



(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 I500701 B

(45)公告日：中華民國 104 (2015) 年 09 月 21 日

(21)申請案號：102133455

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 09 月 16 日

(51)Int. Cl. : C08L79/08 (2006.01) C07C267/00 (2006.01)

(30)優先權：2012/10/08 美國 61/710,791

(71)申請人：羅門哈斯公司 (美國) ROHM AND HAAS COMPANY (US)
美國(72)發明人：士潘西 喬瑟夫 J ZUPANCIC, JOSEPH J. (US)；維耶帝 大衛 E VIETTI, DAVID
E. (US)；布林克曼 拉蕊 F BRINKMAN, LARRY F. (IN)；雅各布斯 布拉德利
安森 JACOBS, BRADLEY ANSON (US)；瑪琳 阿邁瑞 阿弗瑞 MARINE,
AMIRA AVRIL (US)

(74)代理人：洪武雄；陳昭誠

(56)參考文獻：

EP 1593728A2

JP S61-40354A

審查人員：張展瑋

申請專利範圍項數：10 項 圖式數：0 共 27 頁

(54)名稱

芳香族碳二醯亞胺之固化

CURING OF AROMATIC CARBODIIMIDES

(57)摘要

一種用於聚合芳香族多官能碳二醯亞胺之方法，該方法係於溫度 15°C 至 90°C，使芳香族多官能碳二醯亞胺與羧酸鹽接觸。

A method for polymerizing an aromatic multi-functional carbodiimide by contacting the aromatic multi-functional carbodiimide with a carboxylic acid salt at a temperature from 15°C to 90°C.

發明摘要

※ 申請案號：102133455

C08L79/08(2006.01)

※ 申請日：102.9.16

※IPC分類：C07C267/00(2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

芳香族碳二醯亞胺之固化

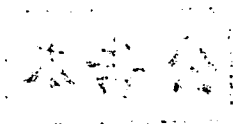
CURING OF AROMATIC CARBODIIMIDES

【中文】

一種用於聚合芳香族多官能碳二醯亞胺之方法，該方法係於溫度 15℃ 至 90℃，使芳香族多官能碳二醯亞胺與羧酸鹽接觸。

【英文】

A method for polymerizing an aromatic multi-functional carbodiimide by contacting the aromatic multi-functional carbodiimide with a carboxylic acid salt at a temperature from 15 °C to 90 °C.



【代表圖】

【本案指定代表圖】：本案無圖式。

【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】：

本案無化學式。

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)

芳香族碳二醯亞胺之固化

CURING OF AROMATIC CARBODIIMIDES

【技術領域】

【0001】 本發明概括而言係有關於低溫固化芳香族碳二醯亞胺之方法。

【先前技術】

【0002】 芳香族碳二醯亞胺之固化方法為普遍悉知。舉例而言，G.C. Robinson, *J. Poly. Sci, Part A.*, Vol. 2, 3901-3908(1964)揭示藉由使用濕敏有機金屬催化劑或藉由加熱至高溫之碳二醯亞胺聚合反應。

【0003】 然而，仍需要更具有商業用途之固化碳二醯亞胺之替代方法。

【發明內容】

【0004】 本發明係有關芳香族多官能碳二醯亞胺之聚合方法；該方法包括於溫度 15℃ 至 90℃，使芳香族多官能碳二醯亞胺與羧酸鹽接觸。

【0005】 本發明進一步係有關包含碳二醯亞胺預聚物與羧酸鹽之可固化之樹脂組成物；其中，碳二醯亞胺預聚物之每一碳二醯亞胺基團鄰接兩個芳香族取代基。

【圖式簡單說明】

無。

【實施方式】

【0006】 除非另行指示，否則所有百分比為重量百分比(wt%)，而所有溫度單位為℃。除非另行指示，否則聚合物組成之百分比係以固體計，亦即，不包括溶劑。“多官能”意指每一分子或聚合物鏈具有一個以上的異氰酸酯或碳二醯亞胺基團。“芳香族多官能碳二醯亞胺”係任何碳二醯亞胺，其平均碳二醯亞胺官能度至少為 1.2 且每一碳二醯亞胺基團鄰接兩個芳香族取代基，亦即，其中每一個碳二醯亞胺基團為 $-Ar-N=C=N-Ar-$ 結構之一部分(其中，Ar 為二官能芳香族取代基，例如， $-C_6H_4-CH_2-C_6H_4-$)。芳香族取代基為具有至少一個芳香族環及六至二十個碳原子者。較佳之芳香族多官能碳二醯亞胺及碳二醯亞胺預聚物包括衍生自二苯基甲烷二異氰酸酯(MDI)與甲苯二異氰酸酯(TDI)之異氰酸酯封端之預聚物，較佳為衍生自 MDI 預聚物以及多元醇者。TDI 係指以此名稱出售之市售產品，其主要為 2,4-異構物、少量 2,6-異構物與可能之其他異構物。MDI 可為 4,4'與 2,4'異構物之混合物。

