



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 103534092 A

(43) 申请公布日 2014. 01. 22

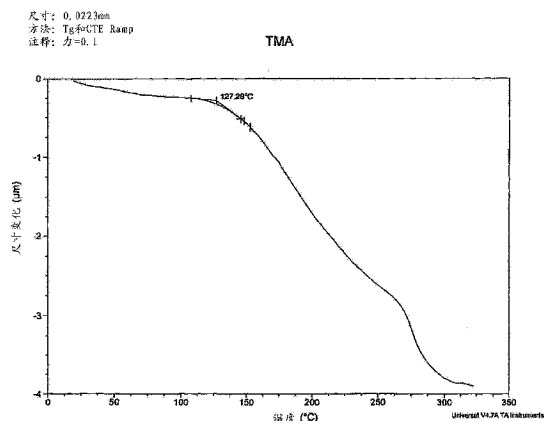
- (21) 申请号 201280022867. 6 B32B 27/34(2006. 01)
- (22) 申请日 2012. 05. 11 H01B 3/38(2006. 01)
- (30) 优先权数据 H01B 17/62(2006. 01)  
61/485, 180 2011. 05. 12 US H02K 3/30(2006. 01)  
H01F 1/18(2006. 01)
- (85) PCT国际申请进入国家阶段日  
2013. 11. 12
- (86) PCT国际申请的申请数据  
PCT/US2012/037558 2012. 05. 11
- (87) PCT国际申请的公布数据  
W02012/155060 EN 2012. 11. 15
- (71) 申请人 艾伦塔斯 PDG 股份有限公司  
地址 美国密苏里
- (72) 发明人 T·J·默里 M·G·韦恩科勒  
H·S·拉瓦
- (74) 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专  
利商标事务所 11038  
代理人 张钦
- (51) Int. Cl.  
B32B 27/08(2006. 01)

权利要求书2页 说明书9页 附图9页

(54) 发明名称  
复合绝缘膜

(57) 摘要

提供含基础聚合物层和施加到该基础聚合物层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层的挠性且自支持的复合膜。该复合绝缘膜可用作狭槽衬垫, 以提供电动机组件绝缘。可通过操作电动机生成的热流, 进一步固化该复合绝缘膜中的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层。



1. 一种挠性且自支持的复合绝缘膜,它包括:  
基础聚合物薄膜层 ;和  
部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。
2. 权利要求 1 的复合绝缘膜,其中在所述基础聚合物薄膜层的一个主表面上流延所述部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。
3. 权利要求 1 的复合绝缘膜,其中在所述基础聚合物薄膜层的两个相对面对的主表面上流延所述部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。
4. 权利要求 2 的复合绝缘膜,其中所述基础聚合物薄膜层选自聚酰胺薄膜,聚酰亚胺薄膜,聚酯薄膜,聚醚砜薄膜,聚砜薄膜或聚醚酰亚胺薄膜。
5. 权利要求 4 的复合绝缘膜,其中所述基础聚合物薄膜层包括选自聚对苯二甲酸乙二酯,聚萘二甲酸乙二酯和聚对苯二甲酸丁二酯中的聚酯薄膜。
6. 权利要求 5 的复合绝缘膜,其中复合膜的厚度为约 2.5mil- 约 16mil。
7. 权利要求 6 的复合绝缘膜,其中所述部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层的厚度为约 0.5-2mil。
8. 权利要求 7 的复合绝缘膜,其中所述薄膜显示出最多约 220°C 的热指数。
9. 一种制备挠性且自支持复合膜的方法,该方法包括:  
提供基础聚合物薄膜层;  
在所述基础聚合物薄膜层的至少一个主要的相对面对的表面流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层 ;和  
部分固化所述聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。
10. 权利要求 9 的方法,其中在所述基础聚合物薄膜层的两个相对面对的主表面上流延所述部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。
11. 权利要求 9 的方法,其中提供所述基础聚合物薄膜层包括提供选自聚酰胺薄膜,聚酰亚胺薄膜,聚酯薄膜,聚醚砜薄膜,聚砜薄膜或聚醚酰亚胺薄膜中的基础聚合物薄膜层。
12. 权利要求 11 的方法,其中提供所述基础聚合物薄膜层包括提供选自聚对苯二甲酸乙二酯,聚萘二甲酸乙二酯和聚对苯二甲酸丁二酯中的所述聚酯薄膜。
13. 权利要求 12 的方法,其中提供所述聚酯薄膜包括提供厚度为约 2mil- 约 14mil 的聚酯薄膜。
14. 权利要求 13 的方法,其中在所述基础聚合物薄膜层上流延所述聚(酰胺)酰亚胺薄膜层包括流延厚度为约 0.5mil- 约 2mil 的聚(酰胺)酰亚胺层。
15. 权利要求 9 的方法,其中通过在约 100°C - 约 260°C 的温度下加热所述聚(酰胺)酰亚胺薄膜层约 20 秒 - 约 60 分钟,来部分固化所述层。
16. 一种给电动机或变压器提供绝缘的方法,该方法包括:  
提供权利要求 1-15 任何一项的挠性且自支持的复合膜 ;和  
将所述复合膜插入到电动机狭槽或变压器内。
17. 一种电动机或变压器,它包括:  
待插入的组件 ;和  
与所述组件相邻地布置的权利要求 1-15 任何一项的挠性且自支持的复合膜。
18. 一种给电动机提供绝缘的方法,该方法包括:

提供在其内具有狭槽的电动机组件 ;和  
在所述狭槽内插入权利要求 1-15 任何一项的挠性且自支持的复合膜。

## 复合绝缘膜

### 技术领域

[0001] 公开了在电绝缘应用中使用的复合绝缘膜。该复合绝缘膜包括施加到基础聚合物层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层。

### 背景技术

[0002] 基于聚(酰胺)酰亚胺的树脂涂料组合物形成挠性和耐久薄膜且尤其可用作漆包线,层压体用粘合剂,油漆和类似物。这种聚(酰胺)酰亚胺基涂料组合物尤其因它们的数量级为 220°C 的长期高温能力而著名,除了它们的其他质量以外,这一性能使得它们尤其可用于电绝缘应用,例如磁铁漆包线。这与不具有这种高度连续耐热性的常见的聚酯和聚酯酰亚胺基础涂料组合物相比。

[0003] 通常使用相对昂贵的有机溶剂制备聚(酰胺)酰亚胺,但酰胺酰亚胺涂层的经济使用受到抑制。因此,常规的是在不那么昂贵的聚酯或聚酯酰亚胺基础涂层上使用聚(酰胺)酰亚胺组合物作为罩面层。

[0004] 鉴于其机械和电性能以及相对低的生产成本,聚对苯二甲酸乙二酯(PET)广泛地用作电绝缘薄膜。然而,PET 膜拥有低的耐热性和因此被归类为 B 等或更低等级的绝缘。聚芳族酰胺薄膜,例如以商品名 NOMEX 商购于 Du Pont 的那些与 PET 薄膜相比,显示出优异的耐热性,但报道过电介质击穿的问题。

[0005] 聚(酰胺)酰亚胺薄膜显示出使得它们适合作为电绝缘材料的机械性能,热性能,耐磨性和耐化学性。尽管与聚芳族酰胺和聚酯薄膜相比,聚(酰胺)酰亚胺薄膜显示出许多优异的物理性能,但成本和自立式薄膜性能的考虑阻碍了聚(酰胺)酰亚胺薄膜用于电绝缘应用的商业化。

[0006] 因此,本领域需要成本有效的电绝缘材料,它显示出机械性能,热性能,耐磨性和耐化学性的合适的组合。

[0007] 发明概述

[0008] 本发明的发明概述部分拟提供公开内容的概括,以便提供给读者复合绝缘膜和制备与使用方法的基本了解。这一概述部分不打算构成复合薄膜和制备方法与用途的公开内容的深入综述,且它没有确定复合薄膜或方法的重要/关键要素,也没有描绘本发明公开内容的范围。本发明概述部分的唯一目的是以简化的形式列出本文公开内容的一些概念作为以下列出的更加详细说明书的引言。

[0009] 提供一种挠性且自支持的复合膜,它包括基础聚合物薄膜层,和部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。

[0010] 还提供一种制备挠性且自支持的复合膜的方法,该方法包括提供基础聚合物薄膜层,和在上述基础聚合物薄膜层上流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层,和部分固化所述聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。

[0011] 另外提供一种给电动机或变压器提供绝缘的方法,该方法包括提供含基础聚合物薄膜层,和在所述基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的挠性且自支持的

