

# 公告本

211023

申請日期	81.10.28
案號	81108159
類別	

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

## 發明 新型 專利說明書

一、發明 名稱	中文	熱塑性樹脂組成物
	英文	THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION
二、發明 人	姓名	(1)伊達真二 (2)小山輝久
	籍貫 (國籍)	日本國
	住、居所	(1)日本國千葉縣千葉市稻毛區黑砂3-9-7-201 (2)日本國千葉縣千葉市稻毛區黑砂3-9-6-302
三、申請人	姓名 (名稱)	日商・住友化學工業股份有限公司
	籍貫 (國籍)	日本國
	住、居所 (事務所)	日本國大阪府大阪市中央區北浜四丁目5番33號
	代表人 姓名	森 英雄

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝 訂

## 五、發明說明 ( 3 )

發明之背景發明之範疇

本發明係有關熱塑性樹脂組成物，其包括數種熱塑性樹脂，且具有許多良好性質。

先前技藝之說明

熱塑性樹脂以其最好之性質應用於各種領域。最近，發現兩種或以上之熱塑性樹脂之混合物較各別之樹脂具有更好之性質，而且已提出許多混合物。

日本專利公開公報第202139/1985號揭示一種熱塑性樹脂組成物，包括聚戊二醯亞胺及 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和羧酸二縮水甘油酯，其在耐熱性，抗衝擊性及耐候性之間具有良好之平衡性。然而，此組成物在衝擊強度及模製加工性能上仍嫌不足。

日本專利公開公報第41355/1984號揭示一種包括聚酯及聚戊二醯亞胺之樹脂組成物，該組成物在高負載下，具有高的熱分解溫度，及優異之機械強度與熔融流動性。此公報建議以添加乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物來改良抗衝擊性，但所改良抗衝擊性之程度亦仍嫌不足。

日本專利公開公報第178546/1989號揭示一種抗靜電樹脂組成物，包括聚醯胺彈性體，聚戊二醯亞胺，含環氧基之經改質乙烯聚合物，及橡膠接枝共聚物，該組成物具有永久之抗靜電性質，在機械性質與抗熱性之間具有優異之平衡性，且能提供沒有層剝離之模製物件。雖然此組成物具有優異之抗靜電性質，但其抗衝擊性不夠。

## 五、發明說明 ( 4 )

日本專利公開公報第 43247/1990 及 43248/1990 號 ( 相當於歐洲專利 EP-A-354407 及美國專利第 H1004 號 ) 提出一種熱塑性樹脂組成物，包括具有酸或酸酐官能基之甲基丙烯酸醯亞胺聚合物與特定之熱塑性樹脂，其具有良好之抗熱性及機械性質。然而，此組成物之衝擊強度不夠。

日本專利公開公報第 127455/1990 號 ( 相當於歐洲專利 EP-A-368163 號 ) 揭示一種樹脂組成物，包括具有酸或酸酐官能基之甲基丙烯酸醯亞胺聚合物，熱塑性聚酯及聚碳酸酯樹脂，其具有良好之機械性質與模製加工性。此公報描述添加乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物改良了組成物之抗衝擊性。但是，添加乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物會惡化組成物之模製加工性。

日本專利公開公報第 127456/1990 號 ( 相當於歐洲專利 EP-A-368164 號和美國專利第 H1042 號 ) 揭示一種熱塑性樹脂組成物，包括甲基丙烯酸醯亞胺為主之聚合物及熱塑性聚氨基甲酸酯，此組成物具有優異之耐熱性，抗衝擊性及模製加工性。此公報描述添加乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物改良了組成物之抗衝擊性。但是，所改良之抗衝擊性的程度尚無法令人滿意。

日本專利公開公報第 132138/1990 號 ( 相當於歐洲專利 EP-A-368164 及美國專利第 H1042 號 ) 揭示一種熱塑性樹脂組成物，包括含甲基丙烯酸醯亞胺之聚合物與氯化聚烯烴，其具有優異之耐熱性，抗衝擊性，及模製加工性。此公報描述添加乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物能改良組成

