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：96131554

※ 申請日期：96.8.24　　※IPC 分類：C08L 79/08 (2006.01)
C08L 81/06 (2006.01)
C08K 7/14 (2006.01)
C08J 5/08 (2006.01)

一、發明名稱：（中文/英文）

經強化之非晶形聚合物組合物

REINFORCED AMORPHOUS POLYMER COMPOSITION

二、申 請 人：（共 1 人）

姓名或名稱：（中文/英文）

美商奇異電器公司

GENERAL ELECTRIC COMPANY

代表人：（中文/英文）

麥可 M 尼伯斯

GNIBUS, MICHAEL M.

住居所或營業所地址：（中文/英文）

美國紐約州司安納他地市河道路 1 號

ONE RIVER ROAD SCHENECTADY, NEW YORK 12345 U.S.A.

國　籍：（中文/英文）

美國　U.S.A.

三、發明人：（共 3 人）

姓　名：（中文/英文）

1. 威廉　A　可尼克　三世
   KERNICK, WILLIAM A. III
2. 李彥軍
   LI, YANJUN
3. 潘禮華
   PAN, LIHUA

國　籍：（中文/英文）

1. 美國　U.S.A.
2. 中華人民共和國　P.R.C.
3. 中華人民共和國　P.R.C.

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項☐第一款或☐第二款規定之事實，其事實發生日期為：　年　月　日。

☑ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號　順序註記】

☑ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 美國；2006 年 12 月 19 日；11/612,733

2.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.

2.

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號　順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料　【格式請依：寄存機構、日期、號碼　順序註記】

國外生物材料　【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼　順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

於本文中所揭示者為經強化之非晶形聚合物組合物。特定言之，係揭示具有經改良熔接線強度之經強化非晶形聚合物組合物。

【先前技術】

能夠忍受高溫(具有玻璃轉移溫度(Tg)大於180℃)之塑膠材料(聚合物)係可用於極多種應用中。例如，長久以來已想要使用經強化之高溫塑膠材料取代許多物件中之金屬。為能成功，經強化之塑膠材料必須具有良好機械性質與優越尺寸安定性，即使在高溫下亦然。例如，此種塑膠材料需要足夠熔接線強度，以在二次操作期間抵抗斷裂。熔接線係在物件製造期間，於兩種或多種熔融態聚合物前方會合之區域中形成。例如，當將熔融態聚合物自兩個不同位置注入模具中時，即可形成熔接線。當使物件曝露至力時，熔接線通常係為模製物件中之最弱區域，且一般係第一個破裂。

因此，需要能夠抵抗高溫且具有高熔接線強度之聚合物組合物。

【發明內容】

前述需求係藉由一種熱塑性組合物尋求解決，該組合物包含：高耐熱熱塑性樹脂、玻璃纖維及微粒子玻璃填料。在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

於一項具體實施例中，熱塑性組合物包含高耐熱熱塑性樹脂、玻璃纖維及微粒子玻璃填料。在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。在形成組合物之前，該高耐熱熱塑性樹脂係具有末端基，其在熔融混合條件下可與胺基甲酸酯基、胺基矽烷或其組合具反應性或可與其相容。

於一項具體實施例中，熱塑性組合物包含高耐熱熱塑性樹脂、玻璃纖維及微粒子玻璃填料。在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。在形成組合物之前，該高耐熱熱塑性樹脂係具有酐末端基、胺基末端基或其組合。

亦於本文中揭示者為製造前述組合物與包含該前述組合物之物件之方法。

發明詳述

當與其中微粒子玻璃填料具有不包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層之可比較組合物作比較時，本文所述之熱塑性組合物係具有顯著經增加之熔接線強度。

在不受理論束縛下，咸信當具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷偶合劑之塗層之微粒子玻璃填料係與高耐熱熱塑性樹脂熔融捏合時，接枝共聚物係在高耐熱熱塑性樹脂與微粒子玻璃填料間之界面中形成。咸認此接枝聚合物係為被包含在塗層中之末端基與高耐熱熱塑性樹脂之末端基之反應產物。此外，亦可能之情況是，塗層之胺基矽烷亦與高耐熱熱塑性樹脂之末端基反應，以形成共聚物。接枝共聚

物之存在係藉由改良樹脂與玻璃薄片間之黏著性而改良機械性質。

於本文中使用之術語"第一種"、"第二種"等，"初次"、"二次"等，並未表示任何順序、量或重要性，而是用以區別一種構件與另一種。術語"一種"與"一個"並未表示量之限制，而是表示至少一種參考項目之存在。"選用"或"視情況"係意謂隨後所述之事件或狀況可以或可以不發生，且說明文係包括其中該事件會發生之情況及其中未發生之情況。

"烷基"一詞係意欲包括C_{1-30}分枝狀與直鏈兩者之飽和脂族烴基，具有所指定之碳原子數。烷基之實例包括但不限於甲基、乙基、正-丙基、異-丙基、正-丁基、第二-丁基、第三-丁基、正-戊基、第二-戊基、正-與第二-己基、正-與第二-庚基及正-與第二-辛基。

"烯基"一詞係被定義為C_{2-30}分枝狀或直鏈不飽和脂族烴基，具有一或多個雙鍵，在兩個或多個碳原子之間。烯基之實例包括乙烯基、丙烯基、丁烯基、戊烯基、己烯基、庚烯基、辛烯基及壬烯基，以及其相應之C_{2-10}二烯類、三烯類及四烯類。

"炔基"一詞係被定義為C_{2-10}分枝狀或直鏈不飽和脂族烴基，具有一或多個參鍵，在兩個或多個碳原子之間。炔類之實例包括乙炔基、丙炔基、丁炔基、戊炔基、己炔基、庚炔基、辛炔基及壬炔基。

"經取代"一詞係意謂在分子、分子之一部份或原子上之

一或多個氫係被取代基團置換，其條件是並未超過原子之正常價鍵，且此取代會造成安定化合物。此種"取代基團"可選自包括：-OR、-NR'R、-C(O)R、-SR、-鹵基、-CN、$-NO_2$、$-SO_2$、磷醯基、亞胺基、硫酯、碳環族、芳基、雜芳基、烷基、烯基、雙環狀及三環狀基團。當取代基團為酮基(意即=O)時，則在原子上之2個氫係被置換。酮基取代基並不存在於芳族部份基團上。R與R'術語係指烷基，其可為相同或不同。

