

公告本

I248939

申請日期	91.6.27.
案 號	91114173
類 別	C07F ² / ₁₀ , ² / ₀₄

A4
C4

(以上各欄由本局填註)

發 明 專 利 說 明 書

一、發明 新 型 名 稱	中 文	胺化合物與由其衍生之可熟化組合物
	英 文	AMINE COMPOUNDS AND CURABLE COMPOSITIONS DERIVED THEREFROM
二、發明 人	姓 名	1.葛斯 L. 懷其斯 GARTH L. WILKES 2.鍾荷 李 CHENGHONG LI
	國 籍	1.美國 U.S.A 2.中華民國 R.O.C.
	住、居所	1.美國維吉尼亞州布萊克伯格市羅倫道3345號 3345 LAUREL DRIVE, BLACKSBURG, VIRGINIA 24060, U.S.A. 2.美國北卡羅林那州威明頓市米爾奇大樓405C號 405-C MILL CREEK COURT, WILMINGTON, NORTH CAROLINA 28403, U.S.A.
三、申請人	姓 名 (名 稱)	美商維吉尼亞科技智慧財產公司 VIRGINIA TECH INTELLECTUAL PROPERTIES, INC.
	國 籍	美國 U.S.A.
	住、居所 (事務所)	美國維吉尼亞州布萊克伯格市1625區貝德道1872號 1872 PRATT DRIVE, SUITE 1625, BLACKSBURG, VIRGINIA 24060, U.S.A.
	代 表 人 姓 名	麥可 J. 馬丁 MICHAEL J. MARTIN

(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
美國 2001年06月29日 09/896,082 ☒有☐無主張優先權

有關微生物已寄存於： 寄存日期： ，寄存號碼：

裝
訂
線

五、發明說明(1)

發明之領域

本發明係普遍地關於胺化合物，其發現特定用途於溶膠-凝膠製備可熟化、高耐磨性塗料組合物。本發明進一步關於此胺化合物的製造方法、包含胺化合物的可熟化組合物、熟化此組合物的方法及由其衍生之可熟化產品。

發明之背景

高耐磨性塗料組合物發現用途於廣泛的塗料應用中。因為此組合物形成有助於增加基板硬度及耐磨性之塗料，其適合用於保護該基板的表面。例如，將高耐磨性塗料組合物使用於製造透明物品，包括建築物窗戶、飛機窗戶、眼鏡及鏡片，以避免其表面上的模糊、瘡孔及刮痕。此外，將高耐磨性塗料組合物使用來幫助金屬基板，如鋁製者，來保持物理及化學品質。

此高耐磨性塗料組合物之一種有用的類型為經由溶膠-凝膠程序衍生者。傳統上，藉由反應一或多種無機烷氧矽烷化合物而形成包含有矽氧烷鍵結(-Si-O-Si-)部分之網路的可熟化組合物，已將此塗料組合物產生。

更近來，已使用經烷氧矽化的胺化合物與無機化合物結合，經由溶膠-凝膠程序而形成高耐磨性塗料組合物。例如，薇克絲(Wilkes)等人於美國專利編號5,316,855及5,371,261中揭示利用含有尿素(-NH-C(O)-NH-)及/或胺基甲酸酯(-NH-C(O)-O-)鍵的烷氧矽化有機化合物於製備溶膠-凝膠衍生的可熟化組合物中。將此有機組合物與金屬烷氧化物或半金屬烷氧化物化合物反應而形成可熟化組合

五、發明說明 (2)

物。

本發明人已發現利用含有尿素(-NH-C(O)-NH-)及/或胺基甲酸酯(-NH-C(O)-O-)鍵的有機化合物於可熟化組合物中有幾項不利因素。例如，一個缺點為含有尿素及胺基甲酸酯部分的有機化合物易受水解影響。在水-醇基的溶膠-凝膠組合物中此化合物的水解導致「懸空」側基團，其降低形成塗料的耐磨性。此外，水解提高此組合物的pH，其結果造成縮短凝膠時間及降低組合物的耐儲時間。

認清先前技藝之此等及其他缺點，本發明人已感到需要新的、安定的烷氧矽化有機化合物利用於許多應用中，特別是溶膠-凝膠塗料應用。將由本發明達成的此等及其他目的說明於下。

發明之概述

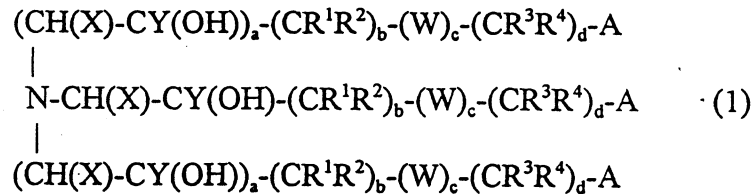
本發明係針對一類烷氧矽化胺化合物，其在製備塗料組合物中發現特別用途，特別是經由溶膠-凝膠技術形成者，以用於許多塗料應用中。本發明的胺化合物藉由加入水解安定的部分克服先前技藝的缺點，當形成可熟化組合物時，其可更容易地於暴露至水而無降低耐儲時間的危險。再者，可將本發明的胺化合物用於製備可熟化組合物及塗料/膜，具有比先前技藝更長耐儲時間及更大耐磨性。

根據本發明的一個觀點，提供由包含有使胺反應物與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵之方法產生的化合物，其中胺或環氧化物反應物之其中至少一種包含有末端烷氧矽基。在較佳具體實施例中，由本發明

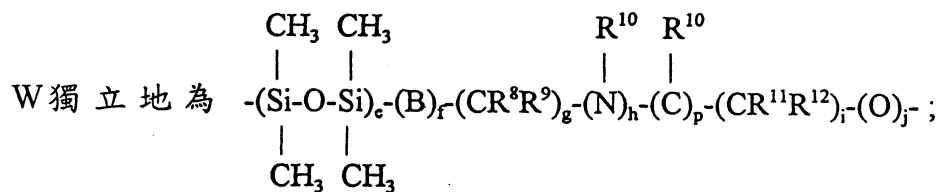
五、發明說明 (3)

提供的化合物為由下式1說明的化合物。

式1：



其中：



X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R^{10} 獨立地為 $-(\text{CR}^{13}\text{R}^{14})_k-(\text{O})_l-(\text{CR}^{15}\text{R}^{16})_m-\text{A}$ ；

A獨立地為低碳烷基或 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ，其限制條件為至少一個A為 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-\text{O}-(\text{CR}^{17}\text{R}^{18})_n-\text{O}-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

a、c、e、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

本發明的另一個觀點為含有本發明化合物的一類可熟化

五、發明說明 (4)

組合物。於是，本發明的可熟化組合物包含由包含有使胺反應物與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵之方法產生的至少一種胺。在較佳具體實施例中，本發明的可熟化組合物包含至少一種式(1)之胺化合物。

本發明的可熟化組合物有用於製造耐磨性塗料。所以，本發明的再另一個觀點為具有耐磨性塗料的基板的製造方法，包含步驟有：

(a)塗佈一層本發明的可熟化組合物至基板上；及(b)熟化可熟化組合物於基板上。

本發明方法產生具有耐磨性塗料的物品製造。所以，本發明的再另一個觀點為具有經由本發明方法產生的耐磨性塗料的基板。

可將包含本發明胺化合物之可熟化組合物熟化而形成膜。所以，本發明也包括由熟化包含至少一種本發明胺化合物之可熟化組合物而產生的膜。

發明及較佳具體實施例之說明

如上使用，及遍及本揭示，除非另外指明，應瞭解下列用詞具有下列意義：

「烷基」意指直鏈或支鏈脂肪族基團。較佳的烷基為具有約1至約20個碳原子者。「低碳烷基」為具有約1至約6個碳原子的烷基基團且為最佳。低碳烷基基團的實例為甲基、乙基、正丙基、異丙基、丁基、二級丁基、三級丁基、正戊基、異戊基、新戊基及正己基。

「伸烷基」意指二價直鏈或支鏈脂肪族基團。較佳的伸

五、發明說明 (5)

烷基為具有約1至約20個碳原子者。「低碳伸烷基」為具有約1至約6個碳原子的伸烷基基團且為最佳。低碳伸烷基基團的實例為伸甲基、伸乙基、伸正丙基、伸異丙基、伸丁基、伸二級丁基、伸三級丁基、伸正戊基、伸異戊基、伸新戊基及伸正己基。

「烷氧基」意指包含有連接至氧基團的烷基之脂肪族基團。較佳的烷氧基為具有約1至約20個碳原子者。「低碳烷氧基」為具有約1至約6個碳原子的烷氧基基團且為最佳。低碳烷氧基基團的實例為甲氧基、乙氧基、正丙氧基、異丙氧基、丁氧基、二級丁氧基、三級丁氧基、正戊氧基、異戊氧基、新戊氧基及正己氧基。

「烷氧矽基」意指包含有至少一個至約三個烷氧基的三取代矽基基團，其中任何非烷氧基取代基為羥基或低碳烷基。較佳的烷氧矽基為具有三個低碳烷氧基取代基者。

「胺-官能基矽烷」意指包含有至少一個胺基團及至少一個末端烷氧矽烷基團之化合物。

「胺反應物」意指包含有至少一個胺基團的化合物，其能夠與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵。較佳的胺反應物包括單-、二-及三-胺、胺-官能基矽烷，及其二或多種組合。

「環烷基」意指環狀脂肪族基團。較佳的環烷基為具有約3至約20個碳原子者。較佳環烷基的實例為環丙基、環丁基、環戊基、環己基、環庚基、環辛基、環壬基、環癸基、環十一烷基及環十二烷基。

五、發明說明 (6)

「環氧基-官能基矽烷」意指包含有至少一個末端環氧基基團及至少一個末端烷氧矽烷基基團之化合物。

「環氧化物反應物」意指包含有至少一個環氧基團的化合物，其能夠與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵。較佳的環氧化物反應物包括包含有二或多個環氧基基團的化合物、環氧基官能基矽烷，及其二或多種組合。

