反應，並臨場（in situ）與聚碳二醯亞胺反應所形成。可以採用任何適當的酸酐（諸如 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（4-methylhexahydrophthalic anhydride，HHMPA））以及鏈延展劑（諸如 N,N-二異丙醇（N,N-diisopropanol aniline，DIPA）及 2-乙基-1,3-己二醇（2-ethyl-1,3-hexanediol），EHD）。本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，可在此發明的研究中利用數種其

他的反應物，以在與聚碳二醯亞胺的反應之前或同時臨場產生端羧基聚合物。

【實施方式】

本發明是針對可採用作為絕緣玻璃密封劑的組成物以及將此種密封劑於絕緣玻璃單元的構造中的製造方法及利用方法。密封劑的目的是提供單元結構的完整性，並同時將濕氣密封在外及防止氣體的交換。邊緣密封劑亦抵抗來自水、紫外線（ultraviolet，UV）及極端溫度的環境損害。

具體地說，本發明是有關於基於聚碳二醯亞胺及端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）的反應產物的耐用密封劑。本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用聚異氰酸酯。本發明更有關於使用這些耐用密封劑來密封絕緣玻璃面板的方法，以及所得的絕緣玻璃製品。

現在市售的絕緣玻璃密封劑採用聚醇類（諸如端羥基聚丁二烯），聚醇類與聚異氰酸酯反應以形成聚氨酯密封劑。然而，本發明的實施例是將端羧基聚合物（諸如端羧基聚丁二烯）與聚碳二醯亞胺反應，而不是將端羧基聚合物與聚異氰酸酯反應。因為端羧基聚合物（例如聚丁二烯）的聚合部分的疏水性對於最終的密封劑是有益處的，本發明採用端羧基聚合物作為彈性密封劑基質中的連續相。然

而，將聚碳二醯亞胺取代聚異氰酸酯作為交聯劑的使用提供一定的環保性、監管性、以及安全性方面的益處。此外，本發明採用聚丁二烯為端羧基聚丁二烯取代更常使用於絕緣玻璃密封劑技術中的端羥基聚丁二烯。「端羧基」意指羧酸基（carboxylic acid group，$-CO_2H$）存在於沿著聚合物鏈的某處，例如突出聚合物鏈骨幹或在聚合物鏈的末端。在一實施例中，聚合物的各個末端承載一個羧酸基。在另一實施例中，羧酸基僅存在於聚合物鏈的末端。

藉由包括聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物反應的製程來形成本發明的彈性基質。端羧基聚合物較佳包括主成分。通常情況下，主成分構成端羧基聚合物的至少 90 重量%，且主成分是選自由聚合端羧基物質（諸如端酸基聚丁二烯、聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的共聚物、丁二烯與苯乙烯的共聚物、異戊二烯與丙烯腈的共聚物、異戊二烯與苯乙烯的共聚物、以及兩者以上的上述物質的混合物）所組成的族群中。選擇性的次成分是選自由單體或二聚體端羧基化合物（諸如己二酸、壬二酸、異鄰二甲苯酸及二聚體脂肪酸）所組成的族群中。

本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑（polyurethane）的優秀屬性，諸如低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用聚異氰酸酯。因為本密封劑採用不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的溫

度下塗佈本發明，且相較於傳統化學固化產品而言亦更快地對單元提供了足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者中的最佳性質而成為用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。本發明的密封劑經設計以在 70°F 至 300°F 的溫度範圍內以在固化後而成為固體的液體或膠狀的形式塗佈。接著，本發明的密封劑化學固化以提供永久彈性及溫度抗性，其提供絕緣玻璃單元結構的完整性。

本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，流體相（即液體或膠體）中的絕緣玻璃密封劑的強度性質可以藉由端羧基聚合物的類型或量及（選擇性地）任意的添加物來控制。邊緣密封劑的最終強度是藉由聚碳二醯亞胺的類型及經交聯的密度來控制。一般來說，適當的端羧基聚合物的玻璃轉換溫度（Tg）小於約 32°F（0°C）。適當的聚合物可使用為端羧基聚合物的聚合部分，其包括例如丁二烯及異戊二烯之二烯類的均聚物及共聚物以及一種以上的二烯單體與一種以上非二烯單體（諸如苯乙烯及丙烯腈）的共聚物。再者，適當的疏水性端羧基聚合物包括端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、異戊二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物以及上述物質的混合物。端羧基聚合物較佳的數量平均分子量介於 500 至 30,000 的範圍內。端羧基聚合物的數量平均分子量可更具體地介於 750 至 25,000 的範圍內、且更佳地介於 1,000 至 20,000 的範圍內。端羧基聚合物可例如是