因此，例如"經取代之C_{1-10}烷基"一詞係指烷基部份基團，含有飽和鍵結，且具有一或多個被例如鹵素、羰基、烷氧基、酯、醚、氰基、磷醯基、亞胺基、烷硫基、硫酯、磺醯基、硝基、雜環基、芳基或雜芳基置換之氫。

於本文中使用之"鹵基"或"鹵素"術語係指氟基、氯基、溴基及碘基。

於本文中使用之"單環狀"一詞係指包含單環系統之基團。此環系統可為芳族、雜環族、芳族雜環狀、飽和環烷基或不飽和環烷基。單環狀基團可為經取代或未經取代。單環狀烷基可具有5至12個環員。

於本文中使用之"多環狀"一詞係指包含多環系統之基團。該環可經稠合或未經稠合。多環基團可為芳族、雜環族、芳族雜環狀、飽和環烷基、不飽和環烷基或兩種或多種前述之組合。多環基團可為經取代或未經取代。多環基團可具有6至20個環員。

"芳基"一詞係意指芳族部份基團，含有所指定之碳原子

數，譬如但不限於苯基、芳酮、氫茚基或萘基。

"環烷基"一詞係意指任何安定環系統，其可為飽和或部份不飽和。此種之實例包括但不限於環丙基、環戊基、環己基、正葙基、雙環并[2.2.2]壬烷、金剛烷基或四氫萘基(四氫萘)。

於本文中使用之"雜環"或"雜環系統"術語係意指安定5-至7-員單環狀或7-至10-員雙環雜環族環，其係為飽和、部份不飽和、不飽和或芳族，且其包含碳原子及1至4個雜原子，獨立選自包括N、O及S，及包括任何雙環狀基團，其中任何上文定義之雜環係經稠合至苯環。此氮與硫雜原子可視情況被氧化。雜環可連接至其在任何雜原子或碳原子上之懸垂基團，其會造成安定結構。關於此點，在雜環中之氮可視情況被四級化。當在雜環中之S與O原子之總數超過1時，則此等雜原子係彼此不相鄰。於一些具體實施例中，在雜環中之S與O原子之總數係不超過1。

於本文中使用之"芳族雜環狀系統"一詞係意指安定5-至7-員單環狀或7-至10-員雙環雜環族芳族環，其包含碳原子及1至4個雜原子，獨立選自包括N、O及S。於一些具體實施例中，在芳族雜環中之S與O原子之總數係不超過1。

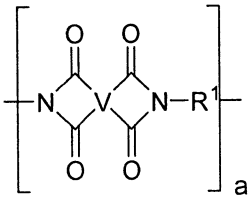
所有ASTM試驗均來自ASTM標準年刊書籍之2003版，除非另有指出。

高耐熱熱塑性樹脂係於本文中被定義為具有玻璃轉移溫度大於或等於180℃。於一些具體實施例中，高耐熱熱塑性樹脂係能夠與胺基甲酸酯基、胺基矽烷或其組合反應或可

與其相容。於本文中使用之"可與相容"係指具有足夠以物理方式、化學方式或其組合交互作用之化學特徵、物理特徵或化學與物理兩種特徵，其方式係致使熔接線強度增加，相對於含有不含胺基甲酸酯基與胺基矽烷組合之微粒子玻璃纖維之組合物。舉例之化學交互作用包括但不限於共價鍵、離子鍵、氫鍵等。於一些具體實施例中，高耐熱熱塑性樹脂係具有能夠與胺基甲酸酯基、胺基矽烷或其組合反應或可與其相容之末端基。舉例之末端基包括酐、羥基及胺。舉例之高耐熱熱塑性樹脂包括聚醯亞胺、聚醚醯亞胺、聚苯基碸、聚碸、聚醚碸及包含一或多種前述之組合。高耐熱樹脂可視情況與不為高耐熱樹脂之第二種樹脂摻合，該第二種樹脂譬如聚碳酸、聚碳酸酯、聚酯、聚醯胺或包含一或多種前述之組合，只要高耐熱樹脂與第二種樹脂之組合具有玻璃轉移溫度大於或等於80℃，或更特別是大於或等於100℃，且不會遭受到脫層即可。

第二種樹脂，當存在時，可以5至80重量百分比(重量%)，或更特別是10至40重量%，或又更特別是10至30重量%之量使用，以組合物之總重量為基準。

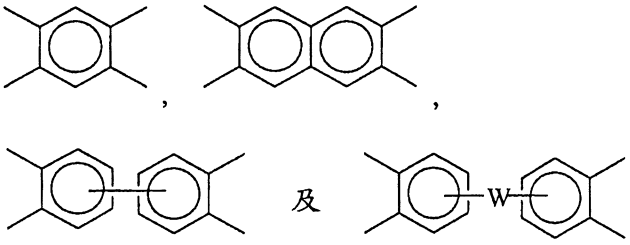
聚醯亞胺係具有通式(1)



(1)

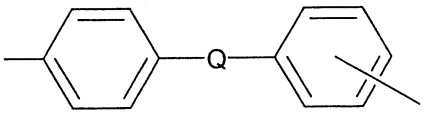
其中a係大於1，典型上為10至1000或更大，或更特別是10至500；且其中V為四價連結基，而無限制，只要該連結基

不會阻礙聚醯亞胺之合成或使用即可。適當連結基包括但不限於：(a)經取代或未經取代，飽和、不飽和或芳族單環狀與多環狀基團，具有5至50個碳原子，(b)經取代或未經取代、線性或分枝狀、飽和或不飽和烷基，具有1至30個碳原子；或其組合。舉例之連結基包括但不限於式(2)四價芳族基團，譬如