「水解安定」意指有機部分或基團在中性、弱酸或弱鹼介質中經過高達約3-6個月期間實質上不與水反應。

「羥烷基」意指具有至少一個羥基取代基連接至其上的烷基。較佳的羥烷基為具有約1至約20個碳原子者。「低碳羥烷基」為具有約1至約6個碳原子的羥烷基基團且為最佳。低碳羥烷基的實例為羥甲基、羥乙基、羥正丙基、羥異丙基、羥丁基、羥二級丁基、羥三級丁基、羥正戊基、羥異戊基、羥新戊基及羥正己基。

「羥伸烷基」意指具有至少一個羥基取代基連接至其上的伸烷基。較佳的羥伸烷基為具有約1至約20個碳原子者。

「低碳羥伸烷基」為具有約1至約6個碳原子的羥伸烷基基團且為最佳。低碳羥伸烷基的實例為羥甲基、羥乙基、羥正丙基、羥異丙基、羥丁基、羥二級丁基、羥三級丁基、羥正戊基、羥異戊基、羥新戊基及羥正己基。

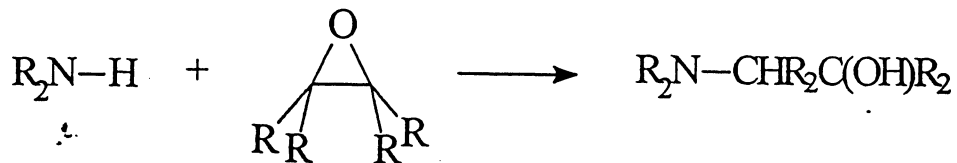
「獨立地」意指於化學式中出現在多於一個位置的特定變數於式中各位置可為相同或不同。

胺化合物

五、發明說明(7)

本發明的胺化合物普遍包含有由包含有使胺反應物與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵之步驟之方法形成的化合物，其中胺或環氧化物反應物之其中至少一種包含有末端烷氧矽基。雖然申請人不意欲受限於任何操作理論，圖解於下的路徑1大體顯示胺反應物與環氧化物反應物反應而形成本發明的碳-氮鍵之可能機轉。

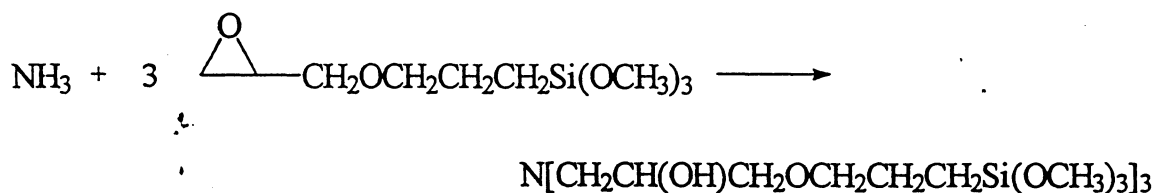
路徑1：



其中R獨立地為氫、未經取代或經取代的脂肪族、未經取代或經取代的芳香族基團，及/或其中環氧化物的兩個R基團及/或胺化合物的兩個R基團可連接而形成環狀化合物，且至少一個R基團包含有末端烷氧矽基。

可使用任何廣泛範圍之胺/環氧化物反應物於實行本發明。根據某些較佳具體實施例，本發明的化合物係由單-、二-或三胺起始材料(或其二或多種組合)與環氧官能基矽烷於低碳醇溶液中反應而製備。例如，路徑2說明藉由使氮與3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷在乙醇存在下(未示)反應形成本發明化合物的一個可能機轉。

路徑2：



五、發明說明 (8)

可使用任何廣泛範圍之胺於製備本發明的化合物。適合的胺之實例包括氨、3-胺基丙基三乙氧矽烷、3-胺基丙基三乙氧矽烷、乙二胺、己二胺、1,3-胺基丙烷、1,2-二胺基丙烷、1,4-二胺基丁烷、1,5-二胺基戊烷、1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷、N-(3-三甲氧矽基丙基)-乙二胺、二伸乙基三胺、三伸乙基四胺、異佛爾酮二胺及其類似物。此化合物一般可於市面購得(例如，氨、乙二胺、己二胺、1,3-胺基丙烷及1,2-二胺基丙烷來自Aldrich化學公司及3-胺基丙基三乙氧矽烷、3-胺基丙基三乙氧矽烷、1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷及N-(3-三甲氧矽基丙基)-乙二胺來自Gelest公司)，許多此化合物於文獻中為已知並由技藝已知的程序可得到。

適合使用於本發明中的環氧官能基矽烷化合物包括任何能夠與-NH基團反應而形成-NCH₂CH(OH)-部分的環氧官能化矽烷化合物。適合的環氧官能基矽烷化合物的實例包括3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷、3-縮水甘油丙基二甲氧矽烷、3-縮水甘油丙基二甲基甲氧矽烷、2-(3,4-環氧環己基)-乙基三甲氧矽烷及其類似物。此化合物一般可於市面購得(例如，3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷來自Aldrich化學公司及3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷及2-(3,4-環氧基環己基)-乙基三甲氧矽烷來自Gelest公司)，許多此化合物於文獻中為已知並由技藝已知的程序可得到。

熟悉本技藝者將瞭解欲使用的胺及環氧官能基矽烷化合物之量根據本發明將視許多變數而定，包括使用的特定胺

五、發明說明 (9)

及由反應理想的產率。使用的試劑量較佳為有效達到大於50%，較佳大於70%，及更佳至少約90%轉變胺起始材料至理想胺產物之量。一般而言，胺N-H部分對環氧基團的比例可由約2:1至約1:2變化。較佳的是，胺N-H部分對環氧基團的比例為約1.1:1至約1:1.1，更佳為約1:1.05至約1:1.1。例如，在某些較佳方法中，其中胺為乙二胺(每分子4個N-H部分)而環氧官能基矽烷為3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷(每分子一個環氧基團)，N-H基團對環氧基團的當量比為約2:1至約1:2，較佳為約1.1:1至約1:1.1，更佳為約1:1.05至約1:1.1。

除了胺及環氧官能基矽烷化合物，反應混合物較佳包括適當低碳醇溶劑。適當低碳醇溶劑的實例為甲醇、乙醇、異丙醇及其類似物。在本發明的較佳具體實施例中，溶劑為乙醇。使用的醇溶劑量較佳至少為反應混合物的約20重量%。在更較佳具體實施例中，使用的醇溶劑量為至少約30重量%，更佳為至少約50重量%。

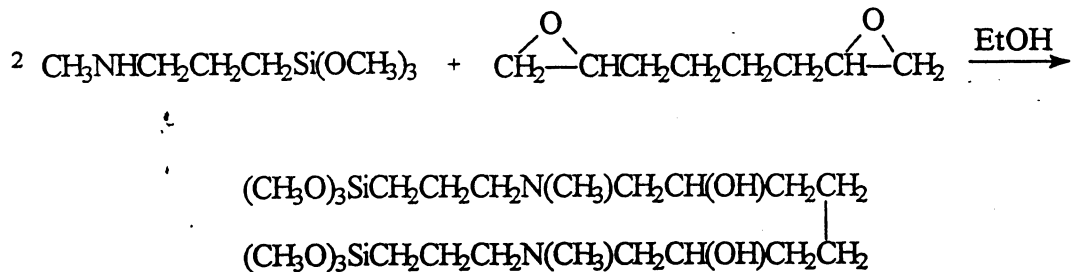
熟悉本技藝者將瞭解反應發生的條件，包括溫度、壓力及反應時間，將視許多因素而定，包括使用的特定起始試劑及理想的反應產率。鑑於包含於本文中的教導，熟悉本技藝者將能選擇適當的反應條件以達到特定理想結果。例如，對於較佳具體實施例，其中胺反應物為乙二胺而環氧官能基矽烷為3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷，較佳將反應於溫度約0°C至約130°C，更佳約0°C至約100°C，再更佳約0°C至約70°C下進行。對於如此的具體實施例，反應壓力較佳

五、發明說明 (10)

為約1大氣壓(atm)至約10 atm，更佳為約1 atm至約2 atm，再更佳為約1 atm至約1.2 atm。同時，對於如此的具體實施例，反應時間通常自約1天至約20天改變，視反應溫度及壓力而定。對於乙二胺對3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷的莫耳比約為1:4.1於乙醇溶劑(50重量%)中，於室溫(15-25°C)下反應時間通常為10-20天，而於60°C為2-4天。

根據某些替代較佳具體實施例，本發明的胺化合物可由使含有二或多個環氧或縮水甘油基團的環氧化物反應物與胺官能基矽烷反應而製備。例如，路徑3顯示分別利用3-(N-甲基胺基)丙基三乙氧矽烷及1,2,7,8-二環氧基辛烷作為胺官能基矽烷與環氧化物反應物合成本發明的化合物。

路徑3：



可使用任何廣泛範圍之環氧化物於製備本發明的化合物。如此適合的化合物之實例包括1,2,7,8-二環氧基辛烷、N,N-二縮水甘油基-4-縮水甘油基氧苯胺、4,4'-伸甲基雙(N,N-二縮水甘油基)苯胺、三苯基醇甲基三縮水甘油醚、三聚氰酸三縮水甘油酯、雙酚A二縮水甘油醚、2-(3,4-環氧基環己基)乙基三甲氧化矽烷、酚甲醛-環氧化物及其類似物。較佳的環氧化物化合物包括含有二或多個環氧基或縮水甘油基團的化合物如，例如，1,2,7,8-二環氧基辛烷

五、發明說明 (11)

