



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 200948609 A1

(43)公開日：中華民國 98 (2009) 年 12 月 01 日

(21)申請案號：098104470

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 02 月 12 日

(51)Int. Cl.：

B32B27/28 (2006.01)

C08K5/357 (2006.01)

C08K5/134 (2006.01)

C08K5/372 (2006.01)

C08L69/00 (2006.01)

(30)優先權：2008/02/13

日本

2008-031925

(71)申請人：帝人化成股份有限公司 (日本) TEIJIN CHEMICALS LTD. (JP)

日本

(72)發明人：松本守智 MATSUMOTO, MORITOSHI (JP)；田邊誠一 TANABE, SEIICHI (JP)；

有木次郎 ARIKI, JIRO (JP)

(74)代理人：何金塗；何秋遠

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：8 項 圖式數：0 共 45 頁

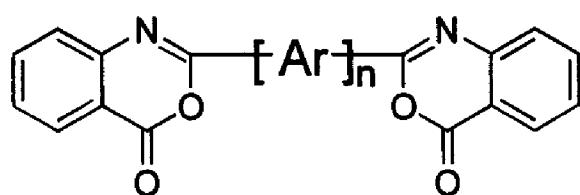
(54)名稱

聚碳酸酯樹脂積層片

POLYCARBONATE RESIN LAMINATING SHEET

(57)摘要

本發明的目的係提供含有聚碳酸酯樹脂、耐候性及色相優異之積層片。本發明之積層片係含有基板層及被覆基板層之至少單面的被覆層，(i)基板層係含有聚碳酸酯樹脂以及特定的硫醚系化合物，(ii)被覆層係含有聚碳酸酯樹脂、以及由分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡啶系及特定的環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑。



式 (5)



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 200948609 A1

(43)公開日：中華民國 98 (2009) 年 12 月 01 日

(21)申請案號：098104470

(22)申請日：中華民國 98 (2009) 年 02 月 12 日

(51)Int. Cl.：

B32B27/28 (2006.01)

C08K5/357 (2006.01)

C08K5/134 (2006.01)

C08K5/372 (2006.01)

C08L69/00 (2006.01)

(30)優先權：2008/02/13

日本

2008-031925

(71)申請人：帝人化成股份有限公司 (日本) TEIJIN CHEMICALS LTD. (JP)

日本

(72)發明人：松本守智 MATSUMOTO, MORITOSHI (JP)；田邊誠一 TANABE, SEIICHI (JP)；

有木次郎 ARIKI, JIRO (JP)

(74)代理人：何金塗；何秋遠

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：8 項 圖式數：0 共 45 頁

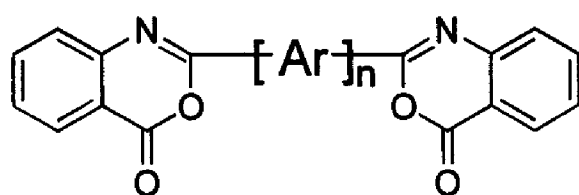
(54)名稱

聚碳酸酯樹脂積層片

POLYCARBONATE RESIN LAMINATING SHEET

(57)摘要

本發明的目的係提供含有聚碳酸酯樹脂、耐候性及色相優異之積層片。本發明之積層片係含有基板層及被覆基板層之至少單面的被覆層，(i)基板層係含有聚碳酸酯樹脂以及特定的硫醚系化合物，(ii)被覆層係含有聚碳酸酯樹脂、以及由分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡啶系及特定的環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑。



式 (5)

六、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於聚碳酸酯樹脂製的積層片。更詳而言之，關於色相及耐候性優異、適合於建材用之積層片及其製造方法。

【先前技術】

聚碳酸酯樹脂係已廣泛地使用於為具有優異的透明性、耐熱性、機械強度用的電氣、機械、汽車、醫療用途等。然而，聚碳酸酯樹脂係耐候性不充分，例如在屋外的使用或在螢光燈照射下的室內使用的話，會因製品的變色或是強度的降低而使得其使用顯著地受到限制。再者，聚碳酸酯樹脂係有因照射紫外線而容易在表面受到損傷，且使得在有光澤的聚碳酸酯表面產生非常微細且多數的微裂紋的問題。

為此，以往以來已使用各種的光安定劑。為了保護聚碳酸酯樹脂的表面，多數係提案藉由共擠壓含有紫外線吸收劑之覆蓋層而成形的成形物(專利文獻 1 等)。然而，關於耐候性方面，雖然認為有某程度的效果，但是關於因高溫加工之著色性的問題則仍為不充分，仍有進一步改善之必要。

在將聚碳酸酯樹脂成形片狀或薄膜狀之情形中，通常進行將在 300℃ 左右的高溫下熔融聚碳酸酯樹脂之熔融物從 T 模頭唇部進行擠壓，以冷却軋輥取出的方法。為了在 300℃ 左右的高溫進行薄片化，係要求聚碳酸酯樹脂本身與添加物為高耐熱性。在專利文獻 2 係提案能使耐候性及

因高溫加工等之著色性係為改善，且藉由共擠壓聚碳酸酯樹脂具有成形之基板層及覆蓋層的成形物。該成形物係僅藉由在 $5\sim 100\ \mu\text{m}$ 厚度的表層部含有三吡系紫外線吸收劑來解決問題，而沒有針對在高溫加工時基板層的黃色化加以檢討。特別是在組合厚度大的基板層與其單面的表層部為薄的覆蓋層之情形中，經由共擠壓加工在基板層產生變色之際積層片係為變色。又，在使用於基板層含有 0.1 重量 % 以上的紫外線吸收劑來賦予擠壓時的熱安定性之方法的情形中，是與表層不同的，實際添加的紫外線吸收劑必須要多量，而會形成化學成本上的問題。

專利文獻 3 係提案有組合特定的磷系化合物及特定的酚系化合物之方法，做為藉由熱安定劑抑制基板層變色的方法，但是由於一般基板的厚度很大，要添加多量的熱安定劑，而會在薄片成形時形成軋輥污染與化學成本上等的問題。

又，專利文獻 4 中例示了單層薄片，組合磷系熱安定劑與環狀亞胺酸酯系化合物之例。但是，還不能說從粉末的擠壓薄片化、從丸粒的擠壓薄片化的黃色化抑制就充分了。在使用被熔融擠壓之丸粒進行擠壓成形之情形中，由於熱經歷次數係比從粉末的加工變的更多，更充分的黃色化抑制係為所要求的。

可是，在聚碳酸酯樹脂製的板與薄膜中，係有起因於高的靜摩擦電阻與表面的平滑性，鄰接的板彼此黏附且堅固地附著，而形成不容易分離狀態的現象、也就是引起很多的結塊現象。為了防止這樣的結塊現象，雖然專利文獻

