

公告本

406213

申請日期	86.05.07
案 號	86106078
類 別	G03C 1/13

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	中性色彩之光色性萘并哌喃組合物
	英 文	"PHOTOCHROMIC NAPHTHOPYRAN COMPOSITIONS OF NEUTRAL COLOR"
二、發明 人	姓 名	1. 拜瑞 凡 吉米特 2. 狄伯特 吉 姬雪
	國 籍	均美國
三、申請人	住、居所	1. 美國賓州莫瑞斯維市海波尼路2004號 2. 美國賓州艾溫市喬治華盛頓圓環8號
	姓 名 (名稱)	美商片片堅工業公司
三、申請人	國 籍	美國
	住、居所 (事務所)	美國賓夕凡尼亞州畢士堡市片片堅廣場1號
三、申請人	代 表 人 姓 名	莉塔. 柏格斯卓

406213

裝

訂

線

406213

(由本局填寫)

承辦人代碼：

大類：

I P C分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權
美 1996.03.29 08/626,220

有關微生物已寄存於：

，寄存日期：

，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

五、發明說明(1)

本發明係關於某些光色性萘并呋喃化合物之組合物，當活化時，即暴露於太陽紫外光照射時，顯示近中性色彩灰色或褐色。本發明特別關於光色性組合物及含有該組合物之物品，其具有至少二種光色性萘并呋喃化合物，基於特定標準選擇，當併入有機溶劑及有機聚合基質中及活化時，顯示中性色彩，如 CIELAB 色彩系統中所定義。

當光色性化合物暴露於涉及紫外光之光照射(如太陽光或水銀燈光之紫外光照射)時，其色彩顯示可逆變化。各種光色性化合物已合成，並建議用於太陽光所引發之可逆色彩變化或變深為需要之應用。大部份廣泛述及之種類為呔啉，萘并呋喃，及俘精酸酐(fulgides)。

有機光色性化合物(吸收在可見光譜)組合之用途已揭示於美國專利 4,968,454。在該專利中，可見吸收大於 590 nm 之呔啉與具有至少一最大活化吸收在 400 至 590 nm 間之可見光範圍內之第二呔啉混合。德國專利 43 25 154 C1 揭示一種可聚合混合物，含有許多光色性著色性，其中至少一種不為螺呔啉。美國專利 5,066,818 揭示一種二芳基-3H-萘并(2,1-b)呋喃與萘并呔啉或苯并呔啉之混合物，以獲得近灰色。美國專利 4,818,096 揭示一種黃色/橙色金剛烷 2-螺呋喃化合物及一種在第二位置含有一在鄰或對位以胺基取代基取代之苯基之紫色/藍色呋喃之組合。美國專利 5,466,398 揭示 2-經取代-2H-萘并[1,2b]呋喃與各種來自呔啉及呋喃類之光色性化合物之混合物，以產生灰色或褐色。

五、發明說明(2)

雖然所有上述揭示可在理想(主要為人工)條件下於活化時產生所需之灰色或褐色色調，但是現在非可預期地發現，在廣泛種類條件下，於暴露太陽(天然條件)下，可產生該灰色或褐色之透鏡(或其他物品)僅可由某些萘并呋喃之混合物製造。

組合不同化學種類之光色性化合物，例如一種黃色/橙色萘并呋喃及一種藍色呋喃，其具有不同活化及漂白速率，在活化及退色期間形成不同色彩色調。例如，若萘并呋喃具有較呋喃為慢之動力學(活化及漂白)，二種化合物之組合，當活化時，最初為藍色，經灰色或褐色色調，然後在漂白或退色循環期間最後轉變為橙-褐色。在企圖配對不同種類之光色性化合物時，動力學之錯誤配對一般可見。

組合不同化學種類之光色性化合物，例如萘并呋喃及呋喃，其在紫外光中具有不同吸收光譜，在每天之不同時間，不同緯度，及每年之不同季節期間，亦可形成不同色彩。低緯度未過濾之夏天正午太陽，較高緯度之太陽光，或每天早或晚之太陽光，或冬天之太陽光，含有遠高比例之短波長紫外光(UV)(即UVB)對長波長紫外光(即UVA)。UVB/UVA比例高度依據上述所有條件，且可劇烈變化。若透鏡之光色性成份吸收不同波長之紫外光(即活化)，則不同光色性成份有不同表現，依UVB/UVA比例而定。例如，若透鏡之萘并呋喃成份具有 $\lambda_{\max}$ (UV)在346nm，呋喃成份具有 $\lambda_{\max}$ (UV)在365nm，且平衡各成份之莫耳比以在低緯

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (3)

度未過濾之夏天正午太陽獲得灰色活化色彩，則在高緯度或每天早或晚之太陽光(或在冬天之太陽光中)，透鏡將顯現藍色。在企圖配對不同種類之光色性化合物時，紫外光吸收光譜中此種錯誤配對一般可見。為在最大變化之太陽條件下達到最一致之性能，最理想為組合物中所用之萘并哌喃吸收盡可能接近可見光之紫外光，此處減弱為最少。

光色性化合物與不同溫度依賴性組合亦在活化狀態產生不同色彩，依透鏡之溫度而定。萘并哌喃，與喹啉比較，已顯示具有優異溫度依賴性(即其變黑較少為熱所影響)。一種物品，例如透鏡，含有萘并哌喃及喹啉之莫耳比在活化狀態於室溫(即 72°F)提供灰色色彩，在低溫顯示藍色，在高溫顯示褐色。已發現一種僅含有某些萘并哌喃組合之透鏡不僅在廣泛溫度範圍可保持中性灰色(或褐色)，而且當個人有最大量時間於戶外時，極需之較深程度之變黑可在較熱溫度達到。

光色性化合物與不同疲勞速率組合於一種物品(例如透鏡)中，當透鏡老化時，亦產生活化色調變化。若透鏡之非藍色成份較藍色成份疲勞迅速，在新時活化成灰色之透鏡在使用長期間後會活化成藍色。因此，非喹啉及哌喃之光色性化合物，例如顯示迅速疲勞速率(即光降解)之俘精酸酐(fulgides)，已避免。因為相同理由，主張含有含 C-H 基於 α -碳對哌喃之氧原子之萘并哌喃應避免，因為疲勞之故。參見，例如，Padwa et al, J. Org. Chem., Vol. 40, No. 8, 1975, p 1142。含有胺基之萘并哌喃亦已避免，因為疲勞之

五、發明說明(4)

故，特別在光色性成份暴露於氧化(大氣)條件之吸液(imbibed)物品。雖然嘮咩及萘并哌喃(無上述取代基)具有相當低之疲勞速率，但是彼等在溫度依賴性、動力學及紫外光吸收性之差異使得嘮咩及萘并哌喃之混合物較不理想。

最後，最理想為調配光色性組合物以用於或施於在最廣泛條件下之物品。光色性透鏡可以吸液方法(如美國專利4,286,957中所述)或鑄於透鏡內(如美國專利4,851,471中所述)而製備。已建議嘮咩光色性化合物可用於澆鑄方法中，由保持引發劑於低量及明智選擇催化劑。最近，Malatesta et al in J. Org. Chem, Vol. 60, No. 17, 1995, p 5446報告，嘮咩光色性化合物對於澆鑄方法中一般所用之溫和催化劑並非全為惰性，會反應形成深色加成物。

依據本發明，提供組合物包括一種載體及至少二種光色性有機萘并哌喃，其係基於在太陽模擬條件下可見光及紫外光 $\lambda_{\max}$ 值，敏感性，光學密度，及退色速率選擇。在不同太陽條件下活化時，非可預期地已發現該組合物顯示灰色或褐色之中性色彩，在CIELAB色彩系統中所定義 a^* 及 b^* 之+10至-10之範圍內。此外，由選擇之萘并哌喃吸收入一種聚合基質載體內所製備之組合物顯示溫度依賴值少於0.30。

圖式之說明

為對本發明有較佳之明瞭，可參考圖式，其中

圖1為實例中組合物1，組合物2，及組合物5之 Δ 光學

五、發明說明(5)

密度對溫度之圖形。

圖2為組合物1及組合物4之CIELAB色彩座標b*對a*之色彩一致性圖。

圖3為組合物3及組合物6之CIELAB色彩座標b*對a*之色彩一致性圖。

發明之詳細說明

在近幾年以來，光色性組合物，特別是光學應用之光色性塑膠材料，已為相當受注意之主題。特別是光色性塑膠眼鏡已有研究，因為其相對於玻璃眼鏡可提供重量優點。此外，對於載具，如車及飛機，光色透明物有利，因為該透明物提供潛在安全特色。