复合膜,并将所属复合膜插入到电动机狭槽(slot)或变压器内。

[0012] 进一步提供一种电动机或变压器,它包括待绝缘的组件,和与上述组件相邻的含基础聚合物薄膜层和在所述基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的挠性且自支持的复合膜。

[0013] 进一步提供一种给电动机提供绝缘的方法,该方法包括提供在其内具有狭槽的电动机组件,和在所述狭槽内插入含基础聚合物薄膜层和在所述基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的挠性且自支持的复合膜。

[0014] 附图简述

[0015] 图1是描绘未固化的流延高分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的热机械分析(TMA)的图表。

[0016] 图2是描绘完全固化的流延高分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的热机械分析(TMA)的图表。

[0017] 图3是描绘在未固化的分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜上调制的差示扫描量热分析(mDSC)的图表。

[0018] 图4是描绘在分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的第一加热循环上显示可逆(reversing)和非-可逆热流组分的差示扫描量热分析(mDSC)的图表。

[0019] 图5是描绘显示固化的分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的第二加热循环的可逆热流组分的差示扫描量热分析(mDSC)的图表。

[0020] 图6是描绘未固化的流延低分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的热机械分析(TMA)的图表。

[0021] 图7是描绘完全固化的流延低分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的热机械分析(TMA)的图表。

[0022] 图8是描绘在低分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的第一加热循环上显示可逆和非-可逆热流组分的调制的差示扫描量热分析(mDSC)的图表。

[0023] 图9是描绘显示固化的低分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的第二加热循环的可逆热流组分的差示扫描量热分析(mDSC)的图表。

[0024] 详细说明

[0025] 公开了一种挠性且自支持的复合绝缘膜。该复合绝缘膜包括基础聚合物薄膜层和与该基础聚合物薄膜层相邻接触的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。根据复合绝缘膜的一些示意性实施方案,在基础聚合物薄膜层的表面上流延部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。

[0026] 在没有限制且仅仅为了阐述的情况下,复合绝缘膜中的基础聚合物薄膜层选自聚酰胺薄膜,聚酰亚胺薄膜,聚酯薄膜例如聚酯对苯二甲酸酯(PET)或聚酯萘二甲酸酯(PEN),聚醚砜薄膜,聚砜薄膜,或聚醚酰亚胺薄膜。根据一些示意性实施方案,复合绝缘膜中的基础聚合物薄膜层包括聚酯薄膜。根据这一实施方案,复合绝缘膜包括聚(酰胺)酰亚胺薄膜层施加或者沉积在至少一部分基础聚酯薄膜层上的聚酯的基础聚合物薄膜层。

[0027] 含聚酯的基础聚合物薄膜层和在其上施加的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的复合绝缘膜的厚度为约2mil-约20mil。根据一些示意性实施方案,该复合绝缘膜的总厚度可以是约2.5mil-约16mil。复合绝缘膜中的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层的厚度可以是约

0.1-约 5mil。根据一些示意性实施方案,复合绝缘膜中的聚(酰胺)酰亚胺层的厚度可以是约 0.5-约 2mil。可将聚(酰胺)酰亚胺层施加到聚酯层的一个或两个相对面对的表面。该复合膜薄的性质显示出挠性,充足的结构完整性,以便插入到电动机狭槽内,并显示出最多约 220°C 的热指数。

[0028] 可通过包括提供基础聚合物薄膜层和在基础聚合物薄膜层的表面上施加聚(酰胺)酰亚胺层,制备挠性且自-支持的复合绝缘膜。可通过首先提供基础聚合物薄膜层和在基础聚合物薄膜层的表面上流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层,制备复合膜。根据一些示意性实施方案,在基础聚合物层的一个主表面上流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。然而,根据其他示意性实施方案,可在基础聚合物层的两个相对面对的主表面上流延聚(酰胺)酰亚胺层。然后,部分固化一层或多层聚(酰胺)酰亚胺层。这提供具有结构完整性的挠性且自支持的复合膜,从而使得该薄膜适合于插入到电动机内的狭槽中。

[0029] 制备复合绝缘膜的方法包括提供选自聚酰胺薄膜,聚酰亚胺薄膜,聚酯薄膜,聚醚砜薄膜,聚砜薄膜或聚醚酰亚胺薄膜中的基础聚合物薄膜层。该方法包括选择或制备厚度为约 2mil-约 14mil 的聚酯薄膜的基础聚合物薄膜层。将聚(酰胺)酰亚胺薄膜层施加到基础聚酯薄膜层的表面上。作为实例,在基础聚酯薄膜层的表面上流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。可在基础聚酯层上流延聚(酰胺)酰亚胺,实现约 0.5mil-约 2mil 的厚度。可在聚酯基础层的相对面对的一个或二个面上流延聚(酰胺)酰亚胺层。

[0030] 一旦在基础聚酯层表面上流延聚(酰胺)酰亚胺薄膜层,则部分固化聚(酰胺)酰亚胺层,获得挠性且自支持的复合绝缘膜。通过在约 100°C-约 260°C 的温度下加热聚(酰胺)酰亚胺薄膜层约 20 秒-约 60 分钟,部分固化该层。或者,可通过在约 150°C-约 180°C 的温度下加热聚(酰胺)酰亚胺薄膜层约 1 分钟-约 10 分钟,部分固化该层。

[0031] 对制备复合绝缘膜可使用的作为基础树脂的聚(酰胺)酰亚胺没有限制。可使用例如通过使三羧酸酐和二异氰酸酯在极性溶剂中直接反应而获得的聚酰胺酰亚胺,或者通过使三羧酸酐与二胺在极性溶剂中反应以引入酰亚胺键和然后以常见的方式采用二异氰酸酯进行酰胺化而获得的聚酰胺酰亚胺。进一步的示意性的方法是使三羧酸酐酰氯与二胺在极性溶剂中反应。

[0032] 作为制备这一基础树脂以用于薄膜形成层来说,可使用的三羧酸酐,通常使用偏苯三酸酐。在制备聚(酰胺)酰亚胺中使用各种羧酸酐。这些包括但不限于偏苯三酸酐(TMA);2,6,7-萘三甲酸酐;3,3',4-联苯三甲酸酐;3,3',4-二苯甲酮三甲酸酐;1,3,4-环戊烷四甲酸酐;2,2',3-联苯三甲酸酐;联苯砜 3,3',4-三甲酸酐;二苯基亚异丙基 3,3',4-三甲酸酐;3,4,10-萘三甲酸酐;3,4-二羧基苯基 3-羧基苯基醚酸酐;乙烯三甲酸酐;1,2,5-萘三甲酸酐。

[0033] 当它反应时,一部分用量的三羧酸酐可被四羧酸酐替代。在这一情况下,作为四羧酸酐,可使用例如均苯四酸二酐,3,3',4,4'-二苯甲酮四甲酸二酐或类似物。进一步地,一部分用量的三羧酸酐可被另一酸或酸酐替代,例如偏苯三酸,间苯二甲酸,己二酸,马来酸或对苯二甲酸。

[0034] 可与三羧酸酐反应的二异氰酸酯的非限定性实例包括芳族二异氰酸酯,例如 4,4'-二苯甲烷二异氰酸酯和甲苯二异氰酸酯,和二胺的实例包括芳族二胺,例如 m-苯二胺,4,4'-二氨基二苯醚,1,2-亚乙基二胺,4,4'-二氨基二苯甲烷,4,4'-二氨基二苯砜和

4,4'-二氨基二苯甲酮。

[0035] 根据一些实施方案,聚(酰胺)酰亚胺树脂可与一种或多种其他相容的树脂结合使用,以制备复合绝缘膜。例如,且没有限制地,聚(酰胺)酰亚胺树脂可与一种或多种下述的相容的树脂结合使用,以制备复合绝缘膜:聚酰亚胺,聚醚酰亚胺,聚砜,聚醚砜,聚乙烯醇,聚乙烯缩丁醛,聚醚酮,苯氧基树脂及其组合。

[0036] 额外的相容树脂可与聚(酰胺)酰亚胺树脂结合使用,以改进复合绝缘膜的各种不同的性能。例如,一种或多种额外的树脂可与聚(酰胺)酰亚胺树脂结合使用,以改进所得复合绝缘膜的粘合性,热稳定性,和/或挠性。根据一些示意性实施方案,聚(酰胺)酰亚胺薄膜可与聚醚砜结合使用,以改进所得复合绝缘膜对铝的粘合性。例如,且没有限制地,聚醚砜可以约 1wt%-约 99wt% 的用量与聚(酰胺)酰亚胺共混。