【0007】 較佳地，該芳香族多官能碳二醯亞胺之平均碳二醯亞胺官能度為 1.2 至 10，較佳為 1.3 至 6，較佳為 1.4 至 5，較佳為 1.5 至 4。較佳地，該芳香族多官能碳二醯亞胺係碳二醯亞胺預聚物。較佳地，該芳香族多官能碳二醯亞胺之碳二醯亞胺含量(亦即，以固體計，化合物或聚合物鏈中之碳二醯亞胺基團($-N=C=N-$)之量)為 0.5 wt%至 6 wt%，較佳為 1 wt%至 5 wt%，較佳為 2 wt%至 5 wt%。

【0008】 較佳地，本發明之碳二醯亞胺預聚物含有：(i)芳香族多官能異氰酸酯與脂族多元醇的聚合殘基、(ii)碳二醯亞胺基團，以及(iii)具有脂族取代基之胺甲酸乙酯基團。該預聚物中可存在游離之芳香族多官能異氰酸酯。較佳地，該碳二醯亞胺預聚物之平均碳二醯亞胺官能度為 1.2 至 10，較佳為 1.8 至 6，較佳為 2 至 5。較佳地，該碳二醯亞胺預聚物之碳二醯亞胺含量為 0.5 wt% 至 6 wt%，較佳為 1 wt% 至 5 wt%，較佳為 2 wt% 至 5 wt%。較佳地，該預聚物係由芳香族多官能異氰酸酯與脂族多元醇形成異氰酸酯封端之預聚物所產生，隨後利用催化劑使 25 至 75% (較佳為 30 至 50%，較佳為 35 至 45%) 之異氰酸酯基團轉化為碳二醯亞胺基團，接著使催化劑去活化，最後，實質上使所有殘留之異氰酸酯基團與脂族醇反應形成具有脂族取代基之胺甲酸乙酯基團。此異氰酸酯基團成為碳二醯亞胺基團之部分轉化使預聚物中之 wt% 異氰酸酯從初始範圍 5 wt% 至 17 wt% (較佳為 6 wt% 至 15.5 wt%) 異氰酸酯基團降低至最終範圍 4 wt% 至 10 wt% (較佳為 6 wt% 至 9 wt%) 異氰酸酯。較佳地，所有該等步驟係於 25°C 至 110°C，較佳為 40°C 至 100°C，較佳為 50°C 至 95°C 之溫度範圍內進行。較佳地，該催化劑為環狀磷化合物，例如，經取代之磷雜環戊烯 (phospholene)-1-氧化物、磷雜環丁烷 (phosphetane) 4-氧化物或 1,3-二氮雜磷啉 (phospholidine) 氧化物，較佳為 1,3-二甲基磷雜環戊烯 (phospholine)-1-氧化物、1-乙基-3-甲基磷雜環戊烯-1-氧化物、1-苯基-3-甲基磷

雜環戊烯-1-氧化物、1-苯基磷雜環戊烯-1-氧化物、1,3,2-二氮雜磷啖-2-氧化物或 3-甲基-1-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物。較佳地，催化劑係 3-甲基-1-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物。較佳地，催化劑係利用添加三甲基矽烷基化合物或路易士酸，較佳為參(三甲基矽烷基)磷酸酯或三氟化硼，予以去活化。

【0009】 較佳地，該碳二醯亞胺預聚物之殘留異氰酸酯含量不大於 1 wt%，較佳為不大於 0.5 wt%，較佳為不大於 0.3 wt%，較佳為不大於 0.2 wt%。較佳地，產生異氰酸酯封端之預聚物所用之芳香族多官能異氰酸酯具有 2 至 2.5，較佳為 2 至 2.2 之平均異氰酸酯官能度。較佳地，芳香族多官能異氰酸酯係 MDI 或 TDI，較佳為 MDI。較佳地，該脂族多元醇係羥基封端之聚酯或聚醚多元醇，較佳為聚醚多元醇。較佳地，該脂族多元醇具有 2 至 2.5，較佳為 2 至 2.2，較佳為 2 至 2.1 之平均羥基官能度。較佳地，該聚醚多元醇包含環氧乙烷、環氧丙烷或其組合物的聚合殘基。較佳地，該聚醚多元醇包含至少 70 wt%，較佳為至少 80 wt%，較佳為至少 90 wt%，較佳為至少 95 wt%之環氧丙烷聚合殘基。較佳地，該碳二醯亞胺預聚物含有 25 wt%至 55 wt%，較佳為 30 wt%至 50 wt%，較佳為 31 wt%至 45 wt%之脂族多元醇聚合殘基。較佳地，該脂族多元醇之 M_n 為 500 至 2500，較佳為 800 至 2200，較佳為 1000 至 2000。可使用一個以上的異氰酸酯及/或一個以上的多元醇產生碳二醯亞胺預聚物。較佳地，該碳二醯亞胺預聚物含有 30 wt%