直鏈型或支鏈型。支鏈型的端羧基聚合物可包含 3、4、5、6 或甚至更多的末端（支鏈）。這些物質的聚合片段（若由兩個以上的不同單體組成）可為隨機形狀、塊狀、或錐狀的共聚物。此外，聚合物每一分子可包含任意數量的羧基，其諸如一分子至少包含 2 個以上的羧基。羧基（$-CO_2H$）可出現在聚合物中的任何地方，例如突出聚合物鏈的骨幹及/或（在較佳的實施例中）在聚合物鏈的各個末端處。在本發明的一個態樣中，聚合物承載僅在聚合物鏈的末端位置的羧酸基。在一實施例中，端羧基聚合物的聚合部分為飽和或實質上飽和。例如，若此種聚合部分是藉由二烯單體的聚合作用而衍生，則可將烯烴點（olefinic site）氫化。若有相當需要時，可採用不同端羧基聚合物的混合物。

適於本發明使用的端羧基聚合物可由商業來源獲得，諸如由美國克雷芬利有限公司（Cray Valley USA, LLC）購得。

較佳的端羧基聚丁二烯可選自與化學計量數量的酸酐（諸如 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（HHMPA））反應的端羥基聚丁二烯中。其他適當的酸酐例如包括脂肪族及芳香族酸酐，其諸如鄰二甲苯酸酐、琥珀酸酐（succinic anhydride）、馬來酸酐（maleic anhydride）、苯三甲酸酐（trimellitic anhydride）、六氫鄰二甲苯酸酐、氯橋酸酐（chlorendic anhydride）、四氯鄰二甲苯酸酐、甲基四氫鄰二甲苯酸酐、伊康酸酐（itaconic anhydride）、苯均四酸二酐（pyromellitic dianhydride）、苯並苯酮四羧酸二酐、

或環戊烷四羧酸二酐。因此，可在反應製程中直接利用上述聚合物作為端羧基聚合物，或者可採用上述聚合物作為與酸酐反應以產生端羧基聚合物的端羥基聚合物。如下所示，端羥基聚合物與酸酐之間的反應可在添加聚碳二醯亞胺之前發生或可在與聚碳二醯亞胺反應時同時(諸如臨場)發生。此外，可於一種以上的這些反應製程期間，利用鏈延展劑（諸如 2-乙基-1,3-己二醇）。端羧基聚合物亦可藉由本技術中任何其他已知的方法來製備，例如端羥基聚合物的羥基與二酸類的酯化反應。

本發明的實施例可利用眾多適當的聚碳二醯亞胺，例如包括芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、及雜環碳二醯亞胺、以及上述物質兩種以上的混合物。所使用的聚碳二醯亞胺較佳藉由使多官能基(較佳為二官能基）的脂肪族或（較佳為）芳香族異氰酸酯形成碳二醯亞胺。雖然所採用的單官能基異氰酸酯或三官能基異氰酸酯及高官能基異氰酸酯的量應該在異氰酸酯總量的 20 重量%以下（且較佳為重量為 10 重量%以下），仍可使用單官能基異氰酸酯或三官能基異氰酸酯及高官能基異氰酸酯作為聚碳二醯亞胺的鏈終止劑（chain terminator）或接枝劑（branching agent）。聚碳二醯亞胺較佳的平均官能度等於或大於 2。本發明的密封劑包括彈性基質，彈性基質具有碳二醯亞胺：羧酸的一當量比。此當量比藉由聚碳二醯亞胺及端羧基聚合物分別提供。聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比較佳為約 0.25：1 至約 2：1。更具體

地說，此當量比於 0.5：1 至約 1.5：1 的範圍內，且更佳於 0.7：1 至約 1.4：1 的範圍內。

適當的異氰酸酯包括異氰酸烷酯，其諸如異氰酸甲酯、異氰酸烯丙酯、異氰酸丁酯、異氰酸硬脂基酯；二異氰酸烷酯，其諸如二異氰酸乙烯酯、二異氰酸四亞甲酯、二異氰酸六亞甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯（isophorone diisocyanate）；芳香族單官能基及雙官能基異氰酸酯，其諸如二異氰酸苯酯、二異氰酸伸苯酯、同分異構的二異氰酸甲苯酯、二異氰酸二苯基甲酯、二異氰酸二甲基二苯基甲酯、以及可選擇性地包含多核二異氰酸酯或三官能基異氰酸酯的商業級二苯基甲烷二異氰酸酯混合物。較佳的異氰酸酯為二異氰酸六亞甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯、二異氰酸甲苯酯及二異氰酸二苯基甲酯。二異氰酸甲苯酯的同分異構物為較佳。