[0037] 本发明的公开内容还包括给电动机或变压器提供绝缘的方法。给电动机或变压器提供绝缘的方法包括提供含基础聚合物薄膜层和在基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的挠性且自支持的复合膜,并将该复合膜插入到电动机狭槽或变压器内。

[0038] 下述非限定性胺可单独或者以混合物形式使用:对二甲苯二胺,双(4-氨基-环己基)己烷,六亚甲基二胺,七亚甲基二胺,八亚甲基二胺,九亚甲基二胺,十亚甲基二胺,3-甲基-七亚甲基二胺,4,4'-二甲基七亚甲基二胺,2,11-二氨基-十二烷,1,2-双-(3-氨基-丙氧基)乙烷,2,2-二甲基丙二胺,3-甲氧基-六亚甲基二胺,2,5-二甲基六亚甲基二胺,2,5-二甲基七亚甲基二胺,5-甲基九亚甲基二胺,1,4-二氨基-环己烷,1,12-二氨基-十八烷,2,5-二氨基-1,3,4-噁二唑,  $H_2N(CH_2)_3O(CH_2)_2O(CH_2)_3NH_2$ ,  $H_2N(CH_2)_3S(CH_2)_3NH_2$ ,  $H_2N(CH_2)_3N(CH_3)(CH_2)_3NH_2$   $\beta$ -苯二胺,对苯二胺,4,4'-二氨基-二苯丙烷,4,4'-二氨基-二苯甲烷,对二氨基联苯,4,4'-二氨基-二苯硫醚,4,4'-二氨基-二苯砜,3,3'-二氨基-二苯砜,4,4'-二氨基-二苯醚,2,6-二氨基-吡啶,双(4-氨基-苯基)二乙基硅烷,双(4-氨基-苯基)二苯基硅烷,[双(4-氨基-苯基)氧化膦,4,4'-二氨基二苯甲酮,双(4-氨基-苯基)-N-甲胺,双(4-氨基丁基)四甲基二硅氧烷,1,5-二氨基萘,3,3'-二甲基-4,4'-二氨基-联苯,3,3'-二甲氧基对二氨基联苯,2,4-双( $\beta$ -氨基-叔丁基)甲苯甲苯二胺,双(对- $\beta$ -氨基-叔丁基-苯基)醚,对-双(2-甲基-4-氨基-戊基)苯,对-双(11,1-二甲基-5-氨基-戊基)苯,间二甲苯二胺,和多亚甲基聚苯胺。

[0039] 可在制备聚酰胺酰亚胺中使用任何多异氰酸酯,亦即具有两个或多个异氰酸酯基的任何异氰酸酯,不管封闭还是未封闭。单独或混合有用的多异氰酸酯包括四亚甲基二异氰酸酯,六亚甲基二异氰酸酯,1,4-苯二异氰酸酯,1,3-苯二异氰酸酯,1,4-环己二异氰酸酯,2,4-甲苯二异氰酸酯,2,5-甲苯二异氰酸酯,2,6-甲苯二异氰酸酯,3,5-甲苯二异氰酸酯,4-氯-1,3-苯二异氰酸酯,1-甲氧基-2,4-苯二异氰酸酯,1-甲基-3,5-二乙基-2,6-苯二异氰酸酯,1,3,5-三乙基-2,4-苯二异氰酸酯,1-甲基-3,5-二乙基-2,4-苯二异氰酸酯,1-甲基-3,5-二乙基-6-氯-2,4-苯二异氰酸酯,6-甲基-2,4-二乙基-5-硝基-1,3-苯二异氰酸酯,对-二甲苯二异氰酸酯,间-二甲苯二异氰酸酯,4,6-二甲基-1,3-二甲苯二异氰酸酯,1,3-二甲基-4,6-双-( $\beta$ -异氰酸乙酯基)-苯,3-( $\alpha$ -异氰酸乙酯基)-苯基异氰酸酯,1-甲基-2,4-环己二异氰酸酯,4,4'-联苯二异氰酸酯,3,3'-二甲基-4,4'-联苯二异氰酸酯,3,3'-二甲氧基-4,4'-联苯二异氰酸酯,3,3'-二乙氧

基-4,4'-联苯二异氰酸酯,1,1'-双-(4-异氰酸苯酯基)环己烷,4,4'-二异氰酸根-二苯醚,4,4'-二异氰酸根-二环己基甲烷,4,4'-二异氰酸根-二苯甲烷,4,4'-二异氰酸根-3,3'-二甲基二苯甲烷,4,4'-二异氰酸根-3,3'-二氯二苯甲烷,4,4'-二异氰酸根-二苯基二甲基甲烷,1,5-萘二异氰酸酯,1,4-萘二异氰酸酯,4,4',4''-三异氰酸根-三苯甲烷,2,4,4'-三异氰酸根-二苯醚,2,4,6-三异氰酸根-1-甲基-3,5-二乙基苯,邻-联甲苯胺-4,4'-二异氰酸酯,间-联甲苯胺-4,4'-二异氰酸酯,二苯甲酮-4,4'-二异氰酸酯,缩二脲三异氰酸酯,多亚甲基多亚苯基异氰酸酯。

[0040] 进一步公开了一种电动机或变压器,它包括待绝缘的组件;和与待绝缘的组件相邻地布置的挠性且自支持的复合膜,所述复合膜包括基础聚合物薄膜层和在该基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层。该复合绝缘膜可在典型的具有狭槽衬垫的3-相定子中使用。该定子位于外罩内且具有在中心的转子。定子上的金属材料构成芯。合适地成型的狭槽衬垫(例如,成型如C一样)被插入到狭槽内。然后使用复合绝缘膜衬垫作为在芯和铜绕线之间的绝缘阻挡层,将铜线圈插在狭槽内。插入第二片材料,所述第二片材料是狭槽衬垫的反面(也是C形),在本领域中它被称为“楔子”,以维持铜在狭槽内,使得它不移动。

[0041] 测试复合电绝缘薄膜的制备性能。该材料在切开、冲切、成片和其他情况下加工的能力方面显示出优异的性能。拖拽刀切割小的部件也能在具有问题的情况下进行。还在没有问题或典型地与NOMEX基材料有关的烧焦的情况下进行激光切割材料。还检验在自动化工艺中楔子的形成,和在自动化的生产线内,在没有划伤或脱层的情况下,复合膜非常好地行使cuffing和插入功能。与其他已知材料相比,线插入到电动机狭槽内显示出最小的阻力。

[0042] 进一步公开了给电动机提供绝缘的方法,该方法包括提供在其内具有狭槽的电动机组件。将含基础聚合物薄膜层和在基础薄膜层上的部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜层的挠性且自支持复合膜插入到狭槽内。

[0043] 列出下述实施例,进一步详细地描述并阐述复合绝缘膜和方法。下述实施例绝对不应当被解释为限制所述复合绝缘膜或制备方法。

## 实施例

[0044] 实施例1:合成高分子量聚(酰胺)酰亚胺。

[0045] 在配有热电偶,水冷凝器,氮气入口和空气驱动的桨式搅拌器的3L烧瓶内,在搅拌下添加916.7g N-甲基-2-吡咯烷酮(NMP)(氮气流速0.5L/min)。在搅拌下添加偏苯三酸酐(107.2g,0.558mol)和二苯甲烷-4,4'-二异氰酸酯(153.5g,0.614mol)。加热该反应混合物到93°C,并在该温度下保持约1小时,然后加热到120°C并保持约1小时。然后加热该反应混合物到138-150°C,并通过G-H管监控粘度(从烧瓶中引出15g样品并在NMP内稀释到20g以供粘度测量)。当粘度达到Z时,终止加热,并添加300g NMP。一旦在100°C下冷却,则添加4.4g正丁醇和90.7g NMP。反应产物的分析表明15.9%的固体(在200°C下2小时之后)和在25°C下的粘度为2751cps。

[0046] 实施例2:合成中间分子量的聚(酰胺)酰亚胺

[0047] 在配有热电偶,水冷凝器,氮气入口和空气驱动的桨式搅拌器的3L烧瓶内,在搅

拌下添加 916.7g N-甲基-2-吡咯烷酮 (NMP) (氮气流速 0.5L/min)。在搅拌下添加偏苯三酸酐 (107.2g, 0.558mol) 和二苯甲烷-4,4'-二异氰酸酯 (153.5g, 0.614mol)。加热该反应混合物到 93°C, 并保持 1 小时, 然后加热到 120°C 并保持 1 小时。然后加热该反应混合物到 138-150°C, 并通过 G-H 管监控粘度 (从烧瓶中引出 15g 样品并在 NMP 内稀释到 20g 以供粘度测量)。当粘度达到 S 时, 终止加热, 并添加 300g NMP。一旦在 100°C 下冷却, 则添加 4.4g 正丁醇和 90.7g NMP。反应产物的分析表明 15.4% 的固体 (在 200°C 下 2 小时之后) 和在 25°C 下的粘度为 506cps。