5 揭示了具有特定的厚度，且在由聚碳酸酯樹脂所構成之表層含有無機粉粒的聚碳酸酯樹脂製板，但是並沒有針對因高溫加工所引起的著色性問題來加以檢討。

為此，特別是期望開發由聚碳酸酯丸粒熔融擠壓成形薄片之際的黃變變少，即使在屋外領域亦具有可使用的優異耐候性，適用於建材用的聚碳酸酯樹脂之積層片。

(專利文獻 1) 特開平 01-165419 號公報

(專利文獻 2) 特開 2000-264977 號公報

(專利文獻 3) 特開平 06-312493 號公報

(專利文獻 4) 特開 2006-028442 號公報

(專利文獻 5) 特開 2006-002120 號公報

【發明內容】

本發明的目的係提供含有聚碳酸酯樹脂、耐候性及色相優異之積層片。又本發明的目的係提供該積層片之製造方法。

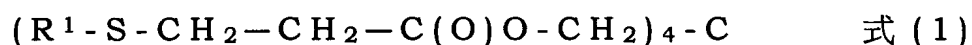
本發明者係發現將在聚碳酸酯樹脂含有特定的硫醚系化合物之基板層用的樹脂組成物(A)、與在聚碳酸酯樹脂含有特定的紫外線吸收劑之被覆層用的樹脂組成物(B)，在熔融狀態進行共擠壓時，能夠得到可抑制因熱經歷之基板層的黃色化且色相優異，而且耐候性優異的積層片，而完成本發明。

換言之，根據本發明，能提供以下的發明。

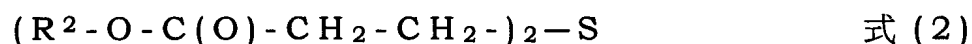
1. 一種積層片，其係具有厚度 0.05~10mm 的基板層及被覆基板層的至少單面之厚度為 0.01~1mm 的被覆層，

(i)基板層係含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及

0.005~0.1 重量份的由下述式(1)及(2)構成之群組所選出之至少 1 種硫醚系化合物，

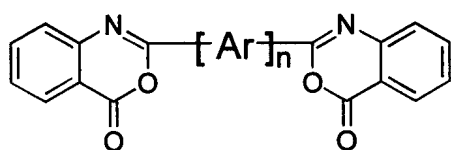


[式中， R^1 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 4~20 的烴基]



[式中， R^2 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 6~22 的烴基]；

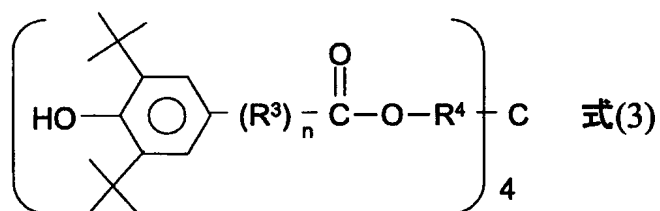
(ii)被覆層係含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，以及合計為 2~10 重量份的、由分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡系及下述式(5)所示之環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑



式(5)

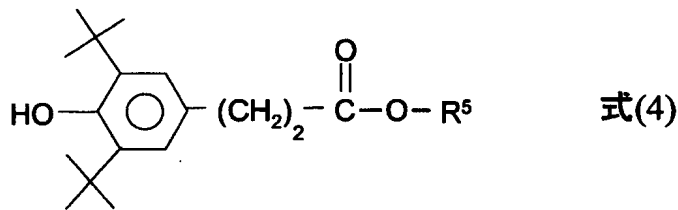
[式中，Ar 係碳數 6~12 之二價芳香族烴基殘基，又 Ar 亦可含有雜原子，n 表示 0 或 1]。

2. 如前項 1 記載之積層片，其中基板層係更含有由下述式(3)及(4)構成群組所選出之至少 1 種的受阻酚化合物，



式(3)

[式中， R^3 、 R^4 係各自獨立地、為直鏈狀的碳數 1~6 的烴基，n 為 2~6 中的任一整數]



[式中， R^5 係直鏈狀或分枝狀之碳數 16~22 的烴基]

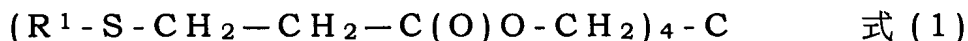
且相對於 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，硫醚系化合物與受阻酚化合物之合計含量為 0.005~0.1 重量份。

3. 如前項 1 記載之積層片，其中相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，基板層係含有 0.005~2.0 重量份的脫膜劑。

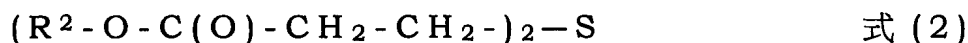
4. 如前項 1 記載之積層片，其中基板層含有 0.05~1.5ppm 的上藍劑。

5. 如前項 1 記載之積層片，其中相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，被覆層係含有 0.1~3 重量份的防結塊劑。

6. 一種積層片之製造方法，其係將 (i) 含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及 0.005~0.1 重量份的由下述式 (1) 及 (2) 構成群組所選出之至少 1 種的硫醚系化合物之樹脂組成物 (A) 熔融擠壓而成之薄片，與



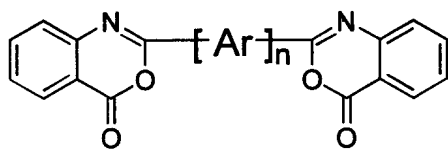
[式中， R^1 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 4~20 的烴基]



[式中， R^2 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 6~22 的烴基]

將 (ii) 含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及由 2~10 重量份的分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡系及下述式 (5) 所示之環狀亞胺酸酯系構成群組所選

出之至少 1 種的紫外線吸收劑之樹脂組成物 (B) 熔融擠壓而成之薄膜，

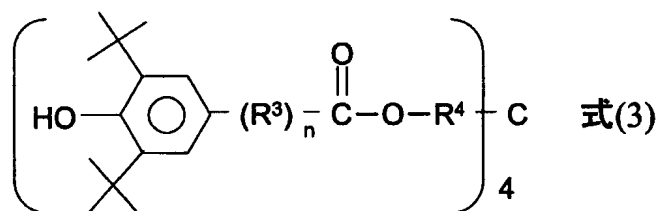


式 (5)

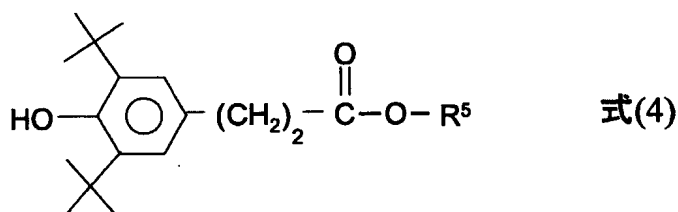
[式中，Ar 係碳數 6~12 之二價芳香族烴基殘基，又 Ar 亦可含有雜原子，n 表示 0 或 1]

在熔融狀態下進行積層而形成的。

7. 如前項 6 記載之製造方法，其中樹脂組成物 (A) 係更含有由下述式 (3) 及 (4) 構成群組所選出之至少 1 種的受阻酚化合物，



[式中，R³、R⁴ 係各自獨立地、為直鏈狀的碳數 1~6 的烴基，n 為 2~6 中的任一整數]



[式中，R⁵ 係直鏈狀或分枝狀之碳數 16~22 的烴基]

且相對於 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，硫醚系化合物與受阻酚化合物之合計含量為 0.005~0.1 重量份。

8. 如前項 6 記載之製造方法，其中樹脂組成物 (A) 及 (B) 為丸粒。

【實施方式】

實施發明之最佳形態

以下，詳細說明本發明。

[聚碳酸酯樹脂]

本發明的積層片中所使用之聚碳酸酯樹脂(以下，僅稱為「聚碳酸酯」)係使二元酚與碳酸酯先質反應所得到者，反應的方法可列舉界面聚縮合法、熔融酯交換法、碳酸酯預聚物的固相酯交換法及環狀碳酸酯化合物的開環聚合法等。