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水

## 五、發明說明 ( 5 )

物之抗衝擊性，但是所改良之抗衝擊性的程度亦無法令人滿意。

## 發明概述

本發明之目的係提供一種熱塑性樹脂組成物，其具有高的耐熱性與勁度，以及優異之抗衝擊性與模製加工性，且在其間具有良好之平衡性。

本發明所提供之熱塑性樹脂組成物包括：

(A) 1至99重量份之樹脂混合物，其含有：

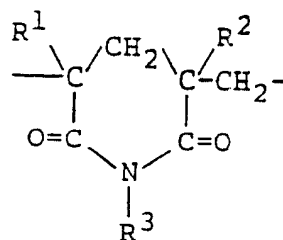
(a) 1至99wt%之戊二醯亞胺共聚物，該共聚物包括(1) 5至99.9mol% 衍生自戊二醯亞胺之重複單元，(2) 0.1至10mol% 衍生自酸及/或酸酐之重複單元，及(3) 0至94.9mol% 衍生自 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元，及

(b) 99至1wt%之含環氧基共聚物，其中，共聚物(a)中至少1份衍生自酸及/或酸酐之重複單元，與共聚物(b)中至少1份之環氧基係化學鍵結者；及

(B) 99至1重量份之至少一種熱塑性樹脂。

## 發明之詳細說明

戊二醯亞胺共聚物(a)中之戊二醯亞胺重複單元係以下式表示：



## 五、發明說明 ( 6 )

(式中  $R^1$  與  $R^2$  可相同或不同，且各為氫原子或甲基； $R^3$  為氫原子， $C_1-C_{20}$  之脂肪族，芳香族或環脂肪族烴基)。

當  $R^3$  為氫原子或甲基時，此熱塑性樹脂組成物具有優異之耐熱性，當  $R^3$  為環己基時，此熱塑性樹脂組成物具有低的吸濕性質。

共聚物 (a) 中戊二醯亞胺重複單元之含量為 5 至 99.9 mol%，較佳為至少 20 mol%。當戊二醯亞胺重複單元之含量太少時，熱塑性樹脂組成物之耐熱性將不足夠。

酸及 / 或酸酐之重複單元較好係衍生自甲基丙烯酸或戊二酸酐。這些重複單元的量為 0.1 至 10 mol%，較佳為 0.5 至 5 mol%，這些重複單元改良了組成物之抗衝擊性，但是，太大量之這些重複單元將會增加組成物之吸濕度，並且降低組成物之模製加工性。

戊二醯亞胺共聚物 (a) 中之  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之實例為 (甲基) 丙烯酸酯，苯乙烯， $\alpha$ -甲基苯乙烯，乙炔基甲苯，氯苯乙烯，及丙烯腈等。(甲基) 丙烯酸酯之實例為 (甲基) 丙烯酸甲酯，(甲基) 丙烯酸乙酯，(甲基) 丙烯酸丙酯，(甲基) 丙烯酸正-丁酯，(甲基) 丙烯酸異丁酯，(甲基) 丙烯酸第三丁酯，(甲基) 丙烯酸十二烷酯，(甲基) 丙烯酸環己酯，(甲基) 丙烯酸正萸酯，(甲基) 丙烯酸 2-乙基己酯，及 (甲基) 丙烯酸苄酯等。這些單體可單獨或以其中兩種或數種之混合物使用之。

戊二醯亞胺共聚物 (a) 中，衍生自  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元之含量不超過 94.4 mol%。

## 五、發明說明 ( 7 )

此戊二醯亞胺共聚物 (a) 之重量平均分子量通常為 40,000 至 500,000, 較佳為 40,000 至 200,000。當重量平均分子量低於 40,000 時, 組成物具有差的機械強度, 當重量平均分子量超過 500,000 時, 組成物之模製加工性會降低。

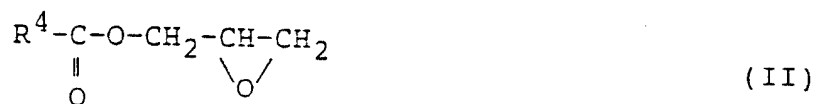
此戊二醯亞胺共聚物 (a) 能以任何習知方法來製備, 該些方法見述於, 例如, 日本專利公報第 38404/1985 號, 及相當之美國專利第 4,246,374 號, 與日本專利公開公報第 897055/1987 號。