、N,N-二縮水甘油基-4-縮水甘油基氧苯胺、4,4'-伸甲基雙(N,N-二縮水甘油基)苯胺、參(2,3-環氧基丙基)異氰酸酯、三苯基醇甲基三縮水甘油醚、三聚氰酸三縮水甘油酯、雙酚A二縮水甘油醚。此化合物一般可於市面購得(例如，1,2,7,8-二環氧基辛烷、N,N-二縮水甘油基-4-縮水甘油基氧苯胺、4,4'-伸甲基雙(N,N-二縮水甘油基)苯胺、參(2,3-環氧基丙基)異氰酸酯、三苯基醇甲基三縮水甘油醚、三聚氰酸三縮水甘油酯、雙酚A二縮水甘油醚來自Aldrich化學公司)，許多此化合物於文獻中為已知並由技藝已知的程序可得到。

可使用任何廣泛範圍之胺官能基矽烷化合物於本發明中。因為一級胺官能基矽烷若大量存在易於導致系統凝膠化，本發明的胺官能基矽烷較佳為二級胺官能基矽烷。適合的二級胺官能基矽烷化合物之實例包括3-(N-甲基胺基)丙基三甲氧矽烷、3-(N-乙基胺基)丙基三甲氧矽烷及其類似物。此化合物一般可於市面購得(例如，3-(N-甲基胺基)丙基三甲氧矽烷及3-(N-乙基胺基)丙基三甲氧矽烷來自Gelest公司)，許多此化合物於文獻中為已知並由技藝已知的程序可得到。

熟悉本技藝者將瞭解欲使用的起始材料之量根據替代具體實施例將視許多變數而定，包括使用的特定起始材料及由反應理想的產率。根據某些較佳的具體實施例，對環氧化物上每個環氧化基團使用約一當量之-NH部分化合物。此外，使用的試劑量較佳為有效達到大於50%，較佳大於

五、發明說明 (12)

70%，及更佳至少約90%轉變胺起始材料至理想胺產物之量。例如，在某些較佳的方法中，含環氧化物化合物為三苯基醇甲基三縮水甘油醚(每分子3個環氧基團)而二級胺官能基矽烷為3-(N-甲基胺基)丙基三乙氧矽烷(每分子一個-NH)，3-(N-甲基胺基)丙基三乙氧矽烷對三苯基醇甲基三縮水甘油醚的莫耳比較佳為約2:1至約3:1，更佳為約2.5:1至約3:1，更佳為約2.8:1至約2.9:1。

除了胺官能基矽烷及環氧基化合物，反應混合物較佳包括適當低碳醇溶劑。適當低碳醇溶劑的實例為甲醇、乙醇、異丙醇及其類似物。在本發明的較佳具體實施例中，溶劑為乙醇。使用的醇溶劑量較佳為大於反應混合物的約30重量%。對於大部分的應用，50重量%的乙醇溶劑為有效於阻止不良系統凝膠化。於是，在特別較佳的具體實施例中，本發明的反應混合物包含至少約50重量%乙醇。

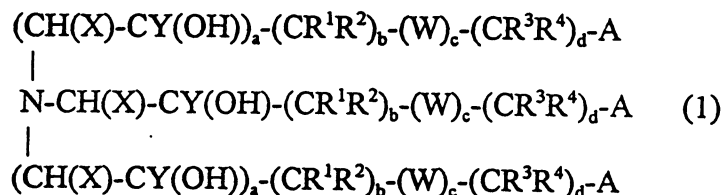
熟悉本技藝者將瞭解反應發生的條件，包括溫度、壓力及反應時間，將視許多因素而定，包括使用的特定起始試劑及理想的反應產率。鑑於包含於本文中的教導，熟悉本技藝者將能選擇適當的反應條件以達到特定理想結果。例如，對於較佳具體實施例，其中反應物為3-(N-甲基胺基)丙基三乙氧矽烷及三苯基醇甲基三縮水甘油醚，較佳將反應於溫度約0°C至約130°C，更佳約0°C至約100°C，再更佳約0°C至約70°C下進行。對於如此的具體實施例，反應壓力較佳為約1大氣壓(atm)至約10 atm，更佳為約1 atm至約2 atm，再更佳為約1 atm至約1.2 atm。同時，對於如此的

五、發明說明 (13)

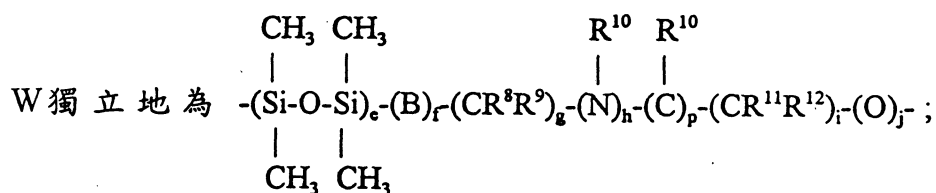
具體實施例，反應時間較佳為約1至約20天，視反應溫度而定。於室溫下，本發明的反應時間通常為約5至約10天。於60-70°C，反應時間通常為約2-4天。

在某些較佳具體實施例中，可將本發明的化合物藉由使一或多種環氧化物反應物與一或多種胺反應物反應根據上述程序而產生。於如此的具體實施例中，形成的化合物易於具有複雜結構。然而，本發明的此化合物皆有特徵於其包含水解安定的碳-氮部分。

一般而言，本發明的胺化合物包含至少一個取代基於胺上（“胺-取代基”）其具有羥基於對胺β位置及至少一個胺取代基，其可為與具有羥基於對胺β位置的取代基相同或不同，具有末端烷氧矽基團。根據某些較佳具體實施例，本發明的化合物為由下式(1)說明的化合物。



其中：



X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R¹⁰獨立地為-(CR¹³R¹⁴)_k-(O)_l-(CR¹⁵R¹⁶)_m-A；

A獨立地為低碳烷基或-Si(R⁵)(R⁷)OR⁶，其限制條件為至

五、發明說明 (14)

少一個A為 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-\text{O}-(\text{CR}^{17}\text{R}^{18})_n-\text{O}-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

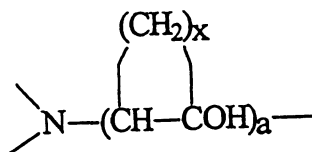
R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

a、c、e、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

如上面指出，可將式1中的X及Y基團連接而形成環烷基基團。於本發明化合物中相連的X及Y基團形成具有下列通式的部分：



其中x為約2至約20。較佳的是，x為約3至約12，更佳為約4至約8。

作為經取代或未經取代的伸環烷基的B可包含任何 C_3 - C_{20} 伸環烷基包括，例如，伸環丙基、伸環丁基、伸環戊基、伸環己基、甲基伸環戊基、伸環己基、甲基伸環己基、二甲基伸環己基、伸環庚基、伸環辛基、或其二或多種組合。可將任何此等基團以，例如，烷氧基、芳氧基、烷基、氟烷基及芳烷基，及其類似物取代。在伸環烷基的較佳類型中，B為 C_6 - C_{10} 伸環烷基。在伸環烷基的更佳類型

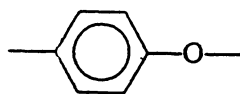
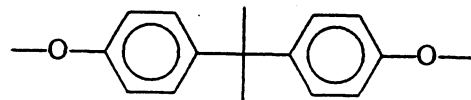
五、發明說明 (15)

中，B為C₆-C₉伸環烷基。

作為經取代或未經取代的伸芳基的B可包含任何C₆-C₂₀伸芳基包括，例如，苯基、鄰-甲苯基、間-甲苯基、對-甲苯基、鄰-二甲苯基、間-二甲苯基、對-二甲苯基、α-萘基、β-萘基、或其二或多種組合。可將任何此等基團以，例如，烷氧基、芳氧基、烷基、氟烷基及芳烷基，及其類似物取代。在伸芳基的較佳類型中，B為C₆-C₁₂伸芳基。在伸芳基的更佳類型中，B為C₆-C₉伸芳基。

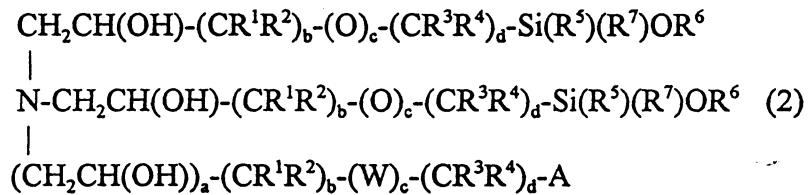
作為經取代或未經取代的伸芳烷基的B可包含任何C₆-C₂₀伸芳烷基包括，例如，苄基、4-甲基苄基、鄰-甲基苄基、對-甲基苄基、二苯基甲基、2-苯基乙基、2-苯基丙基、3-苯基丙基或伸甲基二苯基。可將任何此等基團以，例如，烷氧基、芳氧基、烷基、氟烷基及芳烷基，及其類似物取代。

此外，可將任何伸環烷基、伸芳基、或伸芳烷基基團進一步以N、O或S雜原子群取代。可將於此基團中的雜原子加入環狀結構中或於脂肪族碳鏈中。用於本發明中較佳以雜原子取代的伸環烷基、伸芳基、或伸芳烷基基團之實例包括下式者。