適當的聚碳二醯亞胺在一個分子中具有至少 2 個碳二醯亞胺基，較佳為一分子具有至少 3 個碳二醯亞胺基。聚碳二醯亞胺中的詞彙「聚」意指聚二醯亞胺包含多個碳二醯亞胺基（多官能基的碳二醯亞胺），而不需要意指聚碳二醯亞胺具有聚合物的特徵。聚碳二醯亞胺的分子量並不受限，但其較佳於 250 至 10,000 的範圍內。所有本文中分子量的參考為數量平均分子量。聚碳二醯亞胺較佳於存在碳二醯亞胺促進劑（promoting agent）的情形下而藉由有機聚異氰酸酯的聚縮反應來製備。有機聚異氰酸酯可例如是芳香族聚異氰酸酯，其諸如二異氰酸 2,4-甲苯酯或二異

氰酸 2,6-甲苯酯、1,5-二異氰酸萘酯及 4,4'-二異氰酸二苯基甲酯；以及脂肪族或脂環族聚異氰酸酯，其諸如二異氰酸六亞甲酯、經氫化的 4,4'-二異氰酸二苯基甲酯、二異氰酸異佛爾酮酯、以及經氧化的二異氰酸 2,4-甲苯酯或經氧化的二異氰酸 2,6-甲苯酯。可採用的碳二醯亞胺促進劑包括：1-苯基-伸磷基-1-氧化物（1-phenyl-phosphorene-1-oxide）、1-苯基 3-甲基-伸磷酸-2-氧化物、1-乙基-伸磷酸-1-氧化物或任何本技術已知的適當的促進劑。

在製備聚碳二醯亞胺時，可以藉由以有機單異氰酸酯終止聚縮反應來控制分子量（例如應用聚合物科學雜誌（J. Appl. Polym. Sci.）第 21 期的第 1999 頁（L.N. Alberine 所著，1977 年發行）中所揭露之）。有機單異氰酸酯的實例為異氰酸苯酯、異氰酸甲苯酯、異氰酸環己酯、異氰酸丁酯及上述物質的相似物。一種以含活性氫的化合物（阻擋劑（blocking agent））來阻擋終端異氰酸酯基的阻擋技術亦可以控制聚碳二醯亞胺的分子量。此阻擋技術例如詳細地揭露於有機塗料發展（Progress in Organic Coatings）第三期的第 73 頁（1975 年發行）之中。阻擋劑的典型實例為醇、酚、內醯胺、N-羥醯亞胺（N-hydroxyimide）、肟（oxime）、咪唑（imidazole）、三唑（triazole）、活性亞甲基化合物（例如乙醯丙酮及丙二酸二乙酯）、芳香族二級胺、酸性亞硫酸鈉、以及以上述物質的相似物。

彈性基質可選擇性地包括不會參與多元酸（polyacid）

與碳二醯亞胺之間的交聯反應的成份。如本技術中已知，包括此些「非活性」成分或添加物的物質如下：填料、塑化劑、穩定劑、顏料、殺菌劑、耐氣候性改良劑、催化劑、以及其相似物。流體相中的絕緣玻璃密封劑的強度性質亦可受到添加物的類型及量影響。例如，填料的範圍可由本技術領域中具有通常知識者選擇，並添加足夠填料的量以給予液體相適合的強度，添加填料亦可給予密封劑所需要的應用性質。一種較佳的填料為碳酸鈣。可以使用其他的填料(如本技術中已知)。本發明的密封劑應該易於操作及塗佈於絕緣玻璃單元。可以使用任意的方法及設備以塗佈或提供上述密封劑於絕緣玻璃單元，諸如藉由噴塗法、釘珠法（beading）、或沈積法。

此外，絕緣玻璃密封劑可包括一種以上的鏈延展劑。習知上，為了加強彈性基質的相容性及物理性質，建議使用 N,N-二異丙醇苯胺（N,N-diisopropanol aniline，DIPA）及 2-乙基-1,3-己二醇（2-ethyl-1,3-hexanediol，EHD）。本技術領域中具有通常知識者應理解的是，已知聚丁二烯聚醇型的彈性基質具有優秀的疏水性、水解性及化學抗性、電絕緣性質、以及低溫時的可撓性。因為小的二醇可臨場反應及形成硬鏈段區域（hard domain）以作為用於聚氨酯系統的物理交聯劑，因此將鏈延展劑（諸如低分子的二醇）併入膠料（gum stock）配方中以加強所得基質的彈性。傳統上來說，1,4-丁二醇（1,4-butanediol）是商業上聚醚型或聚酯聚醇型的聚氨酯彈性體中所使用的最重要的鏈延展劑