供光學應用之近中性色彩光色性塑膠材料，在溫度範圍50°F至95°F內及在可變紫外光條件(依每天之時間、季節及緯度而定)下活化及退色期間，及在該材料之壽命期間，維持實質上中性色彩，其發展為尚未實現之目標。已報告，典型上任何藍色有機光色性化合物可與任何橙色有機光色性化合物組合以產生一種活化中性色彩光學材料，例如透鏡。然而，不想要之藍色或橙色色彩之形成可能發生於該透鏡，依各光色性化合物之不同性質，即活化及退色速率，疲勞速率，溫度依賴性之影響，及紫外光吸收之波長，而定。

依據本發明，現已發現包括至少二種光色性有機萘并哌喃之組合物符合特定標準，在併入萘并哌喃化合物之載體中及暴露於太陽紫外光照射時顯示下列性質：

五、發明說明(6)

(a) 灰色或褐色之活化中性色彩，其在本文中定義為在 CIELAB 色彩系統中 a^* 及 b^* 之 +10 至 -10 之範圍內；

(b) 光透射率在 30 至 90% 之間，於 72°F 活化及退色期間，測得最大及最小 a^* 值間之差異少於 6 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 14 單位。組合物較佳顯示最大及最小 a^* 值間之差異少於 5 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 13 單位。更佳為最大及最小 a^* 值間之差異少於 4 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 12 單位。較佳組合物含有萘并呋喃作為主要光色性材料，更佳作為唯一光色性材料。

除操作實例外，或另外說明，本文中所用之所有表示波長之數目，成份之量，或反應條件在所有例中以術語「約」修飾。

光色性萘并呋喃化合物之載體可為有機溶劑或有機聚合基質材料。當包括至少二種光色性萘并呋喃化合物之光色性組合物吸收入一種萘并呋喃化合物之有機聚合基質中及吸收之聚合基質暴露於太陽紫外光照射時，組合物亦顯示溫度依賴性少於 0.30。溫度依賴性較佳少於 0.28。

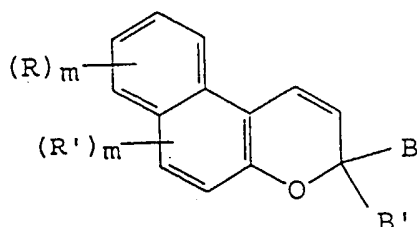
溫度依賴性，如本文中所定義，為一種光色性透鏡或測試樣品在 72°F 及 95°F 於太陽模擬條件下所測得之 Δ 光學密度間之差異除以這二個數目之數目平均所得之數目。溫度依賴性係關於活化光色性透鏡對周圍溫度之色度，例如，溫度依賴性值 0.38 之光色性透鏡，在溫度由 72°F 增加至 95°F，較溫度依賴性值 0.27 之透鏡為淡。

本發明之光色性萘并呋喃化合物係選自 3[H]-萘并 [2,1-b]

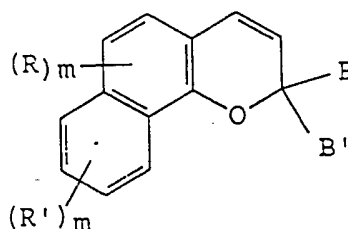
五、發明說明 (7)

呷喃及2-[H]-萘并[1,2-b]呷喃。

該等萘并呷喃可分別以下列式I及II表示。



I



II

(R)m, (R')m, B 及 B' 所表之取代基及式I及II之其他修飾述於下列專利及專利案中，其中有關該等化合物化學式之揭示併入本文供參考：

美國專利 4,818,096 ; 4,826,977 ; 4,931,221 ; 4,980,098 ; 5,066,818 ; 5,200,116 ; 5,238,981 ; 5,244,602 ; 5,274,132 ; 5,384,077 ; 5,395,567 ; 5,451,344 ; 5,458,814 ; 5,464,567 ; 5,466,398 ; 及下列美國申請案：1995年10月13日申請之 08/542,993 ; 1995年10月13日申請之 08/542,999 ; 1995年6月14日申請之 08/490,189 ; 1995年6月14日申請之 08/490,188 ; 1995年6月14日申請之 08/490,258 ; 1995年6月14日申請之 08/490,190 ; 1994年12月20日申請之 08/359,773 ; 1994年11月28日申請之 08/345,095 ; 及1994年8月4日申請之 08/286,039 。

更特別地，光色性有機萘并呷喃化合物之組合物包括：

(a) 至少一種光色性有機萘并呷喃化合物具有一可見光 $\lambda_{\max}$ 由 400nm 至 525nm ; 及

五、發明說明 (8)

(b) 至少一種光色性有機萘并呋喃化合物具有一可見光 $\lambda_{\max}$ 由大於 525nm 至 650nm ; 及

上述(a)之光色性萘并呋喃包括選自下列者：

- (1) 2,2-二苯基-5-羥基甲基-6-甲基-9-甲氧基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；
- (2) 2,2-二苯基-5-羥基甲基-6-苯基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；
- (3) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；
- (4) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；
- (5) 3-(2-氟苯基)-3-(4-甲氧基苯基)-8-甲氧基-9-甲氧基羰基-3H-萘并[2,1-b]呋喃；
- (6) 3,3-二-(4-甲氧基苯基)-6-嗎啉基-3H-萘并[2,1-b]呋喃；
- (7) 3-(2-甲基-2,3-二氫萘并呋喃-5-基)-3-(4-甲氧基苯基)-6-嗎啉基-3H-萘并[2,1-b]呋喃；
- (8) 3,3-二苯基-8-甲氧基-3H-萘并[2,1-b]呋喃；
- (9) 2,2-二苯基-4-甲氧基羰基-5-(2-甲基丙醯氧基)-2H-萘并[1,2-b]呋喃；及
- (10) 該等萘并呋喃之混合物。

上述(b)之光色性萘并呋喃包括選自下列者：

- (1) 3-(4-甲氧基苯基)-3-(3-甲基-4-甲氧基苯基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃；
- (2) 3,3-二(4-甲氧基苯基)-13-羥基-13-甲基-茛并[2,1-f]萘

五、發明說明(9)

并 [1,2-b] 哌喃；

(3) 3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并 [2,1-f] 萘并 [1,2-b] 哌喃；

(4) 3-(4-甲氧基苯基)-3-(3,4-二甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13,13-二丙基-茛并 [2,1-f] 萘并 [1,2-b] 哌喃；及

(5) 該等萘并哌喃之混合物。

更特別地，(a)之光色性萘并哌喃化合物包括選自下列者：

(1) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并 [1,2-b] 哌喃；

(2) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并 [1,2-b] 哌喃；及

(3) 該等萘并哌喃之混合物。

更特別地，(b)之光色性萘并哌喃化合物為 3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并 [2,1-f] 萘并 [1,2-b] 哌喃。

(a)及(b)之萘并哌喃化合物係基於某些選擇標準選擇。當一種化合物選自(a)及(b)之一時，選擇標準之數值係基於各值；或當多於一種化合物選自(a)或(b)時，其係基於各值之平均，即各值之總和除以各值之數目。更特別地，(a)及(b)之萘并哌喃之可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於 150nm，但是大於 75nm，(a)及(b)之萘并哌喃之紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於 50nm，在 345-400nm 之範圍內。較佳地，(a)及(b)之萘并哌喃之可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於

五、發明說明 (10)

130nm，但是大於100nm，(a)及(b)之萘并呋喃之紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於30nm，在350-400nm之範圍內。更佳地，(a)及(b)之萘并呋喃之可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於120nm，但是大於110nm，(a)及(b)之萘并呋喃之紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於20nm，在335-400nm之範圍內。

光色性有機萘并呋喃化合物之其他選擇標準為(a)及(b)之萘并呋喃之敏感性間之差異少於0.25；(a)及(b)之萘并呋喃之飽和光學密度間之差異少於0.2；(a)及(b)之萘并呋喃之退色速率(T1/2)間之差異少於50秒。較佳地，(a)及(b)之萘并呋喃之敏感性間之差異少於0.20；(a)及(b)之萘并呋喃之飽和光學密度間之差異少於0.1；(a)及(b)之萘并呋喃之退色速率(T1/2)間之差異少於35秒。更佳地，(a)及(b)之萘并呋喃之敏感性間之差異少於0.15；(a)及(b)之萘并呋喃之飽和光學密度間之差異少於0.05；(a)及(b)之萘并呋喃之退色速率(T1/2)間之差異少於25秒。