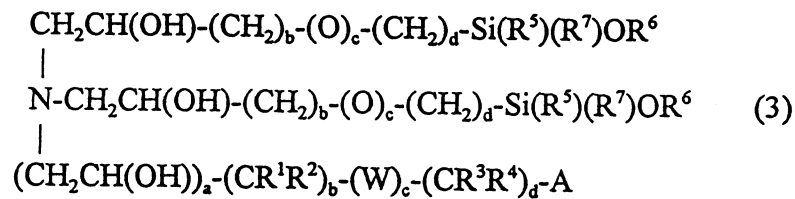


式1的某些較佳化合物為下式2進一步所述者。

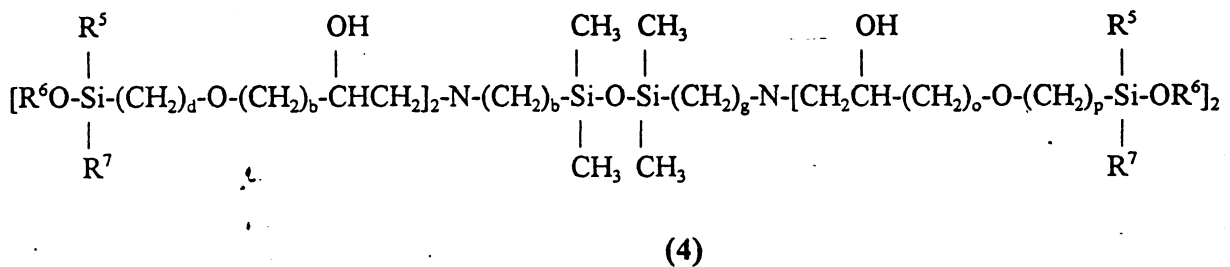
五、發明說明 (16)



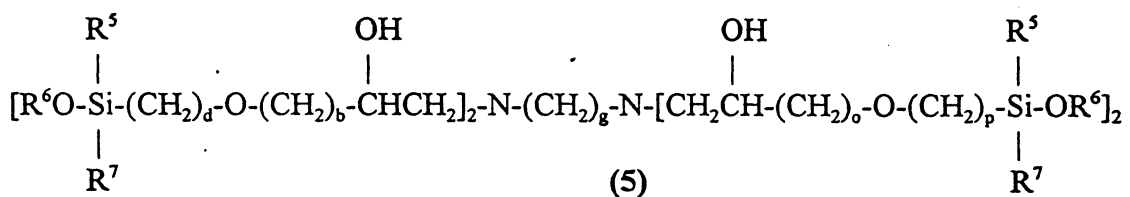
其中 b 及 d 獨立地為約 1 至約 6。再者，式 2 的較佳化合物包括由下式 3 所述者。



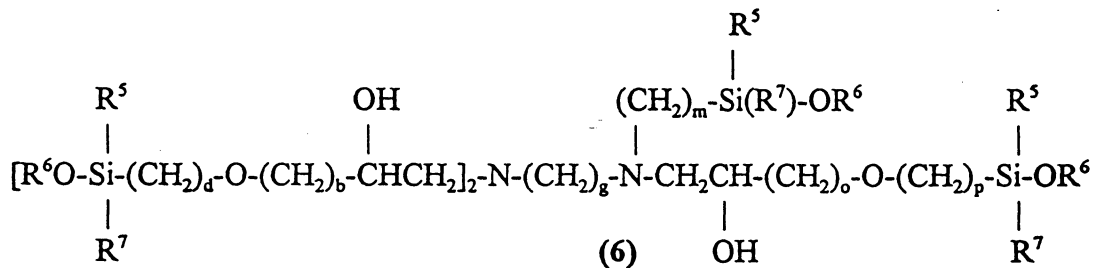
其中 b 及 d 獨立地為約 1 至約 6。再者，式 3 的較佳化合物包括由下式 4-10 所述的化合物。



其中 b、d、g、o 及 p 獨立地為約 1 至約 6；

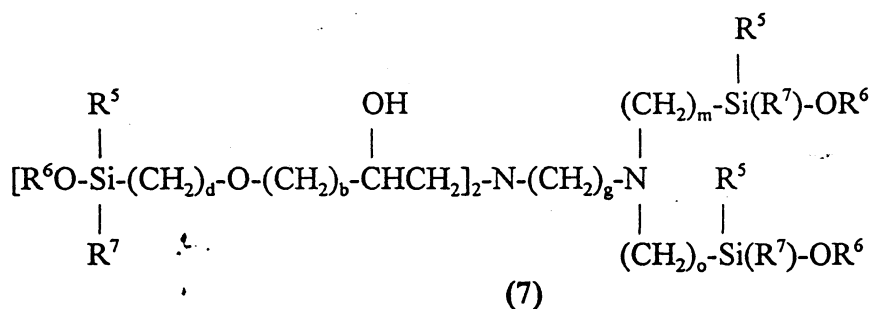


其中 b、d、g、o 及 p 獨立地為約 1 至約 4；

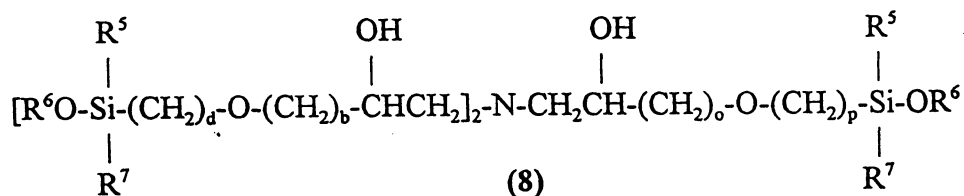


其中 b、d、g、m、o 及 p 獨立地為約 1 至約 4；

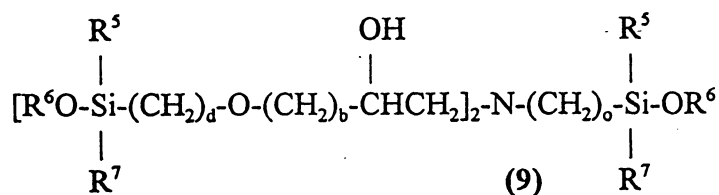
五、發明說明 (17)



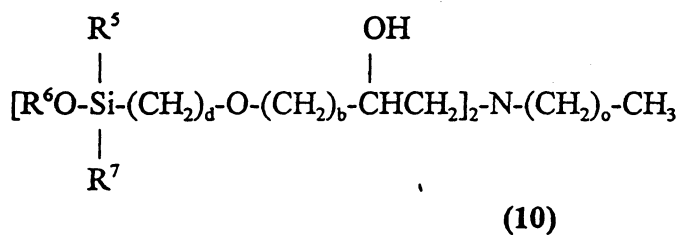
其中 b、d、g、m 及 o 獨立地為約 1 至約 6；



其中 b、d、o 及 p 獨立地為約 1 至約 6；

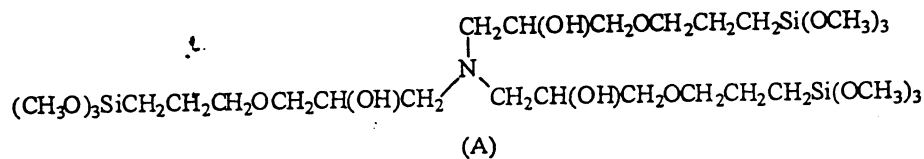


其中 b、d 及 o 獨立地為約 1 至約 6；

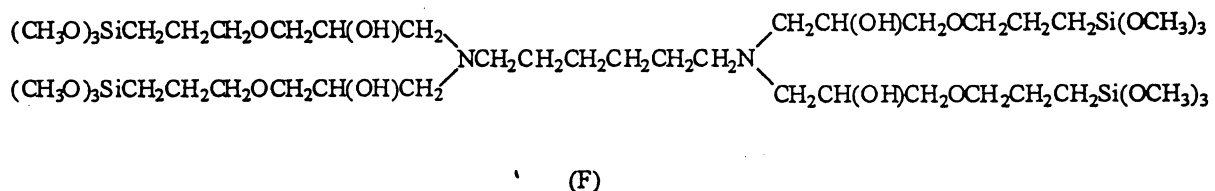
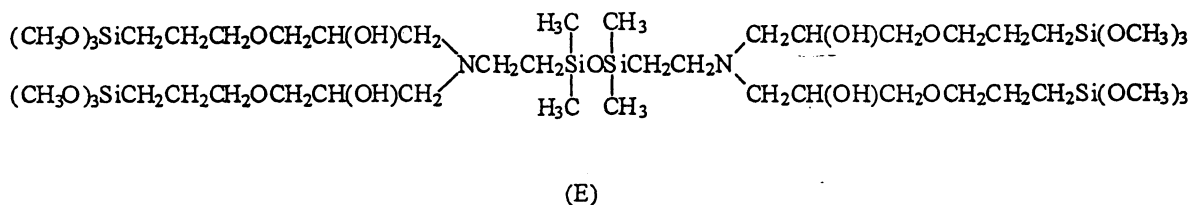
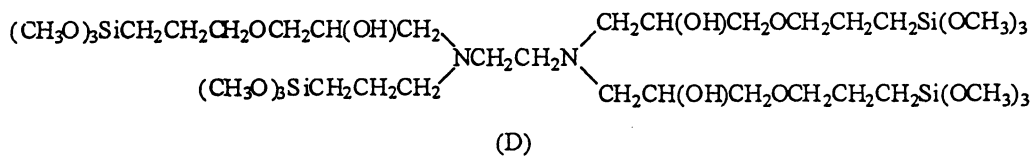
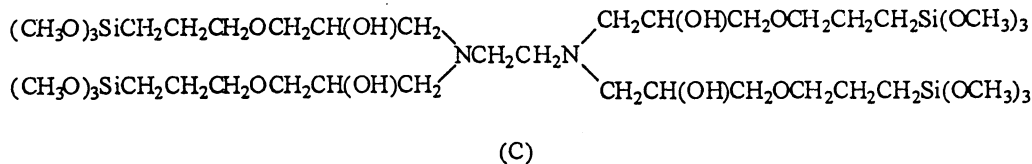
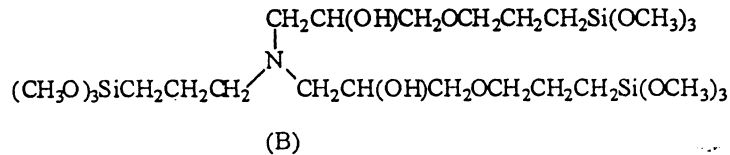


其中 b、d 及 o 獨立地為約 1 至約 6。

將式 2 的較佳化合物之解釋實例 (化合物 A-F) 示於下。



五、發明說明 (18)