例如, 將 (甲基) 丙烯酸或其酯類之均聚物或共聚物, 予以加熱、熔融, 再與亞胺化劑反應。亞胺化劑之實例為氨, 甲胺, 乙胺, 丁胺, 己胺, 辛胺, 壬胺, 癸胺, 苄胺, 環己胺, 苯胺, 鹵化苯胺, 尿素, 及二甲基尿素等。

此中所用之含環氧基共聚物 (b) 係意指包括含環氧基  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體, 及其他  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之共聚物。

含環氧基共聚物 (b) 之單體之組成並無一定限制, 通常, 含環氧基  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之含量為 0.1 至 50 wt%, 較佳為 1 至 30 wt%。

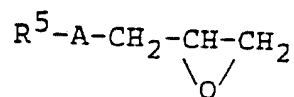
含環氧基之  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體包含式 (II) 之未飽和縮水甘油酯, 及式 (III) 之未飽和縮水甘油醚:



(式中  $\text{R}^4$  為具有  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和鍵及 2 至 18 個碳原子之

## 五、發明說明 ( 8 )

烴基)



(III)

(式中  $\text{R}^5$  為具有  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和鍵及 2 至 18 個碳原子之烴基，A 為具有 1 至 6 個碳原子之烯烴氧化基，或苯撐氧化基)。

未飽和縮水甘油酯 (II) 及未飽和縮水甘油醚 (III) 之特定實例為 (甲基) 丙烯酸縮水甘油酯，衣康酸縮水甘油酯，烯丙基縮水甘油醚，2-甲基烯丙基縮水甘油醚，及苯乙烯-對-縮水甘油醚等。

其他之  $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體包含烯烴，具有 2 至 6 個碳原子之脂肪族羧酸之乙烯酯，(甲基) 丙烯酸酯，順丁烯二酸酯，反丁烯二酸酯，氯乙烯，苯乙烯，腈，乙烯醚，及丙烯酸胺。特定實例為乙烯，丙烯，1-丁烯，醋酸乙烯酯，(甲基) 丙烯酸甲酯，(甲基) 丙烯酸乙酯，順丁烯二酸二甲基酯，反丁烯二酸二乙基酯，氯乙烯，乙烯叉二氯，苯乙烯，丙烯腈，異丁基乙烯醚，及丙烯酸醯胺等。為了降低共聚物 (b) 之玻璃轉移溫度及改良其在低溫下之抗衝擊性，較好將兩種或數種之此單體組合，例如，乙烯-醋酸乙烯酯，乙烯-丙烯酸甲酯等。

含環氧基之共聚物之典型實例為乙烯-甲基丙烯酸縮水甘油酯共聚物。

含環氧基共聚物 (b) 可以任何習知方法來製備。例如，

## 五、發明說明(9)

在隋性溶劑中，以本體聚合反應或自由基聚合反應將含環氧基之 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體，及其他 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體製備成無規共聚物，或將含環氧基之 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體浸漬於其他 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之聚合物中，再以自由基聚合反應予以製備成接枝共聚物。

特別地，依製備高壓聚乙烯之方法，係在自由基產生劑存在中，於500至4000Atm之壓力及100至300℃之溫度下，將乙烯與含環氧基 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體予以共聚合。在壓出機中，將融熔聚丙烯，含環氧基 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體，及自由基產生劑予以混練，以使該單體接枝共聚合至聚丙烯。

藉環氧基與羧酸或酸酐基間之反應來形成“共聚物(a)中至少一份衍生自酸及/或酸酐之重複單元”與“共聚物(b)中至少一份之環氧基”間之化學鍵。此反應係在共聚物(a)與共聚物(b)一起加熱且完全混合時發生，例如，將此二共聚物溶於溶劑中，使之混合，然後加熱，或在熔融狀態中混練。