關於本發明之萘并呋喃化合物之選擇標準，可見光 $\lambda_{\max}$ 為在可見光譜中之波長，在此波長載體中光色性化合物之活化或色彩形式之最大吸收發生；紫外光 $\lambda_{\max}$ 為最接近可見光譜之紫外光範圍內之波長，在此波長載體中光色性化合物之活化形式之吸收發生；敏感性為載體中光色性化合物在暴露於紫外光之最先5秒內所測得之光學密度之變化，係以分鐘基準表示；飽和光學密度為載體中光色性化合物在暴露紫外光20分鐘後所測得之光學密度；退色(漂白)速率(T1/2)為載體中活化光色性化合物之吸收達到在室

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

頁

五、發明說明 (11)

溫於活化光源移除後最高吸收之一半之時間間隔(秒)。

本文中所述之光色性有機萘并哌喃所用之量(及比例)可使光色性化合物或化合物之混合物所施加或所併入之有機載體，當以未過濾太陽光活化時，顯示所需之色彩，例如實質上中性色彩，即活化光色性化合物給予之色彩盡可能近中性色彩。

中性灰色顯示之光譜具有相等吸收於400至700nm間之可見光範圍內。中性褐色顯示之光譜於400-550nm範圍內之吸收稍大於550-700nm範圍內之吸收。說明色彩之另一方式係以其色品座標，其說明色彩之品質，即其色品，除其發光強度因子外。在CIE系統中，色品座標係由三相激光值對其總和之比例而獲得，例如 $x=X/(X+Y+Z)$ 及 $y=Y/(X+Y+Z)$ 。CIE系統中所述之色彩可於色品圖上作圖，一般為色品座標 x 及 y 之圖。參見 F. W. Billmeyer, Jr., and Max Saltzman, Principles of Color Technology, pp 47-52, Second Edition, John Wiley and Sons, N. Y. (1981)。如本文中所用，近中性色彩為色彩之 " x " 及 " y " 之色品座標值在下列範圍內， D_{65} 發光物及10度觀測者： $x=0.274$ 至 0.355 ， $y=0.300$ 至 0.365 ，在暴露於太陽照射(Air Mass 1或2)活化至40%發光透射後。以CIELAB色彩空間表示，中性色彩為 " a^* " 及 " b^* " 之色品座標值，在如上述相同條件下， a^* 之範圍為由-10至+10， b^* 之範圍為由-10至+10。

近中性色彩在相似條件下之先前定義，例如美國專利 4,968,454 第3欄第24至30行，對於色品座標 x (由0.260至

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水

五、發明說明 (12)

0.400) 及 y (由 0.280 至 0.400) 有特定範圍。這些範圍相當於 CIELAB 色彩系統中 a^* 及 b^* 範圍 a^* 由 -43.6 至 54.0, b^* 由 -22.5 至 33.1。

光色性萘并呋喃施加於或併入載體中之量不重要，但使用充分量以產生在活化時可為裸眼分辨之光色效果。該量一般可以光色量說明。所用之特定量通常依照射時所欲色彩之強度及併入或施加光色性化合物所用之方法而定。典型地，所施加或併入之光色性化合物愈多，則達某一限度之色彩強度愈大。

上述光色性化合物所用之相對量可變化，部份依該化合物之活化種類色彩之相對強度及所需最終色彩而定。併入或施加於光色性光學基質材料中之總光色性化合物之量可為光色性化合物併入或施加之體積或表面每平方公分在由約 0.05 至約 1.0 毫克範圍內，例如由 0.1 至約 0.45 毫克範圍內。

本發明之光色性萘并呋喃可以先前技藝中所述之各種方法施加或併入載體中。該等方法包括光色性化合物溶於或分散於有機溶劑或有機聚合基質材料中，例如，由在聚合前將光色性化合物加入單體基質材料中，將其澆鑄於適當位置；由基質材料浸入光色性化合物之熱溶液中或由熱轉移，將光色性化合物吸收入基質材料；光色性化合物提供於基質材料之鄰接層之間作為一分離層，例如作為聚合膜之一部份；及光色性化合物施加於基質材料之表面上作為塗層之一部份。術語「吸收」或「吸液」之意為(並包括)

五、發明說明 (13)

僅光色性化合物滲入基質材料中，溶劑協助光色性化合物移入(氣相轉移或其他轉移機制)多孔聚合物中。

為醫藥之理由，或為流行之理由，相容(化學及色彩方面)色調，即染料，可施加於基質材料中以達到較美結果。特定染料之選擇可變化，依上述需要及所欲達到之結果而定。在一具體實施例中，染料可選擇以與活化光色性化合物所產生之色彩互補，例如以達到較中性色彩，或吸收入射光之特定波長。在另一具體實施例中，當光色性化合物為未活化狀態時，染料可選擇以提供基質材料所欲色彩。

載體一般為透明者，但是亦可為半透明或甚至不透明。載體僅需透過可活化光色性物質之電磁光譜之部份，即產生該物質之開放或色彩形式之紫外光(UV)之波長，及可見光譜包括該物質之紫外光活化形式(即開放形式)之最大吸收波長之部份。基層色彩較佳不應遮蔽光色性化合物之活化形式之色彩，即因此色彩之變化可輕易為觀測者所見。

本發明之載體可為有機溶劑或有機聚合基質。有機溶劑可選自苯，甲苯，甲基乙基酮，丙酮，乙醇，四氫呋喃甲醇，N-甲基吡咯啉酮，2-甲氧基乙基醚，二甲苯，環己烷，3-甲基環己酮，醋酸乙酯，四氫呋喃，甲醇，丙酸甲酯，乙二醇，及其混合物。有機溶劑較佳選自丙酮，乙醇，四氫呋喃甲醇，2-甲氧基乙基醚，3-甲基環己酮，N-甲基吡咯啉酮，及其混合物。

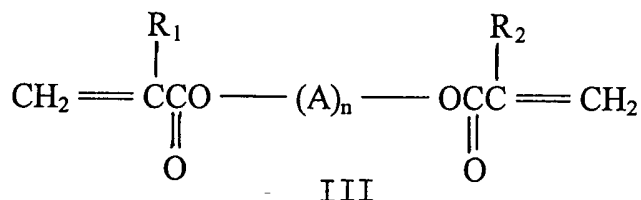
有機聚合基質材料較佳為固體透明或光學透明材料，例

五、發明說明 (14)

如適合光學應用之材料，如平面(plano)鏡或眼鏡，窗子，汽車透明物，例如擋風玻璃，飛機透明物，塑膠片，聚合膜等。

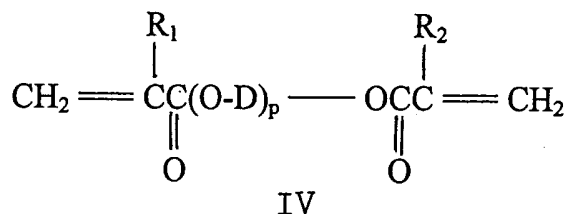
聚合有機基質材料之實例為由選自下列之各單體或單體之混合物所製備之聚合物：

(a) 以下式 III 所表示之二丙烯酸酯或二甲基丙烯酸酯化合物



式中 R_1 及 R_2 可相同或不同，為氫或甲基，A 為 (CH_2) ，n 為由 1 至 20 之整數；

(b) 以下式 IV 所表示之二丙烯酸酯或二甲基丙烯酸酯化合物



式中 D 為 $\text{CH}_2\text{CR}_1\text{R}_2$ ，p 為由 1 至 50 之整數；及

(c) 下式 V 所表示之具有一環氧基之丙烯酸酯或甲基丙烯酸酯化合物

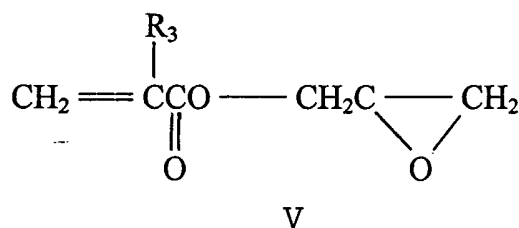
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

永

五、發明說明 (15)