之一。已發現某些鏈延展劑（諸如 EHD 及 DIPA，例如 Voranol® 220-530）可有效率地使用於由 Poly bd ®樹脂（Poly bd® resin，其為具有約 2.5 羥基官能度的完全性經聚合的產品）或 Krasol®的 LBH 及 LBH-P 的聚丁二烯二醇樹脂（其為具有非常窄的分子量分佈的陰離子聚合的產品）所衍生的彈性基質，上述鏈延展劑皆不包括官能度大於 2.0 的種類。Poly bd®樹脂及 Krasol®樹脂皆可從位於賓州的艾斯頓市（Exton, Pennsylvania）的美國克雷芬利有限公司購得。可利用其他的固化添加物，包括六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（hexahydro-4-methylphthalic anhydride，HHMPA）、塑化劑、及聚碳二醯亞胺交聯劑。在一些例子中，亦需要添加額外的填料、顏料、流變劑（rheological agent）及上述物質的相似物。

可用以下方式製備本發明的密封劑。例如，首先可在混合容器中配置端羧基聚合物。混合容器能夠在真空下進行混合，且混合容器更可包括混合器。上述混合器包括可變速度多軸（multi-shaft）單元，其具有低速掃刀、高速分散器、以及低速鑽頭（auger）。接著可在上述聚合物中添加填料（若有利用填料時）。繼之，可添加聚碳二醯亞胺或其混合物於上述混合物並隨後開啟真空。在添加聚碳二醯亞胺的時間點，可在真空下進行混合，從而排除混合物暴露於大氣條件下的情況，並亦可由原物質上移除殘留的水，從而提升密封劑的穩定性。可以在引入聚碳二醯亞胺之前或是在添加聚碳二醯亞胺之後，添加諸如染料及耐氣

候性改良劑及其相似物的小量添加物。將彈性基質維持實質上的乾燥條件下，直到可將彈性基質塗佈於絕緣玻璃單元為止。在其他較佳的實施例中，可在乾燥及惰性氣體的環境下進行混合。

在約 70°F 至 300°F 的溫度下，以液體或膠體的形式將本明的絕緣玻璃密封劑塗佈於絕緣玻璃單元。繼之，將密封劑逐漸地固化為交聯的固體。將本發明的密封劑作為單一材料塗佈於單元上，從而排除在塗佈點上將多種成分結合在一起的需求。

可利用本發明的絕緣玻璃密封劑以製造絕緣玻璃單元。本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，絕緣玻璃單元一般經組態以具有第一玻璃薄板，其藉由間隔框架而與第二玻璃薄板間隔開。間隔框架一般具有一個基底及兩個分離的支部（leg），上述兩個支部與基底接合以提供實質上 U 形的形狀。由第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間的間隔框架所產生的間隙定義絕緣玻璃單元的內部環形間隙。間隔框架（可為可撓性間隔框架）具有第一側及第二側，且第一側位於鄰近第一玻璃薄板的內表面而第二側位於鄰近第二玻璃薄板的內表面。提供絕緣玻璃密封劑（例如將其塗佈）於間隔框架的各側上，藉以將玻璃薄板固持於間隔框架。如以上所討論，密封劑可作為濕氣阻障材料或抗濕氣滲入材料以防止濕氣穿透進入單元的內部環形間隙。然而，此為絕緣玻璃單元已熟知的組態，本發明亦可利用及結合具有通常技能的工藝者所知悉的其他組態。

上述兩個玻璃薄板可為透明的玻璃（例如透明的浮板玻璃（float glass）），或者玻璃薄板中的一者或兩者可為彩色的玻璃。此外，可以任何習知的方式（諸如 MSVD、CVD、熱解法、溶膠-凝膠法等）進行功能性塗覆（諸如太陽能控制或低輻射率塗覆）於玻璃薄板中的至少一者的表面（例如內表面）。間隔框架可為習知剛性或盒形間隔框架，如同本技術領域中已知的一樣。然而，間隔框架較佳為具有可撓型間隔框架，其可由一片金屬（諸如 201 不銹鋼或 304 不銹鋼、或鍍錫鋼（tin plated steel））所形成，且為彎曲並成形為實質上 U 形的連續間隔框架。間隔框架藉由絕緣玻璃密封劑而黏著式地接合於分離的玻璃薄板的周邊及邊緣周圍。

可將絕緣玻璃密封劑塗佈於間隔框架的各側，以固持玻璃薄板於間隔框架。此外，抑或可將絕緣玻璃密封劑塗佈於各個玻璃薄板。可採用本技術領域具有通常知識者已理解的數種方法來將密封劑塗佈於間隔框架及/或玻璃薄板。例如，可將密封劑以連續、非連續、均勻、或非均勻的釘珠狀而塗佈於間隔框架。密封劑可類似地塗佈於一個以上的玻璃薄板。接著，可藉由密封劑來將玻璃薄板固定於間隔框架。如上所述，可採用數種其他的組態及方法來使用絕緣玻璃密封劑密封絕緣玻璃單元。

