



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I480315 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 04 月 11 日

(21)申請案號：102116303

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 05 月 08 日

(51)Int. Cl. : C08G73/14 (2006.01)

C08L79/08 (2006.01)

(30)優先權：2012/09/12 歐洲專利局

12183987.2

(71)申請人：恩斯 專利股份有限公司(瑞士)EMS-PATENT AG (CH)

瑞士

(72)發明人：霍夫曼 保德 HOFFMANN, BOTHO (DE)；胡夫 海恩茲 HOFF, HEINZ (DE)；

雪萊 路克 SCHERRER, LUC (CH)

(74)代理人：閻啟泰；林景郁

(56)參考文獻：

TW 200634095A

TW 201213399A

審查人員：黃凱煜

申請專利範圍項數：23 項 圖式數：0 共 34 頁

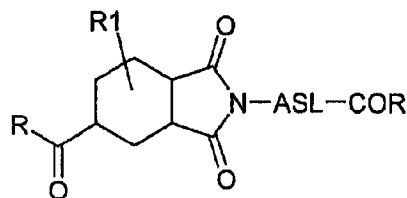
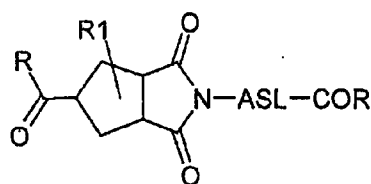
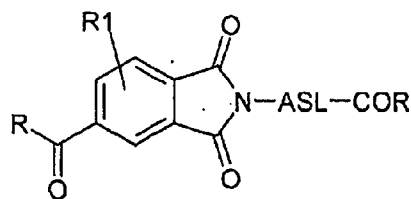
(54)名稱

透明聚醯胺-醯亞胺

TRANSPARENT POLYAMIDE-IMIDES

(57)摘要

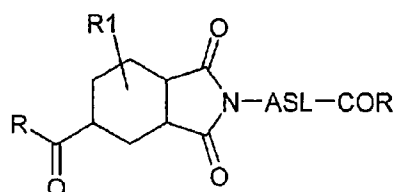
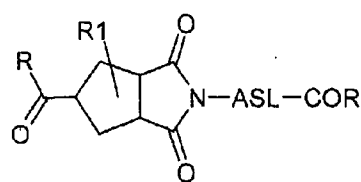
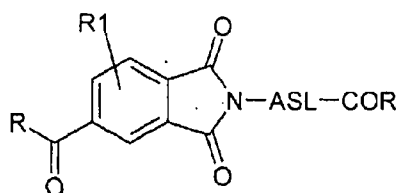
本發明描述一種基於一或多種不同亞胺基-二羧酸(AB)或其衍生物及包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺(C)的透明聚醯胺-醯亞胺，其中該等亞胺基-二羧酸(AB)或其衍生物係選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸(AB)之群組：



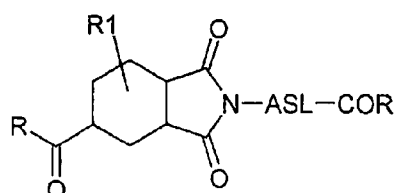
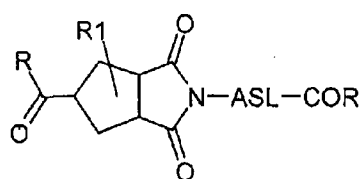
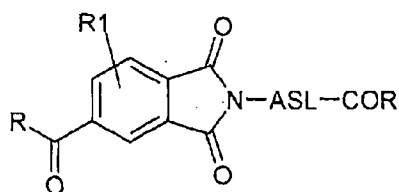
其中：ASL=(CH₂)₅₋₁₁、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，R=OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基，R₁=H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，該兩個取代基可選自該群組，但可不同，以及基於其之成型化合物、製備方法及用途。

What is described is a transparent polyamide-imide based on one or more different imido-dicarboxylic acids (AB) or derivatives thereof, and cycloaliphatic diamines (C) comprising 6 to 24 carbon atoms, wherein

the imido-dicarboxylic acids (AB) or derivatives thereof are selected from the group of imido-dicarboxylic acids (AB) having the following structural formulas:



wherein: ASL = $(CH_2)_{5-11}$, phenylene, (ylomethyl)phenyl, bis(ylomethyl)benzene, cyclohexanediyl, (ylomethyl)cyclohexyl, bis(ylomethyl)cyclohexane, cyclopentanedyl, (ylomethyl)cyclopentyl, bis(ylomethyl)cyclopentane, R = OH, O-alkyl, O-aryl, Cl, NH-ASL-COOH, Br, O-(CO)-alkyl, O-(CO)-aryl, R1 = H, methyl, ethyl, propyl, with the provision that the ring can be substituted once or twice, and, with double substitution of the ring, the two substituents can be selected from the group, but may be different, and also moulding compounds based thereon, a method for production, and uses.



發明摘要

※ 申請案號： 102116303

※ 申請日： 102. 5. 8

※ IPC 分類：

C08G 73/14 (2006.01)

C08L 79/08 (2006.01)

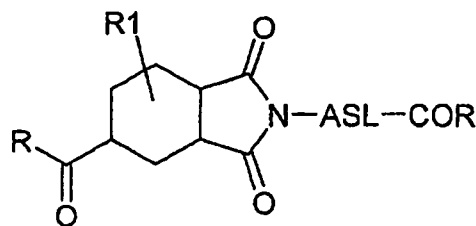
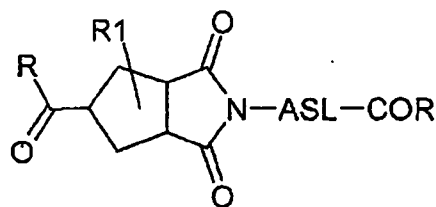
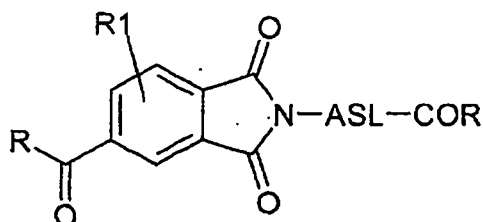
【發明名稱】(中文/英文)

透明聚醯胺-醯亞胺

TRANSPARENT POLYAMIDE-IMIDES

【中文】

本發明描述一種基於一或多種不同亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物及包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺 (C) 的透明聚醯胺-醯亞胺，其中該等亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物係選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸 (AB) 之群組：



其中：

ASL = (CH₂)₅₋₁₁、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

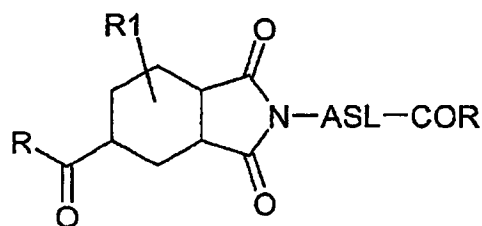
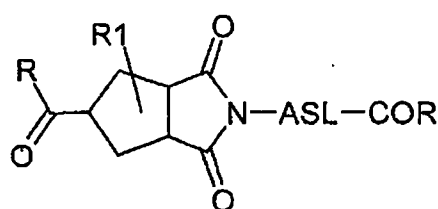
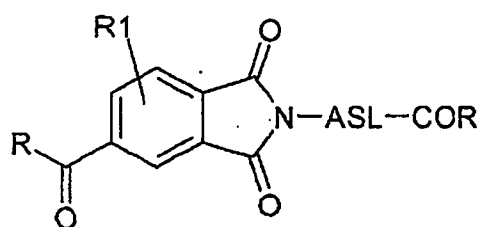
R = OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基，



R1 = H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，該兩個取代基可選自該群組，但可不同，以及基於其之成型化合物、製備方法及用途。

【英文】

What is described is a transparent polyamide-imide based on one or more different imido-dicarboxylic acids (AB) or derivatives thereof, and cycloaliphatic diamines (C) comprising 6 to 24 carbon atoms, wherein the imido-dicarboxylic acids (AB) or derivatives thereof are selected from the group of imido-dicarboxylic acids (AB) having the following structural formulas:



wherein:

ASL = (CH₂)₅₋₁₁, phenylene, (ylomethyl)phenyl, bis(ylomethyl)benzene, cyclohexanediyl, (ylomethyl)cyclohexyl, bis(ylomethyl)cyclohexane, cyclopentanedyl, (ylomethyl)cyclopentyl, bis(ylomethyl)cyclopentane,

R = OH, O-alkyl, O-aryl, Cl, NH-ASL-COOH, Br, O-(CO)-alkyl, O-(CO)-aryl,

R1 = H, methyl, ethyl, propyl, with the provision that the ring can be substituted once or twice, and, with double substitution of the ring, the two substituents can be

selected from the group, but may be different,

and also moulding compounds based thereon, a method for production, and uses.

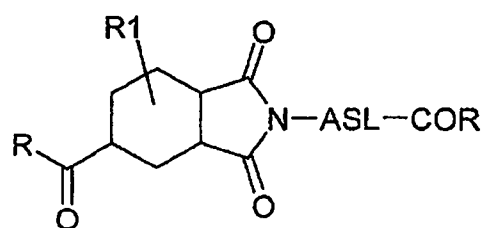
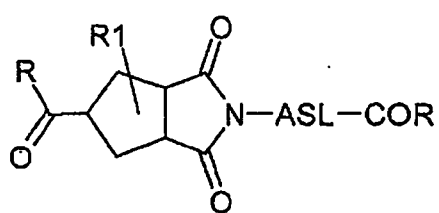
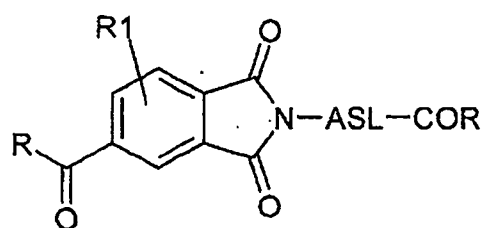
【代表圖】

【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】：



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)

透明聚醯胺-醯亞胺

TRANSPARENT POLYAMIDE-IMIDES

【技術領域】

【0001】 本發明係關於透明聚醯胺-醯亞胺及其與其他聚合物、尤其聚醯胺之摻合物或合金，且亦關於可由其製造或由其製造之成型部件，該等部件尤其展現高韌性及良好耐溶劑性，同時展現高剛性及熱撓曲溫度(heat deflection temperature)。