式中 R_3 為氫或甲基。

在式 III, IV 及 V 中, 不同取代基之定義中所用之相似字母具有相同意義。

式 III 及 IV 所表示之二丙烯酸酯或二甲基丙烯酸酯化合物之實例包括二甲基丙烯酸二乙二醇酯, 二甲基丙烯酸三乙二醇酯, 等, 二甲基丙烯酸丁二醇酯, 聚(二甲基丙烯酸氧基次烷基酯), 例如二甲基丙烯酸聚乙二醇(600)酯。式 V 所表示之丙烯酸酯或甲基丙烯酸酯化合物之實例包括丙烯酸縮水甘油酯或甲基丙烯酸縮水甘油酯。

可與本文中所述之光色性化合物使用之聚合有機基質材料之其他實例包括下列之聚合物, 即均聚物及共聚物: 式 I, II 及 III 所表示之單體及單體之混合物, 雙(碳酸烯丙酯)單體, 二異丙烯基苯單體, 乙氧基化聯酚 A 二甲基丙烯酸酯單體, 二甲基丙烯酸乙二醇酯單體, 二甲基丙烯酸聚(乙二醇)酯單體, 乙氧基化酚二甲基丙烯酸酯單體, 烷氧基化多羥醇聚丙烯酸酯單體, 如三丙烯酸乙氧基化三甲醇丙酯單體, 丙烯酸尿烷酯單體, 如美國專利 5,373,033 中所述者, 乙烯基苯單體, 如美國專利 5,475,074 中所述者, 及苯乙烯; 多官能基(例如一, 二, 或多官能基)之丙烯酸酯及或甲基丙烯酸酯單體之聚合物, 即均聚物及共聚物,

五、發明說明 (16)

聚(甲基丙烯酸 C₁-C₁₂ 烷基酯)，如聚(甲基丙烯酸甲酯)，聚(烷氧基化酚甲基丙烯酸酯)，醋酸纖維素，三醋酸纖維素，醋酸丙酸纖維素，醋酸丁酸纖維素，聚(醋酸乙烯酯)，聚(乙烯基醇)，聚(乙烯基氯)，聚(亞乙烯基二氯)，聚尿烷，熱塑性聚碳酸酯，聚酯，聚(對酞酸次乙酯)，聚苯乙烯，聚(α -甲基苯乙烯)，共聚(苯乙烯-甲基丙烯酸甲酯)，共聚(苯乙烯-丙烯腈)，聚乙炔基丁醛；及二亞烯丙基異戊四醇之聚合物，即均聚物及共聚物，特別是與多元醇(碳酸烯丙酯)單體(例如二乙二醇雙(碳酸烯丙酯))及丙烯酸酯單體(例如丙烯酸乙酯，丙烯酸丁酯)之共聚物。

透明共聚物及透明聚合物之摻合物亦適合作為基質材料。基質材料較佳為由下列所製備之光學透明聚合有機材料：熱塑性聚碳酸酯樹脂，如衍生自聯酚 A 及光氣之碳酸酯連接之樹脂，其係以商標 LEXAN 銷售；聚酯，如以商標 MYLAR 銷售之材料；聚(甲基丙烯酸甲酯)，如以商標 PLEXIGLAS 銷售之材料；多元醇(碳酸烯丙酯)單體之聚合物，特別是二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)，該單體係以商標 CR-39 銷售；下列聚合物：多元醇(碳酸烯丙酯)單體，如二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)，與其他可共聚合單體材料之共聚物，如與醋酸乙烯酯之共聚物，例如 80-90% 二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)及 10-20% 醋酸乙烯酯之共聚物，特別是 80-85% 二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)及 15-20% 醋酸乙烯酯之共聚物，及與具有末端二丙烯酸酯官能基之聚尿烷之共聚物，

五、發明說明 (17)

如美國專利 4,360,653 及 4,994,208 中所述者，及與末端具有烯丙基或丙烯醯基官能基之脂族尿烷之共聚物，如美國專利 5,200,483 中所述者；聚(醋酸乙烯酯)，聚乙基丁醛，聚尿烷，下列單體之聚合物：二甲基丙烯酸二乙二醇酯單體，二異丙烯基苯單體，乙氧基化聯酚 A 二甲基丙烯酸酯單體，二甲基丙烯酸乙二醇酯單體，二甲基丙烯酸聚(乙二醇)酯單體，乙氧基化酚二甲基丙烯酸酯單體，及三丙烯酸乙氧基化三甲醇丙酯單體；醋酸纖維素，丙酸纖維素，丁酸纖維素，醋酸丁酸纖維素，聚苯乙烯；及苯乙烯與甲基丙烯酸甲酯、醋酸乙烯酯及丙烯腈之共聚物。

更特別包括本發明之光色性萘并呋喃與用以產生光學透明聚合物之光學有機樹脂單體組合之用途，即適合光學應用之材料，例如平面鏡或眼鏡，窗子，及汽車透明物。該光學透明聚合物可具有折射率在約 1.48 至約 1.75 之範圍內，例如由約 1.495 至約 1.66。特別包括 PPG Industries, Inc. 以 CR-307 及 CR-407 銷售之光學樹脂。

本發明更特別說明於下列實例中，其僅用以例示，因為許多修飾及變化為熟習技藝人士所知。

實例 1

化合物 1 及 2 為具有可見光 $\lambda_{\max}$ 在由 400nm 至 525nm 範圍內之萘并呋喃。化合物 1 為 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；化合物 2 為 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃。該等化合物可分別由 1995 年 6 月 14 日申請之美國專利案 08/490,190

五、發明說明 (18)

及美國專利5,458,814中所述之方法製備。

化合物3為具有可見光 $\lambda_{\max}$ 在由大於525nm至650nm範圍內之萘并哌喃，為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]哌喃。化合物3可由1995年10月13日申請之美國專利案08/542,993中所述之方法製備。

比較實例

比較(CE)化合物1, 2及3為具有可見光 $\lambda_{\max}$ 在由大於525至650nm範圍內萘并哌喃。比較實例化合物1及2可由美國專利4,637,698中所述之方法製備，比較化合物3可由美國專利5,405,958中所述之方法製備。該等哌喃化合物係如下：

CE化合物1為1-丙基-3,3-二甲基-5-甲氧基-螺[吲哚啉-2,3'-[3H]吡啶并[3,2-f][1,4]苯并哌喃]；

CE化合物2為1-丙基-3,3,5,6(或3,3,4,5)-四甲基-螺[吲哚啉-2,3'-[3H]吡啶并[3,2-f][1,4]苯并哌喃]；及

CE化合物3為1,3,3,4,5(或1,3,3,5,6)-五甲基-9'-甲氧基羰基-8'-乙醯氧基-螺[吲哚啉-2,3'-[3H]萘并[2,1-b][1,4]哌喃]。

比較(CE)化合物4, 5, 6及7為具有可見光 $\lambda_{\max}$ 在由400至525nm範圍內之萘并哌喃。比較化合物4及5可分別由美國專利5,066,818及美國專利5,238,981中所述之方法製備。比較化合物6及7可由美國專利5,458,814中所述之方法製備。該等萘并哌喃化合物係如下：

CE化合物4為3-(4-甲氧基苯基)-3-(2,4-二甲氧基苯基)-

五、發明說明 (19)

3H- 萘并 [2,1-b] 呋喃 ;

CE 化合物 5 為 8- 甲氧基 -3-(2- 氯苯基) -3-(4- 甲氧基苯基) -3H- 萘并 [2,1-b] 呋喃 ;

CE 化合物 6 為 2,2- 雙(4- 甲氧基苯基) -5- 甲氧基羰基 -6- 甲基 -9- 甲氧基 -2H- 萘并 [1,2-b] 呋喃 ; 及

CE 化合物 7 為 2,2- 二苯基 -5- 甲氧基羰基 -6-(2- 甲基丙醯氧基) -2H- 萘并 [1,2-b] 呋喃。

實例 2部分 A

測試係以實例 1 中所述之光色性化合物以下列方式進行。光色性化合物之量，經計算產生 1.5×10^{-3} 重量克分子 (molal) 溶液，加入含有 4 份乙氧基化聯酚 A 二甲基丙烯酸酯 (BPA 2EO DMA)，1 份二甲基丙烯酸聚(乙二醇)酯 600 及 0.033 重量% 2,2'- 偶氮雙(2- 甲基丙腈) (AIBN) 之 50 克單體混合物之燒瓶中。光色性化合物溶於單體混合物中，由攪拌及溫和加熱(若需要)。在獲得透明溶液後，倒入具有內部尺寸 2.2 毫米 $\times$ 6 吋 (15.24 公分) $\times$ 6 吋 (15.24 公分) 之扁平片模中。該模密封，放入水平空氣流之設定烘箱中，設定於 5 小時間隔內溫度由 40°C 增加至 95°C，在溫度 95°C 保持 3 小時，然後降低至 60°C 至少 2 小時。在模打開後，使用鑽石刀鋸切割聚合物片成 2 吋 (5.1 公分) 測試方塊。