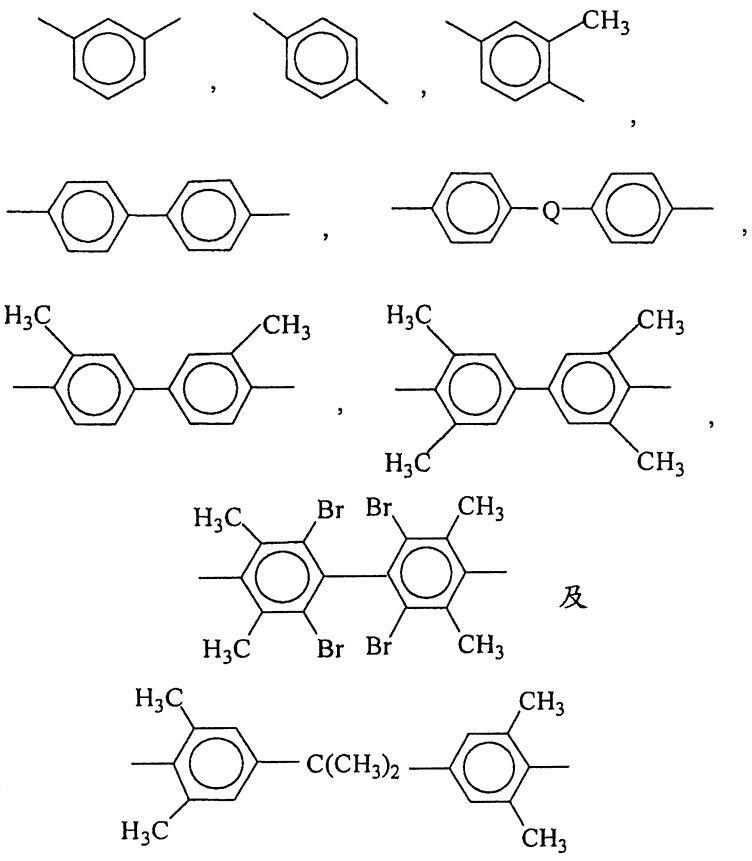
(2)

其中W為二價基團，選自包括-O-、-S-、-C(O)-、SO_2-、-SO-、-C_yH_{2y}- (y為整數，具有1至8之數值)，及其氟化衍生物，包括全氟次烷基，或式-O-Z-O-基團，其中-W-或-O-Z-O-基團之二價鍵結係在3,3', 3,4', 4,3'或4,4'位置上，且其中Z包括但不限於經取代或未經取代之二價有機基團，譬如：(a)芳族烴基團，具有約6至約20個碳原子，及其鹵化衍生物；(b)直鏈或分枝鏈次烷基，具有約2至約20個碳原子；(c)次環烷基，具有約3至約20個碳原子，或(d)通式3之二價基團



(3)

其中Q包括但不限於二價部份基團，選自包括-O-、-S-、-C(O)-、-SO_2-、-SO-、-C_yH_{2y}- (y為整數1至8)，及其氟化衍生物，包括全氟次烷基。Z可包括舉例之式(4)二價基團

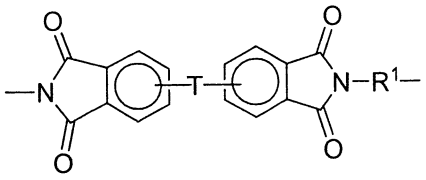


(4)

在式(1)中之R^1係包括但不限於經取代或未經取代之二價有機基團，譬如：(a)芳族烴基團，具有6至24個碳原子，及其鹵化衍生物；(b)直鏈或分枝鏈次烷基，具有2至20個碳原子；(c)次環烷基，具有3至24個碳原子，或(d)如上文定義之式(3)二價基團。

聚醯亞胺之一些種類包括聚醯胺醯亞胺、聚醚醯亞胺碸及聚醚醯亞胺，特別是此項技藝中已知可熔融加工之聚醚醯亞胺，譬如其製備與性質係被描述於美國專利3,803,085與3,905,942中者。

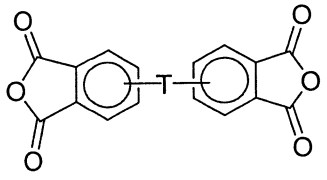
聚醚醯亞胺樹脂可包含大於1個，典型上為10至1000個或更多，或更特別是10至500個式(5)結構單位



(5)

其中R^1係如上文定義，T為-O-或式-O-Z-O-基團，其中-O-或-O-Z-O-基團之二價鍵結係在3,3', 3,4', 4,3'或4,4'位置上，且其中Z係定義於上文。於一項具體實施例中，聚醯亞胺、聚醚醯亞胺或聚醚醯亞胺碸可為共聚物。聚醯亞胺、聚醚醯亞胺或聚醚醯亞胺碸之混合物亦可被採用。

聚醚醯亞胺可藉熟諳此藝者所習知之任何方法製成，包括式(6)芳族雙(醚酐)



(6)

與式(7)有機二胺之反應

$H_2N\text{-}R^1\text{-}NH_2$ (7)

其中T與R^1均如上述所定義。

特定芳族雙酐類與有機二胺類之實例係揭示於例如美國專利3,972,902與4,455,410中。芳族雙酐類之說明例包括：

3,3-雙[4-(3,4-二羧基苯氧基)苯基]丙烷二酐；

4,4'-雙(3,4-二羧基苯氧基)二苯基醚二酐；

4,4'-雙(3,4-二羧基苯氧基)二苯硫二酐；

4,4'-雙(3,4-二羧基苯氧基)二苯甲酮二酐；

4,4'-雙(3,4-二羧基苯氧基)二苯基碸二酐；

2,2-雙[4-(2,3-二羧基苯氧基)苯基]丙烷二酐；

4,4'-雙(2,3-二羧基苯氧基)二苯基醚二酐；

4,4'-雙(2,3-二羧基苯氧基)二苯硫二酐；

4,4'-雙(2,3-二羧基苯氧基)二苯甲酮二酐；

4,4'-雙(2,3-二羧基苯氧基)二苯基碸二酐；

4-(2,3-二羧基苯氧基)-4'-(3,4-二羧基苯氧基)二苯基-2,2-丙烷二酐；

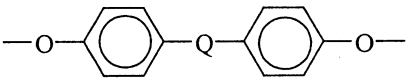
4-(2,3-二羧基苯氧基)-4'-(3,4-二羧基苯氧基)二苯基醚二酐；

4-(2,3-二羧基苯氧基)-4'-(3,4-二羧基苯氧基)二苯硫二酐；

4-(2,3-二羧基苯氧基)-4'-(3,4-二羧基苯氧基)二苯甲酮二酐；及

4-(2,3-二羧基苯氧基)-4'-(3,4-二羧基苯氧基)二苯基碸二酐，以及其各種混合物。

被上文式(6)所包含芳族雙(醚酐)之另一種類係包括但不限於其中T具有式(8)之化合物



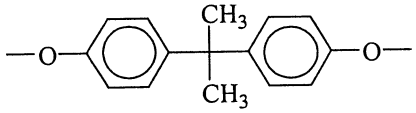
(8)