【先前技術】

【0002】 FR 1427087 描述基於苯均四酸酐及胺基酸或內醯胺之二羧酸，且亦描述由其製備之聚縮合物。此等雙醯亞胺二羧酸之製備及與二胺或二醇之聚縮合總以溶液形式進行。各種聚酯-醯亞胺及聚醯胺-醯亞胺之製備描述於一系列實施例中。尤其提及基於苯均四酸酐及己內醯胺之雙醯亞胺二羧酸與己二醇反應形成聚酯或與己二胺反應形成聚醯胺-醯亞胺。除溶解性及熔點以外，僅亦對分解溫度進行指定。苯均四酸或其衍生物尤其以熔融物形式引入以進行交聯且因此成型化合物，該等化合物不再能進行熱塑性處理，此為其僅以稀溶液形式用於實施例中之原因。為提高此等條件下之活性，使用基於苯均四酸之雙醯亞胺二羧酸的醯氯。由於苯均四酸衍生物由於其結構而總形成兩個醯亞胺鍵，故每莫耳苯均四酸衍生物總與兩莫耳內醯胺反應，由此玻璃轉移溫度由於高比例脂族結構單元而顯著降低。

【0003】 根據 US 4,161,477 製備聚醯亞胺之方法亦使用來自作為起始物質的苯四甲酸或二苯甲酮四羧酸及己內醯胺的低分子雙醯亞胺與芳族二胺（諸如二胺基二苯醚）進行聚縮合。在高於 300°C 之溫度下進行的聚醯亞

胺交換反應中，中間形成之聚醯胺-醯亞胺轉化為聚醯亞胺，其中己內醯胺再次裂解。

【0004】 US 2011/0160407 A1 揭示一種基於呈熔融物形式之三官能或四官能羧酸（較佳在性質上為芳族）的半芳族聚醯胺-醯亞胺（PAI）的製備方法，其中該方法與 PA66 製備實際上相同。實施例中使用來自單體己二胺、己二酸、對苯二甲酸及偏苯三甲酸（TMA）或苯四甲酸的不同構成之共聚物。此等共聚物不透明且不含內醯胺或胺基羧酸。另外，揭示 PA66 與聚醯胺-醯亞胺 6TMA 之混合物。由於 PAI 之玻璃轉移溫度相對較高，故隨著摻合物之 PAI 濃度增加，在 90°C 下量測之彈性模數升高。

【0005】 DE1770416 中提供一種藉由使經取代之鄰苯二甲酸酐與內醯胺反應製備鄰苯二醯亞胺基-N-羧酸的方法。當吸電子取代基鍵結於鄰苯二甲酸酐時，可容易地執行該反應。較佳酸酐為偏苯三甲酸酐（TMA）及苯四甲酸酐且較佳內醯胺為己內醯胺及月桂內醯胺。該反應在 130-250°C 範圍內之溫度下於溶液中或以本質形式進行。由 TMA 及己內醯胺組成之亞胺基-二羧酸例如以熔融物形式在 200°C 下製得，且熔點在 207-210°C 範圍內。雙官能亞胺基-羧酸與單官能醇之反應被提及作為可能之第二反應。

【0006】 透明聚醚酯醯胺醯亞胺及其用於製造有用醫療物品之用途描述於 EP 0 470 464 A2 中。目的為開發具有聚胺基甲酸酯之彈性性能但熱穩定性增加之透明聚合物。此等聚合物藉由使可藉由 2 mol TMA 與 1 mol 脂族或環脂族二胺反應獲得之雙醯亞胺基-二羧酸與聚醚二醇（諸如聚四氫呋喃及丁二醇）在酯化催化劑存在下聚縮合而製備。

【0007】 Macromolecules 1991 (24) 2283-2290, Staubli 等人中提供可藉由水解完全分解之聚(酸酐-共-醯亞胺)。基於 TMA 及胺基羧酸（其在與較長鏈二羧酸乙酸酐進一步反應得到乙酸之混合酸酐前轉化）之亞胺基-二羧酸形成合成此等共聚物之起始點。該等共聚物具有相對較低機械強度及較低

玻璃轉移溫度。

【發明內容】

【0008】 因此，本發明之目的尤其為提供新穎透明聚醯胺-醯亞胺（PAI）及基於其之成型化合物，該等化合物相較於先前技術尤其在機械特性方面有所改良，甚至在濕潤或潮濕條件下亦然，且關於熱撓曲溫度亦有所改良。另外，成型化合物或由其製造之成型部件應展現高韌性及良好耐溶劑性，同時展現高剛性及熱撓曲溫度。此外，欲提供基於聚醯胺-醯亞胺之成型部件或由聚醯胺-醯亞胺製備之成型化合物以及製備聚醯胺-醯亞胺及此類型成型化合物之方法。

【0009】 因此，本發明係關於基於至少以下單體製備之透明聚醯胺-醯亞胺（PAI）：

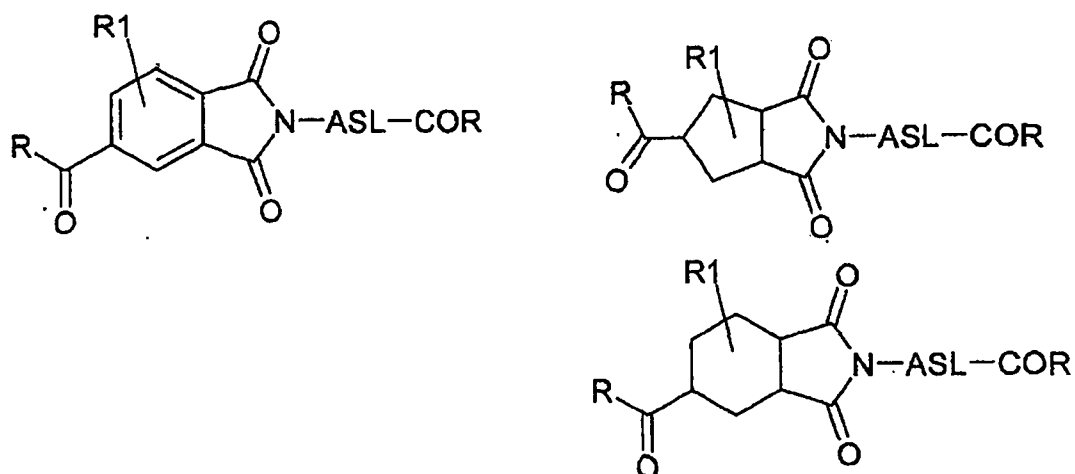
（A）環脂族或芳族三羧酸，其尤其包含至少兩個鄰位羧基（亦即鄰羧基或 1,2-羧基），或其衍生物，諸如醯氯、酯或酸酐；

（B）胺基羧酸或內醯胺，尤其或特定言之為包含 6-12 個 C 原子之胺基羧酸或內醯胺；

（C）環脂族二胺，尤其或特定言之為包含 6 至 24 個 C 原子之環脂族二胺。

因此，建議之聚醯胺-醯亞胺亦可包含其他結構單元，例如以下在成分（D）、（E）或（F）中所指定。

【0010】 特定言之，本發明係關於如技術方案第 1 項之透明聚醯胺-醯亞胺（PAI），特定言之為基於一或多種（則不同）亞胺基-二羧酸或其衍生物（成分（A）及（B），下文尤其作為二羧酸成分 AB 提及）及包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺（C）的透明聚醯胺-醯亞胺，其中亞胺基-二羧酸或衍生物選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸之群組：



其中以下定義適用：

ASL = $(\text{CH}_2)_{5-11}$ 、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

$\text{R} = \text{OH}$ 、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基

$\text{R1} = \text{H}$ 、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，兩個取代基選自該群組且可相同或不同，

較佳地，其限制條件為透明聚醯胺-醯亞胺基本上或完全不含如下構築嵌段，其中該等環脂族二胺(C)之至少一個胺基形成對應於該等亞胺基-二羧酸(AB)之亞胺基-胺基羧酸的亞胺基成分，且其中該等環脂族二胺(C)置換其中之結構成分 N-ASL-COR，

及/或進一步較佳地，其限制條件為透明聚醯胺-醯亞胺不含芳族二胺。根據如本文描述且主張之發明，芳族二胺意謂至少一個胺基直接連接於分子之芳族結構成分的二胺。在此情形下，諸如 MXD 或 PXD 之二胺不為芳族二胺，因為在此等情況下，胺基鍵結於脂族亞甲基且未直接鍵結於芳族苯環。

【0011】 根據 IUPAC 命名法，「亞基 (Ylo)」在其表示為字首時指作

為取代基之一部分的基團，且表示去除氫原子（參見例如 G. Kruse, Nomenklatur der Organischen Chemie, VCH, Weinheim, 1997, 第 161 頁）。

【0012】 根據一第一較佳具體實例，一方面，聚醯胺-醯亞胺僅基於二酸部分，其僅基於：20-100 mol-%該等亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物中之一或多者、0-80 mol-%至少一種不同於該等亞胺基-二羧酸（AB）且較佳不為（上文所提及之）亞胺基-胺基羧酸的其他二酸（D），其中二酸部分補足至 100 mol-%二酸，

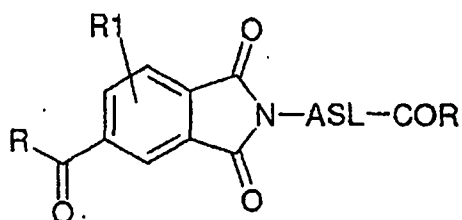
且另一方面，聚醯胺-醯亞胺基於二胺部分，其僅基於：20-100 mol-%該等包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺（C）中之至少一者、0-80 mol-%至少一種不同於該等環脂族二胺（C）之其他較佳非芳族二胺（E），其中二胺部分補足至 100 mol-%二胺。

【0013】 根據另一較佳具體實例，透明聚醯胺-醯亞胺僅基於該等亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物中之一或多者及該等包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺（C）。

【0014】 在上述結構式中在環左側 C=O 取代基上出現一次且在結構式中在右側鏈-ASL-COR 上出現一次的基團 R 在此兩個位置處可相同地加以選擇或可不同。此在上述結構式之情況下一般適用，而且在下文指定之其他較佳具體實例之情況下亦適用，在該等較佳具體實例中對基團 R 進行命名。

【0015】 由此，由上文所提及之成分（A）（亦即由環脂族或芳族三羧酸、較佳諸如偏苯三甲酸或其衍生物（第一結構）、尤其由偏苯三甲酸酐）以及包含 6 至 12 個碳原子之胺基酸或內醯胺（成分（B））形成亞胺基-二羧酸或其衍生物。