易於理解的是，可以任何便利的方式來製造絕緣玻璃單元及間隔框架的構件，但接著在本文中所討論的改良方式將包括本發明的絕緣玻璃密封劑。例如，可藉由習知的

輥軋、彎曲或成形技術來形成基底(諸如 201 不銹鋼或 304 不銹鋼的金屬薄板，其厚度、長度及寬度足夠製造所需尺寸的間隔框架）。雖然可在成形之前將密封劑提供於基底上，但較佳為在間隔框架成形之後再塗佈密封劑。藉由以任何便利的方式將玻璃薄板定位及利用密封劑將玻璃薄板附著於間隔框架來組裝絕緣玻璃單元。可以任何便利的方式將絕緣氣體（諸如氬氣或氪氣）引入第一玻璃薄板及第二玻璃薄板之間所產生的環形間隙。密封劑材料釘珠可作用以將玻璃薄板附加於間隔框架。本發明的密封劑維持傳統聚氨酯密封劑的優秀屬性，包括低的水膨脹性、低的水蒸氣穿透性、對於窗口式框架之好的附著性、低的絕緣氣體遷移性、以及好的可加工性，但在固化製程中不使用異氰酸酯。因為本發明的密封劑採用在不同速率下及經由不同機制而固體化的相容組成物，所以可以在低於傳統熱熔物的溫度下塗佈本發明的密封劑，且因此相較於傳統化學固化產品而言亦更快地對單元提供了足夠的操作強度，從而結合熱熔性及化學固化技術兩者的最佳性質至用於絕緣玻璃工業上之成功的密封劑。

本技術領域中具有通常知識者易於理解的是，可以在不違背上述所揭露的概念的情形下改良本發明。例如，雖然以上所描述的示範實施例是利用兩個附加於間隔物的玻璃薄板，但正如本技術領域中已知的一般，本發明並不受限於僅具有兩個玻璃薄板的絕緣玻璃單元，更可以製作具有兩個以上的玻璃薄板的絕緣玻璃單元。進一步地說，在

本發明的至少一個實施例中，密封劑可用於具有一般U形剖面的間隔框架。然而，本發明可用於具有任何類型剖面的間隔物。相似地，以上所描述的本發明在間隔物、一個以上的玻璃薄板或間隔物及一個以上的玻璃薄板兩者上形成密封劑釘珠。然而，除了利用密封劑釘珠之外，本技術領域中具有通常知識者應理解的是，亦可利用數種其他的塗佈方式。再進一步地說，可以任何便利的方式將密封劑的膜層塗佈或流動於間隔物的外部表面及或玻璃薄板上，例如一個以上的膜層。因此，本文中詳細描述的特殊實施例僅為例示性，且並不用於限制本發明的範疇。本發明的範疇是以下所附之申請專利範圍的全部廣度及其任何或全部的相等物件。

實例

以下列非限制實例的觀點將最能理解本發明。

實例 1

測試三個不同的反應製程以評估端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應性。

將端羧基聚丁二烯聚合物與聚碳二醯亞胺反應。在本發明的一實施例中，由美國克雷芬利有限公司以 Poly bd® R45HTLO 的商品名所售的端基聚丁二烯與愛蝶公司（Aldrich）所售的六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（HHMPA）反應，以形成端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT）。並且採用由皮卡西公司（Piccassian Company ）以 XL-725 的商品名所售的聚碳二醯亞胺（其為含 76 重量%的聚碳二醯

亞胺及 24 重量%的三丁氧基乙基磷酸酯（tributoxyethyl phosphate，一種塑化劑）的溶液）。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45CT（當量重=1374）	100
XL-725（當量重=921）	67.03

首先，將端羧基聚丁二烯加熱至 149°F（65°C）。接著，在離心杯中，將聚碳二醯亞胺加入溫的端羧基聚丁二烯中，並在室溫下預先以手工混合。混合物在約 2 至 3 秒內瞬間凝膠化。發現此製程途徑產生交聯反應，其發生太快以至於所得的彈性基質無法具有較佳的性質及所需的性質。

實例 2

除了不同的成分添加順序之外，實例 2 中所使用的密封劑成分與實例 1 中相同。於此實例中，在混合物中添加六氫-4-甲基鄰二甲苯酸酐（HHMPA）之前，先將基端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）與聚碳二醯亞胺充分混合。因此，在本發明的此實施例中，臨場製備端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT），並同時使端羧基聚丁二烯與聚碳二醯亞胺反應。使用由皮卡西公司以 XL-701 的商品名所售的聚碳二醯亞胺，而不使用 XL-725。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45HTLO（當量重=1220）	100
XL-701（純度100%，當量重=590)	48.36
HHMPA（當量重=168.19）	13.79