部分 B

部份 A 所製備之光色性測試方塊在光具座 (optical bench) 上測試光色性反應。在光具座上測試之前，光色性測試方

五、發明說明 (20)

塊暴露於365nm紫外光約15分鐘以活化光色性化合物，然後放入76℃烘箱中以漂白或不活化光色性化合物。然後測試方塊冷卻至室溫，暴露於螢光室燈光至少2小時，然後保持包覆至少2小時，然後在維持於75°F (23.9℃)之光具座上測試。光具座裝設一150瓦氬弧燈；一遙控開；一硫酸銅浴，用作氬弧燈之熱槽(heat sink)；一Schott WG-320 nm斷流濾器，其移除短波長照射；中性密度過濾器，及樣品夾，插入欲測試之方塊。鎢絲燈之瞄準光線以小角度(約30°)對測試方塊而通過測試方塊。在通過測試方塊後，鎢絲燈之光線經設定在先前所定欲測量之光色性化合物之可見光 $\lambda_{\max}$ 之Spectral Energy Corp. GM-200單色光鏡而集中於檢波器。檢波器之輸出訊號以放射計處理。

光學密度之變化(ΔOD)係由漂白狀態之測試方塊插入樣品夾，調簡透光度至100%，打開氬弧燈開以提供紫外光照射，以使測試方塊由漂白狀態改變至活化(即變黑)狀態，測量活化狀態之透光度，及計算光學密度之變化，依據式： $\Delta OD = \log(100/\%Ta)$ ，(其中 $\%Ta$ 為活化狀態之透光%，對數係對於基數10)而測定。

ΔOD /分鐘，表光色性化合物對紫外光之敏感性，係於暴露紫外光之最先5秒測量，以每分鐘為基準表示。飽和光學密度($\Delta OD @ Sat$)係在 ΔOD /分鐘之相同條件下測量，但表1中之實例暴露紫外光繼續20分鐘。 $\lambda_{\max}$ (Vis)為可見光譜之波長，在此波長測試方塊中光色性化合物之活化(有色)形式之最大吸收發生。表1中所報告之 $\lambda_{\max}$ (Vis)波

五、發明說明 (21)

長係由部份A之光色性測試方塊聚合物於Varian Cary 3紫外光-可見光譜光度計中測試而測定。 $\lambda_{\max}$ (UV) 為最接近可見光譜之紫外光範圍內之波長，在此波長光色性化合物之吸收發生。這些吸收亦以相同光譜光度計測定，報告於表1。漂白速率(T 1/2)為測試方塊中光色性化合物之活化形式之吸收達到活化光源移除後於室溫(75°F, 23.9°C)之最大吸收一半之時間間隔(秒)。所測試之光色性化合物之結果列於表1。

部分C

其他測試係以實例1及比較實例中所述之光色性化合物之混合物以吸收程序併入測試樣品平面鏡中而進行。測試樣品平面鏡係由PPG Industries, Inc. 以CR-307及CR-407銷售之光學樹脂製備，並以直徑76毫米測量。測試組合物1，2，3，4，5及6係使用表2中所列特定光色性化合物(以特定重量比例)於光學樹脂中之混合物製備。各組合物溶於一種吸液調配物中，包括樹脂，安定劑，及N-甲基吡咯啉酮，2-甲氧基乙基醚及四氫呋喃甲醇之混合物，形成約10重量%之溶液。然後此溶液旋轉塗覆於測試樣品上，並乾燥。然後，樣品於熱空氣烘箱中在135-155°C加熱一段足以使光色性化合物熱轉移入測試鏡中之時間。在冷卻後，生成之樹脂薄膜由測試樣品以水及然後以丙酮洗而移除。測試樣品在烘箱中之滯留時間經調整以吸收相當光色性化合物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (22)

部分 D

部分 C 中所製備之光色性測試鏡在光具座上模擬太陽條件測試光色性反應。在光具座上測試之前，進行部份 B 中所述之活化及不活化光色性化合物之相同程序。光具座裝設一 300 瓦氬弧燈；一遙控開；一 Schott 3 毫米 KG-2 斷流濾器，其移除短波長照射；及中性密度過濾器。

太陽模擬條件係由先測量個人在大區域(quadrants)之外面行走時所載光色性眼鏡之戶外反應而建立。在大區域之各邊(leg)行程(即約 200 呎)後，報告測量值及情況，並平均。調節光具座之輸出量，直到獲得此平均反應為止。溫度依賴性研究之太陽模擬條件示於圖 1 中，對於 72°F 為 220 瓦與 1.5 中性密度濾器及 KG-2 濾器，對於 95°F 為 235 瓦 1.6 中性密度濾器及 KG-2 濾器。圖 1 之活化%光透射值係由未活化測試方塊之光學密度值及先前收集之透光值之計算值而獲得。

圖 2 及 3 之色彩一致性研究中所顯示之活化週期係由控制以 15° 對樣品之氬弧燈之輸出量，及然後過濾光線以產生太陽模擬條件而獲得。退色週期係由關閉遙控開而獲得。在二週期期間，測試樣品保持在溫度控制石英槽中於 72°F 歷 30 分鐘。在活化及退色週期期間，鎢絲燈之瞄準監測光線以 -15° 對樣品之表面而通過測試樣品。在通過樣品後，鎢絲燈之光線通過接於檢波器之適光(photopic)濾器。檢波器之輸出訊號以放射計處理。另一低強度監測光線由一 SC Technologies-Model CSE-10 光譜光度計經一光纖電纜垂直照

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

五、發明說明 (23)

於測試樣品。該光纖電纜對準一回到光譜光度計之目標光纖電纜以測量圖2及3中所示色彩一致性研究之色彩值。色彩值，即CIELAB色彩空間之 a^* 及 b^* ，係在 D_{65} 發光劑及10度觀測者之條件下收集。測試條件之控制及數據之獲得係以Labtech Notebook Pro軟體及推薦之I/O板處理。

表 1

實例 化合物	(λ)max (VIS)	(λ)max (UV)	ΔOD /分鐘 敏感性	ΔOD @ 飽和	漂白 (T1/2)
1	464	372	0.39	0.37	60
2	467	368	0.27	0.37	71
3	582	359	0.26	0.36	81
CE 1	622	348	0.26	0.35	61
CE 2	616	348	0.32	0.42	57
CE 3	628	368	0.32	0.5	72
CE 4	486	348	0.22	0.63	271
CE 5	491	359	0.24	0.7	198
CE 6	524	357	0.16	0.35	135
CE 7	475	350	0.3	0.77	186

表1之結果顯示化合物1及1或2適合與化合物3組合以產生本發明之組合物。化合物CE 1，2及3與CE化合物4，5，6及7或與化合物1及2組合之用途不符合至少一個本發明標準，例如可見光 λ_{max} 差異大於140nm但少於75nm；紫

五、發明說明 (24)

外光 $\lambda_{\max}$ 差異少於50nm；敏感性0.25單位；飽和光學密度0.2單位；退色速率50秒。

表 2

組合物(色彩)	化合物	重量比	光學樹脂
1(灰色)	3,1	60/40	CR-407
2(灰色)	2,1	60/40	CR-407
3(褐色)	3,1	35/65	CR-407
4(灰色)	CE,CE2,CE4,CE5	29/25/30/16	CR-307
5(灰色)	CE3,CE6,CE7	42.5/30/27.5	CR-407
6(褐色)	CE3,CE6,CE7	34/34/32	CR-307

在圖1中，組合物1及2組合物5在太陽模擬條件下之比較顯示組合物1及2在溫度高於72°F之 Δ 光學密度之減少較少。在結果係關於光色性組合物之溫度依賴性。溫度依賴性係使用下式計算：

$$\frac{\Delta OD 72^{\circ}F - \Delta OD 95^{\circ}F}{\text{平均}(\Delta OD 72^{\circ}F + \Delta OD 95^{\circ}F)}$$

$$\text{平均}(\Delta OD 72^{\circ}F + \Delta OD 95^{\circ}F)$$

基於圖1中所示之數據，組合物1之溫度依賴性為0.27，組合物2為0.17，組合物4為0.38。圖2及3分別顯示組合物1與組合物4及組合物3與組合物5之色彩一致性之比較。