在150至350℃，較佳為180至300℃下，於0.3至10分鐘，較佳為0.5至5分鐘之停留時間，以單螺桿或雙螺桿壓出機，Banbury混料機，或混練機將熔融共聚物(a)與(b)予以混練。

當樹脂混合物(A)中共聚物(a)的含量增加時，組成物之耐熱性及勁度亦增加，而當樹脂混合物(A)中共聚物(b)的含量增加時，則組成物之抗衝擊性亦增加。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水



## 五、發明說明(10)

熱塑性樹脂(B)之實例為聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚甲基丙烯酸甲酯、苯乙烯-丙烯腈共聚物、苯乙烯-甲基丙烯酸甲酯共聚物、 $\alpha$ -甲基苯乙烯-丙烯腈-甲基丙烯酸甲酯共聚物、ABS樹脂、AAS樹脂、AES樹脂、MBS樹脂、氨基甲酸酯、聚醯胺、聚縮醛、聚碳酸酯、PPE、PBT、PET、PPS、PEEK等。

當熱塑性樹脂組成物中樹脂混合物(A)之含量增加時，組成物之耐熱性、抗衝擊性及勁度均提高，而當熱塑性樹脂(B)之含量增加時，樹脂(B)之性質會更加顯著。

本發明之熱塑性樹脂組成物能以化合數種樹脂之任一習知方法來製備，例如，將聚合物(A)與(B)予以混合，再將溶劑蒸除，或將混合溶液倒入非-溶劑中以使聚合物混合物沈澱，或將熔融狀態之聚合物予以混練，可使用一般所用之混練機如單螺桿或雙螺桿壓出機，或Banbury混料機來進行熔融混練，或者，在熔融加工期間，於注射模塑或壓出模塑中，將聚合物直接混練。

在本發明之熱塑性樹脂組成物中可添加各種已知之添加劑，如抗氧化劑(例如，受阻酚抗氧化劑，磷抗氧化劑，硫抗氧化劑等)，耐候劑(例如，紫外光吸收劑，受阻胺基光穩定劑等)，潤滑劑，抗靜電劑，火焰阻滯劑，著色劑，及顏料等。在某些應用上，可添加強化纖維，如玻璃纖維或無機填料。

本發明之熱塑性樹脂組成物在耐熱性，抗衝擊性及勁

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水

## 五、發明說明(11)

度間具有優異之平衡性，此可由彎曲模數和模製加工性，及該些性質之最佳用途，如作為電裝置零件，汽車零件，如內部或外部面板，及雜貨等之材料而知悉。

本發明之較佳實例

將以下列實施例來更加詳細說明本發明。

在實施例中，使用了下列測量方法。

熱變形溫度(℃)

依 ASTM D648，在  $18.6\text{kg/cm}^2$  之負載下，測量熱變形溫度。

衝擊強度(kgf·cm/cm)

依 ASTM D256，測量凹口艾氏衝擊強度。

彎曲模數(kgf/cm<sup>2</sup>)

依 ASTM D790 測量彎曲模數。

熔融流動指數(g/10min)

依 ASTM D1238，在  $230^\circ\text{C}$  及  $3.8\text{kg/cm}^2$  之負載下，測量熔融流動指數。

實施例中所用之熱塑性樹脂如下：

ABS樹脂：Clarastick MV(住友道氏股份有限公司製造)

聚醯胺：聚醯胺 6(UBE耐綸 1013B, Ube Kosan 股份有限公司製造)

聚碳酸酯：Upilon S-2000(三菱瓦斯化學股份有限公司製造)

P-MMA：Sumipex-B MHO(住友化學股份有限公司製造)

(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)

PBT樹脂：TORAY PBT 1401-X06(Toray股份有限公司製造)

參考例

## 樹脂混合物(A)之製備

將下列兩種共聚物：(1)戊二醯亞胺共聚物(KAMAX T-150, 羅門哈斯公司製造, 戊二醯亞胺重複單元之含量：75mol%，及酸值：5mol%)(80重量份)，及(2)含環氧基共聚物，其係以日本專利公開公報第23490/1972號及相當之英國專利第1,352,088號所述之方法製備之(將其列為參考資料)，此含環氧基共聚物含有83wt%之乙烯，5wt%之醋酸乙烯酯，及12wt%之甲基丙烯酸縮水甘油酯，且其熔融指數(MI)為7(2.16公斤，190℃，10分鐘)(20分重量份)，予以化合，且自單螺桿壓出機將其壓出，並於250℃下予以熔融混練，以製造樹脂混合物(A)之顆粒。