至 60 wt%，較佳為 40 wt%至 55 wt%，較佳為 42 wt%至 53 wt% 之芳香族多官能異氰酸酯聚合殘基。較佳地，該脂族醇係具有一至八個碳原子，較佳為一至四個碳原子之單官能醇。較佳地，該脂族醇係直鏈或支鏈的一級或二級醇；較佳為一級醇。較佳之脂族醇包括甲醇、乙醇、正丙醇、異丙醇、正丁醇、第二丁醇、異丁醇或第三丁醇；較佳為甲醇、乙醇、正丙醇或正丁醇；較佳為正丁醇。較佳地，該碳二醯亞胺預聚物中之殘留脂族醇之量不大於 5%，較佳為不大於 3%，較佳為不大於 2%，較佳為不大於 1%，較佳為不大於 0.5%。

【0010】 較佳地，用以催化芳香族多官能碳二醯亞胺或碳二醯亞胺預聚物固化之羧酸鹽為具有二至十八個，較佳為二至八個，較佳為二至四個碳原子之羧酸之鹽；較佳為單羧酸之鹽。較佳地，該等羧酸鹽係未經取代或經鹵素或羥基單取代，較佳為未經取代。特佳之羧酸鹽為乙酸鹽。較佳地，其陽離子為鹼金屬；較佳為鋰、鈉或鉀；較佳為鈉或鉀；較佳為鉀。較佳地，該芳香族多官能碳二醯亞胺係於溫度 15℃ 至 90℃，較佳為 20℃ 至 85℃，較佳為 25℃ 至 60℃ 與羧酸鹽接觸。較佳之羧酸鹽之量以固體計，且以總可固化之樹脂組成物百分比表示，係 0.01 wt%至 0.5 wt%，較佳為 0.03 wt%至 0.3 wt%，較佳為 0.05 wt%至 0.2 wt%。較佳地，該可固化之樹脂組成物實質上不含烷氧化物、鈦化合物、銅化合物、有機鋰化合物與鋁鹵化物。本文所用之「實質上不含」意指具有小於 0.5 wt%，較佳為小

於 0.3 wt%，較佳為小於 0.2 wt%，較佳為小於 0.1 wt%，較佳為小於 0.05 wt%，較佳為小於 0.03 wt%，較佳為小於 0.02 wt%，較佳為小於 0.01 wt%。

【0011】 於本發明之較佳實施例中，該羧酸鹽係包封(encapsulated)於惰性介質中，該惰性介質容許經包封之羧酸鹽(“催化劑”)被併入碳二醯亞胺預聚物或芳香族多官能碳二醯亞胺中，直到層壓過程中利用機械壓力或加熱去除包封劑之前不會催化固化。經包封之催化劑通常係利用沉積催化劑周圍之殼而產生。該催化劑可包含於膠囊(capsule)內之單一空腔(cavity)或儲槽(reservoir)中，或可位於膠囊內之許多空腔中。該殼的厚度視所用材料、催化劑裝載量、膠囊形成方法以及所欲的最終用途可有很大不同。以經包封之催化劑重量計，催化劑裝載量較佳為 5 至 90%，較佳為 10 至 90%，較佳為 30 至 90%。特定包封方法有助於使其較其他方法具有更高之核心容積裝載。可能需要一個以上的殼以確保過早破裂或滲漏。

【0012】 經包封之催化劑可利用任何多種微包封技術製造，包括但不限於凝聚、界面添加與縮合、乳化聚合、微流聚合、逆微胞聚合、空氣懸浮、離心擠壓、噴霧乾燥、製粒、BITEM 法、鉢式包覆法(pan coating)，以及利用 M-CAPTM 包封法。