[0048] 实施例 3: 合成低分子量的聚(酰胺)酰亚胺

[0049] 在配有热电偶, 水冷凝器, 氮气入口和空气驱动的桨式搅拌器的 3L 烧瓶内, 在搅拌下添加 500.1g N-甲基-2-吡咯烷酮 (NMP) (氮气流速 0.5L/min)。在搅拌下添加偏苯三酸酐 (124.2g, 0.646mol) 和二苯甲烷-4,4'-二异氰酸酯 (161.6g, 0.646mol)。加热该反应混合物到 93°C, 并保持 1 小时, 然后加热到 120°C 并保持 1 小时。通过 G-H 管监控粘度 (从烧瓶中引出 45g 样品, 并在 NMP 内稀释到 66g 以供粘度测量)。当粘度达到 Z 时, 终止加热, 并添加 125g NMP。一旦在 100°C 下冷却, 则添加 2.3g 甲醇并添加 165g NMP。反应产物的分析表明 25.4% 的固体 (在 200°C 下 2 小时之后) 和在 25°C 下的粘度为 2402cps。

[0050] 将树脂溶液流延在玻璃载体上, 并在 150°C 下部分固化 60 分钟, 接着在 260°C 下充分固化 20 分钟。下表 1A 和 1B 中列出了固化的低、中和高分子量聚(酰胺)酰亚胺薄膜的性能。

[0051] 固化薄膜的性能

[0052] 表 1A

[0053]

| 实施例 | Mn    | 拉伸强度 PSI | 拉伸模量 PSI |
|-----|-------|----------|----------|
| 1   | 7000  | 脆        | 脆        |
| 2   | 14000 | 14000    | 440000   |
| 3   | 36000 | 16000    | 330000   |

[0054] 表 1B

[0055]

| 实施例 | Tg(°C) | Elmendorf 撕裂强度(gm/mil) | Graves 撕裂强度(lbf/mil) |
|-----|--------|------------------------|----------------------|
| 1   | 270    | 脆                      | 脆                    |
| 2   | 270    | 5.7                    | 1.4                  |
| 3   | 250    | 8                      | 1.8                  |

[0056] 根据 ASTM D-882-91Method A, 获得表 1A 中报道的固化薄膜的拉伸强度和拉伸模量性能。

[0057] 根据 ASTM D-1922-89, 获得 Elmendorf 撕裂强度。

[0058] 根据 ASTM-D-1004-90, 获得 Graves 撕裂强度。

[0059] 未固化薄膜的性能

[0060] 使用狭槽涂布方法, 将聚(酰胺)酰亚胺树脂溶液流延在基础 PET 聚酯薄膜(100 微米)的前面和后面上。然后在烘箱内在 175°C 下干燥该复合膜大致 2 分钟, 以除去所有溶剂, 从而在 PET 薄膜的前面和后面上均留下 12.5 微米的部分固化的 PAI 层。下表 2A 和 2B 中列出了含聚酯薄膜层且包括未固化聚(酰胺)酰亚胺层的复合绝缘膜的机械性能(伸长率, 拉伸模量, 拉伸强度)和撕裂强度。

[0061] 可从 PET 基层中除去聚(酰胺)酰亚胺层, 并通过调制的差示扫描量热法检验固化状态(图 3)。观察到在 50-200°C 之间宽的放热, 这是不可逆的热流事件(图 4)。它表明在这些条件下可能发生固化事件。第二次加热显示出大致 270°C 的玻璃化转变温度, 从而表明完全固化的薄膜性能(图 5)。

[0062] 还通过热机械分析(TMA), 证实部分固化的薄膜。部分固化的聚(酰胺)酰亚胺薄膜的 TMA 表明在 115-127°C 的潜在玻璃化转变温度(图 1)。借助这一方法, 完全固化的薄膜(260°C 下 30 分钟)在大致 250-270°C 处显示出玻璃化转变温度(图 2)。图 6-9 描绘了在 PET 基础聚合物上流延的低 Mw PAI 薄膜的相同的热分析。

[0063] 表 2A- 撕裂强度

[0064]

| 样品                            | 撕裂强度 (lb/in) |
|-------------------------------|--------------|
| 高 MwPAI/PET/ 高 Mw PAI, 125 微米 | 1510         |
| 低 MwPAI/PET/ 低 Mw PAI, 125 微米 | 1779         |
| NMN, 125 微米                   | 1886         |
| Mylar, 87.5 微米                | 2718         |

[0065] 表 2B- 拉伸性能

| 样品                          | 伸长率    | 拉伸强度  | 拉伸模量  |
|-----------------------------|--------|-------|-------|
|                             |        | PSI   | PSI   |
| 高 MwPAI/PET/高 MwPAI, 125 微米 | 28.64% | 10710 | 49477 |
| 低 MwPAI/PET/低 MwPAI, 125 微米 | 61.52% | 14256 | 24099 |
| NMN, 125 微米                 | 18.16% | 12640 | 69878 |
| Mylar, 87.5 微米              | 21.36% | 19734 | 92598 |

[0067] 根据 ASTM D624, 获得表 2A 中报道的撕裂强度性能。

[0068] 根据 ASTM D638, 获得拉伸强度和拉伸模量的拉伸性能。

[0069] 下表 3 中列出了含 PET 膜的层和含部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层的复合绝缘膜的体积电阻率。

[0070] 表 3

[0071]

| 样品                             | 体积电阻率 ( $\Omega\text{-cm}$ ) |
|--------------------------------|------------------------------|
| 高 MwPAI/Mylar/ 高 MwPAI, 125 微米 | $1.16 \times 10^{16}$        |
| 低 MwPAI/Mylar/ 低 MwPAI, 125 微米 | $1.59 \times 10^{16}$        |
| NMN, 125 微米                    | $2.23 \times 10^{16}$        |
| Mylar, 87.5 微米                 | $9.16 \times 10^{15}$        |

[0072] 根据 ASTM D257, 获得体积电阻率值。

[0073] 下表 4 中列出了含聚酯薄膜层和含部分固化的聚(酰胺)酰亚胺层的复合绝缘膜的电介质击穿。

[0074] 表 4

[0075]

| 样品                             | 电介质击穿 KV/MIL |
|--------------------------------|--------------|
| 高 MwPAI/Mylar/ 高 MwPAI, 125 微米 | 2.48         |
| 低 MwPAI/Mylar/ 低 MwPAI, 125 微米 | 2.76         |
| NMN, 125 微米                    | 1.81         |
| Mylar, 87.5 微米                 | 4.58         |

[0076] 根据 ASTM D-115, 获得电介质击穿值。

[0077] 对含聚酯薄膜层和含未固化的聚(酰胺)酰亚胺层的复合绝缘膜进行耐化学性测试。下表 5 中列出了耐化学性测试的结果。将材料浸渍在以下的每一溶剂 / 溶液内 1 天。然后观察材料的物理变化。

[0078] 表 5

[0079]

|        |                                       |  |               |                   |
|--------|---------------------------------------|--|---------------|-------------------|
| 溶剂     | 高 MwPAI/Mylar/<br>高 Mw PAI, 125<br>微米 | 低<br>MwPAI/Mylar/<br>低 Mw PAI, 125<br>微米 | NMN,125<br>微米 | Mylar, 87.5<br>微米 |
| 1 天    |                                       |  |               |                   |
| 丙酮     | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |
| 乙醇     | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |
| 甲苯     | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |
| 20%HCl | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |
| 50%醋酸  | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |
| 25%硫酸  | 没有变化                                  | 没有变化                                     | 没有变化          | 没有变化              |

[0080] 尽管结合各种示意性实施方案描述了复合绝缘膜和制备与使用方法,但要理解,为了实施本文公开的相同的功能,在没有脱离本发明的情况下,可使用其他类似的实施方案,或者可对所述的实施方案作出改性和增加。以上所述的实施方案不必然在备选方案中,因为可结合各种实施方案,提供所需的特征。因此,复合绝缘膜和方法不应当被限制到任何单一的实施方案上,相反以更具所附权利要求书的引证的宽度与范围来解释。