比較參考例

## 比較樹脂混合物之製備

除了以戊二醯亞胺共聚物(KAMAX T-240, 羅門哈斯公司製造, 戊二醯亞胺重複單元之含量：75mol%，及酸值：0mol%)取代KAMAX T-150外，以同於參考例之方法製造樹脂混合物之顆粒。

實施例1-5

將參考例中製得之樹脂混合物(A)，以表中所示之量，與表中之熱塑性樹脂化合，並在樹脂溫度250℃下，自雙螺桿壓出機將其壓出，以製造樹脂組成物之顆粒。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

承

### 五、發明說明(13)

藉注射模塑機在液筒溫度為260℃及模溫為60℃下，將該顆粒製成測試樣品，並測量其物理性質。

結果示於表中。

#### 比較例 1

除了以比較參考例中製得之比較樹脂混合物取代樹脂混合物(A)外，以同於實施例5之方法製備測試樣品，並測量其物理性質。

結果示於表中。

#### 比較例 2

除了使用同於參考例之戊二醯亞胺共聚物(20重量份)，同於參考例之含環氧基共聚物，及同於實施例5之熱塑性樹脂外，以同於實施例5之方法製備測試樣品，並測量其物理性質。

結果示於表中。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

水

## 四、中文發明摘要(發明之名稱：熱塑性樹脂組成物)

本發明係有關一種熱塑性樹脂組成物，其含有(A)1至99重量份之樹脂混合物，該樹脂混合物含有(a)1至99wt%之戊二醯亞胺共聚物，該共聚物包括(1)5至99.9mol%衍生自戊二醯亞胺之重複單元，(2)0.1至10mol%衍生自酸及/或酸酐之重複單元，及(3)0至94.9mol%衍生自 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元，及(b)99至1wt%之含環氧基之共聚物，其中，共聚物(a)中至少1份衍生自酸及/或酸酐之重複單元，與共聚物(b)中至少1份之環氧基係化學鍵結者；與(B)99至1重量份之至少一種熱塑性樹脂，此熱塑性樹脂組成物具有高的耐熱性及勁度，並具有優異之抗衝擊性與模製加工性，且在其間具有良好之平衡性。

## 英文發明摘要(發明之名稱：THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION)

A thermoplastic resin composition containing (A) 1 to 99 parts by weight of a resin mixture which contains (a) 1 to 99 % by weight of a glutarimide copolymer comprising 5 to 99.9 % by mole of repeating units derived from glutarimide, 0.1 to 10 % by mole of repeating units derived from an acid and/or acid anhydride and 0 to 94.9 % by mole of repeating units derived from an  $\alpha, \beta$ -ethylenically unsaturated monomer, and (b) 99 to 1 % by weight of an epoxy group-containing copolymer, in which at least a part of the repeating units derived from the acid and/or acid anhydride in the copolymer (a) and at least a part of epoxy groups in the copolymer (b) are chemically bonded; and (B) 99 to 1 parts by weight of at least one thermoplastic resin, which has high heat resistance and stiffness and is excellent in impact resistance and molding processability with good balance among them.

附註：本案已向

國(地區)申請專利、申請日期：

案號：

日本

1991.10.28 281301/1991

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝  
訂

82-6 / 2110859

H3

附件二

第 81108559 號 專 利 申 請 案

補 充 比 較 例

( 8 2 年 6 月 1 日 )

比 較 例 3

除 了 使 用 同 於 參 考 例 之 戊 二 醯 亞 胺 共 聚 物 ( 2 0 重 量 份 )  
， 同 於 參 考 例 之 含 環 氧 基 共 聚 物 ( 5 重 量 份 ) ， 及 同 於 實 施  
例 2 之 熱 塑 性 樹 脂 外 ， 以 同 於 實 施 例 2 之 方 法 製 備 測 試 樣 品  
， 並 測 量 其 物 理 性 質 。