可熟化組合物

本發明提供可熟化組合物，包含至少一種本發明的胺化合物。一般而言，本發明的可熟化組合物包含一或多種本胺化合物且可進一步包含一或多種選擇的包含有烷氧化矽基或羥矽基之有機或無機化合物。適用於本發明包含有烷氧化矽基或羥矽基之有機及無機化合物之實例包括：烷基三烷氧矽烷，如苯基三甲氧矽烷、甲基三甲氧矽烷、甲基三乙氧矽烷、3-縮水甘油基丙基三甲氧矽烷、3-三氟丙基

五、發明說明 (19)

三甲氧矽烷及其類似物；四烷氧矽烷，如四甲氧矽烷(“TMOS”，tetramethoxysilane)、四乙氧矽烷、四乙氧矽烷(“TEOS”，tetraethoxysilane)、四異丙氧矽烷、四丙氧矽烷、四異丁氧矽烷、四丁氧矽烷及其類似物。可使用本胺化合物與含烷氧化矽基或羥矽基化合物之任何組合形成根據本發明的可熟化組合物。在較佳具體實施例中，可熟化組合物包含有至少一種本胺化合物、至少一種烷基三烷氧矽烷及至少一種四烷氧矽烷。

可使用任何適當量之本胺化合物、烷基三烷氧矽烷及四烷氧矽烷於實行本發明中。熟悉本技藝者將輕易地能夠根據本發明決定對於不同應用需使用化合物之量。一般而言，本胺化合物包含組合物之約0.5至約40重量%。較佳的是，胺包含組合物之約2至約30重量%，更佳的是6至約20重量%。一般而言，四烷氧矽烷包含組合物之約0至約40重量%，較佳的是，約5至約30重量%，更佳的是10至約30重量%。再者，烷基三烷氧矽烷包含組合物之約0至約40重量%，較佳的是，為組合物之約2至約30重量%，更佳的是5至約20重量%。

本發明的可熟化組合物可進一步包含傳統上使用於溶膠-凝膠可熟化組合物中的其他化合物包括水、低碳醇溶劑、及/或酸或鹼觸媒。適用於本發明的低碳醇溶劑包括C₁-C₅醇，如，例如，甲醇、乙醇、異丙醇、2-甲氧乙醇、2-乙氧乙醇、甲氧基-2-丙醇及其類似物。較佳的低碳醇包括乙醇及甲氧基-2-丙醇。適當的酸觸媒包括一些揮發

五、發明說明 (20)

性強酸，如，例如，氫氯酸、氫溴酸及其類似物。在較佳具體實施例中，酸觸媒包含有氫氯酸。適當的鹼觸媒包括，例如，氫氧化鈉、氫氧化鉀及其類似物。在某些較佳具體實施例中，添加鹼的量較少量，較佳為微量。此外，在本發明的某些具體實施例中，本胺化合物的胺部分於本發明的可熟化組合物作用為鹼觸媒。

熟悉本技藝者將輕易地能夠決定對於本發明不同應用需使用的水及低碳醇量。一般而言，使用於本發明組合物中的醇量為組合物之約5至約50重量%，較佳的是，約10至約50重量%，更佳的是約25至約40重量%。使用的水量一般為組合物之約1至約50重量%，較佳的是，約5至約40重量%，更佳的是約20至約35重量%。再者，水解及縮合後，組合物的總固體濃度為約5重量%至約50重量%，較佳的是，約15重量%至約30重量%，更佳的是約18重量%至約25重量%。

本發明的可熟化組合物可進一步包含傳統上使用於溶膠-凝膠可熟化組合物中的其他添加劑或化合物包括：UV安定劑及界面活性劑(用於，例如，作為流動控制劑)。例如，UV安定劑的使用及聚矽氧烷-聚醚界面活性劑的使用於溶膠-凝膠製備中分別說明於美國專利編號6,072,018及美國專利編號4,277,287中，以參考資料併於本文。

根據某些較佳具體實施例，本發明的可熟化組合物係經由本胺化合物及其他選擇的含烷氧化矽基或羥矽基化合物之溶膠-凝膠水解及共同水解反應而製備。溶膠-凝膠水解

五、發明說明(21)

及共同水解反應之程序為已知，一般涉及於溶劑中在酸性或鹼性條件下，將具有烷氧化矽基或羥矽基的化合物反應，經由矽醇-矽醇或矽醇-烷氧化矽烷縮合反應而形成矽氧烷(-Si-O-Si-)鍵。

雖然熟悉本技藝者將輕易地能夠決定採取已知溶膠-凝膠程序來用於本發明中，申請人已發現根據本發明某些較佳具體實施例形成的可熟化組合物，其中組合物包含有至少一種本胺化合物、至少一種烷基三烷氧矽烷及至少一種四烷氧矽烷，當於第一步驟中將胺及四烷氧矽烷共同水解，接著共同水解烷基三烷氧矽烷化合物與預先水解的本胺及四烷氧矽烷混合物，其具有驚人地增長耐儲時間。於此較佳具體實施例中，將第一步驟於酸性或鹼性條件下進行。藉由加入大於中和所有來自本胺化合物存在於組合物中的胺基團所需量之酸量可將水解的第一步於酸性條件下進行。若不使用酸，或使用不夠中和存在於組合物中胺基的酸量，水解的第一步可能於鹼性條件下發生。

隨後藉由加入烷基三烷氧矽烷化合物至已水解的混合物與充分的酸使反應pH呈約1至約6，較佳約3至約5，將第二步實施。雖然申請人不希望受任何操作理論限制，吾人相信pH範圍3-5內，本胺化合物的胺基團大部分受酸質子化而形成銨離子。銨離子有助於制止於相同或相鄰團中的矽醇或烷氧化矽烷基團彼此靠近並瓦解成緊密顆粒。銨離子進一步制止過度團成長其可能導致過早及不良系統凝膠化。於熟化過程期間加熱時，將銨離子轉變回胺基團因

五、發明說明(22)

而催化進一步的矽醇-矽醇或矽醇-烷氧矽烷縮合反應。

吾人也相信四烷氧矽烷及烷基三烷氧矽烷成分的存在可能減緩本組合物的凝膠化。此成分有助於首先與較大量存在的胺化合物反應以形成具有矽醇/烷氧矽烷基團的化合物團，其具有較低反應性於酸性介質中。結果，兩個化合物團之間的反應機率降低。

塗料應用

本發明的組合物有用於一些應用，如，例如，高科技領域如儀器控制板、光學裝置及設備、塗料、層壓板、膜及釉藥材料。可將衍生自本發明化合物的塗料塗佈至，例如，無孔連續基板，如塑膠、油漆、金屬及其類似物者；聚合物基板，包括(但不限於)包含雙酚-A聚碳酸酯、聚(甲基丙烯酸甲酯)、聚(二乙二醇二烯丙基碳酸酯)其類似物者；金屬基板包含，例如，鋁、銅、黃銅、不鏽鋼及其類似物；以及其他基板，以賦予其改善的耐磨性或對抗在腐蝕性環境中損害的耐受力。在本發明某些較佳具體實施例中，可使用本發明的組合物作為建築物窗戶、汽車、火車及飛機的釉藥材料，以及，作為光學儀器及眼鏡用的聚合稜鏡及鏡片。

如上面所提，本發明的另一觀點提供產生經塗佈基板的方法及由其衍生的經塗佈基板。一般而言，方法包含塗佈本發明的可熟化組合物至基板上並於基板上熟化可熟化組合物。

根據本發明可使用任何廣泛範圍之方法來塗佈可熟化組

五、發明說明(23)

合物至基板上。適當的方法包括，例如，浸染塗佈、旋轉塗佈、牽引桿塗佈、滾動塗佈、溶劑塗佈、噴出塗佈、噴霧塗佈等。塗佈的較佳方法包括浸染塗佈及旋轉塗佈。

在某些較佳具體實施例中，希望塗佈步驟前先清潔基板以避免將雜質加入塗層中及在基板/塗層介面。根據本發明可使用任何廣泛範圍之清潔材料來清潔基板。例如，可將金屬表面利用液體，如丙酮、2-丙醇等清潔，或拋光或磨光。可將聚合基板利用去油污液體如2-丙醇等清潔。

此外，根據某些較佳具體實施例，可將促進黏性物質塗佈至基板上以促進基板及塗料之間較佳的黏性。例如，可使用底漆如3-胺基丙基三乙氧矽烷等。也可將基材經由技藝中已知的電漿處理方法預先處理，以增強塗料至基板的黏性。

在某些較佳具體實施例中，藉由暴露組合物至熱將可熟化組合物熟化。如同將會輕易地瞭解，利用烘箱或藉由暴露至另一種熱源可將組合物熟化。雖然較佳具體實施例包含熱熟化可熟化組合物，熟悉本技藝者應瞭解可能有許多不同方法於申請專利範圍內，視可熟化組合物的天性而定。例如，視需要，利用技藝中已知的微波處理程序可將可熟化組合物的熟化加速。

本發明也提供由熟化本發明之可熟化組合物形成的塗料或膜。

實例

為了可更輕易地瞭解本發明，參照下列實例，其係用來

五、發明說明(24)

作為發明的例證，而非用來限制範圍。

於下列實例中，利用兩類平板摩擦輪試驗法(Taber test)評估塗料的耐磨性。第一個為1000-轉平板摩擦輪試驗法(ASTM D 4060)，包含一對CS10F轉輪，每輪負重500克。使用雙酚-A聚碳酸酯的正方形基板(4英吋×4英吋×1/16英吋)作為測試用基板。使用平板摩擦輪試驗法後基板的模糊(ASTM D 1044及ASTM D 1003)增加作為塗料耐磨性的指標。