在圖2中，組合物1之色彩一致性之活化/退色週期圖在

五、發明說明 (25)

(b^* , a^*)座標(3.5, -1.1)及(-7.8, -5)內。其相當於 b^* 值之差異為11.3, a^* 值之差異為3.9。組合物4之色彩一致性之圖在(b^* , a^*)座標(13.8, 12)及(-3.6, -2.7)內, 其相當於 b^* 及 a^* 值之差異分別為17.4及14.7。

在圖3中, 組合物3之色彩一致性之活化/退色週期圖在(b^* , a^*)座標(6.8, 0.4)及(2.2, -1.2)內, 相當於 b^* 及 a^* 值之差異分別為4.6及1.6。組合物6之圖在(b^* , a^*)值(11, 10.4)及(1.4, -3.2)內, 其相當於 b^* 及 a^* 值之差異分別為9.6及13.6。

本發明已參考特定具體實施例之特定細節說明。該細節不應視為限制本發明範圍, 其範圍係包括在下列申請專利範圍內。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

永

四、中文發明摘要(發明之名稱： 中性色彩之光色性萘并呋喃組合物)

本發明述及一種載體及至少二種光色性萘并呋喃化合物之新穎組合物，基於特定標準選擇，當暴露於太陽紫外光照射時，顯示在CIELAB色彩系統中+10至-10之a*及b*範圍內所含之灰色或褐色中性色彩。亦述及載體，即有機溶劑及有機聚合基質材料，如光學透明物品，例如眼鏡或其他塑膠透明物，含有或以萘并呋喃化合物塗覆。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

英文發明摘要(發明之名稱： "PHOTOCHROMIC NAPHTHOPYRAN COMPOSITIONS OF NEUTRAL COLOR")

Described are novel compositions of a carrier and at least two photochromic naphthopyran compounds, selected on the basis of specific criteria, that when exposed to solar ultraviolet radiation, exhibit neutral colors of gray or brown contained within the a* and b* ranges of +10 to -10 in the CIELAB color system. Also described are carriers, i.e., organic solvents and organic polymeric host materials, such as optically clear articles, e.g., ophthalmic lenses or other plastic transparencies that contain or that are coated with the naphthopyran compounds.

訂

線

六、申請專利範圍

1. 一種組合物，包括至少二種光色性萘并呋喃化合物，該萘并呋喃化合物無胺基取代之芳基在鄰接於呋喃環之氧原子之碳原子上，當併入萘并呋喃化合物之一種載體並暴露於太陽紫外光照射時，該組合物顯示下列性質：
 - (a) 灰色或褐色之活化中性色彩；及
 - (b) 在光透射率於 30 至 90% 之間，於 72°F 活化及退色期間，測得最大及最小 a^* 值間之差異少於 6 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 14 單位。
2. 根據申請專利範圍第 1 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物之載體為有機溶劑或有機聚合基質，且其中該組合物顯示最大及最小 a^* 值間之差異少於 5 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 13 單位。
3. 根據申請專利範圍第 2 項之組合物，其中最大及最小 a^* 值間之差異少於 4 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 12 單位。
4. 根據申請專利範圍第 1 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物係選自 3[H]-萘并[2,1-b]呋喃及 2[H]-萘并[1,2-b]呋喃。
5. 根據申請專利範圍第 4 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物包括：
 - (a) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由 400nm 至 525nm；及
 - (b) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由大於

六、申請專利範圍

525nm 至 650nm。

6. 根據申請專利範圍第5項之組合物，其中(a)及(b)之萘并呋喃之平均可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於150nm，但是大於75nm，(a)及(b)之萘并呋喃之平均紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於50nm，在345-400nm之範圍內。
7. 根據申請專利範圍第6項之組合物，其中(a)及(b)之萘并呋喃之平均可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於130nm，但是大於100nm，(a)及(b)之萘并呋喃之平均紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於30nm，在350-400nm之範圍內。
8. 根據申請專利範圍第7項之組合物，其中(a)及(b)之萘并呋喃之可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於120nm，但是大於110nm，(a)及(b)之萘并呋喃之紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於20nm，在355-400nm之範圍內。
9. 根據申請專利範圍第2項之組合物，其中該有機溶劑係選自苯，甲苯，甲基乙基酮，丙酮，乙醇，四氫呋喃，甲醇，N-甲基吡咯啉酮，2-甲氧基乙基醚，二甲苯，環己烷，3-甲基環己酮，醋酸乙酯，四氫呋喃，甲醇，丙酸甲酯，乙二醇，及其混合物。
10. 根據申請專利範圍第9項之組合物，其中該有機溶劑係選自丙酮，乙醇，四氫呋喃，甲醇，2-甲氧基乙基醚，3-甲基環己酮，N-甲基吡咯啉酮，及其混合物。
11. 根據申請專利範圍第2項之組合物，其中該有機聚合基質材料係選自聚(甲基丙烯酸 C_1 - C_{12} 烷基酯)，聚(二甲基丙烯酸氧基次烷基酯)，聚(烷氧基化酚甲基丙烯

六、申請專利範圍

酸酯)，醋酸纖維素，三醋酸纖維素，醋酸丙酸纖維素，醋酸丁酸纖維素，聚(醋酸乙烯酯)，聚(乙烯基醇)，聚(乙烯基氯)，聚(亞乙烯基二氯)，熱塑性聚碳酸酯，聚酯，聚尿烷，聚(對酞酸次乙酯)，聚苯乙烯，聚(α -甲基苯乙烯)，共聚(苯乙烯-甲基丙烯酸甲酯)，共聚(苯乙烯-丙烯腈)，聚乙炔基丁醛；及下列單體之聚合物：雙(碳酸烯丙酯)單體，多官能基之丙烯酸酯單體，多官能基之甲基丙烯酸酯單體，二甲基丙烯酸二乙二醇酯單體，二異丙烯基苯單體，乙氧基化聯酚A二甲基丙烯酸酯單體，二甲基丙烯酸乙二醇酯單體，二甲基丙烯酸聚(乙二醇)酯單體，乙氧基化聯酚二甲基丙烯酸酯單體，烷氧基化多羥醇聚丙烯酸酯單體，苯乙烯單體，丙烯酸尿烷酯單體，丙烯酸縮水甘油酯單體，甲基丙烯酸縮水甘油酯單體，及二亞烯丙基異戊四醇單體。

12. 根據申請專利範圍第11項之組合物，其中該聚合有機基質材料為一種固體透明聚合物選自聚(甲基丙烯酸甲酯)，聚(二甲基丙烯酸乙二醇酯)，聚(乙氧基化聯酚A二甲基丙烯酸酯)，熱塑性聚碳酸酯，聚(醋酸乙烯酯)，聚乙炔基丁醛，聚尿烷，及下列單體之聚合物：二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)單體，二甲基丙烯酸二乙二醇酯單體，乙氧基化聯酚二甲基丙烯酸酯單體，二異丙烯基苯單體，及三丙烯酸乙氧基化三甲醇丙酯單體。

- 13 根據申請專利範圍第12項之組合物，其中該固體透明

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

64

六、申請專利範圍

聚合物為一種光學元件。

14. 根據申請專利範圍第13項之組合物，其中該光學元件為一種透鏡(lens)。

15. 根據申請專利範圍第2項之組合物，其中該有機聚合基質為一種光學有機樹脂單體之聚合物。

16. 根據申請專利範圍第15項之組合物，其中該聚合物之折射率為由1.48至1.75。

17. 根據申請專利範圍第16項之組合物，其中該聚合物之折射率為由1.495至1.66。

18. 根據申請專利範圍第5項之組合物，其中

(i) 該光色性萘并呋喃化合物(a)係選自下列：

(1) 2,2-二苯基-5-羥基甲基-6-甲基-9-甲氧基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(2) 2,2-二苯基-5-羥基甲基-6-苯基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(3) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(4) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(5) 3-(2-氟苯基)-3-(4-甲氧基苯基)-8-甲氧基-9-甲氧基羰基-3H-萘并[2,1-b]呋喃；

(6) 2,2-二苯基-4-甲氧基羰基-5-(2-甲基丙醯氧基)-2H-萘并[1,2-b]呋喃；及

(7) 該等萘并呋喃之混合物。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

白

六、申請專利範圍

(ii) 該光色性萘并呋喃化合物(b)係選自下列：

(1) 3-(4-甲氧基苯基)-3-(3-甲基-4-甲氧基苯基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃；