首先，藉由旋轉蒸發器（rotary evaporator）去除一般存在於 XL-701 聚碳二醯亞胺中的乙酸丙二醇單甲醚酯（propylene glycol monomethyl ether acetate）溶劑，藉以得到純的聚碳二醯亞胺。在 194°F（90°C）的真空中，將聚碳二醯亞胺及端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）混合並脫水 1.5 個小時。混合物表現出一些視覺朦朧性（visual haziness）。將溫的混合物（158°F，70°C）及 HHMPA（73.4°F，23°C）裝入離心杯中並在高速混合器中混合 30 秒。接著，在 257°F（125°C）下，將混合物倒入金屬模具中固化 1 小時。隨後，在 194°F（90°C）將混合物隔夜放置。經約 3 到 4 分鐘的製程時間區間（window time）後，發現此樣本已充分固化。

實例 3

首先，將聚碳二醯亞胺（XL-725）與 HHMPA 混合以查看是否有凝膠化作用發生，並依此測試第三製程方法。隨後，添加端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO 樹脂）。下列為反應重量比：

密封劑成分	重量比
Poly bd® R45HTLO（當量重= 1220）	100
XL-725（當量重= 921）	75.49
HHMPA（當量重= 168.19）	13.79

首先，在室溫下將 XL-725 及 HHMPA 裝入離心杯中並在高速混合器中充分混合。混合物不會凝膠化，且混合物會表現清晰/黃色的顏色。將溫的（95°F 至 104°F（35°C 至 40°C））端羥基聚丁二烯（Poly bd® R45HTLO）添加於混合物中，並在 73.4°F（23°C）下用高速混合器將上述混合物混合 1 分鐘。因此，在此實施例中，在端羧基聚丁二烯（Poly bd® R45CT）被臨場且同時與聚碳二醯亞胺反應而製備。接著，將上述混合物倒入金屬模具，並在 203°F（95°C）烤箱中固化隔夜。發現在 194°F（90°C）時，反應產物的適用期（pot life）為約 20 分鐘。

樣本在 90°C 下隔夜可充分固化，且樣本在室溫下隔夜亦可充分固化。發現依照配方中的比例，HHMPA 將與 XL-725 互溶，但是在 73.4°F（23°C）下隔夜之後，這些成份並不會形成凝膠。

實例 4

進行進一步的測試以確認 HHMPA 是否能與純的聚碳二醯亞胺互溶。若 HHMPA 與純的聚碳二醯亞胺能夠互溶且不會形成凝膠，則認為混合物可以與端羥基聚丁二烯

（Poly bd® R45HTLO）充分混合，以製成固化的聚合反應物產物。在此實例中亦利用鏈延展劑（2-乙基-1,3-已二醇（EHD））。用以下列反應重量比來測試兩個樣本：

密封劑成分	樣本1（重量比）	樣本2（重量比）
Poly bd® R45HTLO(當量重= 1235)	100	75.03
XL-701（純度100%，當量重= 590）	47.77	47.77
HHMPA（當量重= 168.13）	13.61	13.61
EHD（當量重= 73.12）	0	1.48

首先，在真空中藉由旋轉蒸發器將由聚碳二醯亞胺（XL-701）中將溶劑移出，藉以得到純的聚碳二醯亞胺。上述聚碳二醯亞胺（XL-701）一般為在乙酸丙二醇單甲醚酯（PMA）中的 50%的聚碳二醯亞胺溶液。在 HHMPA 中將聚碳二醯亞胺溶解之後，發現聚碳二醯亞胺與 HHMPA 的混合物會互溶。發現這些成份並不會彼此反應，且在混合物的隔夜固化期間或之後並不會發現混合物的凝膠。

將各樣本配方中的所有成分裝入塑膠離心杯中並以高速混合器混合。接著在 194°F（90°C）的烤箱中，將混合物固化於模具中。發現各樣本配方的適用期可約為 3 到 5 分鐘，且各樣本配方的黏度自由時間（tacky free time）小於 30 分鐘。在高溫及室溫下，發現樣本皆可充分固化。

實例 5

進行進一步的測試，以觀察不同類型的原材料在固化反應時的影響及所得之彈性基質產物的物理性質。如上所

述，測試數種端羥基聚丁二烯，並將端羥基聚丁二烯與酸酐反應、及選擇性地與鏈延展劑反應，以產生端羧基聚丁二烯。以下表列所測試的原材料：

原材料	當量重
Poly bd® R45 HTLO	1235
Krasol® LBH 2000L	1110
Krasol® LBH-P2000	1140
EHD （Kyowa Hakko所售）	73.12
XL-725 （於塑化劑中76%的溶液)	921
HHMPA	168.19