第二類平板摩擦輪試驗法包含500轉磨耗，利用一對CS10轉輪(比CS10F更粗糙的類型)，每輪負重500克。於此測試中，使用磨損軌跡相對於未受摩擦的區域之模糊及透明度兩者作為耐磨性的指標。利用島津(Shimadzu) CS-9000 UV-VIS掃描器藉由掃描420奈米光束(大小0.1×10平方毫米)橫跨磨損軌跡將透明度測量。將磨損軌跡及未受摩擦的區域之間吸收度的差異測量，而後轉變成透明度值。

實例1

本實例說明三甲氧矽基化的乙二胺之製備。

將乙二胺(10.0克，99.5%，Aldrich)、3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷(156.0克，98%，Aldrich)、及156.0克絕對乙醇於1000毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合。將燒瓶以墊片加蓋以避免於3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷受濕氣水解，將混合物於室溫攪拌24小時。將冷凝器連接至艾蓮麥爾氏燒瓶並將具有礦物油的氣泡收集器連接到冷凝器的頂端以避免反應混合物直接與空氣接觸。將艾蓮麥爾氏

五、發明說明 (25)

燒瓶的底部浸入置於加熱/攪拌盤頂部上的矽酮油浴中，將油浴的溫度控制至60℃。於此溫度攪拌48小時後，於燒瓶中的聚加成反應大致完成。最終產物為三甲氧矽基化的乙二胺於乙醇(及少量甲醇)中的溶液(無色至微黃色)。將溶液儲存於密封容器中並維持數月有效。蒸發溶劑或以非醇類有機溶劑稀釋常導致此化合物的聚合反應。

實例 2

本實例說明三乙氧矽基的1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷之製備。

將1,3-雙(3-胺基丙基)四甲基二矽氧烷(10.0克，Gelest)、3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷(38.0克，98%，Aldrich)、及48.0克無水乙醇於室溫在500毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合。將混合物利用如說明於實例1中的相同程序處理。最終產物為三乙氧矽基化的1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷於乙醇(及少量甲醇)中的溶液(50重量%)(無色至微黃色)。其化學性質類似於三甲氧矽基化的乙二胺，類似地將溶液儲存於密封容器中已備進一步的塗料配方。

實例 3

本實例說明三甲氧矽基化的己二胺之製備。

將己二胺(11.6克，98%，Aldrich)、3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷(94.6克，98%，Aldrich)、及118克無水乙醇於室溫在500毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合。將混合物利用如說明於實例1中的相同程序處理。形成的

五、發明說明 (26)

產物為三甲氧矽基化的已二胺於乙醇(及少量甲醇)中的無色至微黃色溶液(50重量%)。產物的化學性質及儲存類似於實例1及2。

實例4

本實例說明包含有三甲氧矽基化的乙二胺之本發明塗料組合物之製備。

將5.0克TMOS、4.0克三甲氧矽基化的乙二胺(如實例1中製備)、2.0克乙醇及2.0克水在50毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合。利用磁攪拌器將混合物快速地攪拌時，將約3.5克1 M鹽酸逐滴加入，以使最終pH於約3至約5的範圍內。30-60分鐘後，將2.0克 $C_5H_5Si(OCH_3)_3$ 加入於預先水解的溶液中。將混合物攪拌直到形成均勻的溶液。5-6小時反應後得到塗料組合物。於室溫，此組合物具有耐儲時間高達約2週。

將組合物如上述塗佈於正方形基板上，並將塗料於125°C熱化2小時。於1000-轉平板摩擦輪試驗法中，此等塗料具有耐磨性指標1.2% (於模糊度)。於500-轉平板摩擦輪試驗法中，模糊指標為3.2%。

實例5

本實例說明包含有三甲氧矽基化的1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷之本發明塗料組合物之製備。

將5.0克TMOS、4.0克三甲氧矽基化的1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷(如實例2中製備)、2.0克乙醇及2.0克水在50毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合。隨

五、發明說明 (27)

後將約3.5克1 M鹽酸加入，以使最終pH於約3至約5的範圍內。5-6小時後，將2.0克 $C_5H_5Si(OCH_3)_3$ 加入於預先水解的TMOS溶液中。與TMOS反應5-6小時後得到塗料組合物。於室溫，此組合物具有耐儲時間高達約2週。

將組合物如上述塗佈於正方形基板上，並將塗料於125°C熟化2小時。於1000-轉平板摩擦輪試驗法中，此等塗料具有耐磨性指標2.2% (於模糊度)。於500-轉平板摩擦輪試驗法中，模糊指標為4.1%。

實例6

本實例說明包含有三甲氧矽基化的己二胺之本發明塗料組合物之製備。

將5.0克TMOS、4.0克化合物F (如實例3中製備)、2.0克乙醇及2.0克水在50毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)中混合，而後將約3.5克1 M鹽酸加入，以使最終pH於3-5的範圍內。30-60分鐘後，將2.0克 $C_5H_5Si(OCH_3)_3$ 加入於此預先水解的TMOS溶液中。進一步反應5-6小時後得到塗料組合物。於室溫，此組合物具有耐儲時間高達約2週。

將組合物如上述塗佈於正方形基板上，並將塗料於125°C熟化2小時。於1000-轉平板摩擦輪試驗法中，此等塗料具有耐磨性指標1.2% (於模糊度)。於500-轉平板摩擦輪試驗法中，模糊指標為3.0%。

實例7

本實例說明含有三甲氧矽基化的乙二胺及三種不同濃度TMOS之三種塗料組合物之製備。

五、發明說明 (28)

將三個50毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)分別裝入5.0、3.8及2.8克TMOS。將三甲氧矽基化的乙二胺(4.0克)(如實例1中製備)、2.0克乙醇及2.0克水加入至各燒瓶以形成混合物。將各混合物以磁攪拌器攪拌，將約3.5克1 M鹽酸利用滴管逐滴加入，以使各混合物的最終pH於3-5的範圍內。30-60分鐘後，將2.0克 $\text{PhSi}(\text{OCH}_3)_3$ 加入於預先水解的溶液中。再5-6小時反應後得到三種塗料組合物。根據TMOS濃度分別將此三種組合物標示為f-EPOXY5.0、f-EPOXY3.8及f-EPOXY2.8。於室溫，其具有耐儲時間高達2-4週。

將三種組合物如上述塗佈於正方形基板上並測試。表1列出熱化條件及基於500-轉平板摩擦輪試驗法之耐磨性測試結果。

表 1

組合物	熱化條件	透明度%
f-EPOXY 5.0	125°C/2小時	97.9
f-EPOXY 3.8	125°C/2小時	97.6
f-EPOXY 2.8	125°C/2小時	97.2

實例 8

本實例說明含有三甲氧矽基化的乙二胺及不同濃度苯基三甲氧矽烷之塗料組合物。

將100毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)裝入13.6克四乙氧矽烷、4.0克三甲氧矽基化的乙二胺(如實例1中製備)、8.0克乙醇及6.0克水。將混合物利用磁攪拌器於室溫攪拌24-48小時以進行鹼性水解。而後將預先水解的混合

五、發明說明 (29)

物分成兩等份。第一部份加入2.0克三甲氧矽基化的乙二胺及2.0克苯基三甲氧矽烷。第二部份加入2.0克三甲氧矽基化的乙二胺及4.0克苯基三甲氧矽烷。將各份劇烈攪拌，同時將約3.5克1 M鹽酸利用滴管逐滴加入各份。將混合物於室溫再攪拌5-6小時後得到兩種塗料組合物。此等組合物為無色溶液，於室溫具有耐儲時間高達2-4週。

將兩種組合物如上述塗佈於雙酚-A聚碳酸酯基板上，並於100°C熟化3小時或於125°C熟化2小時。下表列出基於500-轉平板摩擦輪試驗法(CS 10轉輪，每輪負重500克)之耐磨性結果。

組合物	熟化條件	透明度%
第一部份	100°C/3小時	96.7
	125°C/2小時	98.4
第二部份	100°C/3小時	94.0
	125°C/2小時	96.4

實例 9

本實例說明含有三甲氧矽基化的乙二胺及不同濃度甲基三甲氧矽烷之可熟化組合物之製備。

將100毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)裝入13.6克四乙氧矽烷、4.0克三甲氧矽基化的乙二胺(如實例10中製備)、12.0克1-甲氧基-2-丙醇、及6.0克水及4.0克乙醇。將混合物於室溫攪拌(以磁攪拌器)24-48小時以進行鹼性水解，得到黏稠乳狀液體。將乳狀液體分成兩等份。第一部份加入2.0克三甲氧矽基化的乙二胺及2.0克甲基三甲氧矽烷。第二部份加入2.0克三甲氧矽基化的乙二胺及4.0克甲

五、發明說明 (30)

基三甲氧矽烷。將各份劇烈攪拌，同時將約3.5克1 M鹽酸利用滴管逐滴加入各份。反應5-6小時後得到兩種乳狀塗料組合物。於室溫，第一部份具有耐儲時間高達約7-8天，而第二部份具有耐儲時間至少約4週。

將兩種組合物如上述塗佈於雙酚-A聚碳酸酯基板上，並於80°C熟化3小時、100°C熟化3小時或於125°C熟化2小時，以得到高度透明塗層。下表列出基於500-轉平板摩擦輪試驗法(CS 10轉輪，每輪負重500克)之耐磨性結果。

組合物	熟化條件	透明度%
第一部份	80°C/3小時	96.7
	100°C/3小時	97.8
	125°C/2小時	99.2
第二部份	80°C/3小時	84.9
	100°C/3小時	92.5
	125°C/2小時	98.1