二元酚的具體例係可列舉：氫醌、間苯二酚、4,4'-二酚、1,1-雙(4-羥苯基)乙烷、2,2-雙(4-羥苯基)丙烷(通稱“雙酚 A”)、2,2-雙(4-羥基-3-甲苯基)丙烷、2,2-雙(4-羥苯基)丁烷、1,1-雙(4-羥苯基)-1-苯基乙烷、1,1-雙(4-羥苯基)環己烷、1,1-雙(4-羥苯基)-3,3,5-三甲基環己烷、2,2-雙(4-羥苯基)戊烷、4,4'-(p-伸苯基二異亞丙基)二酚、4,4'-(m-伸苯基二異亞丙基)二酚、1,1-雙(4-羥苯基)-4-異丙基環己烷、雙(4-羥苯基)氧化物、雙(4-羥苯基)硫醚、雙(4-羥苯基)亞砒、雙(4-羥苯基)砒、雙(4-羥苯基)酮、雙(4-羥苯基)酯、2,2-雙(3,5-二溴基-4-羥苯基)丙烷、雙(3,5-二溴基-4-羥苯基)砒、雙(4-羥基-3-甲苯基)硫醚、9,9-雙(4-羥苯基)芴、9,9-雙(4-羥基-3-甲苯基)芴等。此等之中，尤其以雙(4-羥苯基)鏈烷、特別是雙酚 A(以下簡稱為“BPA”)為廣泛使用。

在本發明係除了廣泛使用的聚碳酸酯、即雙酚 A 系的聚碳酸酯以外，使用其他的二元酚類所製造之特殊聚碳酸

酯來做為 A 成分使用係為可能。

例如，使用 4,4'-(*m*-伸苯基二異亞丙基)二酚(以下簡稱為“BPM”)、1,1-雙(4-羥苯基)環己烷、1,1-雙(4-羥苯基)-3,3,5-三甲基環己烷(以下簡稱為“Bis-TMC”)、9,9-雙(4-羥苯基)蒾及 9,9-雙(4-羥基-3-甲苯基)蒾(以下簡稱為“BCF”)之聚碳酸酯(同元聚合物或共聚物)做為二元酚成分的一部份或全部，係適用於因吸水之尺寸變化與形態安定性的要求特別嚴格的用途。此等 BPA 以外的二元酚係以構成該聚碳酸酯之二元酚成分全體的 5 莫耳%以上、特別是 10 莫耳%以上來使用為佳。

尤其，在要求高剛性堅固且良好的耐水解性之情形中，聚碳酸酯樹脂為以下的(1)~(3)之共聚合聚碳酸酯為特別適宜。

(1)構成該聚碳酸酯之二元酚成分 100 莫耳%中，BPM 為 20~80 莫耳%(更適宜為 40~75 莫耳%、尤適宜為 45~65 莫耳%)，而且 BCF 為 20~80 莫耳%(更適宜為 25~60 莫耳%、尤適宜為 35~55 莫耳%)之共聚合聚碳酸酯。

(2)構成該聚碳酸酯之二元酚成分 100 莫耳%中，BPA 為 10~95 莫耳%(更適宜為 50~90 莫耳%、尤適宜為 60~85 莫耳%)，而且 BCF 為 5~90 莫耳%(更適宜為 10~50 莫耳%、尤適宜為 15~40 莫耳%)之共聚合聚碳酸酯。

(3)構成該聚碳酸酯之二元酚成分 100 莫耳%中，BPM 為 20~80 莫耳%(更適宜為 40~75 莫耳%、尤適宜為 45~65 莫耳%)，而且 Bis-TMC 為 20~80 莫耳%(更適宜為 25~60 莫耳%、尤適宜為 35~55 莫耳%)之共聚合聚碳酸酯。

此等特殊的聚碳酸酯係可單獨使用、亦可適宜混合 2 種以上使用。又，此等亦可與廣泛使用之雙酚 A 型的聚碳酸酯混合而使用。

關於此等特殊的聚碳酸酯之製法及特性，例如係詳細記載於特開平 6-172508 號公報、特開平 8-27370 號公報、特開 2001-55435 號公報及特開 2002-117580 號公報等。

此外，在上述之各種的聚碳酸酯之中，以調整共聚合組成等、使吸水率及 T_g (玻璃轉移溫度)在下述之範圍內者，因聚合物本身的耐水解性為良好，而且在成形後的低翹曲性也非常優異，所以在要求形態安定性之領域係特別適宜。

(i)吸水率為 0.05~0.15%、較佳為 0.06~0.13%，而且 T_g 為 120~180℃之聚碳酸酯、或是

(ii) T_g 為 160~250℃、較佳為 170~230℃，而且吸水率為 0.10~0.30%、較佳為 0.13~0.30%、更佳為 0.14~0.27%之聚碳酸酯。

此處，聚碳酸酯的吸水率係使用直徑 45mm、厚度 3.0mm 的圓板狀試驗片，依照 ISO62-1980，測定浸漬於 23℃的水中 24 小時後的水分率之測定值。又， T_g (玻璃轉移溫度)係藉由依照 JIS K7121 之微差掃描熱量計(DSC)測定所求得之值。

另一方面，碳酸酯先質係使用鹵化羧、碳酸酯或鹵代甲酸酯等，具體上可舉例如碳醯氯、二苯基碳酸酯或二元酚的二鹵代甲酸酯等。

當由像這樣的二元酚與碳酸酯先質藉由界面聚合法來製造聚碳酸酯時，可依照需要使用觸媒、末端停止劑、防止二元酚氧化用的氧化防止劑等。又，聚碳酸酯亦可為共聚合 3 官能以上的多官能性芳香族化合物而成之分枝聚碳酸酯。此處所使用之 3 官能以上的多官能性芳香族化合物係可列舉 1,1,1-參(4-羥苯基)乙烷、1,1,1-參(3,5-二甲基-4-羥苯基)乙烷等。

含有產生分枝聚碳酸酯之多官能性化合物的情形中，其量在聚碳酸酯全量中，係較佳為 0.001~1 莫耳%、更佳為 0.005~0.9 莫耳%、特佳為 0.01~0.8 莫耳%。又，特別是在熔融酯交換法之情形中，有發生副反應之分枝構造的情形，關於該分枝構造量在聚碳酸酯全量中，係以 0.001~1 莫耳%、較佳為 0.005~0.9 莫耳%、特佳為 0.01~0.8 莫耳%者為佳。此外，就該分枝構造的比例而言，可依照 $^1\text{H-NMR}$ 測定來算出。

又，聚碳酸酯樹脂亦可為使芳香族或脂肪族(包含脂環式)的 2 官能性羧酸共聚合之聚酯碳酸酯、使 2 官能性醇(包含脂環族)共聚合之共聚合聚碳酸酯、以及一起使該 2 官能性羧酸及 2 官能性醇共聚合之聚酯碳酸酯。又，摻混所得聚碳酸酯之 2 種以上的混合物也可以。

此處所使用之脂肪族的 2 官能性羧酸係以 α, ω -二羧酸為佳。脂肪族的 2 官能性羧酸係可列舉例如：癸二酸(癸二酸)、十二烷二酸、十四烷二酸、十八烷二酸、二十二烷二酸等的直鏈飽和脂肪族二羧酸及環己烷二羧酸等的脂環族二羧酸為佳。2 官能性醇係脂環族二醇為更適宜，可列