【0016】 較佳地，聚醯胺-醯亞胺中之至少一種亞胺基-二羧酸或衍生物、較佳全部比例之亞胺基-二羧酸或衍生物對應於以下結構式：



其中，較佳地， $R1 = H$ ，及/或 $ASL = (CH_2)_{5-11}$ ，及/或 $R = OH$ 、 $NH-ASL-COOH$ 。

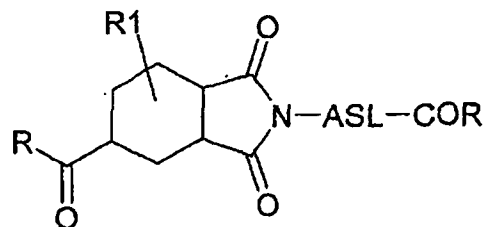
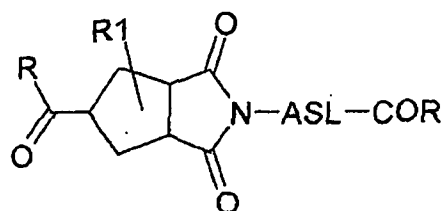
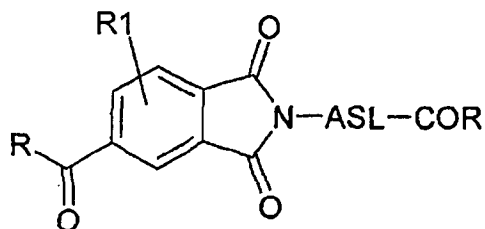
【0017】 以下環脂族或芳族三羧酸或其衍生物(諸如醯氯、酯或酸酐)較佳用作成分(A)：環戊烷-1,2,4-三羧酸、2-甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、3-甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、3,5-二甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、環己烷-1,2,4-三羧酸、2-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、3-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、4-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、5-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、1,2-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、3,5-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、2,4-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸或其混合物。

【0018】 偏苯三甲酸酐(TMA)或偏苯三甲酸(TMS)或偏苯三甲酸之衍生物(諸如氯化物、酯或混合酸酐)尤其較佳用作成分(A)。

【0019】 作為成分(B)，使用 α, ω -胺基酸或內醯胺，其尤其包含 6 至 12 個碳原子，其中選自由以下組成之群組的胺基酸或內醯胺為較佳：間胺基苯甲酸、對胺基苯甲酸、對(胺基甲基)苯甲酸、間(胺基甲基)苯甲酸、胺基苯基乙酸、(胺基甲基)苯基乙酸、3-或 4-胺基環己烷羧酸、3-或 4-(胺基甲基)環己烷羧酸、3-或 4-胺基環己烷乙酸、3-或 4-(胺基甲基)環己烷乙酸、3-胺基環戊烷羧酸、3-(胺基-甲基)環戊烷羧酸、3-胺基環戊烷乙酸、3-(胺基甲基)-環戊烷乙酸、己內醯胺(CL)、 ω -胺基己酸、 ω -胺基庚酸、 ω -胺基辛酸、 ω -胺基壬酸、 ω -胺基癸酸、 ω -胺基十一烷酸(AUA)、月桂內醯胺(LL)及 ω -胺基十二烷酸(ADA)，或其混合物。此處，己內醯胺、 ω -胺基己酸、月桂內醯胺、 ω -胺基十二烷酸及 ω -胺基十一烷酸為尤其較佳。

【0020】 亞胺基-二羧酸、(未經取代之)偏苯三甲酸亞胺基-己酸、(未經取代之)偏苯三甲酸亞胺基-十一烷酸或(未經取代之)偏苯三甲酸亞胺基-月桂酸或其混合物尤其較佳作為成分 AB。

【0021】 本發明另外係關於一種製備聚醯胺-醯亞胺、尤其如上文所概述之聚醯胺-醯亞胺之方法。該方法之特徵較佳為：在第一反應步驟中，以具有至少兩個鄰位羧基之相應環脂族或芳族三羧酸(A)或其衍生物及胺基羧酸或內醯胺(B)作為起始物形成選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸之群組的亞胺基-二羧酸(AB)：



其中以下定義適用：

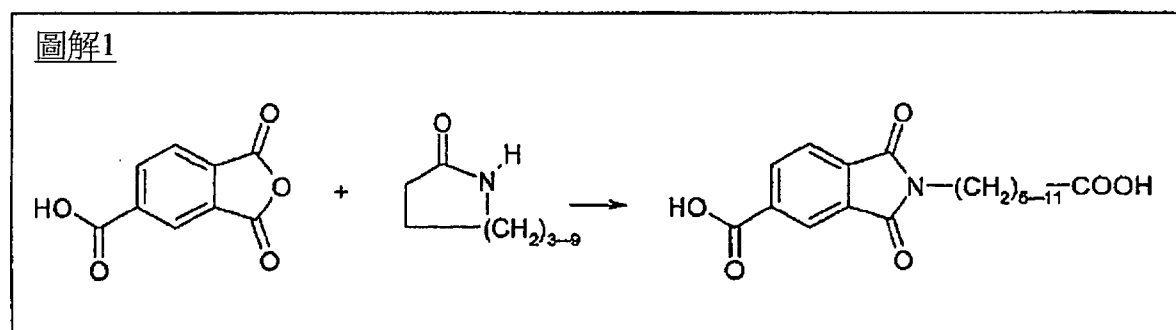
ASL = (CH₂)₅₋₁₁、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

R = OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基

R1 = H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，兩個取代基選自該群組且可相同或不同，且在第二後續及分開步驟中，使此等亞胺基-二羧酸(AB)或其衍生物與包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺(C)及視情況存在之不同於成分(AB)

之其他二酸 (D) 及/或不同於成分 (C) 之其他較佳非芳族二胺 (E) 反應，形成聚醯胺-醯亞胺。

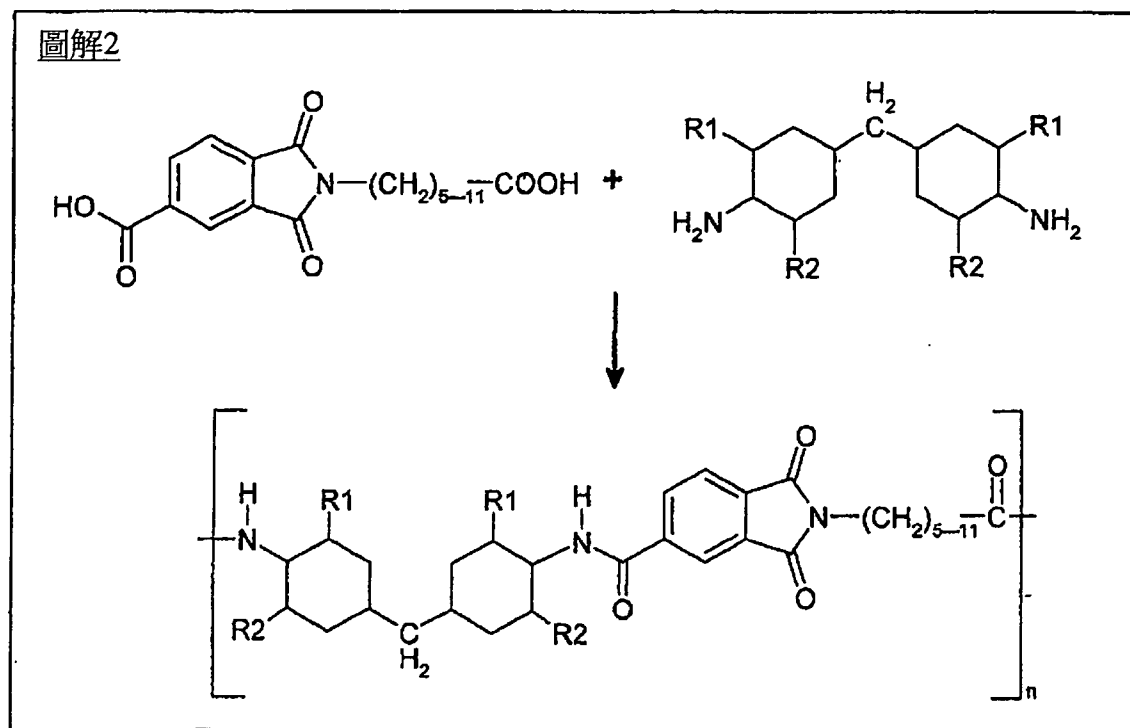
【0022】 在製備亞胺基-二羧酸或其衍生物時，較佳在第一方法步驟中由單體 A 及 B 形成二羧酸成分，隨後其與環脂族二胺且視情況另外與其他二胺、二羧酸及內醯胺聚縮合，形成高分子聚醯胺-醯亞胺。由單體 A 及 B 組成之二羧酸成分藉由亞胺基-二羧酸或其衍生物形成，該等亞胺基-二羧酸或其衍生物將在下文中尤其作為二羧酸成分 AB 提及。圖解 1 展示較佳使用之環狀三羧酸等效物偏苯三甲酸酐與較佳 C6-C12 內醯胺反應形成相應亞胺基-羧酸。



【0023】 為此，成分 (A) 及 (B) 較佳以在 1:2.5 至 1:1 範圍內之莫耳比使用。較佳使用 1:2 至 1:1 之莫耳比 (A):(B)，尤其較佳使用 1:1 之莫耳比，或實際上使用 1:1 之莫耳比。此意謂單體 (A) 及 (B) 尤其較佳以實際上彼此等莫耳比率使用。詳言之，成分 (AB) 不包括任何自由或未反應之環脂族或芳族三羧酸 (A) 或其衍生物。此外，成分 (AB) 較佳包括小於 10 wt-%、尤其較佳小於 5 wt-% 未反應之內醯胺或胺基羧酸 (B)。自縮合反應中去除自由或未反應之成分 (A) 可避免藉由環脂族或芳族三羧酸 (A) 或其衍生物與環脂族二胺 (C) 反應形成醯亞胺結構 (AC)，且尤其避免形成雙醯亞胺結構 (ACA)。

【0024】 在較佳製備方法之第二步驟中，使由此製備之二羧酸成分 AB 與至少一種環脂族二胺、較佳包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺且尤