【0013】 凝聚係形成膠囊壁之基本方法。凝聚法之實例列舉於美國專利第 2,800,457 與 2,800,458 號中。M-CAPTM 法被公認為製造粒徑為 30 微米且具有高核心裝

載容積(>75%)之經包封之催化劑之較佳方法，且該經包封之催化劑可用壓力使其破裂；此 M-CAPTM 法詳述於美國專利第 5,271,881 號。製粒亦被公認為容許使用具有優異阻隔性質以防止過早釋放催化劑之高結晶度蠟之較佳包封方法。製粒，亦稱為噴霧凝結、噴霧冷卻或熔融霧化，係提供大小介於 $0.5\ \mu\text{m}$ 與 $3000\ \mu\text{m}$ 間且催化劑裝載量典型為 5 至 50 % 之膠囊。經由製粒方法用於包封之較佳殼材料包括石蠟、合成蠟、微晶蠟、植物蠟、聚乙烯蠟，以及低分子量聚合物。用於製粒之最佳殼材料為石蠟、聚乙烯蠟、熔點為 40 至 120°C 之 Fischer-Tropsch 蠟。BITEM 法為用於鹼水性溶液之另一適當包封技術實例，其容許使用具有優異阻隔性質以防止過早釋放催化劑之高結晶度蠟。此方法產生 50 至 $500\ \mu\text{m}$ 之膠囊，其中，含催化劑水溶液之小室係包埋於蠟基質中。經由 BITEM 法用於包封之較佳殼材料包括石蠟、合成蠟、微晶蠟、植物蠟、聚乙烯蠟，以及低分子量聚合物。用於 BITEM 之最佳殼材料為石蠟、聚乙烯蠟、熔點為 40 至 120°C 之 Fischer-Tropsch 蠟。無關包封技術，用以包封催化劑之材料可包括合成蠟、微晶蠟、植物蠟、聚乙烯蠟、聚醯胺類、聚脲類(例如聚甲基脲或 PMU)、Michael 加成聚合物(亦即供體(例如乙醯乙酸酯或丙二酸酯)與受體(例如多官能丙烯酸酯)之反應產物)、聚丙烯酸酯類、側鏈可結晶之聚丙烯酸酯類、聚乙烯醇、使用交聯劑(例如硼酸鹽)交聯之聚乙烯醇、聚二甲基矽氧烷類、羧甲基纖維素、聚苯乙烯、聚乙烯乙酸乙烯酯共聚物、聚乙烯丙烯

酸酯共聚物、聚 α -烯烴、聚乙烯類、經由非均相催化(例如經茂金屬催化)製備之聚乙烯類、聚丙烯、經由非均相催化(例如經茂金屬催化)製備之聚丙烯類。

【0014】 高結晶度、熔點明確之材料例如石蠟、合成蠟與聚乙烯蠟，以及高結晶度、低分子量聚合物例如側鏈可結晶之聚丙烯酸酯類，藉由審慎選擇與組成物最終處理條件一致之熔點，可提供熱觸發催化劑釋放之可能性。

【0015】 可能需要使用數個殼或數個分離塗層以提供足夠之殼強度及完整性，防止含有經包封之催化劑之單組分製劑中之反應物過早開始反應。此類多殼膠囊之實例為石蠟或微晶蠟殼(例如經由製粒完成者)，隨後為聚甲脲(PMU)殼。另一實例係使用蠟殼，隨後為伴隨著利用 Michael 加成反應製備之殼。

【0016】 該膠囊之較佳粒徑為 0.1 至 1000 μm ，更佳為 0.1 至 500 μm 且最佳為 0.1 至 100 μm 。可隨該膠囊之應用而調整其粒徑，以確保其於預定條件下破裂。

【0017】 於塗佈於基材(substrate)之前，先以溶劑稀釋本系統之成分。本文所用之「溶劑」一詞係指於 25°C 為液體且於常壓之沸點不大於 100°C 之物質。較佳地，施用於基材之該系統組合成分含有 45 至 75 wt%，較佳為 46 至 60 wt%，較佳為 47 至 55 wt%，較佳為 48 至 53 wt% 之固體。適當溶劑包括乙酸乙酯、乙酸甲酯與甲基乙基酮；尤其較佳為乙酸乙酯。