(2) 3,3-二(4-甲氧基苯基)-13-羥基-13-甲基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃；

(3) 3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃；

(4) 3-(4-甲氧基苯基)-3-(3,4-二甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13,13-二丙基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃；及

(5) 該等萘并呋喃之混合物。

19. 根據申請專利範圍第18項之組合物，其中

(i) 該光色性萘并呋喃化合物(a)係選自下列：

(1) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(2) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；及

(3) 該等萘并呋喃之混合物。

(ii) 該光色性萘并呋喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃。

20. 根據申請專利範圍第19項之組合物，其中

(i) 該光色性萘并呋喃化合物(a)為2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃，或2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

406213

六、申請專利範圍

b] 哌喃；

(ii) 該光色性萘并哌喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茚并[2,1-f]萘并[1,2-b]哌喃。

21. 根據申請專利範圍第6項之組合物，其中(a)及(b)之萘并哌喃之平均敏感性值間之差異少於0.25；(a)及(b)之萘并哌喃之平均光學密度飽和值間之差異少於0.2；(a)及(b)之萘并哌喃之平均退色速率(T1/2)間之差異少於50秒。

22. 根據申請專利範圍第21項之組合物，其中(a)及(b)之萘并哌喃之平均敏感性值間之差異少於0.20；(a)及(b)之萘并哌喃之平均飽和光學密度間之差異少於0.1；(a)及(b)之萘并哌喃之平均退色速率(T1/2)間之差異少於35秒。

23. 根據申請專利範圍第22項之組合物，其中(a)及(b)之萘并哌喃之平均敏感性值間之差異少於0.15；(a)及(b)之萘并哌喃之平均飽和光學密度間之差異少於0.05；(a)及(b)之萘并哌喃之平均退色速率(T1/2)間之差異少於25秒。

24. 根據申請專利範圍第12項之組合物，其中

(i) 該光色性萘并哌喃化合物(a)係選自下列：

(1) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]哌喃；

(2) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

14

六、申請專利範圍

b] 哌喃；及

(3) 該等萘并哌喃之混合物，

(ii) 該光色性萘并哌喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]哌喃。

25. 根據申請專利範圍第24項之組合物，其中

(i) 該光色性萘并哌喃化合物(a)為2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]哌喃，或2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]哌喃；

(ii) 該光色性萘并哌喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茛并[2,1-f]萘并[1,2-b]哌喃。

26. 一種光色性物件，其包含一種有機聚合基質，及至少二種光色性萘并哌喃化合物，該萘并哌喃化合物無胺基取代之芳基在鄰接於哌喃環之氧原子之碳原子上，當暴露於太陽紫外光照射下時，該物件係顯示下列性質：

(a) 灰色或褐色之活化中性色彩；及

(b) 在光透射率於30至90%之間，於72°F活化及退色期間，測得最大及最小a*值間之差異少於6單位，最大及最小b*值間之差異少於14單位；及

(c) 溫度依賴性少於0.30。

27. 根據申請專利範圍第26項之光色性物件，其中最大及

六、申請專利範圍

最小 a^* 值間之差異少於4單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於12單位；及溫度依賴性少於0.28。

28. 根據申請專利範圍第26項之光色性物件，其中該光色性萘并呋喃化合物包括：

(a) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由400nm至525nm；及

(b) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由大於525nm至650nm。

29. 根據申請專利範圍第28項之光色性物件，其中(a)及(b)之萘并呋喃之可見光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於120nm，但是大於110nm，(a)及(b)之萘并呋喃之紫外光 $\lambda_{\max}$ 值間之差異少於20nm，在355-400nm之範圍內。

30. 根據申請專利範圍第29項之光色性物件，其中

(i) 該光色性萘并呋喃化合物(a)係選自下列：

(1) 2,2-二苯基-5-(2-乙氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(2) 2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；及

(3) 該等萘并呋喃之混合物；

(ii) 該光色性萘并呋喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羥基-茚并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃。

31. 根據申請專利範圍第30項之光色性物件，其中

(i) 該光色性萘并呋喃化合物(a)為2,2-二苯基-5-(2-乙

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

訂

六、申請專利範圍

氧基-2-氧基-乙氧基羰基)-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃，或2,2-二苯基-5-甲氧基羰基-8-甲基-2H-萘并[1,2-b]呋喃；

(ii) 該光色性萘并呋喃化合物(b)為3,3-二(4-甲氧基苯基)-6,11-二甲基-13-(1-甲基乙基)-13-羧基-茚并[2,1-f]萘并[1,2-b]呋喃。

32. 根據申請專利範圍第26項之光色性物件，其中該聚合有機基質材料為一種固體透明聚合物選自聚(甲基丙烯酸甲酯)，聚(二甲基丙烯酸乙二醇酯)，聚(乙氧基化聯酚A二甲基丙烯酸酯)，熱塑性聚碳酸酯，聚(醋酸乙烯酯)，聚乙炔基丁醛，聚尿烷，及下列單體之聚合物：二乙二醇雙(碳酸烯丙酯)單體，二甲基丙烯酸二乙二醇酯單體，乙氧基化酚二甲基丙烯酸酯單體，二異丙烯基苯單體，及三丙烯酸乙氧基化三甲醇丙酯單體。

33. 根據申請專利範圍第32項之光色性物件，其中該固體透明聚合物為一種光學元件。

34. 根據申請專利範圍第33項之光色性物件，其中該光學元件為一種透鏡(lens)。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