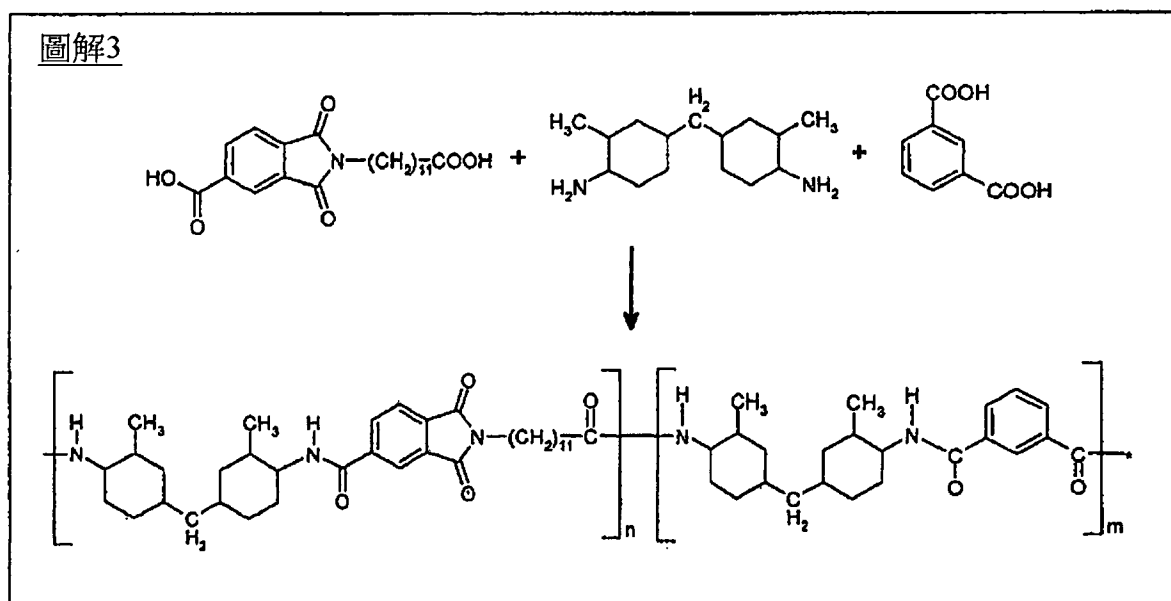
其較佳包含 12 至 18 個碳原子之環脂族二胺反應，形成聚醯胺-醯亞胺。同樣，對於用較佳 C6-C12 內醯胺獲得基於偏苯三甲酸酐之亞胺基-二羧酸的情形，圖解 2 中以實例之方式說明此合成步驟，但該圖解亦可類似地應用於技術方案 1 包含之其他起始系統，上述圖解 1 及下述其他圖解亦然。



【0025】 基於環脂族二胺之聚醯胺-醯亞胺較佳用作成分 (C) 且選自以下群組：雙(4-胺基-3-甲基-環己基)-甲烷 (MACM)、雙(4-胺基-環己基)-甲烷 (PACM)、雙(4-胺基-3-乙基-環己基)-甲烷 (EACM)、雙(4-胺基-3,5-二甲基-環己基)-甲烷 (TMDC)、2,6-降冰片烷二胺或 2,6-雙(胺基甲基)-降冰片烷或 1,3-環己基二胺、1,4-環己基二胺、雙(1,3-胺基甲基)環己烷、異佛酮二胺、環己烷二胺、1,3-雙(胺基甲基)環己烷、1,4-雙(胺基甲基)環己烷、異佛酮二胺、降冰片烷二甲胺、2,2-(4,4'-二胺基二環己基)丙烷 (PACP) 及其混合物。尤其，經烷基取代之雙(胺基環己基)甲烷或雙(胺基環己基)丙烷為較佳。直鏈及/或分支鏈 C1-C6、較佳 C1-C4 烷基較佳作為烷基取代基，因此尤其為甲基、乙基、丙基、異丙基或丁基，其中甲基為尤其較佳。在一尤其較佳具體實例中，雙(4-胺基-3-甲基-環己基)-甲烷 (MACM) 用作經烷基

取代之雙(胺基環己基)甲烷。根據本發明，亦可使用 2 或 3 種不同環脂族二胺之混合物。

【0026】 在另一較佳具體實例中，本發明亦包括共聚物，除醯亞胺-醯胺系統 CAB 以外，其亦含有至少一種其他醯胺系統，亦即至少一種不同於成分 AB 之其他二酸（D），例如以系統 CD 之形式，其中成分（D）為脂族、環脂族或芳族二羧酸。圖解 3 中以實例之方式說明該基於由偏苯三甲酸酐、月桂內醯胺及 MACM 組成之醯胺-醯亞胺系統以及由 MACM 及間苯二甲酸（作為成分 D）組成之另一醯胺系統的較佳共聚醯胺-醯亞胺。此處，下標 n 及 m 之值在 20 與 80 mol% 之間且總共形成 100 mol%。

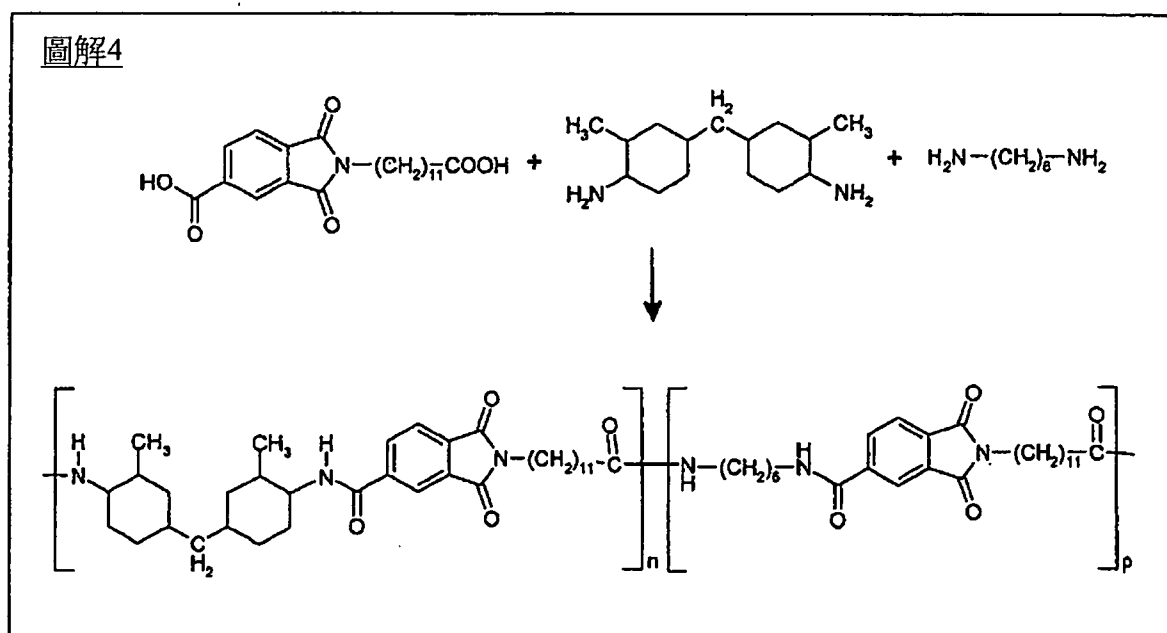


【0027】 此類型基於二羧酸成分 AB、環脂族二胺（C）以及其他二羧酸（成分 D）的共聚醯胺-醯亞胺較佳由 80 至 20 mol%之量、尤其 70 至 30 mol%之量的聚醯胺-醯亞胺單元 CAB 及 20 至 80 mol%之量、尤其 30-70 莫耳%之量的聚醯胺單元 CD 構成。換言之，該等共聚醯胺-醯亞胺中之二羧酸成分 AB 中至多 80 mol%之量經另一二羧酸置換，其中所有二羧酸之總和一起為 100 mol%。

【0028】 較佳包含 2 至 36 個碳原子、尤其較佳包含 6-18 個碳原子的雙官能、脂族、環脂族或芳族羧酸（二羧酸）較佳用作另一二酸，亦即成

分 D。與必需亞胺基-二羧酸（二羧酸成分 AB）組合使用之成分 D 二羧酸尤其為己二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十一烷二酸、十二烷二酸、十三烷二酸、十四烷二酸、十五烷二酸、十六烷二酸、十七烷二酸、十八烷二酸、C36-二聚體脂肪酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、萘二羧酸、順-及/或反-環己烷-1,4-二羧酸及/或順-及/或反-環己烷-1,3-二羧酸（CHDA）及其混合物。

【0029】 另一具體實例包括共聚物，除醯亞胺-醯胺系統 CAB 以外，其亦含有至少一種其他醯胺-醯亞胺系統 EAB，亦即基於不同於成分（C）之另一二胺作為成分（E）形成，其中成分（E）較佳為直鏈或分支鏈脂族二胺。圖解 4 中以實例之方式說明該具有由己二胺（成分 E）及二羧酸成分 AB 組成之另一醯胺-醯亞胺系統的較佳共聚醯胺-醯亞胺，其中該二羧酸成分 AB 由偏苯三甲酸酐及月桂內醯胺形成。



【0030】 此類型基於二羧酸成分 AB、環脂族二胺（C）以及另一二胺（成分 E）的共聚醯胺-醯亞胺較佳由 80 至 20 mol% 之量、尤其 70 至 30 mol% 之量的聚醯胺-醯亞胺單元 CAB 及 20 至 80 mol% 之量、尤其 30 至 70 mol% 之量的聚醯胺單元 EAB 形成。

【0031】 成分 E 較佳為直鏈或分支鏈脂族二胺，較佳包含 4 至 18 個碳原子，尤其較佳包含 6 至 14 個碳原子。總與成分 C 之必需二胺組合使用之成分 E 二胺尤其為 1,4-丁二胺、1,5-戊二胺、2-甲基-1,5-戊二胺、2-丁基-2-乙基-1,5-戊二胺、1,6-己二胺、2,2,4-三甲基己二胺、2,4,4-三甲基己二胺、1,8-辛二胺、2-甲基-1,8-辛二胺、1,9-壬二胺、1,10-癸二胺、1,11-十一烷二胺、1,12-十二烷二胺、1,13-十三烷二胺、1,14-十四烷二胺、1-15-十五烷二胺、1,16-十六烷二胺、1-17-十七烷二胺、1-18-十八烷二胺、間二甲苯二胺及對二甲苯二胺或其混合物。

【0032】 聚醯胺-醯亞胺亦可基於不同於胺基酸/內醯胺（B）之其他胺基酸/內醯胺形成。然而，該等不同於胺基酸/內醯胺（B）之其他胺基酸/內醯胺的比例較佳實質上為零。因此，除醯胺-醯亞胺系統 CAB 以外，特定較佳具體實例含有其他醯胺-醯亞胺系統或醯胺系統，其藉由用 EAB 或 CD 部分地置換醯胺-醯亞胺系統 CAB 而製備。另一醯胺-醯亞胺系統藉由添加另一二胺形成，亦即藉由用成分 E 二胺部分地置換環脂族二胺（成分 C），而另一醯胺系統藉由用另一二羧酸（成分 D）部分地置換二羧酸成分 AB 製備。亦可為混合形式，其中 CAB 組與類型 EAB 及 CD 之組一起存在，因此亦可與 ED 組合。