【0018】 本發明之可固化樹脂組成物計畫使用兩種

成分，較佳為於施用至基材以形成黏合劑之前或期間，使用適當混合器(例如，電動、氣動或以其他方式供電之機械混合器，或靜態混合器)使其混合。因此，碳二醯亞胺預聚物成分通常與羧酸鹽成分分別包裝。混合可於層壓過程前之任何適當時間進行。所有該等步驟可於環境常溫或超環境(supra-ambient)條件下進行。舉例而言，二成分可於正要混合之前進行加熱，且於塗佈及層壓過程期間，在升高溫度進行施用。較佳地，溫度不超過 50°C。依需要，可針對所得層壓片(laminate)進行加熱或冷卻。較佳地，使用凹版滾筒將混合後之膠黏組成物轉變成膜片，然後將其層壓於第二個膜片。

【0019】 本發明之黏合劑係用於使二至五個基材黏合在一起。該等基材可為相似或相異材料。於較佳實施例中，該黏合劑之層係施用至第一個基材層，再以第二個基材層覆蓋所得黏合劑層以形成層壓物(laminated article)，其中，該兩個基材係由黏合劑乾燥層黏合在一起。可添加第三與第四層膜片於該層壓片以形成三或四層層壓片。於較佳實施例中，提供之基材層係呈現基材材料捲形式。該等片材(sheets)厚度可為 0.5 至 10 mil 之量級。其厚度亦可能較大或較小(例如，5 或 5 微米以上之量級)。

【0020】 本發明組成物可使用習知施用技術施用至所需基材，該等施用技術例如捲筒紙凹版印刷、柔版印刷、傳統或無氣噴塗、輥塗、刷塗、繞線棒塗佈、刮刀塗佈，或塗佈法例如簾狀、滿版(flood)、鐘狀、盤狀與浸塗塗佈

法。以黏合劑塗佈時可於整個表面或僅於部分表面，例如沿著邊緣或於間斷位置進行。該黏合劑對於層壓塑料膜片、金屬膜片或金屬化塑料膜片之包裝與密封之應用尤具吸引力。尤其較佳之膜片包括低密度聚乙烯、高密度聚乙烯、聚丙烯(鑄造、吹製導向、雙軸拉伸)、尼龍、聚苯乙烯、經共擠之膜片、聚酯膜片、經陶瓷(SiO_x 、 AlO_x)塗佈之膜片(聚酯、尼龍等)、經聚丙烯酸塗佈之膜片(聚酯、尼龍等)、經聚偏二氯乙烯塗佈之膜片、金屬化膜片(聚酯、聚丙烯等)。

實施例

【0021】 溶液黏度之測量係使用 Brookfield 黏度計，於溫度大約 25°C 以及適用於所測量之黏度範圍之裝置進行操作。於 Brookfield 黏度計上，於所示溫度，使用恆溫之小樣本適配器及具有 Spindle #27 之樣本室測量純樹脂黏度。如下列程序製備所述之樹脂。

【0022】 實施例 1： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物品	單體/中間體	裝填
1	4,4'-MDI-Isonate 125M	301.53
2	Voranol 220-110N	604.54
3	Isonate 50 OP	451.38
4	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.3197
5	參(三甲基矽烷基)磷酸酯	0.4197
6	正丁醇	103.86
7	正丁醇	118.79

1. 於環境溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣下，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 0.50 小時期間內，添加物品 #2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq 6.0\%$ 時，進行步驟 5。
5. 於 0.25 小時期間內，開始添加物品 #3 至樹脂混合物中；- 維持於 75 至 85℃。
6. 添加物品 4；維持於 75 至 85℃ 1 小時；取樣樹脂供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO $< 9.0\%$ 時，添加物品 5 與 6；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 7 以降低 %NCO 至 $\leq 0.10\%$ ，監測 %NCO。
9. 當 % NCO $\leq 0.10\%$ 時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：5.99%碳二醯亞胺，當量重 667.78. 黏度：40℃

10年2月10日 修正頁(本)
劃線

時，323,000 cps；45℃時，175,750 cps。

【0023】 實施例 2： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物品	單體/中間體	裝填
1	4,4'-MDI-Isonate 125M	301.20
2	Voranol 220-110N	601.62
3	Isonate OP 50	302.42
4	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.3171
5	參(三甲基矽烷基)磷酸酯	0.39
6	正丁醇	105.29
7	正丁醇	85.55

1. 於環境溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣下，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 0.50 小時期間內，添加物品#2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq 6.0\%$ 時，進行步驟 5。
5. 於 0.25 小時期間內，開始添加物品#3 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
6. 添加物品 4；維持於 75 至 85℃ 1 小時；取樣樹脂供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO $< 9.0\%$ 時，添加物品 5 與 6；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 7 以降低 %NCO 至 $\leq 0.10\%$ ，監測 %NCO。
9. 當 % NCO $\leq 0.10\%$ 時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：3.71%碳二醯亞胺，當量重 1078.2。黏度：40℃時，132,000 cps；45℃時，71,750 cps；50℃時，41,700 cps。