舉例如環己烷二甲醇、環己烷二醇、三環癸烷二甲醇等。

再者，在本發明，聚碳酸酯樹脂係亦可使用共聚合聚有機矽氧烷單位的聚碳酸酯-聚有機矽氧烷共聚物。

聚碳酸酯亦可為混合與上述二元酚不同的聚碳酸酯、含有分枝成分之聚碳酸酯、聚酯碳酸酯、聚碳酸酯-聚有機矽氧烷共聚物等的各種聚碳酸酯的 2 種以上者。再者，製造法不同的聚碳酸酯、末端停止劑不同的聚碳酸酯等亦可使用混合 2 種以上者。

在聚碳酸酯的聚合反應中，依照界面聚縮合法之反應通常係二元酚與碳醯氯的反應，且在酸結合劑及有機溶媒的存在下反應。酸結合劑係使用例如氫氧化鈉、氫氧化鉀等的鹼金屬氫氧化物或吡啶等的胺化合物。有機溶媒係使用例如二氯甲烷、氯苯等的鹵化烴。又，為了促進反應，亦可使用例如三乙胺、溴化四-*n*-丁基銨、溴化四-*n*-丁基磷等的 3 級胺、4 級銨化合物、4 級磷化合物等的觸媒。此時，反應溫度通常為 0~40℃、反應時間為 10 分~5 小時左右，反應中的 pH 保持在 9 以上為佳。

又，關於該聚合反應，通常係使用末端停止劑。可使用單官能酚類做為該末端停止劑。單官能酚類係使用例如酚、*p*-第三丁基酚、*p*-異丙苯基酚等的單官能酚類為佳。再者，單官能酚類係可列舉以癸基酚、十二烷基酚、十四烷基酚、十六烷基酚、十八烷基酚、二十烷基酚、二十二烷基酚及三十烷基酚等的碳數 10 以上的長鏈烷基所核置換的單官能酚，該酚係有提昇流動性及提昇耐水解性的效果。該末端停止劑係可單獨使用、亦可併用 2 種以上。

由熔融酯交換法之反應通常係二元酚與碳酸酯之酯交換反應，可藉由在不活性氣體的存在下，一邊加熱、一邊混合二元酚與碳酸酯，使生成的醇或酚予以餾出之方法來進行。反應溫度係依照生成之醇或酚的沸點等而不同，惟大部分的情形在 $120\sim 350^{\circ}\text{C}$ 的範圍。在反應後期將反應系減壓至 $1.33\times 10^3\sim 13.3\text{Pa}$ 左右，會使生成之醇或酚的餾出變得容易。反應時間通常為 $1\sim 4$ 小時左右。

上述碳酸酯係可列舉亦可具有取代基之碳原子數 $6\sim 10$ 的芳基、芳烷基或是碳原子數 $1\sim 4$ 的烷基等的酯，其中尤以二苯基碳酸酯為佳。

又，為了加速聚合速度亦可使用聚合觸媒。該聚合觸媒係可使用例如氫氧化鈉、氫氧化鉀、二元酚的鈉鹽、鉀鹽等的鹼金屬化合物；氫氧化鈣、氫氧化鋇、氫氧化鎂等的鹼土類金屬化合物；氫氧化四甲基銨、氫氧化四乙基銨、三甲基胺、三乙胺等的含氮鹼性化合物等。再者，可使用鹼(土類)金屬的醇鹽類、鹼(土類)金屬的有機酸鹽類、硼化合物類、鋳化合物類、銻化合物類、鈦化合物類、鋯化合物類等的能使用於酯化反應、酯交換反應之觸媒。此等觸媒係可單獨使用、亦可組合 2 種以上使用。觸媒的使用量係相對於原料的二元酚 1 莫耳，較佳在 $1\times 10^{-9}\sim 1\times 10^{-5}$ 當量、更佳在 $1\times 10^{-8}\sim 5\times 10^{-6}$ 當量的範圍來選擇。

在由熔融酯交換法之反應中，以減少生成聚碳酸酯的酚性末端基為目的，可在重縮反應的後期或是終了後，加入例如 2-氯基苯基苯基碳酸酯、2-甲氧基羰基苯基苯基碳酸酯、2-乙氧基羰基苯基苯基碳酸酯等的化合物。

再者，在熔融酯交換法中使用中和觸媒活性之鈍化劑為佳。該鈍化劑的量係相對於殘存之觸媒 1 莫耳，以 0.5~50 莫耳的比例使用為佳。又，相對於聚合後的聚碳酸酯，以 0.01~500ppm 的比例、更佳為以 0.01~300ppm、特佳為以 0.01~100ppm 的比例使用者為適宜。較佳的鈍化劑之例係可列舉十二烷基苯磺酸四丁基磷鹽等的磷鹽、四乙基銨十二烷基苄基硫酸酯等的銨鹽。

聚碳酸酯的黏度平均分子量係沒有限定。然而，由於黏度平均分子量低於 1.0×10^4 時，強度等下降，超過 5.0×10^4 時，成形加工特性降低，所以在 $1.0 \times 10^4 \sim 5.0 \times 10^4$ 的範圍為佳、 $1.2 \times 10^4 \sim 3.0 \times 10^4$ 的範圍為較佳、 $1.5 \times 10^4 \sim 2.8 \times 10^4$ 的範圍為更佳。此時，在使成形性等能維持之範圍內，亦可混合黏度平均分子量為上述範圍外之聚碳酸酯。例如，亦可調配黏度平均分子量超過 50,000 之高分子量的聚碳酸酯成分。

在本發明中所謂的黏度平均分子量，首先於下式算出之比黏度 (η_{sp}) 係由在 20℃ 將聚碳酸酯樹脂 0.7g 溶解於二氯甲烷 100ml 之溶液且使用奧式黏度計而求得，

$$\text{比黏度}(\eta_{sp}) = (t - t_0) / t_0$$

[t_0 為二氯甲烷的落下秒數、 t 為試料溶液的落下秒數]

從所求得之比黏度 (η_{sp}) 依照以下的數式，來算出黏度平均分子量 M 。

$$\eta_{sp}/c = [\eta] + 0.45 \times [\eta]^2 c \text{ (式中, } [\eta] \text{ 為極限黏度)}$$

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M^{0.83}$$

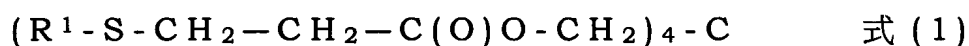
$$c = 0.7$$

此外，測定在本發明的樹脂組成物中的黏度平均分子量之情形，係根據以下的要領來進行。換言之，將該樹脂組成物溶解於其 20~30 倍重量的二氯甲烷中，且藉由 C 鹽過濾採取可溶分之後，除去溶液並充分地乾燥，以得到二氯甲烷可溶分的固體。從該固體 0.7g 溶解於二氯甲烷 100ml 之溶液，使用奧式黏度計來算出在 20℃ 的比黏度 (η_{sp})，並由上式算出其黏度平均分子量 M。

[硫醚系化合物]

使用於基板層之硫醚系化合物係選自於下述式 (1) 及式 (2) 構成群組之至少 1 種的化合物。該硫醚系化合物係為聚碳酸酯樹脂的安定劑，在抑制熔融成形時的變色上發揮了效果。