【0033】 作為聚縮合催化劑，單體混合物可與 0.005 至 1.5 重量%磷化合物混合，諸如磷酸、亞磷酸、次磷酸、苯基膦酸、苯基一元膦酸及/或其含有單價至三價陽離子之鹽（諸如 Na、K、Mg、Ga、Zn 或 Al）及/或其酯（諸如磷酸三苯酯、亞磷酸三苯酯或參-(壬基苯基)-亞磷酸酯）。以總單體重量計，磷之量為 100 至 500 ppm 的次磷酸及次磷酸氫鈉單水合物為較佳。

【0034】 為控制莫耳質量、相對黏度或可流動性或 MVR，可向批料中添加呈單羧酸或單胺形式之調節劑。適用作調節劑之脂族、環脂族或芳族單羧酸或單胺尤其為乙酸、丙酸、丁酸、戊酸、己酸、月桂酸、硬脂酸、

2-乙基己酸、環己酸、苯甲酸、丁胺、戊胺、己胺、2-乙基己胺、正辛胺、正十二烷胺、正十四烷胺、正十六烷胺、硬脂胺、環己胺、3-(環己基胺基)-丙胺、甲基環己胺、二甲基環己胺、苯甲胺、2-苯基乙胺。調節劑可個別地或組合使用。可與胺基或酸基反應之其他單官能化合物亦可用作調節劑，諸如酸酐、異氰酸酯、醯鹵或酯。鄰苯二甲酸為特殊調節劑，其能夠與胺基端基一起形成醯胺鍵。調節劑之習知使用量為每公斤聚合物 10 與 200 mmol 之間。

【0035】 聚醯胺-醯亞胺之折射率較佳大於或等於 1.53，阿貝數 (Abbe number) 為大於或等於 25，且密度小於或等於 1.3 g/cm^3 。溶液黏度或相對黏度 η_{rel} (根據 DIN EN ISO 1628-1) 較佳在 1.3 與 2.0 之間，尤其在 1.40 與 1.9 之間。另外，透明 PAI 之玻璃轉移點 T_g 較佳高於 100°C ，較佳高於 120°C ，尤其較佳高於 140°C 。

【0036】 厚度為 2 mm 之成型部件的光透射率為至少 80%，較佳為至少 85% 且尤其較佳為至少 88%。在此情況下，濁度為至多 5%，較佳至多 4% 且尤其較佳至多 3%。在 23°C 下使用 Haze-Gard Plus (Byk-Gardener) 根據 ASTM D-1003 (光類型 C) 對尺寸量測為 $60 \times 60 \times 2 \text{ mm}$ 之盤測定此等光學值。

【0037】 本發明之較佳具體實例另外亦包括基於上述透明聚醯胺-醯亞胺之成型化合物。在本發明之情況下，相應地特定建議具有以下組成之聚醯胺成型化合物：

(F1) 30-100 重量%至少一種前述聚醯胺-醯亞胺或共聚醯胺-醯亞胺

(F2) 0-70 重量%增強劑及/或填充劑

(F3) 0-50 重量%添加劑及/或其他聚合物，

其中成分 F1 至 F3 一起為 100%。

【0038】 成分 (F3) 之其他聚合物可為均聚物及/或共聚物，可為聚醯胺，或亦可為其他聚合物，諸如聚酯、聚碳酸酯等，或可為其混合物。

均聚醯胺及/或共聚醯胺為較佳。

【0039】 成型化合物可用至多 70 重量%、較佳 10-70 重量%且尤其較佳 20-60 重量%填充劑及增強劑（成分 F2）改質，其中可使用熟習此項技術者已知之填充劑及增強劑。

【0040】 玻璃纖維、碳纖維（石墨纖維）、金屬纖維或塑膠纖維較佳作為增強劑。增強可用短纖維進行，諸如長度為 2-12 mm 之離玻璃或無端纖維（endless fibre）（粗紗）。玻璃纖維為尤其較佳，其中玻璃纖維可具有圓形或非圓形橫截面。在此情況下，較佳使用具有非圓形橫截面積且主橫截面軸與次橫截面軸之比率大於 2、較佳為 2 至 8、尤其為 2 至 5 之玻璃纖維。此等「扁平玻璃纖維（flat glass fibre）」具有扁圓形或橢圓形橫截面積、具有一或多個收縮的橢圓形橫截面積（稱作蠶絲）、多邊形或矩形橫截面積或大致矩形橫截面積。

【0041】 根據本發明之具有非圓形橫截面積之扁平玻璃纖維較佳用作短玻璃纖維（長度為 0.2 至 20 mm、較佳 2-12 mm 之離玻璃）。所用扁平玻璃纖維之另一特有特徵在於主橫截面軸之長度較佳在 6 至 40 μm 範圍內、尤其在 15 至 30 μm 範圍內，且次橫截面軸之長度在 3 至 20 μm 範圍內、尤其在 4 至 10 μm 範圍內。

【0042】 為增強根據本發明之成型化合物，亦可使用具有圓形及非圓形橫截面之玻璃纖維的混合物，其中如上文所定義之扁平玻璃纖維的比例較佳佔主導地位，亦即構成纖維總質量之大於 50%。具有圓形橫截面積之圓形玻璃纖維的直徑為 6-20 μm ，較佳為 6-13 μm ，尤其較佳為 6-10 μm 。玻璃纖維（橫截面為圓形及/或非圓形之玻璃纖維）與碳纖維及/或合成纖維（諸如芳族聚醯胺纖維及/或玄武岩纖維（basalt fibre））的組合亦可用於增強。

【0043】 根據本發明用作粗紗（填充劑成分 B）之玻璃纖維的直徑為

10 至 20 μm ，較佳為 12 至 18 μm ，其中玻璃纖維之橫截面可為圓形、扁圓形、橢圓形、具有一或多個收縮之橢圓形、多邊形、矩形或大致矩形。橫截面軸比率為 2 至 5 之「扁平玻璃纖維」為尤其較佳。

【0044】 在此情況下，所有前述玻璃纖維可選自由 E 型玻璃纖維、A 型玻璃纖維、C 型玻璃纖維、D 型玻璃纖維、M 型玻璃纖維、S 型玻璃纖維及/或 R 型玻璃纖維組成之群組，其中 E 型玻璃纖維為較佳。此外，玻璃纖維本身（亦即主橫截面軸與次橫截面軸之比率為大於 2 之圓形、扁平或多邊形纖維）亦可具有胺基矽烷塗層或環氧矽烷塗層。

【0045】 用切斷纖維增強之聚醯胺-醯亞胺成型化合物可藉由已知混配方法製備，其中將切斷纖維（尤其離玻璃）與成型化合物之其他成分一起計量於饋料裝置中。或者，亦可藉助於擠壓機外殼中接近排出口配置的主動傳送器將切斷纖維分別引入聚合物熔融物中。

【0046】 用無端纖維增強之聚醯胺-醯亞胺成型化合物可藉由用於製備用長纖維增強之桿狀顆粒的已知方法製備，尤其藉由拉擠成形法，其中用聚合物熔融物使無端纖維束（粗紗）完全飽和，隨後冷卻且切斷。

【0047】 以此方式獲得之顆粒長度較佳為 3 至 25 mm、尤其 4 至 12 mm 的用長纖維增強之桿狀顆粒可藉助於習知處理方法（諸如射出成形、壓製）進一步處理以形成成型部件，其中使用溫和處理方法可使模型部件具有尤其較佳特性。用於拉擠成形法之無端碳纖維的直徑為 5 至 10 μm ，較佳為 6 至 8 μm 。無端碳纖維可單獨使用或與無端玻璃纖維（圓形及/或非圓形橫截面）組合使用。

【0048】 作為另一成分，熱塑性成型化合物可較佳含有微粒填充劑或兩種或兩種以上不同填充劑之混合物，其可與增強劑組合。舉例而言，可考慮基於滑石、雲母、矽酸鹽、石英、二氧化鈦、矽灰石、高嶺土、非晶形矽酸、碳酸鎂、氫氧化鎂、白堊、石灰、長石、硫酸鋇、實心或空心玻

璃球或毛玻璃、永久磁性或可磁化金屬化合物及/或合金之微粒填充劑。填充劑亦可經表面處理。

【0049】 另外，成型化合物可含有濃度至多為 50 重量%之穩定劑、處理助劑及衝擊韌性改質劑以及其他添加劑（成分 F3）。在另一具體實例中，根據本發明之成型化合物含有至多 45 重量%之一或多種衝擊韌性改質劑（ITM）。在 5 與 30 重量%之間範圍內的 ITM 濃度為較佳。

【0050】 上文所提及之視情況存在之添加劑（成分 F3）可尤其為無機穩定劑、有機穩定劑（諸如 UV 穩定劑、熱穩定劑）、自由基清除劑及/或處理助劑、成核劑、塑化劑、潤滑劑、染料、金屬顏料、金屬微粒、塗佈金屬之粒子、含鹵素阻燃劑、無鹵素阻燃劑、衝擊韌性改質劑、抗靜電劑、導電添加劑、脫模劑、光學增亮劑、天然層狀矽酸鹽、合成層狀矽酸鹽或其他聚合物或其組合或混合物。另外，成型化合物可含有提高折射率之奈米級填充劑及/或功能性物質（諸如層狀礦物或金屬氧化物）。舉例而言，碳黑及/或碳奈米管、石墨或金屬粒子或金屬纖維可用作根據本發明之成型化合物中之抗靜電劑。舉例而言，高嶺土、蛇紋石、滑石、雲母、蛭石、伊利石、膨潤石、蒙脫石、水輝石、雙氫氧化物或其混合物可用作根據本發明之成型化合物中之層狀矽酸鹽。層狀矽酸鹽可經表面處理或可未經處理。舉例而言，抗氧化劑、抗臭氧化劑、光穩定劑、UV 穩定劑、UV 吸收劑或 UV 阻斷劑可用作根據本發明之成型化合物中之穩定劑或抗老化劑。

【0051】 本發明另外係關於一種具有至少一個由上文指定之根據本發明之聚醯胺-醯亞胺成型化合物組成的區域或層之低濁度物件。此處，物件較佳為膜、插入部件、剖面（profile）、管、空心體或光學可變濾光片，或尤其較佳為光學透鏡，尤其較佳為眼用透鏡。此處，在本發明之情形中，光透射率為至少 80%，較佳至少 85%且尤其較佳至少 88%。