實例 10

本實例比較含有三甲氧矽基化的乙二胺及苯基三甲氧矽烷之塗料組合物與含有三甲氧矽基化的乙二胺及甲基三甲氧矽烷之組合物。

將100毫升艾蓮麥爾氏燒瓶(Erlenmeyer flask)裝入27.2克四乙氧矽烷、16.0克三甲氧矽基化的乙二胺(如實例1中製備)、24.0克1-甲氧基-2-丙醇、12.0克水及6.0克乙醇。將混合物於室溫以磁攪拌器攪拌以進行鹼性水解。48小時後，得到稍微乳狀液體。將乳狀液體分成兩等份。第一部份加入4.0克甲基三甲氧矽烷。第二部份加入4.0克苯基三甲氧矽烷。將各份於室溫快速攪拌，並將約7克1 M鹽酸利用

五、發明說明 (31)

滴管逐滴加入各份直到 pH 於 3-5 的範圍內。再反應 5-6 小時後得到兩種塗料組合物。於室溫，此等組合物具有耐儲時間至少約 4-6 週。

將兩種組合物如上述塗佈於雙酚-A 聚碳酸酯基板上，並於 125°C 熟化 2 小時。下表列出基於 500-轉平板摩擦輪試驗法 (CS 10 轉輪，每輪負重 500 克) 之耐磨性結果。

組合物	熟化條件	透明度%
第一部份	100°C/3 小時	97.8
	125°C/2 小時	99.3
第二部份	100°C/3 小時	95.2
	125°C/2 小時	97.5

已如此說明一些本發明的特定具體實施例，許多改變、修飾及改良將輕易地在熟悉本技藝者心中出現。雖未於本文中明確地敘述，由本揭示闡明之如此之改變、修飾及改良希望成為本說明的部分，並希望為本發明的精神及範圍內。因此，前述說明係僅作為實例，而非限制。本發明僅受限於下列專利申請範圍中所定義及其相等物。

四、中文發明摘要(發明之名稱：胺化合物與由其衍生之可熟化組合物)

揭示由包含有使胺反應物與環氧化物反應物反應而於其間形成水解安定的碳-氮鍵之方法所產生的化合物，其中胺或環氧化物反應物之其中至少一種包含有末端烷氧矽基。同時揭示包含本發明化合物之可熟化組合物及由其衍生之可熟化產品。

英文發明摘要(發明之名稱：AMINE COMPOUNDS AND CURABLE COMPOSITIONS DERIVED THEREFROM)

Disclosed are compounds produced by a process comprising the step of reacting an amine reactant with an epoxide reactant to form a hydrolytically stable carbon-nitrogen bond therebetween, wherein at least one of the amine or epoxide reactants comprises a terminal alkoxysilyl group. Also disclosed are curable compositions comprising the compounds of the present invention and the cured products derived therefrom.

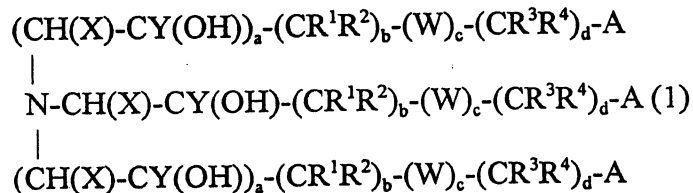
六、申請專利範圍

1. 一種胺化合物，其係由包含使胺反應物與環氧化物反應物反應而形成碳-氮鍵之步驟之方法製得，其中該胺反應物或環氧化物反應物之至少一種包含至少一個末端烷氧矽烷基團，其中該環氧化物反應物係由3-縮水甘油丙基三甲氧矽烷、3-縮水甘油丙基二甲氧矽烷、3-縮水甘油丙基二甲基甲氧矽烷、2-(3,4-環氧基環己基)-乙基三甲氧矽烷、及其二或多種之組合組成的族群選出。
2. 根據申請專利範圍第1項之胺化合物，其中該胺反應物係由氨、3-胺基丙基三乙氧矽烷、胺基丙基三乙氧矽烷、乙二胺、己二胺、1,3-胺基丙烷、1,2-二胺基丙烷、1,4-二胺基丁烷、1,5-二胺基戊烷、1,3-雙(3-胺基丙基)-四甲基二矽氧烷、N-(3-三甲氧矽基丙基)-二乙二胺、二伸乙基三胺、三伸乙基四胺、異佛爾酮二胺、及其二或多種之組合組成的族群選出。
3. 一種胺化合物，其係由包含使胺反應物與環氧化物反應物反應而形成碳-氮鍵之步驟之方法製得，其中該胺反應物或環氧化物反應物之至少一種包含至少一個末端烷氧矽烷基團，其中該胺反應物係由3-(N-甲基胺基)丙基三甲氧矽烷、3-(N-乙基胺基)丙基三甲氧矽烷及其組合組成的族群選出。
4. 根據申請專利範圍第3項之胺化合物，其中該環氧化物反應物係由1,2,7,8-二環氧化辛烷、N,N-二縮水甘油基-4-縮水甘油基氧化苯胺、4,4'-伸甲基雙(N,N-二縮水甘油基)苯胺、三苯基醇甲基三縮水甘油醚、三聚氰酸三

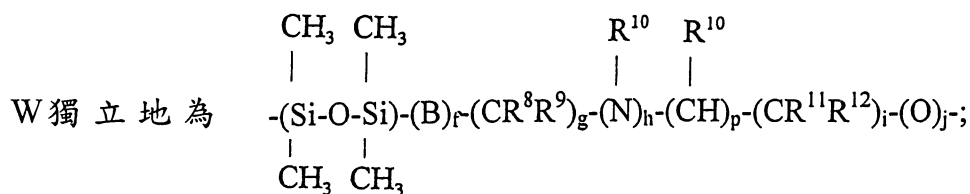
六、申請專利範圍

縮水甘油酯、雙酚A二縮水甘油醚、酚甲醛-環氧化物、及其二或多種之組合組成的族群選出。

5. 一種胺化合物，其係由包含使胺反應物與環氧化物反應物反應而形成碳-氮鍵之步驟之方法製得，其中該胺反應物或環氧化物反應物之至少一種包含至少一個末端烷氧矽烷基團，其中該胺化合物係進一步由式1說明：



其中：



X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R^{10} 獨立地為 $-(\text{CR}^{13}\text{R}^{14})_k-(\text{O})_l-(\text{CR}^{15}\text{R}^{16})_m-\text{A}$ ；

A獨立地為低碳烷基或 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ，其限制條件為至少一個A為 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-\text{O}-(\text{CR}^{17}\text{R}^{18})_n-\text{O}-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、

六、申請專利範圍

經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

R^6 獨立地為甲基或乙基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

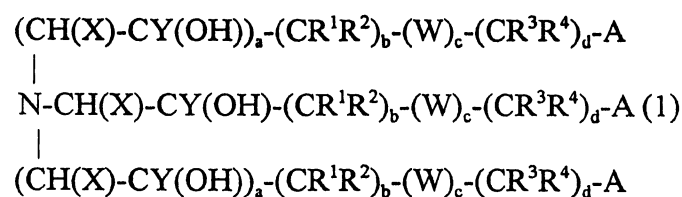
a、c、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

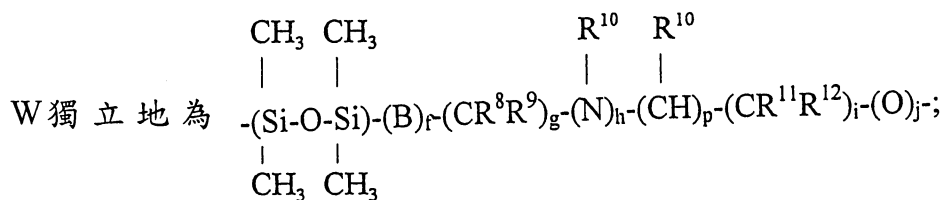
6.一種胺化合物，包含有：

(a)一個胺-取代基，其具有羥基於對胺 β 位置；及

(b)一個胺-取代基，其可為與具有羥基於對胺 β 位置的取代基相同或不同，具有末端烷氧化矽基團，其中該胺化合物係進一步由式(1)說明：



其中：



六、申請專利範圍

X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R^{10} 獨立地為 $-(CR^{13}R^{14})_k-(O)_l-(CR^{15}R^{16})_m-A$ ；

A獨立地為低碳烷基或 $-Si(R^5)(R^7)OR^6$ ，其限制條件為至少一個A為 $-Si(R^5)(R^7)OR^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-O-(CR^{17}R^{18})_n-O-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

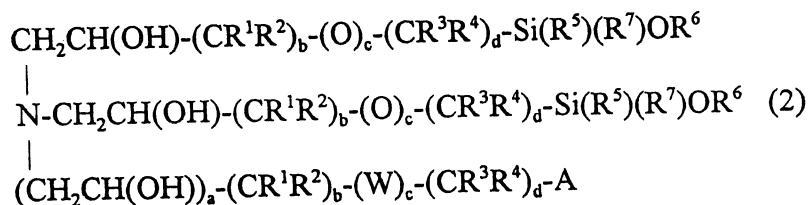
R^6 獨立地為甲基或乙基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