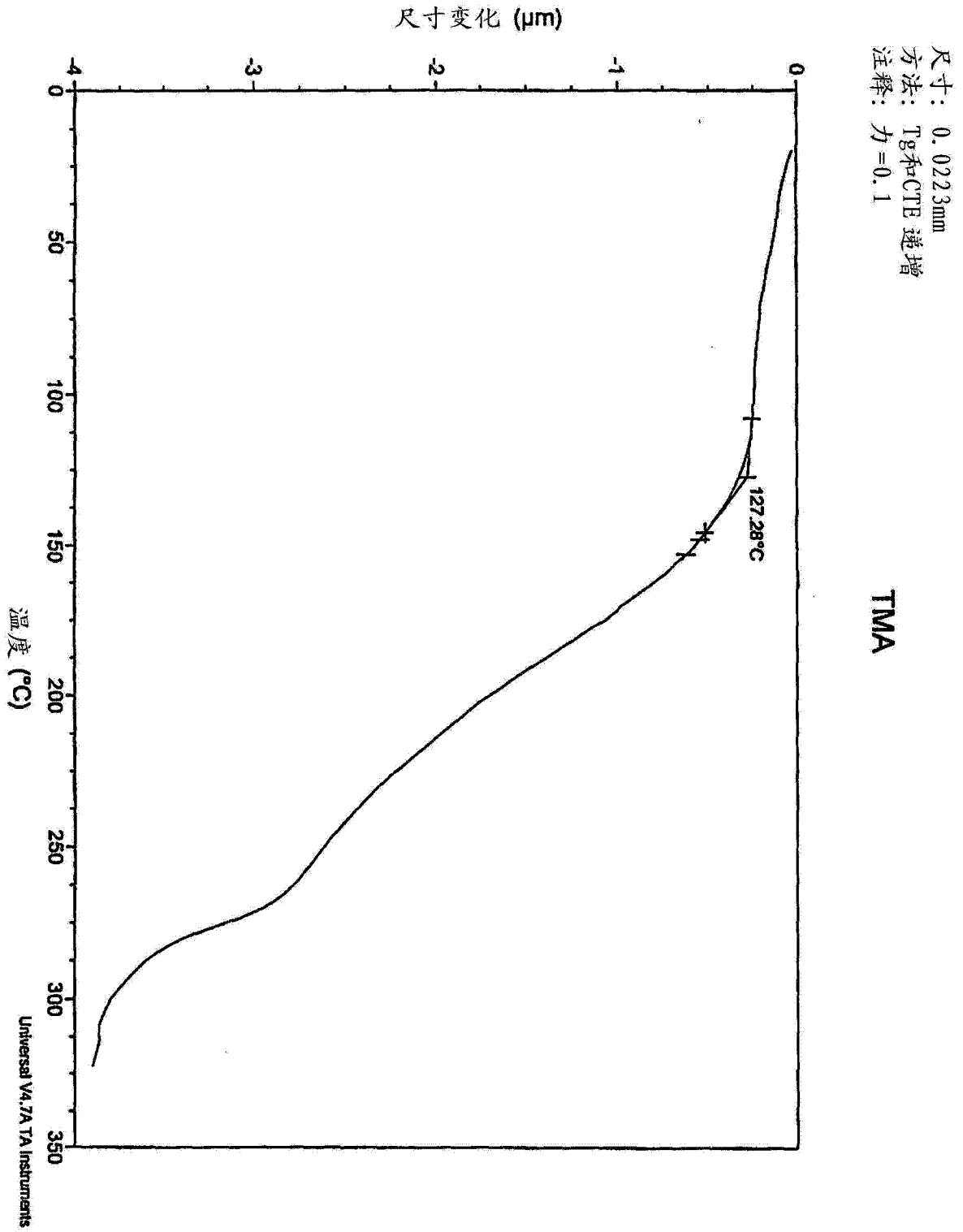


图 1

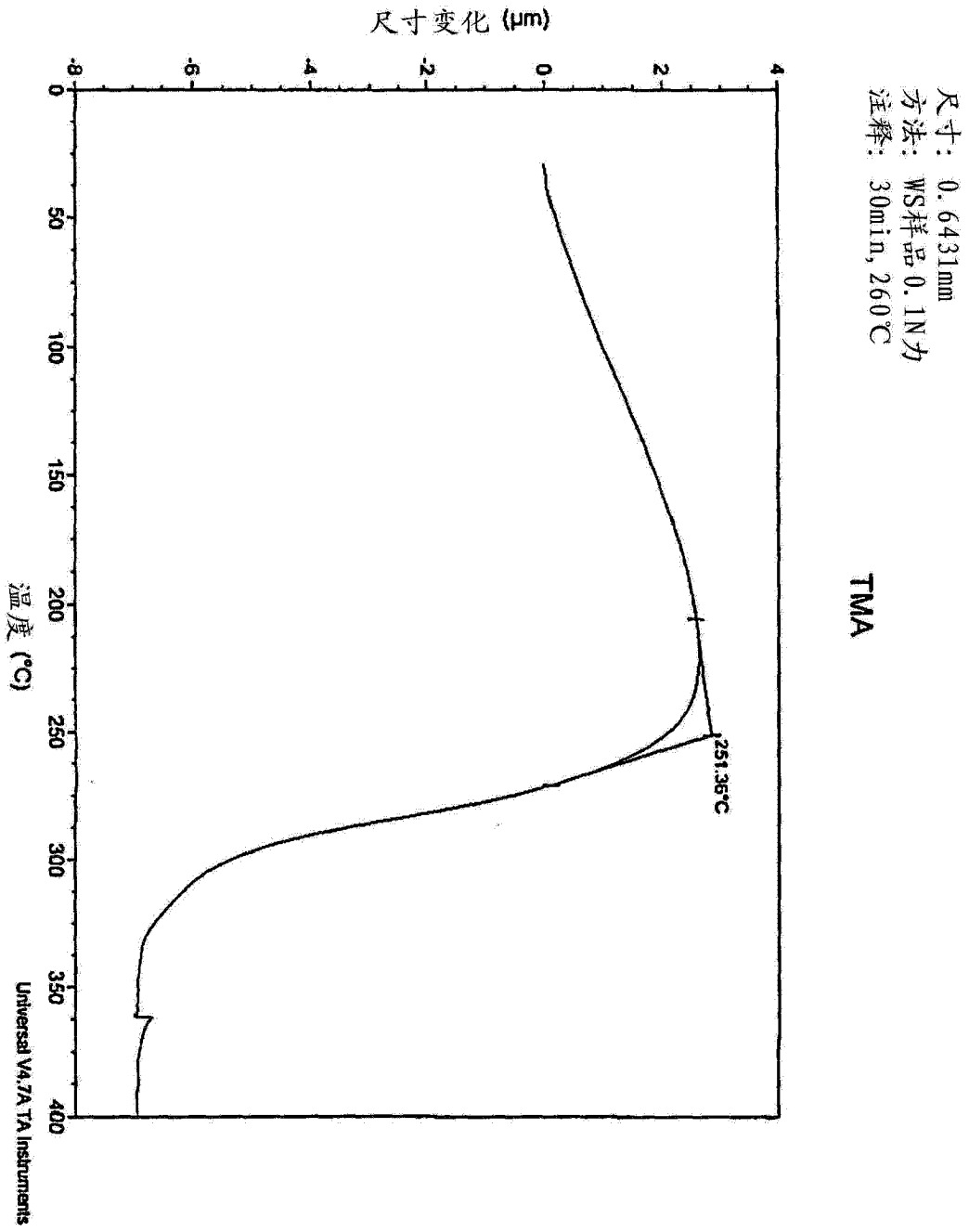
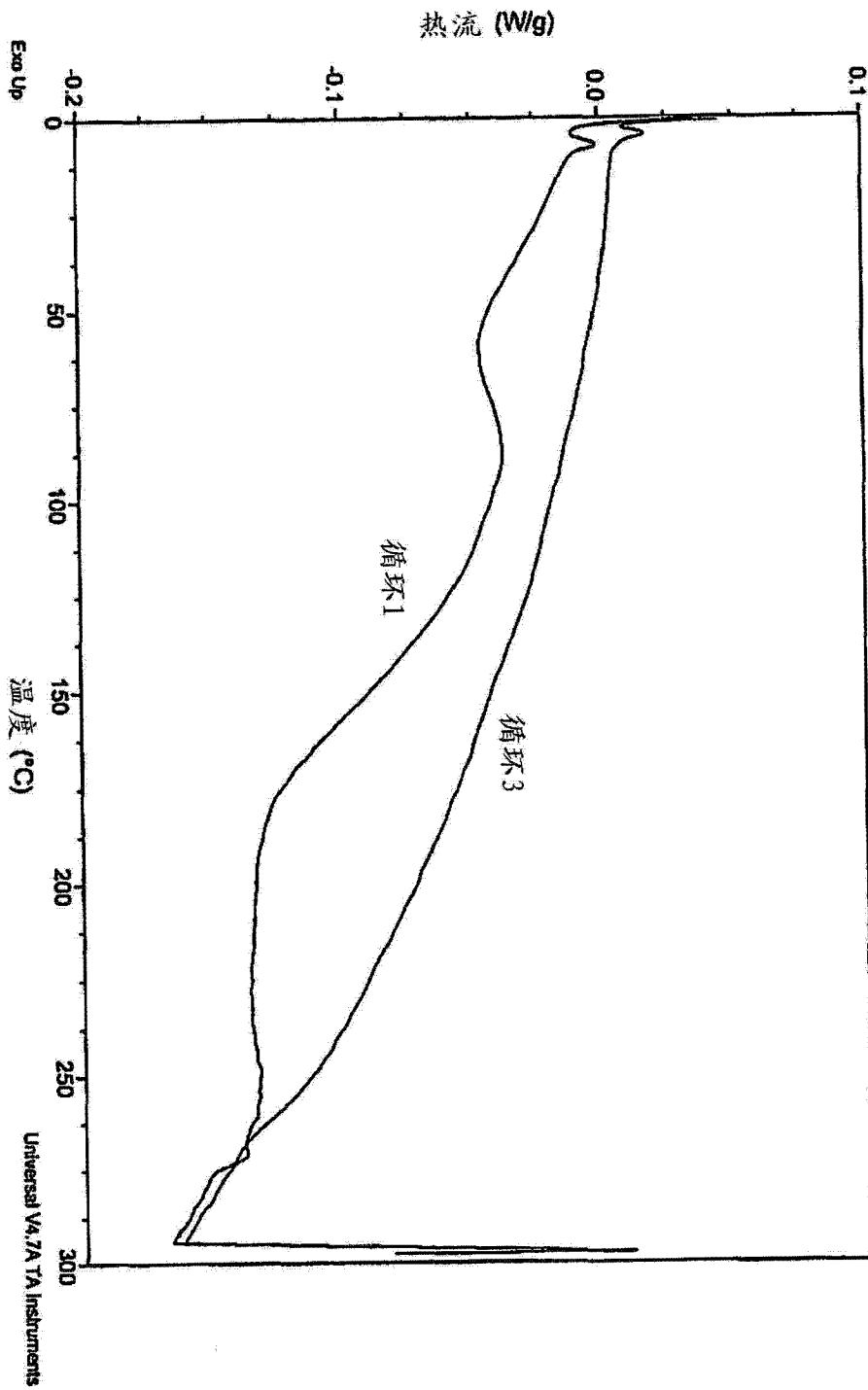