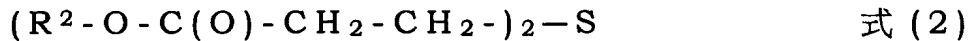
(式 (1) 的化合物)



式 (1) 中， R^1 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 4~20 的烴基。

式 (1) 中， R^1 係較佳為碳數 4~20 的烷基、更佳為碳數 10~18 的烷基。做為烷基係可舉例如丁基、戊基、己基、辛基、癸基、十二烷基、十四烷基、月桂基、肉豆蔻基、硬脂基等。做為式 (1) 的化合物係可舉例如異戊四醇肆 (3-月桂基硫代丙酸酯)、異戊四醇肆 (3-肉豆蔻基硫代丙酸酯)、異戊四醇肆 (3-硬脂基硫代丙酸酯) 等。其中，尤以異戊四醇肆 (3-月桂基硫代丙酸酯)、異戊四醇肆 (3-肉豆蔻基硫代丙酸酯) 為佳、特佳為異戊四醇肆 (3-月桂基硫代丙酸酯)。

(式(2)的化合物)



式(2)中 R^2 係可相同或是不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 6~22 的烴基。

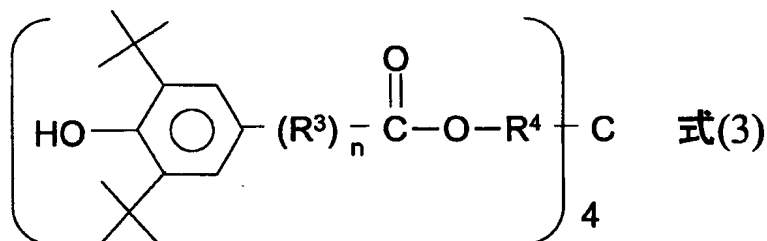
又，式(2)中， R^2 係較佳為碳數 6~22 的烷基、更佳為碳數 10~18 的烷基。烷基係可舉例如己基、庚基、辛基、癸基、十二烷基、十四烷基、十六烷基、十八烷基等。

式(2)的化合物係可舉例如二月桂基-3,3'-硫代二丙酸酯、二肉豆蔻基-3,3'-硫代二丙酸酯、二硬脂基-3,3'-硫代二丙酸酯等。其中，尤以二月桂基-3,3'-硫代二丙酸酯、二肉豆蔻基-3,3'-硫代二丙酸酯為佳，特佳為二肉豆蔻基-3,3'-硫代二丙酸酯。硫醚系化合物係可輕易利用來自住友化學工業(股)做為 SMILIZER TP-D(商品名)及 SMILIZER TPM(商品名)等市售者。

[受阻酚化合物]

基板層中可含有受阻酚化合物。使用於基板層之受阻酚化合物係較佳為選自於式(3)及(4)所構成群組之至少 1 種的化合物。受阻酚系化合物為聚碳酸酯樹脂之安定劑，可在抑制熔融成形時的變色上發揮效果。

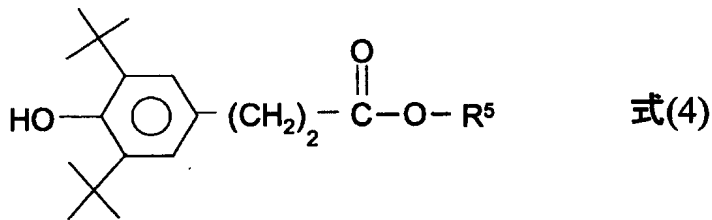
(式(3)的化合物)



式(3)中， R^3 、 R^4 係各自獨立地、為直鏈狀的碳數 1~6 的烴基。 n 為 2~6 中的任一整數。式(3)中， R^3 、 R^4 係各

自獨立地、較佳為碳數 1~6 的伸烷基、更佳為碳數 1~2 的伸烷基。 R^3 、 R^4 係可舉例如亞甲基、伸乙基、三亞甲基、四亞甲基等。式 (3) 的化合物係可舉例如異戊四醇肆 [3-(3,5)-二-第三丁基-4-羥苯基]丙酸酯]。

(式 (4) 的化合物)



式 (4) 中， R^5 係直鏈狀或分枝狀之碳數 16~22 的烴基。式 (4) 中， R^5 係較佳為碳數 16~22 的烷基、更佳為碳數 17~19 的烷基。 R^5 係可舉例如十六烷基、十七烷基、十八烷基、十九烷基、二十二烷基、二十一烷基、十二烷氧基等。式 (4) 的化合物係可舉例如十八烷基-3-(3,5-二-第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯。該受阻酚系化合物係可輕易利用來自汽巴特殊化學品(股)做為 IRGANOX 1010、IRGANOX 1076 等市售者。

(安定劑的含量)

基板層中的硫醚系化合物的含量係相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，以 0.005~0.1 重量份、較佳為 0.01~0.08 重量份、更佳為 0.02~0.05 重量份。少於 0.005 重量份時，成形時的變色抑制效果係不充分而為不佳。

基板層含有硫醚系化合物及受阻酚系化合物兩者之情形中，基板層中的此等合計含量係同樣地，相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，以 0.005~0.1 重量份、較佳為 0.01~0.08 重量份、更佳為 0.02~0.05 重量份。

硫醚系化合物及受阻酚系化合物係可各自單獨使用，且可使積層片生產時的作業性不會變得繁雜而為適宜。

[紫外線吸收劑]

使用於被覆層之紫外線吸收劑係由分子量 380 以上的苯并三唑系化合物 (UV-i)、分子量 400 以上的三吡系化合物 (UV-ii) 及式 (5) 所示之環狀亞胺酸酯系化合物 (UV-iii) 所構成之群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑。分子量低於 380 的苯并三唑系紫外線吸收劑、分子量低於 400 的三吡系紫外線吸收劑係在被覆層用薄膜加工時，會引起樹脂組成物的黏度降低，而得不到厚度均一的被覆層用薄膜。紫外線吸收劑係較佳為由分子量 380~700 的苯并三唑系紫外線吸收劑 (UV-i)、分子量 400~700 的三吡系紫外線吸收劑 (UV-ii) 及式 (5) 所示之環狀亞胺酸酯系紫外線吸收劑 (UV-iii) 所構成之群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑。又，即使為分子量 380 以上的紫外線吸收劑，在例如二苯基酮系、受阻胺系紫外線吸收劑中係耐候性的改善效果變差。

(UV-i)

分子量 380 以上的苯并三唑系紫外線吸收劑 (UV-i) 係可例示如分子量 659 的 2,2-亞甲基雙[4-(1,1,3,3-四甲基丁基)-6-(2H-苯并三唑-2-基)酚]、分子量 447 的 2-[2-羥基-3,5-雙(α,α-二甲基苄基)苯基]-2H-苯并三唑。可使用此等之一種或二種以上。

(UV-ii)

分子量 400 以上的三吡系紫外線吸收劑係可例示如

2-(4,6-二苯基-1,3,5-三吡啶-2-基)-5-[(己基)氧基]-酚(例如, 汽巴特殊化學品公司製 TINUVIN1577)、2-(4,6-雙(2,4-二甲苯基)-1,3,5-三吡啶-2-基)-5-[(辛基)氧基]-酚(例如, SHIPRO 化成(股)製 CYASORB1164)。可使用此等之一種或二種以上。

(UV-iii)