【0052】 應瞭解在此處，如上文已提及，屬於本文範疇內之光透射率值總根據 ASTM D1003 方法（光類型 CIE-C）測定。此處，在下文詳細說明之實驗中使用名稱爲 Haze Guard Plus 之裝置（BYK Gardner（DE））在尺寸量測爲 60×60×2 mm 之盤上量測光透射率。透射率值針對根據 CIE-C 定義之可見光波長範圍（亦即基本強度約在 400 與 770 nm 之間）來指定。出於此目的，例如使用 Arburg 射出成形機在拋光模具中製造尺寸量測爲 60×60×2 mm 之盤，其中料筒溫度在 200 與 340°C 之間且模具溫度在 20 與 140°C 之間。

【0053】 詳言之，對於高品質光學應用，例如作爲透鏡，由聚醯胺-醯亞胺成型化合物形成之物件的玻璃轉移點高於 100°C、較佳高於 120°C、尤其較佳高於 140°C 據證明爲有利的。

【0054】 最後，本發明因此亦關於前述成型化合物用於製造成型物品之用途。在此情況下，成型物品較佳選自由以下組成之群組：電機工程、電子學、動力工程及驅動技術、機械工程、汽車工程、傢俱、運動、衛生、保健、媒體工程、運輸、電信、消費電子、家庭用具或電學工具領域中藉由射出成形、擠壓或其他成形技術製造的定製配合部件、可相對於彼此移動之部件、功能元件、操作元件、追蹤元件（tracking element）、調節元件、支撐元件、框架元件、轉換器及外殼，例如汽車座艙區中之儀錶板、縫紉機之框架組件、行動電話外殼、膝上型電腦或筆記型電腦之外殼或框架部件。所建議之聚醯胺-醯亞胺成型化合物亦可例如用作具有濾光器作用之元件（諸如眼鏡之透鏡、太陽鏡之透鏡、校正透鏡、光學濾光片）的組件或塗層，及用作光信號處理之轉換單元、滑雪護目鏡、安全罩、護目鏡、光記錄器（photo recording）、顯示器、光學資料儲存媒體、建築物及交通工具之窗戶等。另一方面，其亦可與裝飾性元件或結構元件結合使用，諸如眼鏡框架、玩具及覆蓋物，尤其作爲行動電話外殼、電子裝置之部件、塗層，尤其用於包裝、裝飾性物品、運動設備、衣服及較佳汽車領域。

【0055】 其他具體實例在隨附技術方案中進行指定。

【圖式簡單說明】

【0056】 無

【實施方式】

【0057】 特定實施例(B)將在下文中指定且與比較實施例(VB)比較且進行論述。該等實施例意欲支持本發明之實用性且展現發明性步驟，但不應解釋為限制申請專利範圍中所制定的總體發明。

【0058】 根據以下標準且對以下測試標本進行量測。

【0059】 根據 ISO 527 以 1 mm/min 之應變率測定拉伸彈性模數，根據 ISO 527 以 50 mm/min 之應變率(未增強變體)或 5 mm/min 之應變率(增強變體)在 23°C 之溫度下測定降伏應力、撕裂強度及撕裂伸長率，其中使用 ISO 張力桿作為測試標本，標準：ISO/CD 3167，A1 型，1.70×20/10×4 mm。

【0060】 由 Charpy 根據 ISO 179 對 ISO 測試桿量測衝擊韌性及缺口韌性，標準：ISO/CD 3167，B1 型，80×10×4 mm，在 23°C 下。

【0061】 基於 ISO 標準 11357-11-2 對顆粒測定熱性能(玻璃轉移溫度(T_g))。以 20°C/min 之加熱速率進行差示掃描熱量測定(DSC)。指定中間階段或拐點之溫度為玻璃轉移溫度(T_g)。

【0062】 根據 DIN EN ISO 307 基於 0.5 重量%間甲酚溶液在 20°C 下量測相對黏度(η_{rel})。使用顆粒作為標本。根據 ISO 75 對尺寸量測為 80×10×4 mm 之 ISO 衝擊桿測定熱撓曲溫度 HDT A (1.8 MPa)。

【0063】 在 23°C 下使用 Haze-Gard Plus (Byk-Gardener) 根據 ASTM D-1003 (光類型 C) 對尺寸量測為 60×60×2 mm 之盤測定濁度及透射率。

【0064】 使用阿貝折射儀(Zeiss)在日光中對尺寸量測為 50×30×3 mm 之彩色盤測定折射率及阿貝數。應瞭解，折射率為 n_D^{20} 值。藉助於列線圖測定阿貝數以測定平均色散，且使用阿貝折射儀測定 K 及折射率 n_D^{20} 之值。

【0065】 在 95°C 下於水中儲存 96 小時後對張力桿測定吸水性。

【0066】 根據 ISO 2813 使用 Multi Gloss 268 光澤計 (Minolta) 在 60° 之角度下進行光澤量測 (光澤 60°)。

【0067】 根據 DIN 53449, 第 3 部分「彎帶法 (bent strip method)」對 ISO 張力桿測定抗應力裂紋, 標準: ISO/CD 3167, A1 型, 170×20/10×4 mm, 在 23°C 下。將在介質中浸泡 60 秒後肉眼可見裂紋時的外部纖維伸長率 (%) 藉由乘以欲量測材料之拉伸彈性模數 (乾燥, MPa) 轉化為應力, 其在表中進行指定。

【0068】 實施例 B1 至 B7

【0069】 將內醯胺或胺基羧酸及偏苯三甲酸酐以及穩定劑及水引入 201 高壓釜中且加熱至 290°C 之產物溫度 (在胺基羧酸之情況下為 260°C)。在攪拌下維持 3.5 小時後, 藉由將高壓釜之壓力降至正常壓力終止加壓階段。隨後將產物溫度降至 260°C 且在氮氣氛圍下攪拌熔融物 1.5 小時。隨後添加二胺及可利用之其他二羧酸。在氮氣下攪拌混合物直至達成預定扭矩。隨後經由噴嘴排出聚合物熔融物, 在水浴中冷卻且粒化。在 80°C 下及在 30 毫巴之真空下乾燥聚縮合物 24 小時。

【0070】 實施例 B8 至 B10 及 VB3 及 VB4:

【0071】 將實施例 B1 及 B2 之先前製備之聚醯胺-醯亞胺以及 Grilamid TR90 與表 3 中指定之成分一起在螺桿直徑為 25 mm 之雙螺桿擠壓機 (Werner and Pfleiderer) 中在預定處理參數 (料筒溫度: 100-280°C; 螺桿轉速: 200 rpm; 處理量: 10 kg/h) 下混配。自直徑為 3 mm 之模具移出呈絲束形式之產物且在水冷卻後粒化。在 80°C 下在 30 毫巴之真空下經 24 小時乾燥顆粒。

【0072】 處理:

【0073】 使用 Arburg Allrounder 320-210-750 射出成形機在 240 至 280°C 之料筒溫度 (區域 1 至 4) 下且在 80°C 之模具溫度下使 B1 至 B7 之聚

醯胺-醯亞胺、VB1 及 VB2 之聚醯胺以及 B8 至 B10 及 VB3 及 VB4 之化合物射出成形，形成測試標本。

表 1：實施例 B1 至 B5 之組成及特性

	單位	B1	B2	B3	B4	B5
莫耳比 A:B:C	-	1:1:1	1:1:1	1:2:1	1:1:1	1:2:1
TMA	重量%	31.71	31.50	23.86	30.41	23.06
月桂內醯胺	重量%	32.57				
胺基十二烷酸	重量%					
胺基十一烷酸	重量%		33.01	50.01	31.86	48.32
硬脂胺	重量%	1.00	1.00			
PACM	重量%	34.72	34.49	26.13		
MACM	重量%				37.73	28.62
特性						
溶液黏度 (η_{rel})	-	1.58	1.57	1.63	1.53	1.74
拉伸彈性模數	MPa	1950	2050	1770	2030	1840
降伏應力	MPa	68	71	59	77	64
撕裂強度	MPa	47	57	45	62	46
撕裂伸長率	%	70	80	110	80	100
23°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
-30°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
23°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	13	12	12	11	11
-30°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	13	10	13	10	10
玻璃轉移溫度	°C	140	145	105	159	120
吸水性	%	2.4	2.6	2.7	2.3	2.7
透射率	%	88	90	90	90	90
濁度	%	3.2	1.4	2.5	1.5	3.1
光澤 60°		143	146	136	145	120
阿貝數		34	33	30	35	40
折射率		1.5491	1.5551	1.5387	1.5523	1.5363
抗應力裂紋						
甲醇	MPa	58	59	n.d.	60	n.d.
乙醇	MPa	79	80	n.d.	80	n.d.

n.d.：未測定

n.b.：未破裂

表 2：實施例 B6 及 B7 及比較實施例 VB1 及 VB2 之組成及特性

	單位	B6	B7	VB1	VB2
莫耳比 A:B:C		A:B:D:C = 0.7:0.7:0.3:1	A:B:C = 1:1:1		
TMA	重量%	23.98	29.29	Grilamid TR90	Grilamid TR55
月桂內鹽胺	重量%	24.63	30.08		
胺基十二烷酸	重量%				
胺基十一烷酸	重量%				
間苯二甲酸	重量%	8.89			
TMDC	重量%		40.63		
MACM	重量%	42.51			
特性					
溶液黏度 (η_{rel})	-	1.53	1.50	1.78	1.75
拉伸彈性模數	MPa	2250	2130	1600	2200
降伏應力	MPa	72	58	60	75
撕裂強度	MPa	70	55	45	50
撕裂伸長率	%	>50	>50	>50	>50
23°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
-30°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	n.b.	n.b.	n.b.	n.b.
23°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	11	12	13	8
-30°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	10	10	12	7
玻璃轉移溫度	°C	173	166	155	160
熱撓曲溫度 HDT/A	°C	140	135	115	130
吸水性	%	2.6	2.4	2.6	2.2
透射率	%	90	90	93	90
濁度	%	2.2	1.8	1	1
抗應力裂紋					
甲醇	MPa	n.d.	60	60	0
乙醇	MPa	n.d.	85	60	0

n.d.：未測定

n.b.：未破裂

表 3：實施例 B8 至 B10 及比較實施例 VB3 及 VB4 之組成及特性

	單位	B8	VB3	B9	B10	VB4
PAIB1	重量%			30.5		
PAIB2	重量%	79.65			30.5	
Grilamid TR90	重量%		79.65			30.5
玻璃纖維 10 μ m	重量%	20.0	20.0			
玻璃纖維 6 μ m	重量%			53.0	53.0	53.0
Grilamid L20	重量%			12.5	12.5	12.5
Irganox 1098	重量%	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
Hostanox PAR24	重量%	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1