【0024】 實施例 3： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物品	單體/中間體	裝填
1	Isonate OP 50	501.40
2	Voranol 220-056N	731.93
3	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.1829
4	三氟化硼合乙醚	0.6127
5	正丁醇	55.98
6	正丁醇	28.57
7	正丁醇	80.23

1. 於環境溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣下，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 1.00 小時期間內，添加物品#2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq 10.5\%$ 時，進行步驟 5。
5. 開始添加物品#3 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
6. 維持於 80 至 85℃ 2 小時；取樣樹脂供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO $< 9.0\%$ 時，添加物品 4 與 5；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 6 以降低 %NCO 至 $\leq 2.00\%$ ，監測 %NCO。
9. 添加物品 7 以降低 %NCO 至 $\leq 0.10\%$ 。
10. 當 % NCO $\leq 0.10\%$ 時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：1.12%碳二醯亞胺，當量重 3571.43。黏度：40℃時，42,150 cps；45℃時，25,600 cps；50℃時，16,100 cps。

【0025】 實施例 4： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物 品	單 體 / 中 間 體	裝 填
1	Isonate OP 50	600.40
2	Voranol 220-056N	702.17
3	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.2722
4	三氟化硼合乙醚	0.4690
5	正丁醇	50.02
6	正丁醇	75.86
7	正丁醇	49.86

1. 於周圍溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣下，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 1.25 小時期間內，添加物品#2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq$ 13.3%時，進行步驟 5。
5. 開始添加物品#3 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
6. 維持於 80 至 85℃ 2 小時；取樣樹脂供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO < 7.7%時，添加物品 4 與 5；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 6 以降低 %NCO 至 $\leq$ 2.00%，監測 %NCO。
9. 添加物品 7 以降低 %NCO 至 $\leq$ 0.25%。
10. 當 % NCO $\leq$ 0.25%時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：2.12 %碳二醯亞胺，當量重 1886.79。黏度：40℃時，91,000 cps；45℃時，53,188 cps；50℃時，31,900 cps。

【0026】 實施例 5： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物品	單體/中間體	裝填
1	Isonate OP 50	701.89
2	Voranol 220-056N	70.166
3	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.2987
4	三氟化硼合乙醚	0.2767
5	正丁醇	50.40
6	正丁醇	79.93
7	正丁醇	20.37
8	正丁醇	34.73

1. 於環境溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣下，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 1.00 小時期間內，添加物品#2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq$ 14.5%時，進行步驟 5。
5. 開始添加物品#3 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
6. 維持於 80 至 85℃ 2 小時；樹脂取樣供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO < 6.2%時，添加物品 4 與 5；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 6 以降低 %NCO 至 $\leq$ 2.00%，監測 %NCO。
9. 添加物品 7 與 8 以降低 %NCO 至 $\leq$ 0.0.38%。

10. 當 % NCO $\leq$ 0.38% 時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：3.08 % 碳二醯亞胺，當量重 1300.81。黏度：40℃ 時，135,250 cps；45℃ 時，76,125 cps；50℃ 時，44,750 cps。

【0027】 實施例 6： 碳二醯亞胺預聚物之製備

物品	單體/中間體	裝填
1	Isonate OP 50	1002.63
2	Voranol 220-056N	597.39
3	3-甲基-苯基-2-磷雜環戊烯-1-氧化物	0.3324
4	三氟化硼合乙醚	0.6630
5	正丁醇	76.16
6	正丁醇	77.07
7	正丁醇	126.28
8	正丁醇	17.36

1. 於環境溫度(25 至 30℃)，於容器中裝填物品 1。
2. 於氮氣中，攪拌加熱樹脂至 65 至 75℃。
3. 於 0.30 小時期間內，添加物品#2 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
4. 檢測 % NCO；當 %NCO $\leq$ 15.5% 時，進行步驟 5。
5. 開始添加物品#3 至樹脂混合物中；維持於 75 至 85℃。
6. 維持於 80 至 85℃ 2 小時；樹脂取樣供檢測 %NCO 用。
7. 當 %NCO < 10.0% 時，添加物品 4 與 5；維持於 75 至 85℃。
8. 添加物品 6 以降低 %NCO 至 $\leq$ 2.00%，監測 %NCO。