而醚連結基，雖然示於4,4'位置上，但亦可在3,3', 3,4'或4,3'位置上，且其中Q係如上文定義。

適當化合物之實例包括乙二胺、丙二胺、三亞甲基二胺、二乙三胺、三乙四胺、己二胺、庚二胺、辛二胺、壬二胺、癸二胺、1,12-十二烷二胺、1,18-十八烷二胺、3-甲基庚二胺、4,4-二甲基庚二胺、4-甲基壬二胺、5-甲基壬二胺、2,5-二甲基己二胺、2,5-二甲基庚二胺、2,2-二甲基丙二胺、N-甲基-雙(3-胺基丙基)胺、3-甲氧基己二胺、1,2-雙(3-胺基丙氧基)乙烷、雙(3-胺基丙基)硫醚、1,4-環己烷二胺、雙-(4-胺基環己基)甲烷、間-苯二胺、對-苯二胺、2,4-二甲苯胺、2,6-二甲苯胺、間-苯二甲基二胺、對-苯二甲基二胺、2-甲基-4,6-二乙基-1,3-次苯基-二胺、5-甲基-4,6-二乙基-1,3-次苯基-二胺、

聯苯胺、3,3'-二甲基聯苯胺、3,3'-二甲氧基聯苯胺、1,5-二胺基萘、雙(4-胺基苯基)甲烷、雙(2-氯基-4-胺基-3、5-二乙基苯基)甲烷、雙(4-胺基苯基)丙烷、2,4-雙(對-胺基-第三-丁基)甲苯、雙(對-胺基-第三-丁基苯基)醚、雙(對-甲基-鄰-胺基苯基)苯、雙(對-甲基-鄰-胺基戊基)苯、1,3-二胺基-4-異丙基苯、雙(4-胺基苯基)硫醚、雙(4-胺基苯基)碸及雙(4-胺基苯基)醚。此等化合物之混合物亦可使用。較佳二胺基化合物為芳族二胺，尤其是間-與對-苯二胺、磺醯基二苯胺及其混合物。

於一項具體實施例中，聚醚醯亞胺樹脂包含根據式(5)之結構單位，其中各R係獨立為對-次苯基或間-次苯基或其混合物，且T為式(9)二價基團



(9)

被包含在許多製造聚醯亞胺(特別是聚醚醯亞胺)之方法中者，係為揭示於美國專利3,847,867, 3,852,242, 3,803,085, 3905,942, 3,983,093及4,443,591中者。提及此等專利係藉由說明方式，以達成陳述製備聚醯亞胺之一般與特定方法之目的。

當藉由美國材料試驗學會(ASTM) D1238，在340至370℃下，使用6.6千克(公斤)重量度量時，聚醯亞胺、聚醚醯亞胺及聚醚醯亞胺碸可具有熔融指數為每分鐘0.1至10克(克/分鐘)。於一項具體實施例中，當藉由凝膠滲透層析，使用聚苯乙烯標準物度量時，聚醚醯亞胺樹脂係具有重量平均分子量(Mw)為每莫耳10,000至150,000克(克/莫耳)。於另一項具體實施例中，聚醚醯亞胺係具有Mw為20,000至60,000。當在

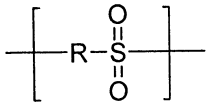
間-甲酚中，於25℃下度量時，此種聚醚醯亞胺樹脂典型上具有本性黏度大於每克0.2公合(公合/克)，或更特別是0.35至0.7公合/克。

在其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺之具體實施例中，當根據ASTM D638測定時，組合物係具有雙閘抗張強度大於或等於75百萬巴斯卡。

在其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺與聚碳酸酯之具體實施例中，當根據ASTM D638測定時，組合物係具有雙閘抗張強度大於或等於40百萬巴斯卡。

聚碸、聚(醚碸)及聚(苯醚碸)係為具有高溫抵抗性與良好水解安定性之熱塑性聚合物。聚碸、聚(醚碸)及聚(苯醚碸)係被描述於例如美國專利案號：3,634,355, 4,008,203, 4,108,837及4,175,175中。

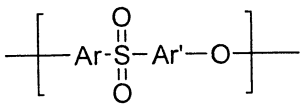
聚碸包含具有式10結構之重複單位：



(10)

其中R為芳族基團，包含碳-碳單鍵、碳-氧-碳鍵結或碳-碳與碳-氧-碳單鍵，且該單鍵係形成聚合物主鏈之一部份。

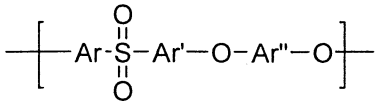
聚(醚碸)係包含具有醚連結基與碸連結基兩者之重複單位，在聚合物主鏈中，如式11中所示：



(11)

其中Ar與Ar'為芳族基團，其可為相同或不同。Ar與Ar'可為相同或不同。當Ar與Ar'均為次苯基時，聚合物係被稱為聚(苯醚碸)。碸連結基之數目與醚連結基之數目可為相同或

不同。展現當碸連結基之數目係與醚連結基之數目不同時之舉例結構，係示於式(12)中：



(12)

其中Ar, Ar'及Ar"為芳族基團，其可為相同或不同。Ar, Ar'及Ar"可為相同或不同，例如Ar與Ar'可均為次苯基，且Ar"可為雙(1,4-次苯基)異丙基。

多種聚碸與聚(醚碸)係為市購可得，包括二羥基二苯基碸與二氯基二苯基碸之聚縮合產物，及雙酚-A及/或雙酚與二氯二苯基碸之聚縮合產物。市購可得樹脂之實例包括RADEL R、RADEL A及UDEL，可得自Solvay公司，以及ULTRASON E，可得自BASF公司。

用於製備聚碸與聚(醚碸)之方法係廣泛地已知，且數種適當方法已被充分地描述於此項技藝中。兩種方法，碳酸酯方法與鹼金屬氫氧化物方法，係為熟練技師所已知。在鹼金屬氫氧化物方法中，係使二羥酚之雙重鹼金屬鹽與二鹵基苯構體化合物，於偶極性、非質子性溶劑存在下，在實質上無水條件下接觸。碳酸酯方法，其中二羥酚與二鹵基苯構體化合物係與例如碳酸或重碳酸鈉及第二種鹼金屬碳酸鹽或重碳酸鹽一起加熱，亦揭示於此項技藝中，例如在美國專利4,176,222中。或者，聚碸與聚(醚碸)可藉此項技藝中已知之任何種類之方法製備。