結 果 示 於 表 中 。

表

實 施 例 編 號	樹 脂 混 合 物 (A) (pbw)	熱 塑 性 樹 脂		熔 融 流 動 指 數 (g/ 10 min)	熱 變 形 溫 度 (°C)	艾 氏 衝 擊 強 度 (kgf .cm/cm)	彎 曲 模 數 (kgf/ cm <sup>2</sup> )
		種 類	量 (pbw)				
1	25	聚 碳 酸 酯	80	0.9	125	50	22100
2	25	聚 醯 胺	80	19.5	63	8	20100
3	25	P-MMA	80	1.3	84	3	29100
4	25	PBT 樹 脂	80	11.3	63	6	23900
5	25	聚 醯 胺 ABS 樹 脂	80	1.6	74	12	17300
比 較 例 1	25	聚 醯 胺 ABS 樹 脂	40 40	3.0	75	6	17700
比 較 例 2	25	聚 醯 胺 ABS 樹 脂	40 40	0.9	71	20	19300
比 較 例 3	25	聚 醯 胺	80	12.7	57	8	22600

六、申請專利範圍

1. 一種熱塑性樹脂組成物，包括

(A) 1至99重量份之樹脂混合物，其含有

(a) 1至99wt%之戊二醯亞胺共聚物，該共聚物包括

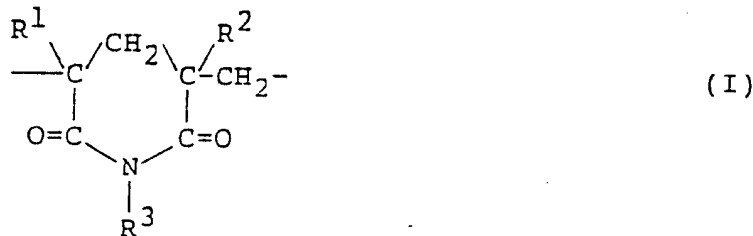
(1) 5至99.9mol% 衍生自戊二醯亞胺之重複單元，(2) 0.1至10mol% 衍生自酸及/或酸酐之重複單元，及(3) 0至94.9mol% 衍生自 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元，及

(b) 99至1wt%之含環氧基共聚物，

其中，共聚物(a)中至少1份衍生自酸及/或酸酐之重複單元，與共聚物(b)中至少1份之環氧基係化學鍵結者；及

(B) 99至1重量份之至少一種熱塑性樹脂。

2. 如申請專利範圍第1項之熱塑性樹脂組成物，其中該戊二醯亞胺共聚物(a)中衍生自戊二醯亞胺之重複單元係以下式來表示：



(式中， $R^1$ 與 $R^2$ 可相同或不同，且各為氫原子或甲基，及 $R^3$ 為氫原子， $C_1$ - $C_{20}$ 之脂肪族，芳香族，或環脂肪族烴基)。

3. 如申請專利範圍第1項之熱塑性樹脂組成物，其中該衍



211023

A7  
B7  
C7  
D7

#### 六、申請專利範圍

生自戊二醯亞胺之重複單元的量，以共聚物(a)計之，係20至99.9mol%。

4.如申請專利範圍第1項之熱塑性樹脂組成物，其中該衍生自酸及/或酸酐之重複單元的量，以共聚物(a)計之，係0.5至5wt%。

5.如申請專利範圍第1項之熱塑性樹脂組成物，其中該含環氧基之共聚物(b)係包括：(1)0.1至50wt%之該衍生自含環氧基 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元，及(2)50至99.9wt%衍生自其他 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體之重複單元。

6.如申請專利範圍第5項之熱塑性樹脂組成物，其中該含環氧基之 $\alpha, \beta$ -乙烯屬未飽和單體係至少一種選自由(甲基)丙烯酸縮水甘油酯，衣康酸縮水甘油酯，烯丙基縮水甘油醚，2-甲基烯丙基縮水甘油醚，及苯乙烯-對-縮水甘油醚所組成之組群者。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝  
訂