環狀亞胺酸酯系紫外線吸收劑係可例示如 2,2'-雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)(在上述式(5)中 $n=0$ 之情形)、2,2'-p-伸苯基雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-m-伸苯基雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(4,4'-伸聯苯基)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(2,6-萘)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(1,5-萘)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(2-甲基-p-伸苯基)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(2-硝基-p-伸苯基)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、及 2,2'-(2-氯基-p-伸苯基)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)等。可使用此等之一種或二種以上。其中, 尤以 2,2'-p-伸苯基雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、2,2'-(4,4'-伸聯苯基)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)、及 2,2'-(2,6-萘)雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)為適宜使用。

藉由此用此等特定的紫外線吸收劑, 可得到沒有初期著色性之透明性優異的積層體。又, 相對於構成被覆層之聚碳酸酯樹脂 100 重量份, 此等紫外線吸收劑的含量為 2~10 重量份。低於 2 重量份的話耐候性變差, 又超過 10 重量份時被覆層部的加工變得困難。從耐候性及加工性之面, 相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份, 紫外線吸收劑的含量係較佳為 2.5~9 重量份、更佳為 3~8 重量份。

[防結塊劑]

爲了防止鄰接的板彼此黏附且堅固地附著，而形成不容易分離狀態的現象(結塊現象)，被覆層較佳係含有防結塊劑。

防結塊劑係可使用無機粉粒體。具體上，以碳酸鈣、玻璃球、矽膠球、飛灰球、氧化鋁球、陶瓷球等爲適宜使用。此等無機粉粒體的含量係相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，較佳爲 0.1~3 重量份、更佳爲 0.15~1 重量份、尤佳爲 0.2~0.5 重量份。在該範圍可到良好的防結塊效果。

[脫膜劑]

爲了提昇成形性，可在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等雙方中含有脫膜劑。脫膜劑係由其 90 重量%以上爲醇與脂肪酸之酯所構成者爲佳。具體上，醇與脂肪酸之酯係可舉例如一元醇與脂肪酸之酯及/或多元醇與脂肪酸之部分酯或是全酯。前述所謂一元醇與脂肪酸之酯係較佳爲碳原子數 1~20 的一元醇與碳原子數 10~30 的飽和脂肪酸之酯。又，所謂多元醇與脂肪酸之部分酯或是全酯係較佳爲碳原子數 1~25 的多元醇與碳原子數 10~30 的飽和脂肪酸之部分酯或全酯。

一元醇與飽和脂肪酸之酯係可舉例如硬脂基硬脂酸酯、棕櫚基棕櫚酸酯、丁基硬脂酸酯、甲基月桂酸酯、異丙基棕櫚酸酯等，以硬脂基硬脂酸酯爲佳。

多元醇與飽和脂肪酸的部分酯或全酯係可舉例如硬脂酸單甘油酯、硬脂酸二甘油酯、硬脂酸三甘油酯、硬脂酸單山梨酸酯、山萘酸單甘油酯、異戊四醇單硬脂酸酯、異

戊四醇四硬脂酸酯、異戊四醇四壬酸、丙二醇單硬脂酸酯、聯苯基鄰聯苯甲酸氫酯、山梨糖醇酐單硬脂酸酯、2-乙基己基硬脂酸酯、二異戊四醇六硬脂酸酯等的二季戊四醇的全酯或部分酯等。

此等酯的其中，尤以使用硬脂酸單甘油酯、硬脂酸三甘油酯、異戊四醇四硬脂酸酯、硬脂酸三甘油酯與硬脂基硬脂酸酯的混合物為佳。特佳係使用異戊四醇四硬脂酸酯、硬脂酸單甘油酯。

脫膜劑中的前述酯的量係脫膜劑為 100 重量%時，以 90 重量%以上為佳、95 重量%以上為較佳。

脂肪酸酯的酸價係 3 以下為佳、2 以下為較佳。硬脂酸單甘油酯的情形係酸價 1.5 以下，純度 95 重量%以上為佳、酸價 1.2 以下，純度 98 重量%以上為特佳。脂肪酸酯之酸價的測定係可使用眾所周知的方法。

酯以外的脫膜劑係可舉例如烯烴系蠟、含有羧基及/或羧酸酐基之烯烴系蠟、矽油、有機聚矽氧烷、石蠟、蜜蠟等。

基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中的脫膜劑之含量係相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，較佳為 0.005~2.0 重量份、更佳為 0.01~0.6 重量份、尤佳為 0.02~0.5 重量份。

[磷系熱安定劑]

基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中，每 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，係亦可含有 0.001~0.2 重量份的磷系熱安定劑。

磷系熱安定劑係可舉例亞磷酸、磷酸、亞膦酸、膦酸及此等酯等。具體上，可例示三苯基亞磷酸酯、參(壬基苯基)亞磷酸酯、參(2,4-二-第三丁基苯基)亞磷酸酯、參(2,6-二-第三丁基苯基)亞磷酸酯、三癸基亞磷酸酯、三辛基亞磷酸酯、三-十八烷基亞磷酸酯、二癸基單苯基亞磷酸酯、二辛基單苯基亞磷酸酯、二異丙基單苯基亞磷酸酯、單丁基二苯基亞磷酸酯、單癸基二苯基亞磷酸酯、單辛基二苯基亞磷酸酯、雙(2,6-二-第三丁基-4-甲苯基)異戊四醇二亞磷酸酯、2,2-亞甲基雙(4,6-二-第三丁基苯基)辛基亞磷酸酯、雙(壬基苯基)異戊四醇二亞磷酸酯、雙(2,4-二-第三丁基苯基)異戊四醇二亞磷酸酯、二硬脂基異戊四醇二亞磷酸酯、三丁基磷酸酯、三乙基磷酸酯、三甲基磷酸酯、三苯基磷酸酯、二苯基單鄰聯苯基磷酸酯、二丁基磷酸酯、二辛基磷酸酯、二異丙基磷酸酯、苯膦酸二甲基酯、苯膦酸二乙基酯、苯膦酸二丙基酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-4,4'-伸聯苯基二亞膦酸酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-4,3'-伸聯苯基二亞膦酸酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-3,3'-伸聯苯基二亞膦酸酯、雙(2,4-二-第三丁基苯基)-4-苯基-苯基亞膦酸酯及雙(2,4-二-第三丁基苯基)-3-苯基-苯基亞膦酸酯等。

其中，尤以參(2,4-二-第三丁基苯基)亞磷酸酯、參(2,6-二-第三丁基苯基)亞磷酸酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-4,4'-伸聯苯基二亞膦酸酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-4,3'-伸聯苯基二亞膦酸酯、肆(2,4-二-第三丁基苯基)-3,3'-伸聯苯基二亞膦酸酯、雙(2,4-二-第三丁基苯

基)-4-苯基-苯基亞膦酸酯及雙(2,4-二-第三丁基苯基)-3-苯基-苯基亞膦酸酯為佳。特佳為肆(2,4-二-第三丁基苯基)-4,4'-伸聯苯基二亞膦酸酯。

[其他的受阻酚化合物]

在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中，相對於100重量份的聚碳酸酯樹脂，亦可含有0.001~0.1重量份的前述式(3)及(4)所示之受阻酚化合物以外的受阻酚化合物。

受阻酚化合物係可列舉例如硫二乙烯雙[3-(3,5-第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯]、N,N'-己烷-1,6-二基雙[3-(3,5-二第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯]、乙烯雙(氧化乙烷基)雙[3-(5-第三丁基-4-羥基-m-甲苯基)丙酸酯]等。