聚碸或聚(醚碸)之分子量，如藉由在適當溶劑譬如二氯甲烷、氯仿、N-甲基四氫吡咯酮或其類似物中之對比黏度

數據所顯示者，可大於或等於0.3公合/克，或更特別是大於或等於0.4公合/克，且典型上係不超過1.5公合/克。

於一些情況中，當藉凝膠滲透層析，使用ASTM D5296測定時，聚碸或聚(醚碸)重量平均分子量可為每莫耳10,000至100,000克(克/莫耳)。聚碸與聚(醚碸)於一些情況中可具有玻璃轉移溫度為180℃至250℃。聚碸樹脂係進一步被描述於碸塑膠之ASTM D6394標準規格中。

在其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚碸之具體實施例中，當根據ASTM D638測定時，組合物係具有雙閘抗張強度大於或等於50百萬巴斯卡。

可使用之玻璃纖維可製自已知可用於高溫熱塑性塑膠中之任何型式玻璃組成，且包括但不限於製自一般稱為"E-玻璃"、"A-玻璃"、"C-玻璃"、"D-玻璃"、"R-玻璃"、"S-玻璃"以及E-玻璃衍生物之可纖維化玻璃組成者，該玻璃組成係不含氟及/或不含硼。玻璃纖維有時係被稱為纖維玻璃。商業上製成之玻璃纖維一般係具有平均直徑為4.0至35.0微米，而最常製成之E-玻璃纖維係具有平均直徑為9.0至30.0微米。玻璃纖維係具有平均長度為1.0至20毫米，或更特別是2至10毫米。玻璃纖維係具有長度對直徑比(縱橫比)大於一，或更特別是大於或等於50，或又更特別是大於或等於100。玻璃纖維可藉由標準方法製成，例如藉由蒸汽或空氣吹製、火焰吹製及機械拉製。一般而言，供塑膠補強之纖絲係藉由機械拉製法製成。非圓形纖維橫截面之使用亦為可能。

玻璃纖維可以塗料處理。在製備玻璃纖維時，許多纖絲可同時形成，以塗料處理，然後集束成為所謂股線。或者，股線本身可首先由纖絲形成，接著以塗料處理。玻璃纖維在組合物中之量為15至35重量%，或更特別是17至33重量%，或又更特別是19至31重量%，以熱塑性組合物之總重量為基準。

塗料包括偶合劑、黏合劑或其組合。舉例之偶合劑包括鈦酸鹽與矽烷偶合劑。矽烷偶合劑包括環氧基矽烷化合物、胺基矽烷化合物、甲基丙烯醯氧基矽烷化合物、乙烯基矽烷化合物及兩種或多種前述之組合。舉例之黏合劑包括順丁烯二酐共聚物、丙烯酸共聚物、包含胺基甲酸酯基之聚合物，此項技藝中已知之其他黏合劑，及黏合劑之組合。於一些具體實施例中，玻璃纖維係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

胺基矽烷偶合劑之說明例包括γ-胺基丙基三甲氧基矽烷、γ-胺丙基三乙氧基矽烷、N-β(胺基乙基)γ-胺基丙基甲基二甲氧基矽烷、N-β(胺基乙基)γ-胺基丙基三甲氧基矽烷、N-β(胺基乙基)γ-胺基丙基三乙氧基矽烷及兩種或多種前述之組合。說明性環氧基矽烷偶合劑包括γ-縮水甘油氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、γ-縮水甘油氧基丙基三甲氧基矽烷、γ-縮水甘油氧基丙基三乙氧基矽烷及兩種或多種前述之組合。說明性甲基丙烯醯氧基矽烷偶合劑包括γ-甲基丙烯醯氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、γ-甲基丙烯醯氧基丙基三甲氧基矽烷、γ-甲基丙烯醯氧基丙基二乙氧基矽烷、γ-

甲基丙烯醯氧基丙基三乙氧基矽烷及兩種或多種前述之組合。說明性乙烯基矽烷偶合劑包括乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、乙烯基參(β-甲氧基乙氧基)矽烷及兩種或多種前述之組合。

此組合物係進一步包含微粒子玻璃填料。當於本文中使用時，微粒子玻璃填料係描述具有縱橫比(在薄片類型填料之情況中為長度/寬度，或在球形類型填料之情況中為長度/直徑)低於或等於1之填料。舉例之微粒子玻璃填料包括玻璃珠、玻璃薄片及其組合。微粒子玻璃填料包括如上文關於玻璃纖維所述之玻璃。微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。微粒子玻璃填料係具有平均粒子大小為20至160微米。

微粒子玻璃填料可以15至35重量%，或更特別是17至33重量%，或又更特別是19至31重量%之量存在，以組合物之總重量為基準。

組合物可視情況包含添加劑，譬如UV吸收劑；安定劑，譬如光安定劑及其他；潤滑劑；增塑劑；顏料；染料；著色劑；抗靜電劑；發泡劑；起泡劑；金屬去活化劑，及包含一或多種前述添加劑之組合。抗氧化劑可為化合物，譬如亞磷酸鹽、亞膦酸鹽及受阻酚類或其混合物。含磷之安定劑包括亞磷酸三芳酯與膦酸芳酯，係已知為可用添加劑。雙官能性含磷化合物亦可被採用。安定劑可具有分子量大於或等於300。於一些具體實施例中，具有分子量大於或等於500之含磷安定劑係可使用。含磷之安定劑典型上係在配

方之0.05-0.5重量%下存在於組合物中。流動助劑與脫模化合物亦意欲被涵蓋在內。

於另一項具體實施例中，組合物可進一步包含脫模劑。脫模劑之實例包括但不限於天然與合成石蠟、聚乙烯蠟類、氟碳類及其他烴脫模劑；硬脂酸、羥基硬脂酸及其他高碳脂肪酸，羥基脂肪酸類及其他脂肪酸脫模劑；硬脂酸醯胺、乙烯雙硬脂醯胺及其他脂肪酸醯胺，次烷基雙脂肪酸醯胺及其他脂肪酸醯胺脫模劑；硬脂基醇、鯨蠟醇及其他脂族醇，多羥醇、聚二醇、聚甘油及其他醇性脫模劑；硬脂酸丁酯、四硬脂酸異戊四醇酯及脂肪酸之其他低碳醇酯類、脂肪酸之多羥醇酯類、脂肪酸之聚二醇酯類及其他脂肪酸酯脫模劑；聚矽氧油及其他聚矽氧脫模劑，以及任何前述之混合物。脫模劑可併用其他添加劑，例如聚四氟乙烯苯乙烯丙烯腈。