使用以上表列的原材料來測試多種樣本配方。以下所示為樣本配方及配方中成分的重量比：

樣本配方	1	2	3	4	5	6	7
Poly bd® R45HTLO	100	100	----	----	----	50	50
Krasol® LBH 2000L	----	----	100	----	----	----	----
Krasol® LBH-P2000	----	-----	----	100	100	50	50
EHD	---	1.97	----	---	2.14	----	2.06
XL-725	74.6	99.43	82.97	80.79	107.72	77.68	103.58
HHMPA	13.63	18.13	15.15	14.75	19.68	14.19	18.92

首先，在室溫下將一種以上的端羥基聚丁二烯、聚碳二醯亞胺、以及 EHD（若存在於樣本配方中的話）裝入塑膠離心杯中並以高速混合器充分混合。隨後，將 HHMPA

添加於杯中並以高速混合器混合。因此，在這些實施例中，可在與聚二醯亞胺反應之前（或臨場及同時）製備端羧基聚丁二烯。接著，分別在 194°F（90°C）與 73.4°F（23°C）下，將各配方的混合物倒入模具中固化。接著，在 194°F（90°C）下將各產物固化，並藉由劭氏 00 儀測試各產物的硬度。以下所示為這些測試的結果：

結果	1	2	3	4	5	6	7
在90°C時固化	好	好	速率慢**	好	好	好	好
硬度	68	55-60	40-46	48-55	40-45	58-62	52
		硬	縮小	軟	軟	硬	軟
在23°C時固化	NA	OK	未固化	OK+	OK+	好	OK+

**表示非常慢的固化速率：在 194°F（90°C）下小於 2 個小時；在 73.4°F（23°C）下隔夜後仍未固化。

實例 6

進行進一步的測試以分析密封劑的濕氣阻障性質（moisture barrier property）。將端羥基聚丁二烯（(Poly bd® R45HTLO 樹脂）與不含溶劑的聚碳二醯亞胺混合以形成溶液。將 HHMPA 添加於上述溶液以產生端羧基聚丁二烯。在進一步的混合之後，將上述溶液倒入開放式的模具中以進行固化。接著，測試所獲得的彈性基質薄板的水蒸

氣穿透性（water-vapor transmission，WVT）。彈性基質薄板的膜厚為 0.284 公分，面積為 50 平方公分。在 73.4°F（23°C）下，將上述薄板承載於型號為 3/33 的 MOCON PERMATRAN-W 測試器上。120 個小時之後，平衡時的穿透速率達到 5.122661 gm/[m^2-day。

如以上所討論，亦可以在一開始就混合聚碳二醯亞胺及 HHMPA 以製備彈性基質薄板。將端羥基聚丁二烯添加於上述混合物以形成端羧基聚丁二烯。或者，如以上所討論，可直接使用端羧基聚合物來與聚碳二醯亞胺反應。連續添加的目的在於延長反應混合物的工作壽命。此外，如以上所討論，可採用鏈延展劑以改善經固化薄板的機械性質。

雖然本文已表示及描述本發明的較佳實施例，應理解的是，提供這些實施例僅是為了舉例而已。對於本技術領域具有技能者而言，在不違背本發明的靈感的情形下，可發生多種變化、改變、及取代。因此，所附申請專利範圍傾向於涵蓋所有以上的變化，且所有以上的變化落於本發明的靈感及範疇內。

因此，本發明適於實行目的及達成所提到之及其他潛在之結果及優點。雖然藉由參考本發明的特殊及較佳實施例已描示、描述、及定義本發明，但是並不意味本發明受限於這些參考資料，亦不能推斷本發明的限制於這些參考資料。如同相關技術中具有通常技能者所理解的一樣，本發明可考慮在形式及功能方面的改良、變動及其相等物

件。所描示及所描述的本發明的較佳實施例僅為示範性質而非本發明之範疇的整體。因此，本發明的限制傾向於其精神及所附申請專利範圍的範疇，且各方面的相等物皆可被認定為本發明。

【圖式簡單說明】

無

【主要元件符號說明】

無

七、申請專利範圍：

1. 一種絕緣玻璃密封劑，包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，更包括一種以上的添加物，所述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

3. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物為疏水性的。

4. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物的玻璃轉換溫度（Tg）小於 32°F（0°C）。

5. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

6. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於 0.25：1 至 2：1 之間。

7. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於 0.7：1 至 1.4：1 之間。

8. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其

中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 500 至 30,000 的範圍內。

9. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

10. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於 0.7：1 至 1.4：1 之間，且所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

11. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述聚碳二醯亞胺選自於由芳香族碳二醯亞胺、環脂肪族碳二醯亞胺、脂肪族碳二醯亞胺、及雜環碳二醯亞胺及兩種以上的上述物質的混合物所組成的族群中。

12. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述聚碳二醯亞胺的平均官能度等於 2 或大於 2。

13. 一種絕緣玻璃單元的密封方法，包括：

將絕緣玻璃密封劑塗佈於一個以上的玻璃薄板、配置於所述玻璃薄板之間的間隔物或上述二者；以及

將一個以上的所述玻璃薄板與所述間隔物接觸，從而在所述玻璃薄板之間定義環形間隙，並產生絕緣玻璃單元；

其中所述絕緣玻璃密封劑包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

14. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述絕緣玻璃密封劑更包括一種以上的添

加物，所述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

15. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述端羧基聚合物為疏水性的，且所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

16. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，其中所述絕緣玻璃密封劑作為釘珠狀以塗佈於一個以上的所述玻璃薄板、所述間隔物或上述二者。

17. 如申請專利範圍第 13 項所述之絕緣玻璃單元的密封方法，更包括在接觸步驟之前或接觸步驟的同時，將絕緣氣體引入所述環形間隙之間，所述環形間隙是介於所述玻璃薄板之間，其中所述絕緣氣體選自氬氣或氖氣。

18. 一種絕緣玻璃單元，包括：

第一玻璃薄板，具有內表面及外表面；

第二玻璃薄板，具有內表面及外表面，其中所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板經定位以使得所述第一玻璃薄板的內表面及所述第二玻璃薄板的內表面彼此面對；

間隔物，位於所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板之間，所述間隔物具有第一側及第二側，所述間隔物的所述第一側位於鄰近所述第一玻璃薄板的內表面，且所述間

隔物的所述第二側位於鄰近所述第二玻璃薄板的內表面；以及

絕緣玻璃密封劑，將所述第一玻璃薄板及所述第二玻璃薄板連接於所述間隔物；

其中所述絕緣玻璃密封劑包括彈性基質，所述彈性基質為端羧基聚合物與聚碳二醯亞胺的反應產物。

19. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述絕緣玻璃密封劑更包括一種以上的添加物，所述添加物選自於由無機填料、塑化劑、鏈延展劑及上述物質的混合物所組成的族群中。

20. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述端羧基聚合物為疏水性的，且所述端羧基聚合物包含主成分，所述主成分選自於由端羧基聚丁二烯、端羧基聚異戊二烯、丁二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異物二烯與丙烯腈的端羧基共聚物、異戊二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、丁二烯與苯乙烯的端羧基共聚物、以及上述物質的混合物所組成的族群中。

21. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述彈性基質的聚碳二醯亞胺與端羧基聚合物的當量比介於 0.7：1 至 1.4：1 之間。

22. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其中所述端羧基聚合物的數量平均分子量介於 1,000 至 20,000 的範圍內。

23. 如申請專利範圍第 18 項所述之絕緣玻璃單元，其

中所述第一玻璃薄板與所述第二玻璃薄板及所述間隔物經組態以提供環形間隙，所述環形間隙介於所述第一玻璃薄板與所述第二玻璃薄板之間，且其中所述絕緣玻璃單元更包括絕緣氣體，所述絕緣氣體位於所述環形間隙之中。

24. 一種如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是直接由所述端羧基聚合物與所述聚碳二醯亞胺的反應形成。

25. 一種申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是藉由先將端羥基聚合物與酸酐反應並選擇性地與鏈延展劑反應以形成所述端羧基聚合物；以及將所述端羥基聚合物與所述聚碳二醯亞胺反應來形成。

26. 如申請專利範圍第 25 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述酸酐為 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐（HHMPA）。

27. 如申請專利範圍第 25 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述鏈延展劑選自 N,N-二異丙醇苯胺（DIPA）或 2-乙基-1,3-己二醇（EHD）。

28. 一種申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述彈性基質是藉由將端羥基聚合物與酸酐反應並選擇性地與鏈延展劑反應以及與聚碳二醯亞胺臨場反應來形成。

29. 如申請專利範圍第 28 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述酸酐為 4-甲基六氫鄰二甲苯酸酐

（HHMPA）。

30. 如申請專利範圍第 28 項所述之絕緣玻璃密封劑的製造方法，其中所述鏈延展劑選自 N,N-二異丙醇苯胺（DIPA）或 2-乙基-1,3-己二醇（EHD）。

31. 如申請專利範圍第 1 項所述之絕緣玻璃密封劑，其中所述端羧基聚合物為端羥基聚合物及酸酐的反應產物。