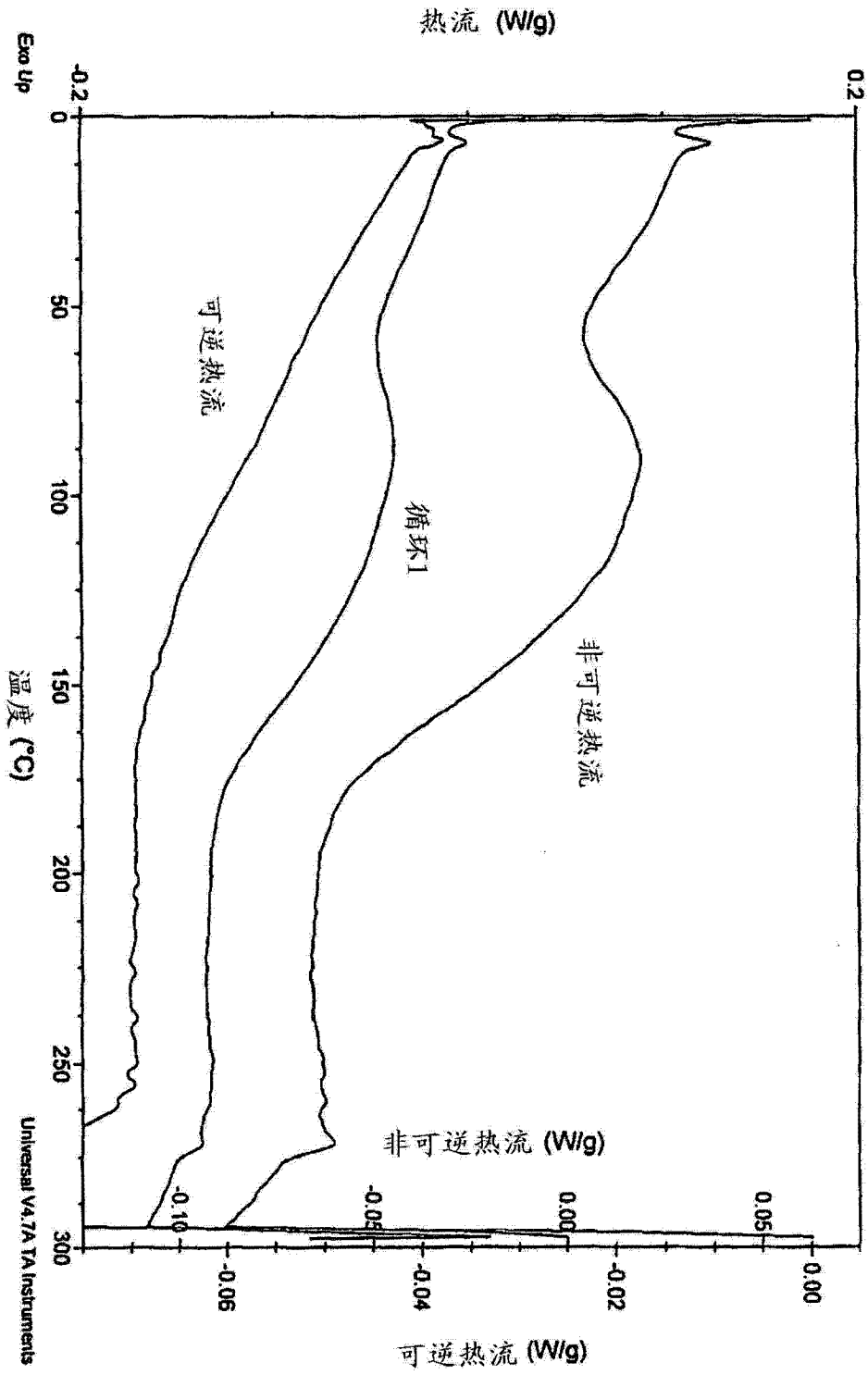
图 2



尺寸: 2.5500mg  
方法: 常规的MDSC  
注释: 试验#4

DSC

图 3



样品: 高Mw膜  
尺寸: 2.5500mg  
方法: 常规的MDSC  