脫模劑之量可大於或等於0.1重量%，以組合物之總重量為基準。於一項具體實施例中，脫模劑之量為0.1至2重量%，以組合物之總重量為基準。於另一項具體實施例中，脫模劑之量為0.5至1重量%，以組合物之總重量為基準。

組合物可有利地含有上文明確地列示者以外之組合。例如，於一項具體實施例中，熱塑性組合物包含：30重量%至70重量%之具有酐末端基之聚醚醯亞胺，及當藉光散射測定時，重量平均分子量為28,000至38,000；15重量%至40重量%之聚碳酸酯，15重量%至35重量%之玻璃纖維；15重量%至35重量%之微粒子玻璃填料；及添加劑，選自包

括UV吸收劑；安定劑；潤滑劑；增塑劑；顏料；染料；著色劑；抗靜電劑；發泡劑；起泡劑；金屬去活化劑及其組合；以致在形成組合物之前，微粒子玻璃填料係具有包含胺基矽烷與胺基甲酸酯基之塗層。添加劑可以個別量包含任何上文所提及之添加劑。添加劑可為四硬脂酸異戊四醇酯。或者，添加劑可為亞磷酸鹽安定劑。於一項具體實施例中，添加劑可包括四硬脂酸異戊四醇酯與安定劑之混合物，該安定劑係選自包括亞磷酸鹽安定劑、受阻酚安定劑及其組合。量係以組合物之總重量為基準。微粒子玻璃填料可為玻璃薄片，且玻璃纖維可為具有縱橫比大於100之玻璃纖維。其他修正係為可能。

熱塑性組合物可藉熔融混合或乾摻合與熔融混合之組合製成。熔融混合可在單或雙螺桿類型壓出機或類似混合裝置中進行，其可施加剪切力與熱至組件。熔融混合可在大於或等於高耐熱熱塑性樹脂之熔解溫度，且低於組合物任何成份之降解溫度之溫度下進行。

可首先將所有成份添加至處理系統中。於一些具體實施例中，可相繼地添加諸成份，或經由使用一或多種母批料。可有利地於下游添加玻璃纖維，以降低纖維斷裂之量。

於一項具體實施例中，此組合物包含將高耐熱熱塑性樹脂與具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷塗層之微粒子玻璃填料熔融混合之反應產物。

於一些具體實施例中，熔融混合係使用壓出機進行，且組合物係以股線或多重股線離開壓出機。股線之形狀係依

所使用模頭之形狀而定，且沒有特定限制。

於一項具體實施例中，製造熱塑性組合物之方法包括：將高耐熱熱塑性樹脂與微粒子玻璃填料熔融摻合，以形成第一種混合物；及將第一種混合物與玻璃纖維熔融摻合。微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

一項具體實施例為包含熱塑性組合物之物件，其中熱塑性組合物包含：高耐熱熱塑性樹脂、玻璃纖維及微粒子玻璃填料。在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料係具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

組合物係藉下述非限制性實例進一步描述。

【實施方式】

實例

實例 1-14

下述實例係使用表1中所示之材料。除非另有指明，否則下列表中所示之量係以重量百分比表示，以組合物之總重量為基準。

表1

成份	說明
PEI	聚醚醯亞胺，具有酐末端基，及當藉光散射測定時，重量平均分子量為32,000。此聚醚醯亞胺可以商標名ULTEM™1010市購得自GE塑膠。

PES	聚醚碸，當藉ISO 307測定時，具有黏度值為56毫升/克。此聚醚碸可以商標名ULTRASON™ E2010市購得自BASF。
PCE	聚碳酸酯，具有對-異丙苯基酚末端基，及當藉光散射測定時，重量平均分子量為28,350。此聚碳酸酯可以商標名LEXAN™市購得自GE塑膠。
玻璃纖維	玻璃纖維，具有平均直徑為10微米，且平均長度為4毫米。此玻璃纖維係以矽烷偶合劑與黏合劑塗覆。玻璃纖維可以商標名OC 165A-10P市購得自Owens Corning。
雲母I	雲母，具有平均粒子大小為15微米，且長度對厚度比例為5。此雲母可以商標名400HK市購得自Suzorite。
雲母II	雲母，具有平均粒子大小為189微米，且長度對厚度比例為16。此雲母可以商標名150S市購得自Suzorite。
玻璃薄片I	玻璃薄片，具有平均粒子大小為140微米，且長度對厚度比例為28。此玻璃薄片係以環氧基矽烷/胺基矽烷偶合劑與環氧基黏合劑塗覆。玻璃薄片可以商標名REFG301市購得自Nippon薄片玻璃。
玻璃薄片II	玻璃薄片，具有平均粒子大小為140微米，且長度對厚度比例為28。此玻璃薄片係以胺基矽烷偶合劑與胺基甲酸酯黏合劑塗覆。玻璃薄片可以商標名REFG302市購得自Nippon薄片玻璃。

玻璃薄片III	未經塗覆之玻璃薄片，具有平均粒子大小為40微米，且長度對厚度比例為8。此玻璃薄片可以商標名REF140市購得自Nippon薄片玻璃。
環氧基矽烷	環氧基矽烷，具有重量平均分子量為236，且可以商標名A-187市購得自GE先進材料。
胺基矽烷	胺基矽烷，具有重量平均分子量為221，且可以商標名A-1100市購得自GE先進材料。
黏土	黏土，具有平均粒子大小為42微米，可以商標名Polyfil HG-90市購得自J.M. Huber公司。

實例1-9

實例2與3係使用以表2中所指示之矽烷塗覆之雲母。實例5與6係使用以表2中所指示之矽烷塗覆之黏土。將此雲母與黏土藉由混合塗覆，並在高速下，於Superfloater中攪拌。於實例8與9中所使用之玻璃薄片係由玻璃製造者塗覆。

將熱塑性樹脂與微粒子填料，例如玻璃薄片、黏土或雲母，進行乾摻合，並使用37毫米Toshiba雙螺桿壓出機，在330-345℃電熱圓筒設定溫度及每分鐘300-350轉數下熔融混合。將玻璃纖維使用側面進料器於下游添加。將混合物以股線壓出，並於水浴中冷卻後切成丸粒。使丸粒在烘箱中，於150℃下乾燥4至6小時，然後射出成型以供測試。組合物與數據係示於表2中。實例5-8係含有0.5重量百分比之熱安定劑與離型劑。