訂

44

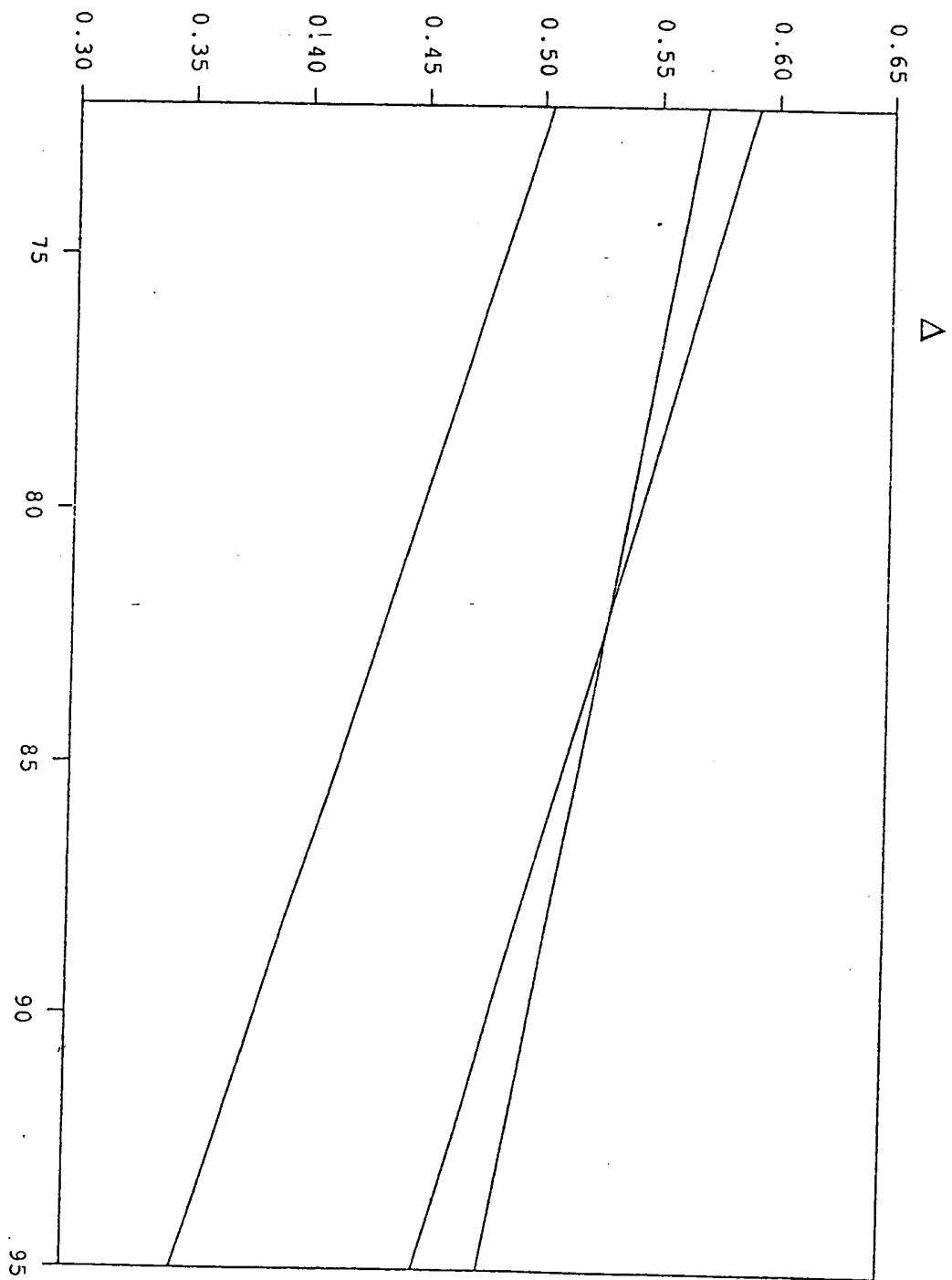
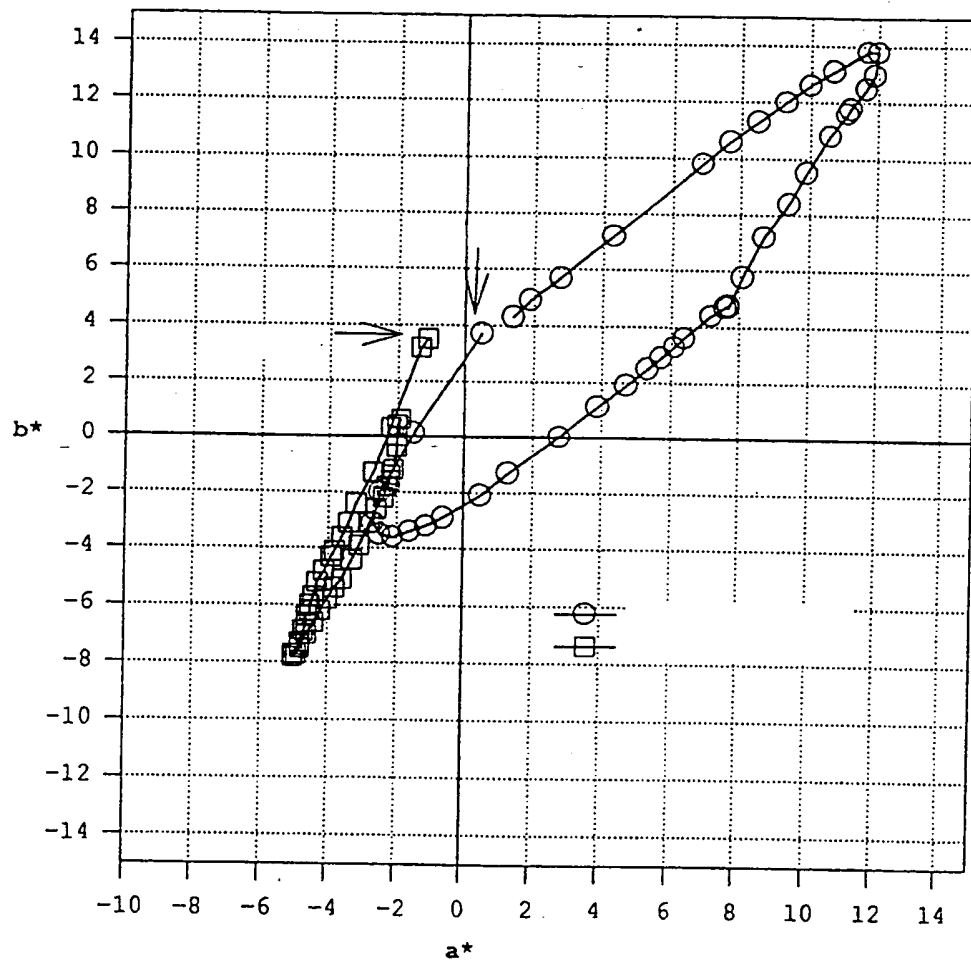


圖 1

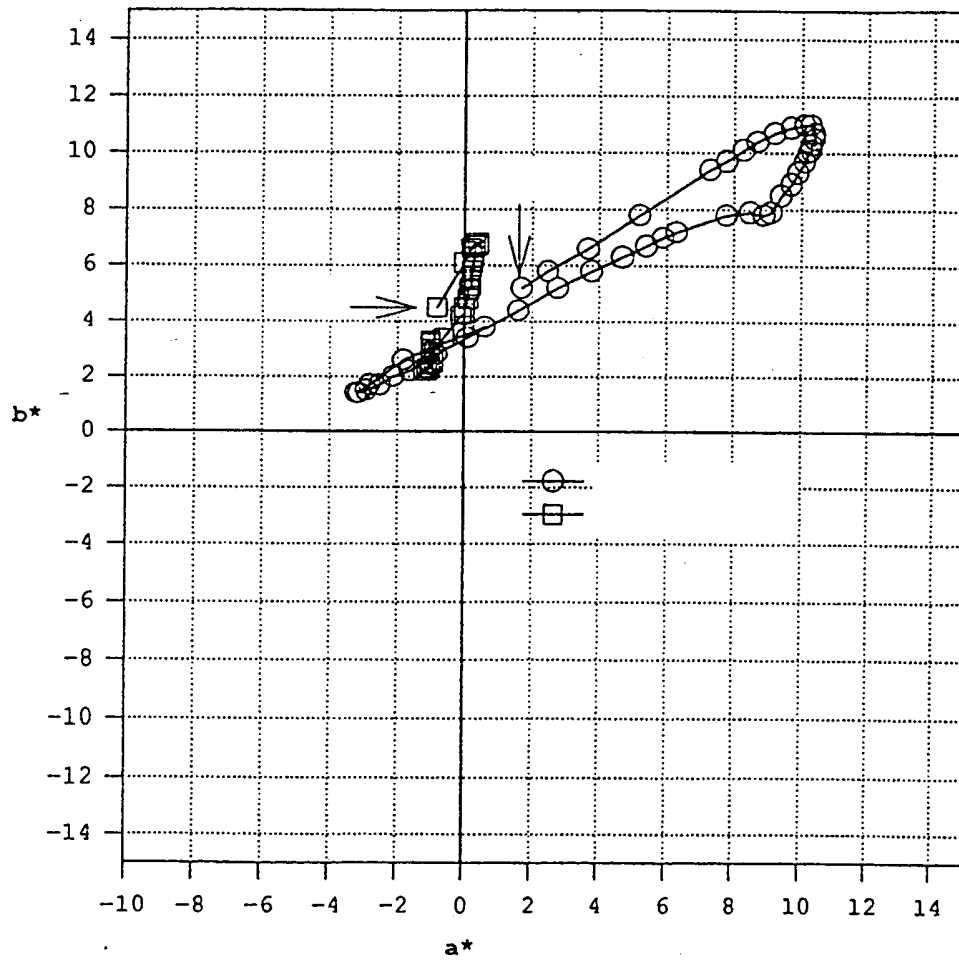
406213

圖 2



406213

圖 3



六、申請專利範圍

1. 一種組合物，包括至少二種光色性萘并呋喃化合物，該萘并呋喃化合物無胺基取代之芳基在鄰接於呋喃環之氧原子之碳原子上，當併入萘并呋喃化合物之一種載體並暴露於太陽紫外光照射時，該組合物顯示下列性質：
 - (a) 灰色或褐色之活化中性色彩；及
 - (b) 在光透射率於 30 至 90% 之間，於 72°F 活化及退色期間，測得最大及最小 a^* 值間之差異少於 6 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 14 單位。
2. 根據申請專利範圍第 1 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物之載體為有機溶劑或有機聚合基質，且其中該組合物顯示最大及最小 a^* 值間之差異少於 5 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 13 單位。
3. 根據申請專利範圍第 2 項之組合物，其中最大及最小 a^* 值間之差異少於 4 單位，最大及最小 b^* 值間之差異少於 12 單位。
4. 根據申請專利範圍第 1 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物係選自 3[H]-萘并[2,1-b]呋喃及 2[H]-萘并[1,2-b]呋喃。
5. 根據申請專利範圍第 4 項之組合物，其中該光色性萘并呋喃化合物包括：
 - (a) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由 400nm 至 525nm；及
 - (b) 至少一種光色性萘并呋喃具有可見光 $\lambda_{\max}$ 由大於