9. 添加物品 7 與 8 以降低 %NCO 至 $\leq 0.15\%$ 。

10. 當 % NCO $\leq 0.15\%$ 時，於氮氣下進行包裝。

樹脂性質：2.07 % 碳二醯亞胺，當量重 1932.37。黏度：40℃ 時，1,860,000 cps；45℃ 時，933,000 cps；50℃ 時，508,600 cps。

【0028】 實施例 7：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 1 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 0.20 g 之 3.37% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m^2) 塗層重。於環境條件固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度(N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙烯/聚丙烯	1.29 / AS	1.15 / AS	0.72 / AS
聚丙烯/聚乙烯	1.38 / AS	1.98 / AS Zip	1.62 / AS Zip
聚酯/聚乙烯	2.10 / AS	1.17 / AS Zip	1.00 / AS Zip
尼龍/聚乙烯	1.63 / AS	0.70 / AS Zip	0.67 / AS Zip
金屬化之聚酯/聚乙烯	1.51 / AS	0.55 / AS Zip	0.59 / AS Zip
金屬化之聚丙烯/聚乙烯	1.40 / AS	1.13 / AS	1.10 / AS
金屬化之聚丙烯/聚丙烯	0.93 / AS	1.80 / AS	1.44 / AS
箔背襯/尼龍	0.46 / AS	0.21 / AS	0.46 / AS
箔背襯/聚酯	0.34 / AS	0.83 / AS	0.66 / AS

AS：膠黏劑分離

Zip：拉鏈式黏合(Zippery bond)

【0029】 實施例 8：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 2 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 2.0 g 之 0.92% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m²) 塗層重。於環境條件下固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度 (N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙烯 / 聚丙烯	2.49 / AS	1.87 / AS	1.15 / AS
聚丙烯 / 聚乙烯	0.70 / AS	1.94 / AS	2.08 / AS
聚酯 / 聚乙烯	0.55 / AS	2.99 / AS	2.93 / AS
尼龍 / 聚乙烯	0.33 / AS	0.21 / AS	0.15 / AS
金屬化之聚酯 / 聚乙烯	2.74 / AS	0.79 / AS	0.73 / AS
金屬化之聚丙烯 / 聚乙烯	1.39 / AS	0.86 / AS	0.81 / AS
金屬化之聚丙烯 / 聚丙烯	0.89 / AS	0.22 / AS Zip	0.23 / AS Zip
箔背襯 / 尼龍	0.31 / AS	0.69 / AS	0.70 / AS
箔背襯 / 聚酯	0.27 / AS	1.05 / AS	1.32 / AS

AS：膠黏劑分離

Zip：拉鏈式黏合

【0030】 實施例 9：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 3 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 2.0 g 0.92% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m²) 塗層重。於環境條件固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度(N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙烯/聚丙烯	0.76 / AS	0.59 / AS	0.42 / AS
聚丙烯/聚乙烯	0.78 / AS	0.81 / AS	1.03 / AS
聚酯/聚乙烯	0.47 / AS	0.44 / AS	0.43 / AS
尼龍/聚乙烯	0.87 / AS	0.80 / AS	0.86 / AS
金屬化之聚酯/聚乙烯	1.24 / AS	0.94 / AS	0.89 / AS
金屬化之聚丙烯/聚乙烯	0.07 / AS	0.80 / AS	0.58 / AS
金屬化之聚丙烯/聚丙烯	0.52 / AS	0.73 / AS	0.47 / AS
箔背襯/尼龍	0.47 / AS	0.59 / AS	0.56 / AS
箔背襯/聚酯	0.32 / AS	0.36 / AS	0.33 / AS

AS：膠黏劑分離

【0031】 實施例 10：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 4 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 2.0 g 之 0.92% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m^2) 塗層重。於環境條件固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度(N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙烯/聚丙烯	0.12 / AS	0.09 / AS	0.07 / AS
聚丙烯/聚乙烯	0.11 / AS	0.10 / AS	0.05 / AS
聚酯/聚乙烯	0.11 / AS	0.08 / AS	0.06 / AS
尼龍/聚乙烯	0.18 / AS	0.09 / AS	0.06 / AS
金屬化之聚酯/聚乙烯	0.11 / AS	0.08 / AS	0.09 / AS
金屬化之聚丙烯/聚乙烯	0.12 / AS	0.07 / AS	0.04 / AS
金屬化之聚丙烯/聚丙烯	0.08 / AS	0.04 / AS	0.06 / AS
箔背襯/尼龍	0.04 / AS	0.03 / AS	0.02 / AS
箔背襯/聚酯	0.08 / AS	0.02 / AS	0.04 / AS