[抗靜電劑]

在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中，亦可含有抗靜電劑。

抗靜電劑係可列舉例如聚醚酯醯胺、十二烷基苯磺酸鉍鹽、十二烷基苯磺酸磷鹽、馬來酸酐單甘油酯、馬來酸酐二甘油酯、碳、石墨、金屬粉末等。再者，可舉例如甘油單硬脂酸酯等的「多元醇與飽和脂肪酸的部分酯」。該多元醇與脂肪酸係可為低分子量者、亦可為高分子量者，又，亦可部分導入芳香環。又，亦可不僅醇部分、而且脂肪酸部分含有分枝構造。該抗靜電劑的調配量係相對於聚碳酸酯樹脂100重量份為0.1~10重量份為佳。

[上藍劑]

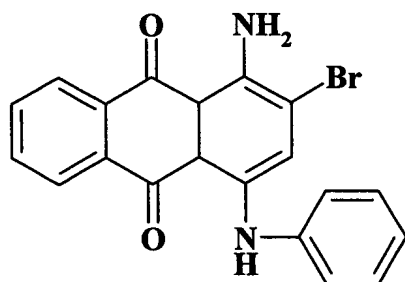
在不損及本發明的目的之範圍內，亦可於基板層(薄

片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中含有上藍劑。

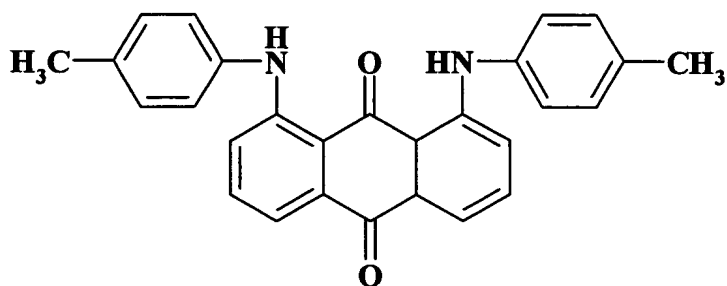
上藍劑對於消除樹脂組成物的黃色味係為有效。特別是在賦予耐候性之樹脂組成物的情形，因為調配一定量的紫外線吸收劑，藉由「紫外線吸收劑的作用與顏色」而有樹脂製品容易帶有黃色味的現實，特別是為了賦予薄片製品與透鏡製品自然的透明感上，調配上藍劑係為非常有效。

上藍劑的含量係相對於構成基板層(薄片)、被覆層(薄膜)之樹脂組成物，較佳為 0.05~1.5ppm，更佳為 0.1~1.2ppm。

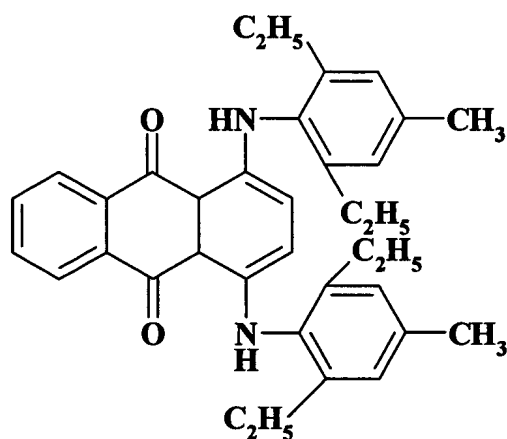
做為上藍劑之代表例係可舉例如有本化學工業(股)製 PLAST Blue 8520(式(a)的化合物)、PLAST Violet 8855(式(b)的化合物)、PLAST Red 8350、PLAST Red 8340、PLAST Red 8320、OIL Green 5602、拜耳公司製 MACROLEX Blue RR(式(c)的化合物)、MACROLEX Violet B(式(d)的化合物)、三菱化學(股)製 DIARESIN Blue N、住友化學工業(股)製 SUMIPLAST Violet RR、克拉瑞公司的 Polyshislenblue RLS 等。較佳為使用式(a)~(d)的化合物。



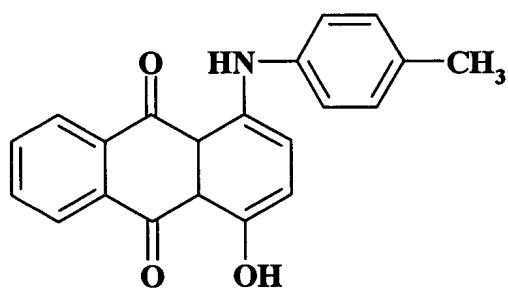
(a)



(b)



(c)



(d)

[難燃劑]

可在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中，調配不損及本發明目的之量的難燃劑。難燃劑係可列舉鹵化雙酚 A 的聚碳酸酯型難燃劑、有機鹽系難燃劑、鹵化芳香族磷酸酯型難燃劑或是芳香族磷酸酯系難燃劑等，彼等係可一種以上進行調配。

鹵化雙酚 A 的聚碳酸酯型難燃劑係可舉例如四溴雙酚 A 的聚碳酸酯型難燃劑、四溴雙酚 A 與雙酚 A 之共聚合聚碳酸酯型難燃劑等。

有機鹽系難燃劑係可舉例如二苯基砒-3,3'-二磺酸二鉀、二苯基砒-3-磺酸鉀、2,4,5-三氯苯磺酸鈉、2,4,5-三氯苯磺酸鉀、雙(2,6-二溴基-4-異丙苯基苯基)磷酸鉀、雙(4-異丙苯基苯基)磷酸鈉、雙(p-甲苯砒)鹽亞胺鉀、雙(二苯基磷酸)鹽亞胺鉀、雙(2,4,6-三溴基苯基)磷酸鉀、雙(2,4-二溴基苯基)磷酸鉀、雙(4-溴基苯基)磷酸鉀、二苯基磷酸鉀、二苯基磷酸鈉、全氟基丁烷磺酸鉀、月桂基硫酸鈉或是鉀、十六烷基硫酸鈉或是鉀等。

鹵化芳香族磷酸酯型難燃劑係可舉例如參(2,4,6-三溴基苯基)磷酸酯、參(2,4-二溴基苯基)磷酸酯、參(4-溴基苯基)磷酸酯等。

芳香族磷酸酯系難燃劑係可舉例如三苯基磷酸酯、參(2,6-二甲苯基)磷酸酯、肆(2,6-二甲苯基)間苯二酚二磷酸酯、肆(2,6-二甲苯基)氫醌二磷酸酯、肆(2,6-二甲苯基)-4,4'-二酚二磷酸酯、四苯基間苯二酚二磷酸酯、四苯基氫醌二磷酸酯、四苯基-4,4'-二酚二磷酸酯、芳香環來源為間苯二酚與不含有酚之酚性 OH 基的芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為間苯二酚與含有酚之酚性 OH 基的芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為氫醌與不含有酚之酚性 OH 基的芳香族聚磷酸酯、含有同樣的酚性 OH 基之芳香族聚磷酸酯、(以下所示之「芳香族聚磷酸酯」係意味著含有酚性 OH 基之芳香族聚磷酸酯與不含有酚性 OH 基之芳香族聚磷

酸酯的兩者)芳香環來源為雙酚 A 與酚之芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為四溴雙酚 A 與酚之芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為間苯二酚與 2,6-二甲苯酚之芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為氫醌與 2,6-二甲苯酚之芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為雙酚 A 與 2,6-二甲苯酚之芳香族聚磷酸酯、芳香環來源為四溴雙酚 A 與 2,6-二甲苯酚之芳香族聚磷酸酯等。