a、c、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

7.根據申請專利範圍第6項之胺化合物，進一步由式2說明：

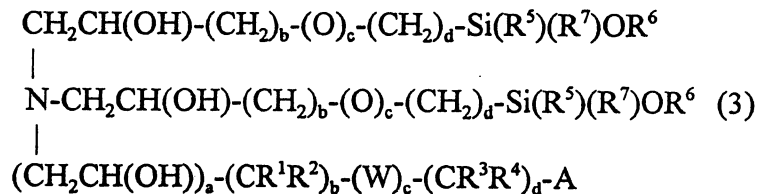


其中b及d為約1至約6。

六、申請專利範圍

8. 根據申請專利範圍第7項之胺化合物，進一步由式3說明：

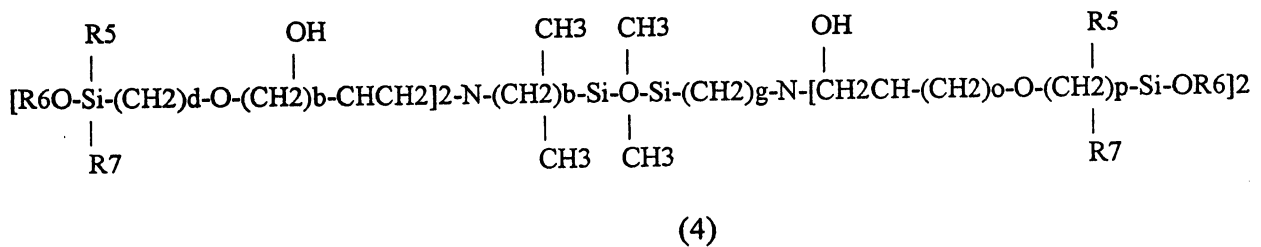
明：



其中b及d獨立地為約1至約6。

9. 根據申請專利範圍第8項之胺化合物，進一步由式4說明：

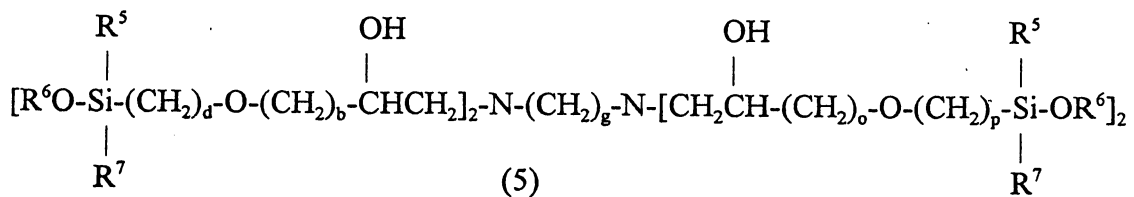
明：



其中b、d、g、o及p獨立地為約1至約6。

10. 根據申請專利範圍第8項之胺化合物，進一步由式5說明：

明：



其中b、d、g、o及p獨立地為約1至約4。

11. 根據申請專利範圍第8項之胺化合物，進一步由式6說明：

明：

裝訂線


$$\begin{array}{c}
 \text{R}^5 \qquad \qquad \text{OH} \qquad \qquad \text{R}^5 \\
 | \qquad \qquad | \qquad \qquad | \\
 [\text{R}^6\text{O}-\text{Si}-(\text{CH}_2)_d-\text{O}-(\text{CH}_2)_b-\text{CHCH}_2]_2-\text{N}-(\text{CH}_2)_g-\text{N} \quad (\text{CH}_2)_m-\text{Si}(\text{R}^7)-\text{OR}^6 \\
 | \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad | \qquad \qquad \qquad \qquad | \\
 \text{R}^7 \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \text{R}^5 \\
 \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad \qquad (\text{CH}_2)_o-\text{Si}(\text{R}^7)-\text{OR}^6
 \end{array}
 \quad (7)$$

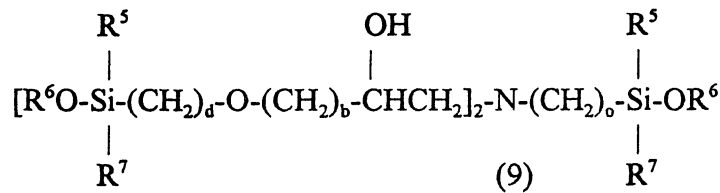
其中 b、d、g、m 及 o 獨立地為約 1 至約 6。

[illegible]

其中 b、d、o 及 p 獨立地為約 1 至約 6。

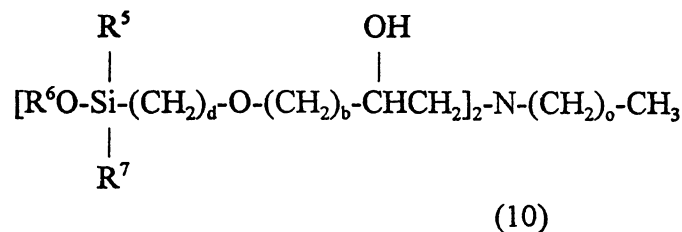
14. 根據申請專利範圍第8項之胺化合物，進一步由式9說明：

六、申請專利範圍



其中 b、d 及 o 獨立地為約 1 至約 6。

15. 根據申請專利範圍第 8 項之胺化合物，進一步由式 10 說明：



其中 b、d 及 o 獨立地為約 1 至約 6。

16. 一種可熟化組合物，其包含根據申請專利範圍第 5 項之化合物及水。

17. 一種可熟化組合物，其包含：

(a) 一種胺化合物，其係由包含使胺反應物與環氧化物反應物反應而形成碳-氮鍵之步驟之方法製得，其中該胺反應物或環氧化物反應物之至少一種包含至少一個末端烷氧矽烷基團；

(b) 水；

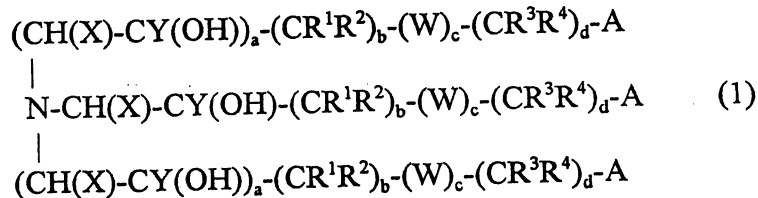
(c) 四烷氧矽烷化合物；及

(d) 烷基三烷氧矽烷化合物。

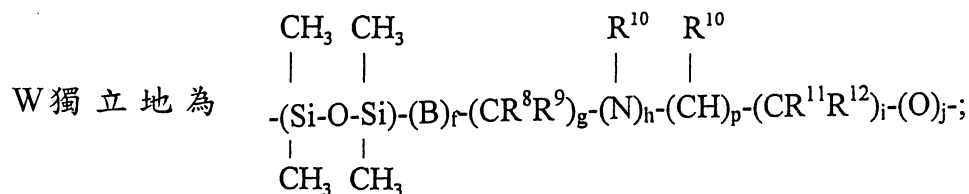
18. 根據申請專利範圍第 17 項之可熟化組合物，其中根據申

六、申請專利範圍

請專利範圍第1項之該化合物進一步由式1說明：



其中：



X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R^{10} 獨立地為 $-(\text{CR}^{13}\text{R}^{14})_k-(\text{O})_l-(\text{CR}^{15}\text{R}^{16})_m-\text{A}$ ；

A獨立地為低碳烷基或 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ，其限制條件為至少一個A為 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-\text{O}-(\text{CR}^{17}\text{R}^{18})_n-\text{O}-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

R^6 獨立地為甲基或乙基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15}

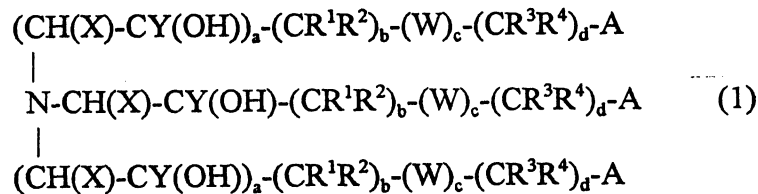
六、申請專利範圍

、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

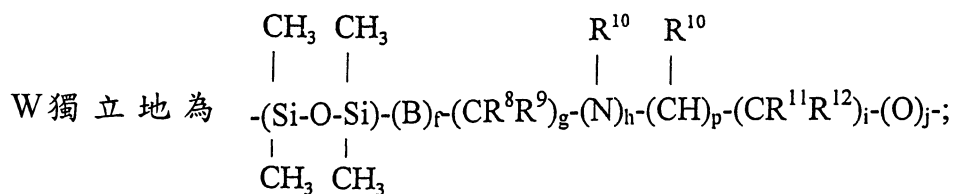
a、c、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

19. 一種製造耐儲安定、熱可熟化溶膠-凝膠組合物之方法，包含步驟有於水性介質中，於足以最少熟化該組合物的條件下混合式1化合物：



其中：



X及Y獨立地為氫或低碳烷基，或獨立地將X及Y連接而形成環烷基部分；

R^{10} 獨立地為 $-(\text{CR}^{13}\text{R}^{14})_k-(\text{O})_l-(\text{CR}^{15}\text{R}^{16})_m-\text{A}$ ；

A獨立地為低碳烷基或 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ，其限制條件為至少一個A為 $-\text{Si}(\text{R}^5)(\text{R}^7)\text{OR}^6$ ；

B獨立地為氧、或 $-\text{O}-(\text{CR}^{17}\text{R}^{18})_n-\text{O}-$ 、經取代或未經取代的伸環烷基基團、經取代或未經取代的伸芳基基團、經取代或未經取代的伸芳烷基基團，其中任何該伸環烷

六、申請專利範圍

基、伸芳基或伸芳烷基基團可進一步以N、O或S雜原子群取代；

R^5 及 R^7 獨立地為羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

R^6 獨立地為甲基或乙基；

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^8 、 R^9 、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{17} 及 R^{18} 獨立地為氫、羥基、低碳烷基或低碳烷氧基；

a、c、f、h、j、l及p獨立地為0或1；

b、d、g、i、k、m及n獨立地為約0至約8。

與烷基三烷氧矽烷及四烷氧矽烷。

20.根據申請專利範圍第19項之方法，其中該混合步驟包含步驟有：

(a)混合該式1化合物及該四烷氧矽烷化合物於該水性介質中，以形成溶膠-凝膠混合物；及

(b)混合該烷基三烷氧矽烷化合物與該溶膠-凝膠混合物以形成耐儲安定、熱可熟化溶膠-凝膠組合物。

21.根據申請專利範圍第19項之方法，其中將該混合步驟(b)維持於pH約3至約5。

22.根據申請專利範圍第17項之可熟化組合物，其係用於一種塗佈基板的方法中。

23.根據申請專利範圍第22項之可熟化組合物，其中該方法係製得一經塗佈的基板。

24.根據申請專利範圍第17項之可熟化組合物，其係用於製造膜。