白色顏料	重量%			3.65	3.65	3.65
特性						
拉伸彈性模數	MPa	5900	5100	16100	16000	14300
降伏應力	MPa	119	106	179	183	169
撕裂強度	MPa	118	106	179	183	169
撕裂伸長率	%	4.1	4.0	2.2	2.2	2.5
23°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	48	52	49	54	62
-30°C 下之衝擊韌性	kJ/m ²	40	45	42	36	54
23°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	11	12	12	12	14
-30°C 下之缺口韌性	kJ/m ²	10	10	10	10	11
玻璃轉移溫度	°C	145	155	140	145	155
熱撓曲溫度 HDT/A	°C	110	95	115	120	104
透射率	%	77	70	n.d.	n.d.	n.d.

n.d.：未測定

n.b.：未破裂

Grilamid TR90：透明聚醯胺 PA MACM12 (EMS-CHEMIE)

Grilamid TR55：透明聚醯胺 PA MACMI/12 (EMS-CHEMIE)

Grilamid L20 具有平均黏度之聚醯胺 PA 12 (EMS-CHEMIE)

玻璃纖維 10 μ m Vetrotex 995 EC10-4.5，具有 10 μ m 直徑之圓形橫截面及 4.5 mm 之平均長度的玻璃纖維 (Vetrotex)。

玻璃纖維 6 μ m OC Micromax 771-6，具有 6 μ m 直徑之圓形橫截面及 3 mm 之平均長度的玻璃纖維 (Owens Corning)。

白色顏料 硫化鋅 Sachtolith HDS (Sachtleben)

Irganox 1098 酚系抗氧化劑 (BASF)

Hostanox PAR24 含亞磷酸酯之抗氧化劑 (Clariant)

【0074】 相較於透明聚醯胺 (諸如 VB1)，根據本發明之聚醯胺-醯亞胺 B1 至 B5 具有較大剛性及類似韌性 (衝擊韌性、缺口韌性、撕裂伸長率)，但玻璃轉移溫度降低。

【0075】 當比較聚醯胺-醯亞胺 B6 及 B7 與類似剛性透明聚醯胺 VB2 時，很明顯根據本發明之聚醯胺-醯亞胺具有較高缺口韌性及大大改良之抗應力裂紋。

【0076】 在用玻璃纖維增強之成型化合物 (諸如 B8、B9 及 B10) 的

情況下，已發現相較於基於透明聚醯胺 VB3 及 VB4 之成型化合物，所建議之基於聚醯胺-醯亞胺之成型化合物具有較大剛性、較大強度及較高熱撓曲溫度 HDT/A，但玻璃轉移溫度降低。此處，同時達成透明聚醯胺之高韌性。

【0077】 未增強之聚醯胺-醯亞胺 B1 至 B7 在 2 mm 厚度之盤上量測的透射率高達 90%，因此完全處於透明聚醯胺 VB1 及 VB2 之水準。使用實驗室系統製備之聚醯胺-醯亞胺的濁度略高於以工業規模製備之透明聚醯胺的水準。製備製程之進一步最佳化使得所建議之聚醯胺-醯亞胺獲得類似於透明聚醯胺之濁度。

【0078】 尤其對於僅小程度增強之成型化合物，由於基於聚醯胺-醯亞胺之成型化合物的基質與玻璃纖維的折射率之間的差異較小，故產生較大透射率（比較 B8 與 VB3）。

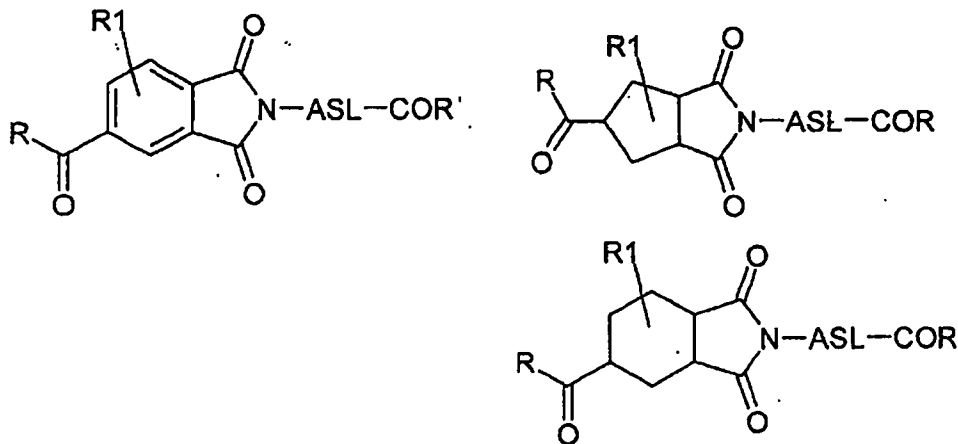
【符號說明】

【0079】

無

申請專利範圍

1. 一種基於一或多種不同亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物及包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺 (C) 的透明聚醯胺-醯亞胺，其中該等亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物係選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸 (AB) 之群組：



其中：

ASL = $(\text{CH}_2)_{5-11}$ 、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

R = OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基，

R1 = H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為該環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，該兩個取代基可選自該群組，但可不同；

其限制條件為該透明聚醯胺-醯亞胺不含如下構築嵌段，其中該等環脂族二胺 (C) 之至少一個胺基形成對應於該等亞胺基-二羧酸 (AB) 之亞胺基-胺基羧酸的亞胺基成分，且其中該等環脂族二胺 (C) 置換其中之結構成分 N-ASL-COR，

且其限制條件為該透明聚醯胺-醯亞胺不含芳族二胺。

2. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為其僅基於

二酸部分，其僅基於

20-100 mol-%該等亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物中之一或多者

0-80 mol-%至少一種不同於該等亞胺基-二羧酸（AB）之其他二酸（D），

其中該等二酸部分補足至 100 mol-%；

及二胺部分，其僅基於

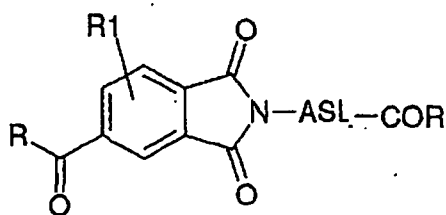
20-100 mol-%該等包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺（C）中之至少一者，

0-80 mol-%至少一種不同於該等環脂族二胺（C）之其他非芳族二胺（E），

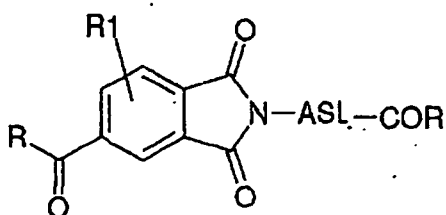
其中該等二胺部分補足至 100 mol-%。

3. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為其僅基於該等亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物中之一或多者及該等包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺（C）。

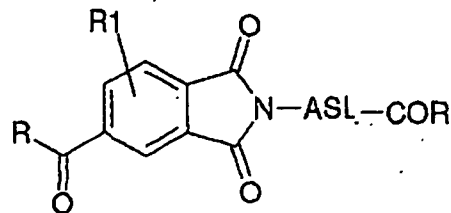
4. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺中之至少一種亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物對應於以下結構式：



5. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺中之全部比例之亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物對應於以下結構式：



6. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺中之至少一種亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物對應於以下結構式：



其中， $R1 = H$ ，及/或 $ASL = (CH_2)_{5-11}$ ，及/或 $R = OH$ 、 $NH-ASL-COOH$ 。

7. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物係選自由以下組成之群組：偏苯三甲酸亞胺基-己酸、偏苯三甲酸亞胺基-十一烷酸、偏苯三甲酸亞胺基-十二烷酸或其衍生物，其中 $R = O$ -烷基、 O -芳基、 Cl 、 Br 、 $NH-ASL-COOH$ 、 $O-(CO)$ -烷基、 $O-(CO)$ -芳基或其混合物。

8. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為至少部分形成該亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物的環脂族或芳族三羧酸（A）或其衍生物（該衍生物可呈醯氯、酯或酸酐形式）係選自由以下組成之群組：環戊烷-1,2,4-三羧酸、2-甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、3-甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、3,5-二甲基-環戊烷-1,2,4-三羧酸、環己烷-1,2,4-三羧酸、2-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、3-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、4-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、5-甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、1,2-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、3,5-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸、2,4-二甲基-環己烷-1,2,4-三羧酸或其混合物。

9. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為在該整個聚醯胺-醯亞胺中，

至少部分形成該亞胺基-二羧酸（AB）或其衍生物的環脂族或芳族三羧酸（A）或其衍生物，或在不同環脂族或芳族三羧酸（A）或其衍生物之混合物的情況下此等三羧酸之總和，

與

至少部分形成該亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物的胺基羧酸或內醯胺 (B), (形成為包含 6-12 個碳原子之脂族胺基羧酸或脂族內醯胺 (B)) 或在不同的該等胺基羧酸或內醯胺 (B) 之混合物的情況下此等系統之總和

的莫耳比在 1:2.5 至 1:1 範圍內, 或在 1:2 至 1:1 範圍內, 或在 1:1.5 至 1:1 範圍內或約為 1:1 之範圍。

10. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺, 其特徵為該環脂族二胺 (C) 係選自由以下組成之群組: 雙(4-胺基-3-甲基-環己基)-甲烷 (MACM)、雙(4-胺基-環己基)-甲烷 (PACM)、雙(4-胺基-3-乙基-環己基)-甲烷 (EACM)、雙(4-胺基-3,5-二甲基-環己基)-甲烷 (TMDC)、2,6-降冰片烷二胺或 2,6-雙(胺基甲基)-降冰片烷或 1,3-環己基二胺、1,4-環己基二胺、雙(1,3-胺基甲基)環己烷、異佛酮二胺、環己烷二胺、1,3-雙(胺基甲基)環己烷、1,4-雙(胺基甲基)環己烷、異佛酮二胺、降冰片烷二甲胺、2,2-(4,4'-二胺基二環己基)丙烷 (PACP) 或此等環脂族二胺之混合物。

11. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺, 其特徵為在該聚醯胺-醯亞胺中,

至少一種亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物, 或在不同亞胺基-二羧酸 (AB) 或其衍生物之混合物的情況下此等二羧酸之總和,

與

該環脂族二胺 (C), 或在不同環脂族二胺 (C) 之混合物的情況下此等二胺之總和

的莫耳比在 1.5:1 至 1:1.5 範圍內, 或為 1:1

及/或其特徵為該聚醯胺-醯亞胺基於至少一種不同於該成分 (AB) 之其他二酸 (D) 形成, 其中在該整個聚醯胺-醯亞胺中, 由該成分 (AB) 形成

之二酸比例佔至少 20 mol%，或在 80 mol%至 20 mol%範圍內，或為 30 至 70 mol%，且構成 100 mol%之其餘成分藉由該成分（D）形成，其中該成分（D）係選自以下群組：雙官能、脂族、環脂族或芳族二羧酸，其選自己二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十一烷二酸、十二烷二酸、十三烷二酸、十四烷二酸、十五烷二酸、十六烷二酸、十七烷二酸、十八烷二酸、C36-二聚體脂肪酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、萘二羧酸、順-及/或反-環己烷-1,4-二羧酸及/或順-及/或反-環己烷-1,3-二羧酸（CHDA）及其混合物之群組為較佳。

12. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺基於至少一種不同於該成分（AB）之其他二酸（D）形成，其中在該整個聚醯胺-醯亞胺中，由該成分（AB）形成之二酸比例佔至少 20 mol%，或在 80 mol%至 20 mol%範圍內，或為 30 至 70 mol%，且構成 100 mol%之其餘成分藉由該成分（D）形成，其中該成分（D）係選自以下群組：包含 2 至 36 個碳原子或包含 6 至 18 個碳原子之雙官能、脂族、環脂族或芳族二羧酸，或其中該成分（D）係選自以下群組：己二酸、辛二酸、壬二酸、癸二酸、十一烷二酸、十二烷二酸、十三烷二酸、十四烷二酸、十五烷二酸、十六烷二酸、十七烷二酸、十八烷二酸、C36-二聚體脂肪酸、間苯二甲酸、對苯二甲酸、萘二羧酸、順-及/或反-環己烷-1,4-二羧酸及/或順-及/或反-環己烷-1,3-二羧酸（CHDA）及其混合物。

13. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺基於至少一種不同於該成分（C）之其他二胺（E）形成，其中在該整個聚醯胺-醯亞胺中，由該成分（C）形成之二胺比例佔至少 20 mol%，或在 80%至 20 mol%範圍內，或為 30 至 70 mol%，且構成 100 mol%之其餘成分藉由該成分（E）形成，其中該成分（E）選自以下群組：1,4-丁二胺、1,5-戊二胺、2-甲基-1,5-戊二胺、2-丁基-2-乙基-1,5-戊二胺、1,6-己二胺、2,2,4-三甲基己二胺、2,4,4-三甲基己二胺、1,8-辛二胺、2-甲基-1,8-辛二胺、1,9-壬二胺、

1,10-癸二胺、1,11-十一烷二胺、1,12-十二烷二胺、1,13-十三烷二胺、1,14-十四烷二胺、1,15-十五烷二胺、1,16-十六烷二胺、1,17-十七烷二胺、1,18-十八烷二胺、間二甲苯二胺及對二甲苯二胺或其混合物。

14. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該亞胺基-二羧酸（AB）係選自由以下組成之群組：偏苯三甲酸亞胺基-己酸、偏苯三甲酸亞胺基-十一烷酸、偏苯三甲酸亞胺基-月桂酸或其混合物，且其特徵為該環脂族二胺（C）係選自由以下組成之群組：雙(4-胺基-3-甲基-環己基)-甲烷（MACM）、雙(4-胺基-環己基)-甲烷（PACM）或其混合物，其中在該聚醯胺-醯亞胺中，亞胺基-二羧酸（AB）或在不同亞胺基-二羧酸（AB）之混合物的情況下，此等二羧酸之總和與該環脂族二胺（C）或在不同環脂族二胺（C）之混合物的情況下此等二胺之總和的莫耳比實質上為 1:1。

15. 如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺，其特徵為該聚醯胺-醯亞胺基於至少一種不同於該成分（AB）之其他二酸（D）形成，且此其他二羧酸（D）為對苯二甲酸、間苯二甲酸、己二酸或環己烷-1,3-二羧酸或其混合物。

16. 一種基於如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺的成型化合物，其特徵為以下組成：

- (F1) 30-100 重量%至少一種如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺
 - (F2) 0-70 重量%、或 10-70 重量%、或 20-60 重量%增強劑及/或填充劑
 - (F3) 0-50 重量%添加劑及/或不同於該聚醯胺-醯亞胺之其他聚合物，
- 其中該等成分 F1 至 F3 一起為 100%。

17. 如申請專利範圍第 16 項之成型化合物，其特徵為作為成分（F2），添加纖維及/或微粒增強劑及/或填充劑，為玻璃纖維、碳纖維、金屬或塑膠纖維形式，其中此等纖維具有圓形或扁平橫截面；基於滑石、雲母、矽酸鹽、石英、二氧化鈦、矽灰石、高嶺土、非晶形矽酸、碳酸鎂、氫氧化鎂、

白堊、石灰、長石、硫酸鋇、實心或空心玻璃球或毛玻璃、永久磁性或可磁化金屬化合物及/或合金之微粒填充劑，其中該等填充劑經表面處理或未經表面處理。

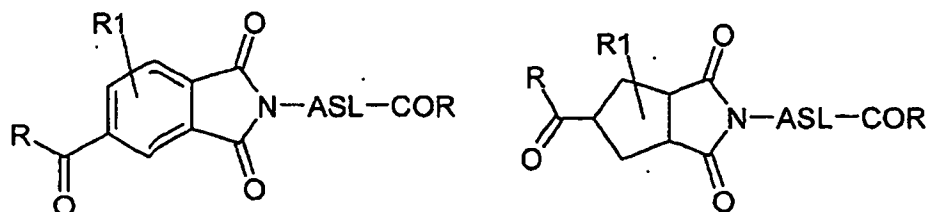
18. 如申請專利範圍第 16 項或第 17 項之成型化合物，其特徵為作為成分 (F3)，含有穩定劑、成核劑、處理助劑及/或衝擊韌性改質劑。

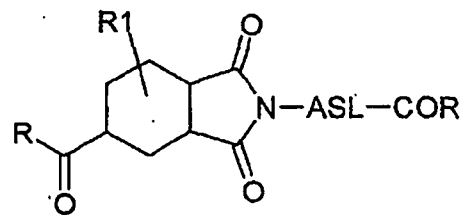
19. 如申請專利範圍第 16 項或第 17 項之成型化合物，其特徵為作為成分 (F3)，含有穩定劑、成核劑、處理助劑及/或衝擊韌性改質劑，及/或其中含有至多 45 重量%的一或多種衝擊韌性改質劑，或在 5 與 30 重量%之間範圍內。

20. 一種具有至少一個由如申請專利範圍第 16 項至第 17 項中任一項之成型化合物形成的區域或層之物件，其中該物件為膜、插入部件、剖面、管、空心體、光學可變濾光片、光學透鏡。

21. 一種具有至少一個由如申請專利範圍第 16 項至第 17 項中任一項之成型化合物形成的區域或層之物件，其中該物件為光學可變濾光片、光學透鏡，或為眼用透鏡，且其中光透射率為至少 80%，或至少 85%或至少 88%。

22. 一種製備如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺的方法，其特徵為，在第一反應步驟中，以具有至少兩個鄰位羧基之相應環脂族或芳族三羧酸 (A) 或其衍生物及胺基羧酸或內醯胺 (B) 作為起始物形成選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸 (AB) 之群組的亞胺基-二羧酸 (AB)：





其中：

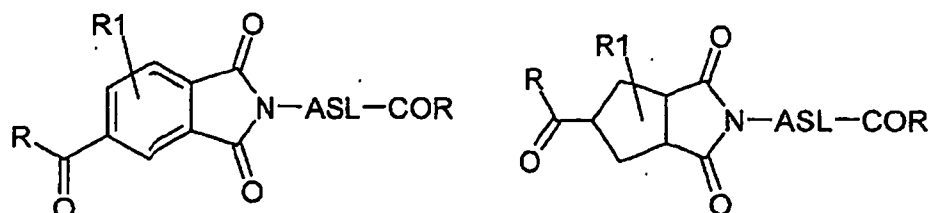
ASL = $(\text{CH}_2)_{5-11}$ 、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

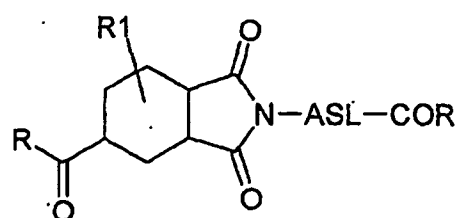
R = OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基，

R1 = H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，該兩個取代基可選自該群組，但可不同

且在第二後續及分開步驟中，使此等亞胺基-二羧酸(AB)或其衍生物與包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺(C)及視情況存在之不同於該成分(AB)之其他二酸(D)及/或不同於該成分(C)之其他二胺(E)反應，形成該聚醯胺-醯亞胺。

23. 一種製備如申請專利範圍第 1 項之聚醯胺-醯亞胺的方法，其特徵為，在第一反應步驟中，以具有至少兩個鄰位羧基之相應環脂族或芳族三羧酸(A)或其衍生物及胺基羧酸或內醯胺(B)作為起始物形成選自具有以下結構式之亞胺基-二羧酸(AB)之群組的亞胺基-二羧酸(AB)：





其中：

ASL = $(\text{CH}_2)_{5-11}$ 、伸苯基、(亞甲基)苯基、雙(亞甲基)苯、環己二基、(亞甲基)環己基、雙(亞甲基)環己烷、環戊二基、(亞甲基)環戊基、雙(亞甲基)環戊烷，

R = OH、O-烷基、O-芳基、Cl、NH-ASL-COOH、Br、O-(CO)-烷基、O-(CO)-芳基，

R1 = H、甲基、乙基、丙基，其限制條件為環可經取代一次或兩次，且在對該環進行雙取代之情況下，該兩個取代基可選自該群組，但可不同

且在第二後續及分開步驟中，使此等亞胺基-二羧酸(AB)或其衍生物與包含 6 至 24 個碳原子之環脂族二胺(C)及視情況存在之不同於該成分(AB)之其他二酸(D)及/或不同於該成分(C)之其他非芳族二胺(E)反應，形成該聚醯胺-醯亞胺。