組合物係根據ASTM D638，在每分鐘5.0毫米下，使用單

一閘門與雙重閘門兩種試樣測試抗張強度。在單一閘門(SG)試樣中，將熔融態組合物在試樣之一端，自單一位置注入模具中。在雙重閘門(DG)試樣中，將熔融態組合物自兩個位置注入模具中，各位在試樣之相反端，且造成熔接線之形成。於雙閘試樣上之抗張強度測試係評估熔接線強度。抗張強度值係以百萬巴斯卡(MPa)表示。組合物亦根據ASTM D790，使用3.2毫米厚棒塊，在每分鐘2.7毫米之速度下測試降伏下之撓曲強度。全長為50毫米。撓曲強度結果係以MPa作報告。組合物係根據ASTM D648，在1.82 MPa下，使用3.2毫米厚棒塊進一步測試熱變形溫度(HDT)，且其結果係以℃作報告。切口Izod測試係根據ASTM D256進行，且其結果係以焦耳/米(J/m)作報告。

表2

成份	1*	2*	3*	4*	5*	6*	7*	8	9*
PEI	55	55	55	55	55	55	55	55	55
玻璃纖維	20	20	20	20	20	20	20	20	20
雲母II	25	24.5	24.5	-	-	-	-	-	-
黏土	-	-	-	25	24.5	24.5	-	-	-
玻璃薄片I	-	-	-	-	-	-			25
玻璃薄片II								25	
玻璃薄片III							25		
環氧基矽烷	-	0.5	-	-	0.5	-	-	-	-
胺基矽烷III	-	-	0.5	-	-	0.5	-	-	-
抗張強度(SG), MPa	117	136	137	90	94	95	115	132	117
抗張強度(DG), MPa	31	42	44	40	51	50	41	77	63

TS (DG)/TS (SG)	0.27	0.30	0.32	0.44	0.54	0.53	0.35	0.58	0.53
降伏下之撓曲強度, MPa	185	187	196	155	143	-	172	175	143
HDT, 1.82 MPa, ℃	206	209	207	203	206	-	207	205	206
Izod, 切口, J/m	42	42	41	19	19	-	33	35	38

*比較實例

實例8為其中玻璃填料在形成組合物之前具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷塗層之實例。其結果証實實例8之組合物係顯示實質上較高雙閘抗張強度，當與比較實例中之另一種組合物比較時，該比較實例係以未具有含胺基甲酸酯基與胺基矽烷塗層之玻璃填料製成。例如，實例8之組合物顯示其具有超過實例1兩倍之雙閘抗張強度，其係以含有聚醚醯亞胺、玻璃纖維及雲母之組合物為基準。

與實例1比較，實例8亦顯示兩倍之DG抗張強度對SG抗張強度之比例。換言之，本發明係為提升熔接線強度之最有效組合物。在不同類型之非纖維填料中，具有包含矽烷塗層之組合物係具有比未具有塗層之相應者較高之雙閘抗張強度。再一次，在具有以矽烷塗覆之非纖維填料之所有組合物中，具有包含經塗覆胺基甲酸酯基與胺基矽烷塗層之玻璃填料之實例8，係顯示最高雙閘抗張強度。

當與使用未經塗覆玻璃薄片之實例7比較時，使用經塗覆玻璃薄片之實例8與9，係在單閘與雙閘兩種抗張強度上顯示驚人增加。甚至更令人驚訝的是以下事實，採用具有胺基矽烷偶合劑與胺基甲酸酯黏合劑之玻璃薄片之實例

8，係証實顯著地高於使用胺基矽烷偶合劑與環氧基黏合劑之實例9之雙閘抗張強度。

實例10-14

實例10-14係按上文關於實例1-9所述製成與測試。實例10-12係含有0.5重量百分比熱安定劑與離型劑。組合物與結果係示於表3中。

表3

成份	10*	11	12*	13*	14
PEI	29.5	29.5	29.5		
PES				55	55
PCE	20	20	20		
玻璃纖維	30	30	30	20	20
玻璃薄片I			20		
玻璃薄片II		20			25
玻璃薄片III	20			25	
抗張強度(SG), MPa	134	133	141	100	108
抗張強度(DG), MPa	37	50	42	38	65
TS (DG)/TS (SG)	0.27	0.38	0.30	0.38	0.60
在降伏之撓曲強度, MPa	176	177	176	149	162
HDT, 1.82 MPa, ℃	184	185	186	204	206
Izod, 切口, J/m	47	57	38	41	43

*比較實例

實例10至14係証實結果類似實例7-9之結果，但具有不同樹脂系統。實例10含有未經塗覆之玻璃薄片，而實例12含有以胺基矽烷偶合劑與環氧基黏合劑塗覆之玻璃薄片。實例10與12兩者係具有比含有以胺基矽烷偶合劑與胺基甲酸

酯黏合劑塗覆之玻璃薄片之實例11較低之單閘與雙閘抗張強度。實例13與14之比較係顯示當以胺基甲酸酯黏合劑與胺基矽烷偶合劑塗覆之玻璃薄片被使用於聚醚碸基質中時，在雙閘抗張強度上有顯著增加。與使用未經塗覆玻璃薄片之試樣比較，該增加係甚至高於當基質樹脂包含聚醚醯亞胺或聚醚醯亞胺與聚碳酸酯時。

正如可自前文實例所見及者，在雙閘抗張強度上之顯著且令人驚訝之增加，可利用以胺基矽烷偶合劑與胺基甲酸酯黏合劑塗覆之玻璃薄片達成。

雖然本發明已參考數項具體實施例加以描述，但熟諳此藝者應明瞭的是，可在未偏離本發明之範圍下施行各種改變，且等效事物可替代其要件。此外，可施行許多修正，以使特定狀況或物質適應本發明之陳述內容，而未偏離其基本範圍。因此，所意欲的是本發明並不受限於所揭示作為關於進行本發明所意欲涵蓋在內之最良好模式之特定具體實施例，但本發明將包括落在隨文所附請求項範圍內之所有具體實施例。

五、中文發明摘要：

一種熱塑性組合物包含：高耐熱熱塑性樹脂、玻璃纖維及微粒子玻璃填料。在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料係具有包含胺基矽烷與胺基甲酸酯基之塗層。

六、英文發明摘要：

A thermoplastic composition comprises: a high heat thermoplastic resin, glass fiber, and a particulate glass filler. The particulate glass filler, prior to forming the composition, has a coating comprising an aminosilane and a urethane groups.