注释: 试验#4

DSC

图 4

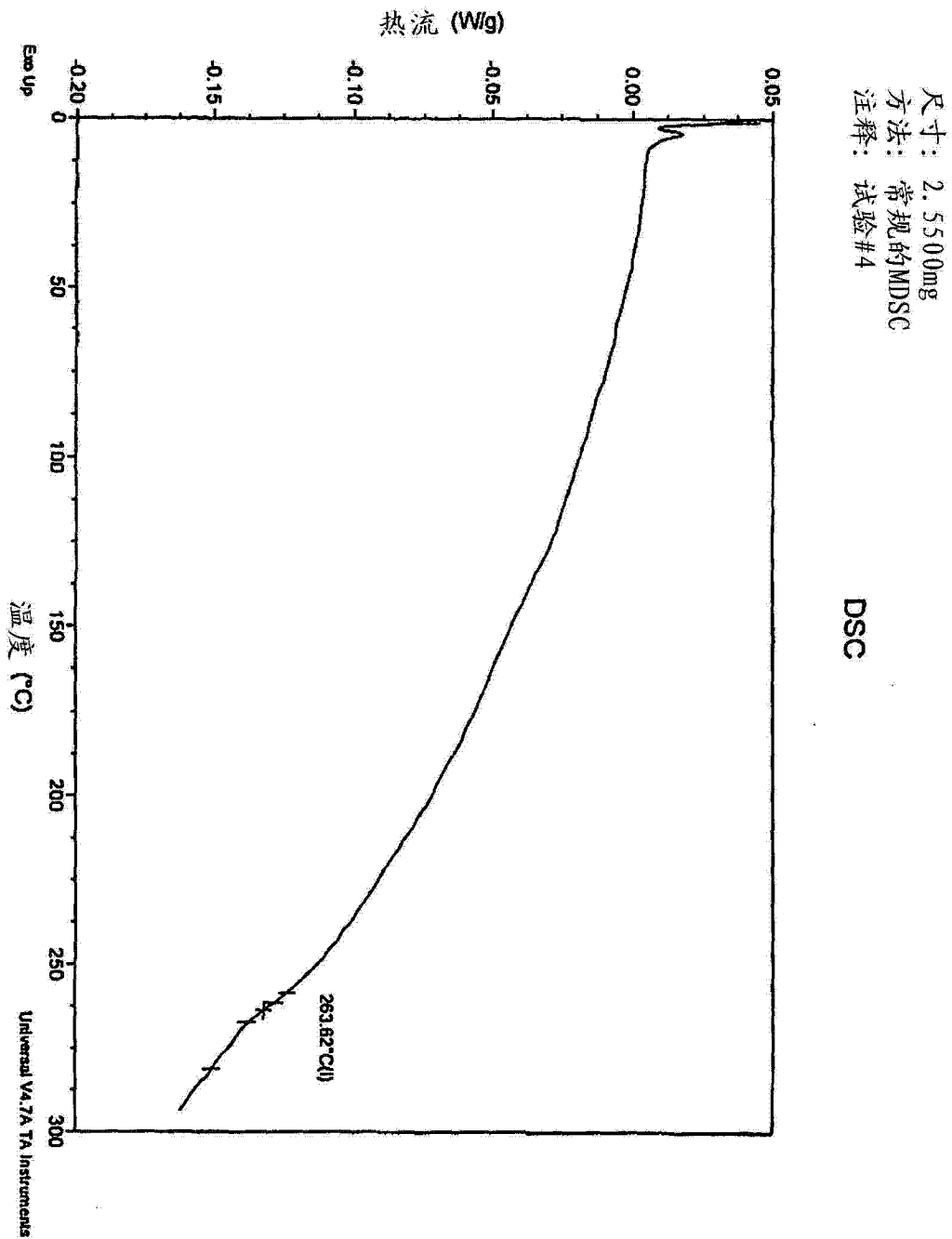


图 5

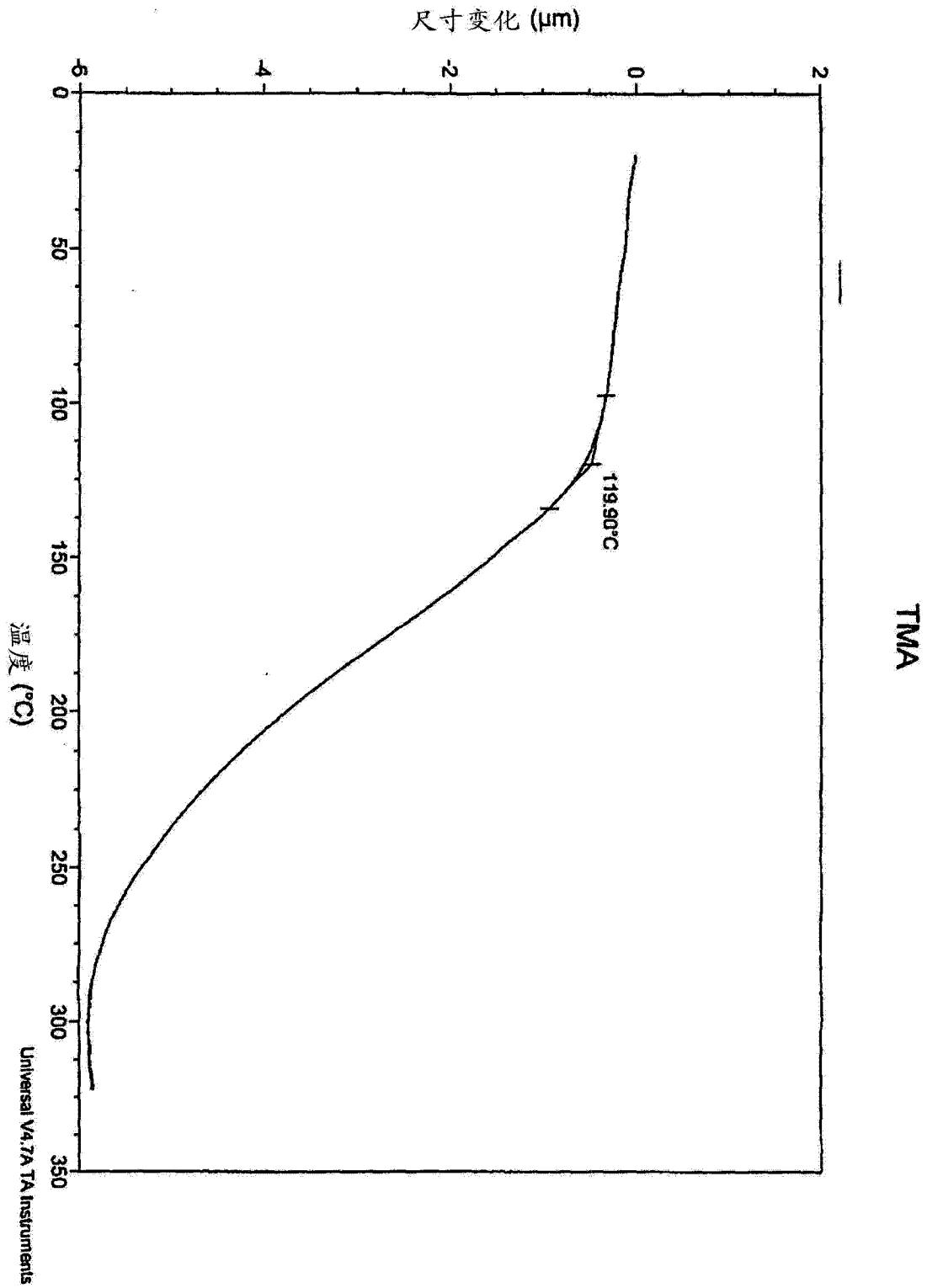


图 6