AS：膠黏劑分離

【0032】 實施例 11：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 5 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 2.0 g 0.92% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m^2) 塗層重。於環境條件固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度 (N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙烯/聚丙烯	1.16 / AS	0.96 / AS	1.20 / AS
聚丙烯/聚乙烯	2.11 / AS	1.78 / AS	1.72 / AS
聚酯/聚乙烯	1.91 / AS	1.78 / AS	1.82 / AS
尼龍/聚乙烯	2.53 / AS	2.10 / AS	2.27 / AS
金屬化之聚酯/聚乙烯	1.80 / AS	2.11 / AS	2.05 / AS
金屬化之聚丙烯/聚乙烯	2.63 / AS	2.11 / AS	2.29 / AS
金屬化之聚丙烯/聚丙烯	2.06 / AS	2.32 / AS	2.24 / AS
箔背襯/尼龍	1.25 / AS	1.23 / AS	1.41 / AS
箔背襯/聚酯	1.05 / AS	1.05 / AS	1.16 / AS

AS：膠黏劑分離

【0033】 實施例 12：

使於 10.0 g 乙酸乙酯溶液中之 10.0 g 實施例 6 之碳二醯亞胺樹脂與於乙醇中之 2.0 g 0.92% 乙酸鉀混合並塗佈以獲得 1.0 lbs/rm (1.628 g/m^2) 塗層重。於環境條件固化層壓片。以固化時間為函數，檢測黏合強度並記載於下：

層壓片結構	黏合強度(N / 15 mm)		
	7 天	14 天	21 天
聚丙稀/聚丙稀	0.53 / AS	0.54 / AS	1.01 / AS
聚丙稀/聚乙稀	2.46 / AS	2.18 / AS	2.84 / AS
聚酯/聚乙稀	3.19 / AS	1.34 / AS	0.81 / AS
尼龍/聚乙稀	2.08 / AS	0.94 / AS	1.18 / AS
金屬化之聚酯/聚乙稀	4.16 / AS	1.20 / AS	1.19 / AS
金屬化之聚丙稀/聚乙稀	2.74 / AS	0.95 / AS	0.82 / AS
金屬化之聚丙稀/聚丙稀	2.46 / AS	0.47 / AS	0.85 / AS
箔背襯/尼龍	1.22 / AS	1.04 / AS	1.02 / AS
箔背襯/聚酯	1.19 / AS	1.35 / AS	1.72 / AS

AS：膠黏劑分離

【符號說明】

無。

申請專利範圍

1. 一種用於聚合芳香族多官能碳二醯亞胺之方法；該方法包括於溫度 15°C 至 90°C，使該芳香族多官能碳二醯亞胺與羧酸鹽接觸，其中該芳香族多官能碳二醯亞胺含有脂族多元醇之聚合殘基。
2. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中，該芳香族多官能碳二醯亞胺為碳二醯亞胺預聚物。
3. 如申請專利範圍第 2 項所述之方法，其中，該碳二醯亞胺預聚物之平均碳二醯亞胺官能度為 1.3 至 6。
4. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中，該芳香族多官能碳二醯亞胺之平均碳二醯亞胺官能度為 1.3 至 6。
5. 一種可固化之樹脂組成物，其包含碳二醯亞胺預聚物與羧酸鹽；其中，該碳二醯亞胺預聚物具有與每一碳二醯亞胺基團鄰接之兩個芳香族取代基、以及脂族多元醇之聚合殘基。
6. 如申請專利範圍第 5 項所述之可固化之樹脂組成物，其中，該碳二醯亞胺預聚物含有：(i)芳香族多官能異氰酸酯與脂族多元醇的聚合殘基、(ii)碳二醯亞胺基團，以及(iii)具有脂族取代基之胺甲酸乙酯基團。
7. 如申請專利範圍第 6 項所述之可固化之樹脂組成物，其中，該碳二醯亞胺預聚物之平均碳二醯亞胺官能度為 1.3 至 6。
8. 如申請專利範圍第 7 項所述之可固化之樹脂組成物，

其中，該碳二醯亞胺預聚物之殘留異氰酸酯含量不大於 1 wt%。

9. 如申請專利範圍第 8 項所述之可固化之樹脂組成物，其中，該羧酸鹽之量以固體計且以總可固化之樹脂組成物百分比表示，係 0.03 wt% 至 0.3 wt%。
10. 如申請專利範圍第 9 項所述之可固化之樹脂組成物，其中，該碳二醯亞胺預聚物包含 30 wt% 至 50 wt% 之聚醚多元醇之聚合殘基，且其中，該羧酸鹽係經包封。