十、申請專利範圍：

1. 一種熱塑性組合物，其包含：

高耐熱熱塑性樹脂；

玻璃纖維；及

微粒子玻璃填料，

其中在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

2. 如請求項1之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於75百萬巴斯卡。

3. 如請求項1之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺與聚碳酸酯，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於40百萬巴斯卡。

4. 如請求項1之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚碸，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於50百萬巴斯卡。

5. 如請求項1之組合物，其中玻璃纖維係以15至35重量百分比之量存在，且微粒子玻璃填料係以15至35重量百分比之量存在，其中所有量係以組合物之總重量為基準。

6. 如請求項1之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂係選自包括聚醚醯亞胺、聚醚碸及其組合。

7. 如請求項1之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂具有玻璃轉移溫度大於或等於180℃。

8. 如請求項1之組合物，其中玻璃纖維具有平均長度為1至

20毫米。

9. 如請求項1之組合物，其中玻璃薄片具有平均粒子大小為20至160微米。

10. 如請求項1之組合物，其中玻璃纖維在形成組合物之前具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

11. 如請求項1之組合物，其中組合物進一步包含第二種樹脂，其中第二種樹脂不為高耐熱樹脂。

12. 如請求項1之組合物，其中該第二種樹脂係選自包括聚碳酸、聚碳酸酯、聚酯、聚醯胺及兩種或多種前述之組合。

13. 一種熱塑性組合物，其包含：

高耐熱熱塑性樹脂；

玻璃纖維；及

微粒子玻璃填料，

其中在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層，且

其中在形成組合物之前，該高耐熱熱塑性樹脂具有末端基，其在熔融混合條件下可與胺基甲酸酯基、胺基矽烷或其組合具反應性或可與其相容。

14. 如請求項13之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於75百萬巴斯卡。

15. 如請求項13之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺與聚碳酸酯，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於40百萬巴斯卡。

16. 如請求項13之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚碸，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於50百萬巴斯卡。

17. 如請求項13之組合物，其中玻璃纖維係以15至35重量百分比之量存在，且微粒子玻璃填料係以15至35重量百分比之量存在，其中所有量係以組合物之總重量為基準。

18. 如請求項13之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂係選自包括聚醚醯亞胺、聚醚碸及其組合。

19. 如請求項13之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂具有玻璃轉移溫度大於或等於180℃。

20. 如請求項13之組合物，其中玻璃纖維具有平均長度為1至20毫米。

21. 如請求項13之組合物，其中玻璃薄片具有平均粒子大小為20至160微米。

22. 如請求項13之組合物，其中玻璃纖維在形成組合物之前具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

23. 如請求項13之組合物，其中組合物進一步包含第二種樹脂，其中第二種樹脂不為高耐熱樹脂。

24. 如請求項13之組合物，其中該第二種樹脂係選自包括聚碳酸、聚碳酸酯、聚酯、聚醯胺及兩種或多種前述之組合。

25. 一種熱塑性組合物，其包含：

高耐熱熱塑性樹脂；

玻璃纖維；及

微粒子玻璃填料，

其中在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層，且

其中在形成組合物之前，該高耐熱熱塑性樹脂具有酐末端基、胺基末端基或其組合。

26. 如請求項25之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於75百萬巴斯卡。

27. 如請求項25之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚醯亞胺與聚碳酸酯，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於40百萬巴斯卡。

28. 如請求項25之熱塑性組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂包含聚醚碸，且當根據ASTM D638測定時，該組合物具有雙閘抗張強度大於或等於50百萬巴斯卡。

29. 如請求項25之組合物，其中玻璃纖維係以15至35重量百分比之量存在，且微粒子玻璃填料係以15至35重量百分比之量存在，其中所有量係以組合物之總重量為基準。

30. 如請求項25之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂係選自包括聚醚醯亞胺、聚醚碸及其組合。

31. 如請求項25之組合物，其中高耐熱熱塑性樹脂具有玻璃轉移溫度大於或等於180℃。

32. 如請求項25之組合物，其中玻璃纖維具有平均長度為1至20毫米。

33. 如請求項25之組合物，其中玻璃薄片具有平均粒子大小為20至160微米。

34. 如請求項25之組合物，其中玻璃纖維在形成組合物之前具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

35. 如請求項25之組合物，其中組合物進一步包含第二種樹脂，其中第二種樹脂不為高耐熱樹脂。

36. 如請求項25之組合物，其中該第二種樹脂係選自包括聚碳酸、聚碳酸酯、聚酯、聚醯胺及兩種或多種前述之組合。

37. 一種製造熱塑性組合物之方法，其包括：

將高耐熱熱塑性樹脂與微粒子玻璃填料熔融摻合，以形成第一種混合物；

將第一種混合物與玻璃纖維熔融摻合，

其中微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

38. 如請求項37之方法，其中玻璃纖維在形成組合物之前具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

39. 如請求項37之方法，其中在形成組合物之前，該高耐熱熱塑性樹脂具有能夠與胺基甲酸酯基、胺基矽烷或其組合反應或可與其相容之末端基。

40. 一種物件，其包含熱塑性組合物，其中熱塑性組合物包含：

高耐熱熱塑性樹脂；

玻璃纖維；及

微粒子玻璃填料，

其中在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層。

41. 一種熱塑性組合物，其包含：

30重量百分比至70重量百分比之聚醚醯亞胺，具有酐末端基，及當藉光散射測定時，重量平均分子量為28,000至38,000；

15重量百分比至40重量百分比之聚碳酸酯

15重量百分比至35重量百分比之玻璃纖維；

15重量百分比至35重量百分比之微粒子玻璃填料；

添加劑，選自包括UV吸收劑；安定劑；潤滑劑；增塑劑；顏料；染料；著色劑；抗靜電劑；發泡劑；起泡劑；金屬去活化劑及其組合；

其中在形成組合物之前，該微粒子玻璃填料具有包含胺基甲酸酯基與胺基矽烷之塗層，且

其中重量百分比係以組合物之總重量為基準。

42. 如請求項41之組合物，其中添加劑為四硬脂酸異戊四醇酯。

43. 如請求項41之組合物，其中添加劑為亞磷酸鹽安定劑。

44. 如請求項41之組合物，其中添加劑包含四硬脂酸異戊四醇酯與安定劑之混合物，該安定劑係選自包括亞磷酸鹽安定劑、受阻酚安定劑及其組合。

45. 如請求項41之組合物，其中微粒子玻璃填料為玻璃薄片，且玻璃纖維為纖維玻璃。

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：(無)

(二)本代表圖之元件符號簡單說明:

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)