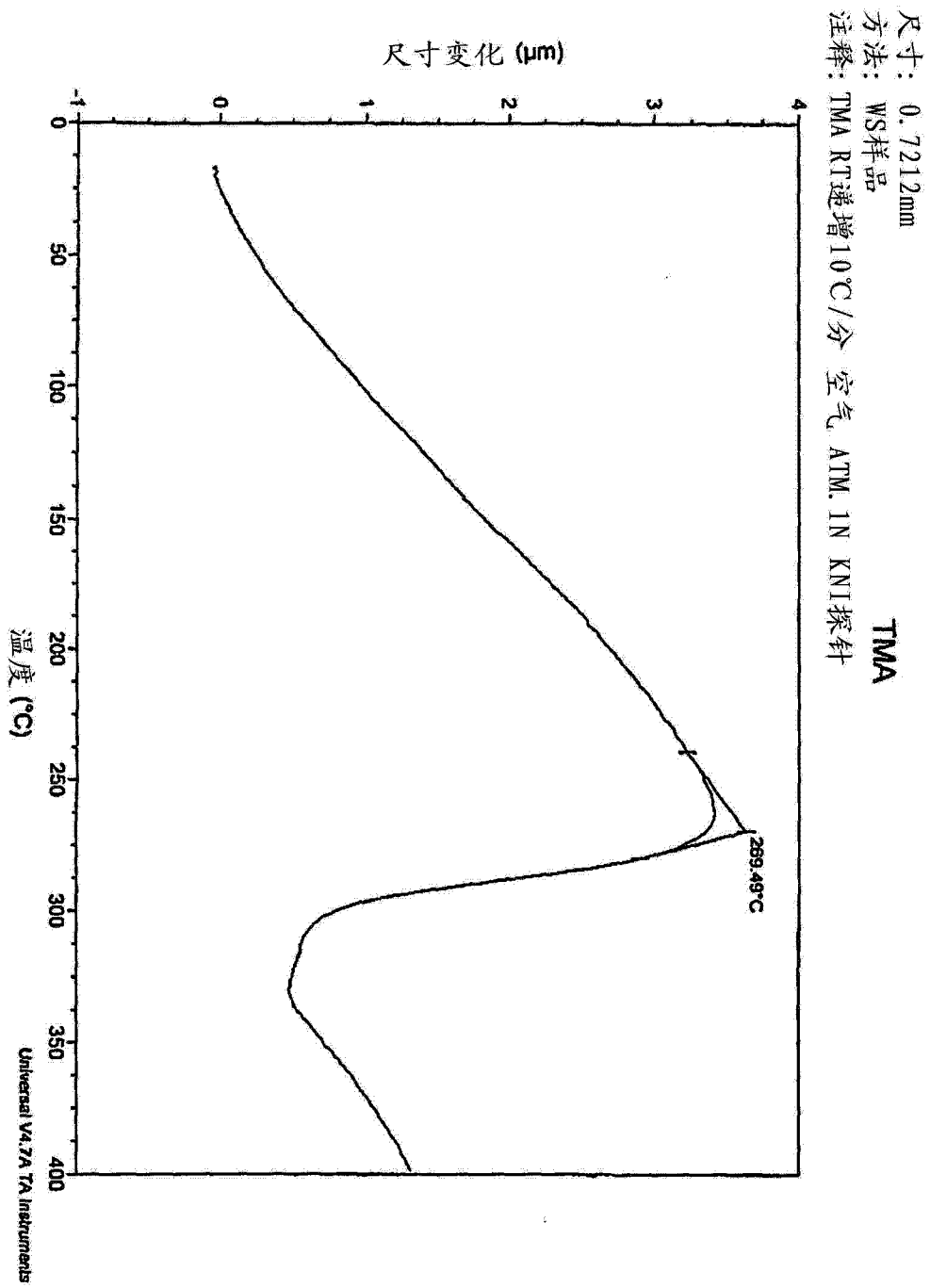


图 7

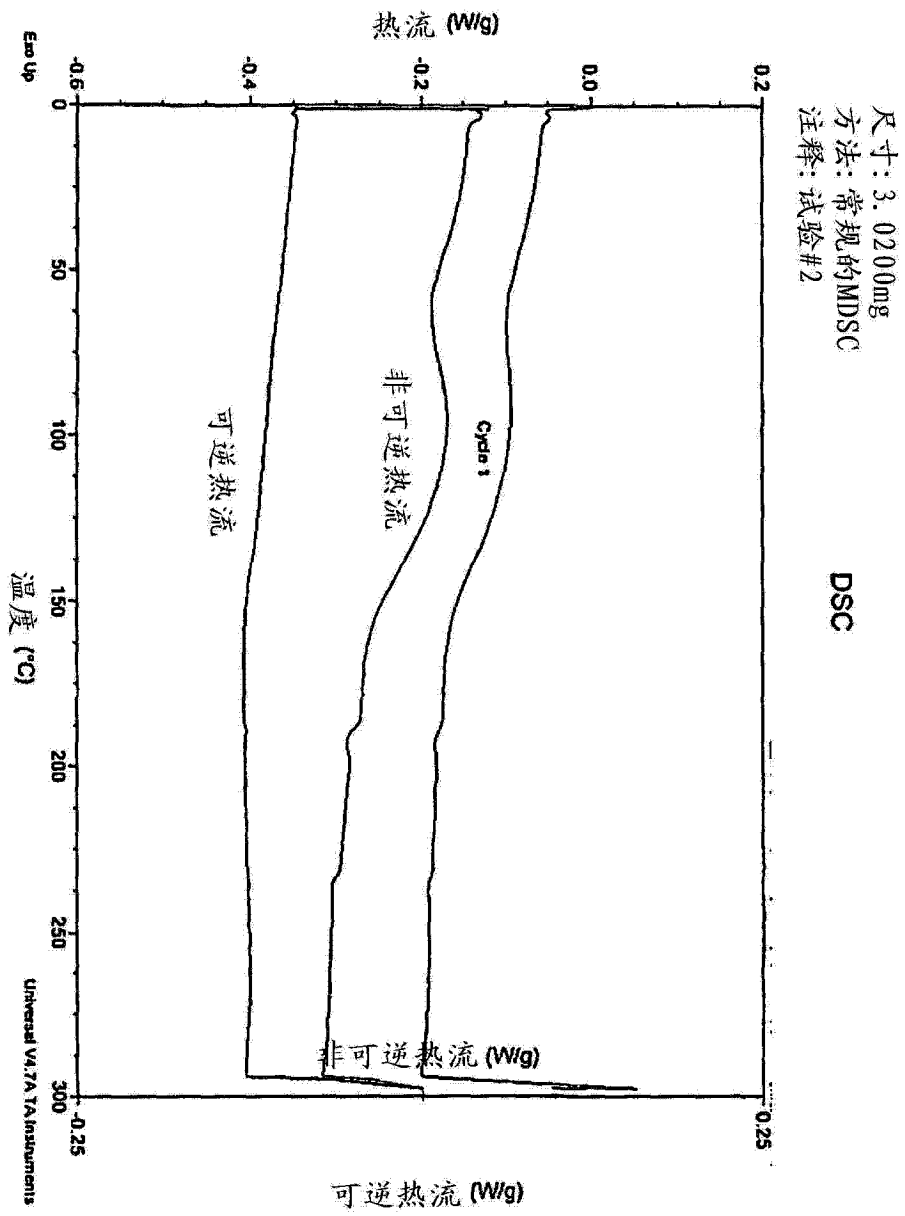


图 8

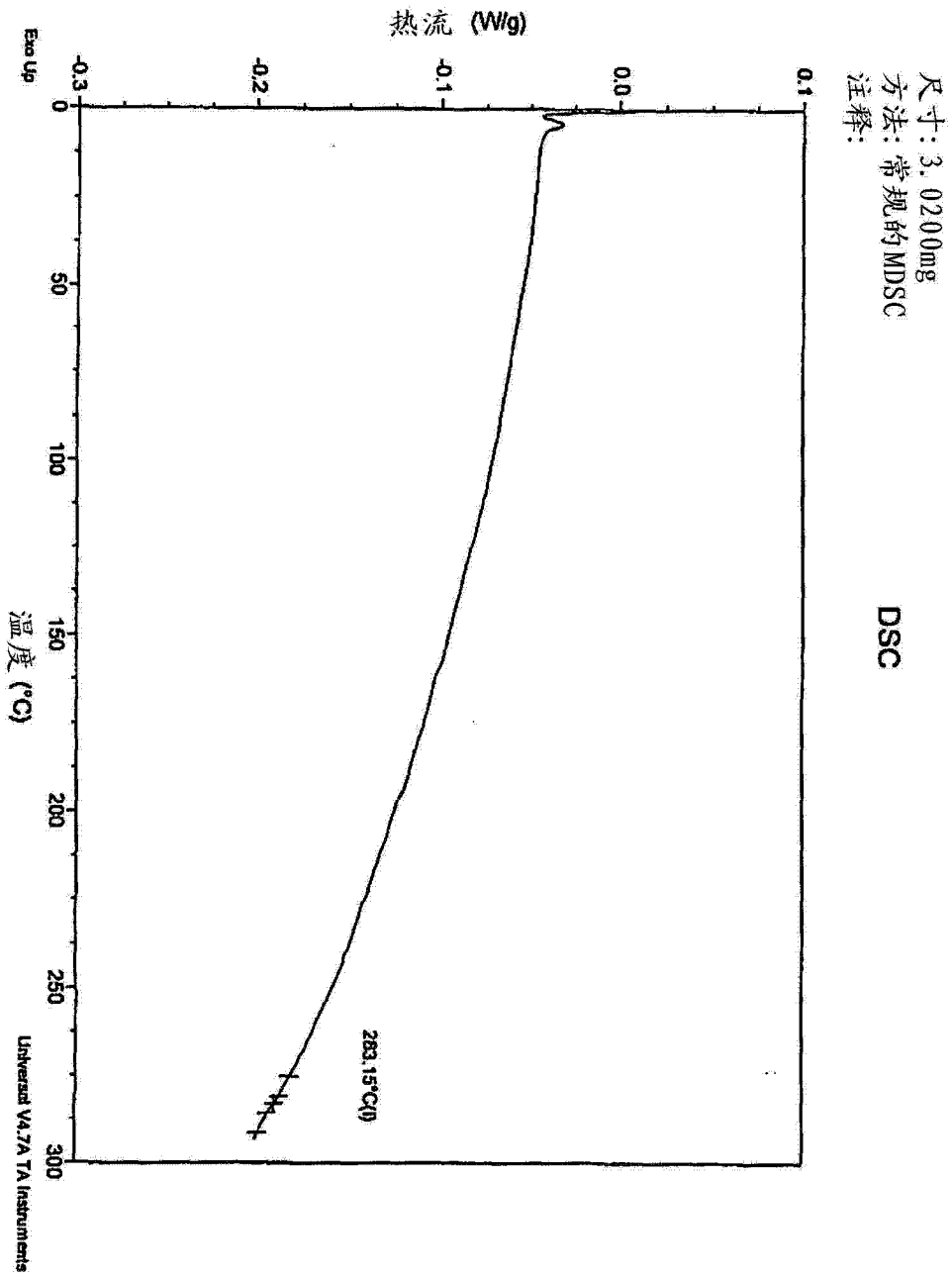


图 9