[螢光染料]

在本發明中，基板層(薄片)及被覆層(薄膜)具有良好的透明性。因此，藉由在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中更含有螢光增白劑，可賦予更高的光透過性與自然的透明感，又藉由含有螢光增白劑與其以外的能發光之螢光染料，可賦予產生發光色之新式樣效果。

在本發明所使用之螢光染料(包含螢光增白劑)係可舉例如香豆素系螢光染料、苯并吡喃系螢光染料、茚系螢光染料、蔥醌系螢光染料、硫靛系螢光染料、吡啶系螢光染料、吡酮系螢光染料、氧雜吡啶系螢光染料、氧雜吡酮系螢光染料、噻吩系螢光染料及二胺基芪系螢光染料等。此等之中，尤以耐熱性良好且在聚碳酸酯樹脂的成形加工時的劣化少的香豆素系螢光染料、苯并吡喃系螢光染料及茚系螢光染料為適宜。其中，尤以香豆素系螢光染料、亦即由香豆素衍生物所構成之螢光染料為佳。

螢光染料(包含螢光增白劑)的含量係相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，較佳為 0.0001~3 重量份、更佳為 0.0005~1 重量份、尤佳為 0.0005~0.5 重量份、更尤佳為

0.001~0.5 重量份、特佳為 0.001~0.1 重量份。在該範圍，可兼具更良好的耐紫外線性及色相，與熱安定性及光線透過率。

[紅外線吸收劑、紅外線反射劑]

在本發明，可在基板層(薄片)、被覆層(薄膜)或此等兩者中調配紅外線吸收劑或紅外線反射劑。藉由調配紅外線吸收劑與紅外線反射劑，可有效率地防止在夏天的溫度上昇。紅外線吸收劑係可使用有機系化合物與無機系化合物的任一者。有機系化合物的例係可舉例如蒽醌系染料與紫環酮系染料等的染料系化合物、芳香族胺化合物、芳香族亞胺鎂鹽化合物等。無機系化合物之例係可舉例如鎢化合物與釷化合物等。紅外線反射劑之例係可舉例如鋁、金、銀、銅、鎳、鉻、氧化鈦的金屬系粒子等。

[積層片之製造方法]

本發明的積層片係可將熔融擠壓樹脂組成物(A)之薄片、與熔融擠壓樹脂組成物(B)之薄膜，在熔融狀態下進行積層而製造的。

基板層(薄片)用的樹脂組成物(A)係可摻混聚碳酸酯樹脂與硫醚系化合物及其他的添加劑來進行調製。

樹脂組成物(A)中，亦可含有式(3)及(4)所構成之群組所選出之至少 1 種的受阻酚化合物。如此所得之樹脂組成物粉末與丸粒的摻混品係可以熔融擠壓機暫時形成丸粒狀後，就供給予擠壓成形為佳。

又，被覆層(薄膜)用的樹脂組成物(B)亦可摻混聚碳酸酯樹脂與紫外線吸收劑及其他的添加劑來進行調製。所得

之樹脂組成物粉末與丸粒的摻混品係可以熔融擠壓機暫時形成丸粒狀後，就供給予擠壓成形為佳。

摻混聚碳酸酯樹脂與添加劑中可採用任意的方法。例如可適宜使用以轉筒、V型攪拌機、超級混合機、諾塔混合機、班伯里混合機、混練輥、擠壓機等混合的方法。又，當摻混時，可以一階段實施、亦可分成二階段以上實施。分成二階段實施之方法中，例如有摻混調配予定的聚碳酸酯樹脂粉末或丸粒的一部份與添加劑之後，也就是以聚碳酸酯樹脂粉末稀釋添加劑成為添加劑的母料之後，使用其進行最終的摻混之方法。

以一階段摻混之方法中，可採用將預先混合各指定量的各添加劑者與聚碳酸酯樹脂粉末、丸粒進行摻混之方法，又，可採用各個分別計量各指定量的各添加劑，依序添加至聚碳酸酯樹脂粉末、丸粒後進行摻混之方法等。再者，當根據添加劑的種類進行調配的話，可為將添加劑直接添加至擠壓機中、進行注入之方法。在該情形中，各添加劑亦可在加熱融解後注入。

又，就溶液聚合法(界面聚合法)而言，係經常使用將聚合終了後的聚碳酸酯樹脂之有機溶媒溶液導入經攪拌之溫水中，且在攪拌流中製造聚碳酸酯粉狀體之方法。此時，亦可採用預先在聚碳酸酯樹脂的有機溶媒溶液中添加溶解添加劑，而導入至聚碳酸酯樹脂之方法。

積層係在熔融狀態下進行。積層係可以共擠壓方法來進行。共擠壓方法係可舉例如使從二台以上的擠壓機擠壓出來的基板層(薄片)及被覆層(薄膜)貼合至軋輥上的方

法、使用多流噴嘴以一個的擠壓模頭進行共擠壓之方法等。

由含有硫醚系化合物之樹脂組成物(A)所構成之基板層的厚度係 $0.05\sim 10\text{mm}$ ，較佳為 $1\sim 8\text{mm}$ ，更佳為 $2\sim 5\text{mm}$ 。又，由含有紫外線吸收劑之樹脂組成物(B)所構成之被覆層的厚度係 $0.01\sim 1\text{mm}$ ，較佳為 $0.01\sim 0.5\text{mm}$ ，更佳為 $0.02\sim 0.1\text{mm}$ 。然後，積層片的總厚度係較佳為 $0.06\sim 11\text{mm}$ 、更佳為 $1\sim 8\text{mm}$ 、尤佳為 $2\sim 6\text{mm}$ 。此外，被覆層的厚度係較佳為積層的比基板層的厚度要薄。

本發明的積層片係可適宜做為 1.5mm 左右的波板、 5.0mm 左右的平板等的建材用薄片使用。

實施例

以下列舉實施例來說明本發明，惟本發明係不必受限於此等實施例。此外，“份”及“%”係基於重量基準。

(實施例 1~7、比較例 1~6)

將表 1 記載的各種添加劑以各調配量、被覆層用及基板層用原料，與由雙酚 A 和碳酸氯依照界面縮聚合法所製造之聚碳酸酯樹脂粉末(黏度平均分子量 24000)，在攪拌機中加以混合。所得到的被覆層用及基板層用的各個粉末係藉由附有排氣管的擠壓機，以擠壓機溫度 $250\sim 300^{\circ}\text{C}$ 進行熔融混練並丸粒化，以得到被覆層用丸粒及基板層用丸粒。

將基板層用丸粒供給至螺旋直徑 90ϕ 的擠壓機中且在 $250\sim 300^{\circ}\text{C}$ 進行熔融，另一方面，將被覆層用丸粒供給至螺旋直徑 30ϕ 的補助擠壓機中並在 $250\sim 300^{\circ}\text{C}$ 進行熔融，經由 T 模頭，共擠壓積層體。第 1 軋輥~第 3 軋輥係

全部使用鏡面金屬軋輥(軋輥直徑為 300mm)，並分別將第 1 軋輥、第 2 軋輥及第 3 軋輥的溫度設定為 140℃、150℃及 145℃，將經擠壓之熔融樹脂夾持於第 1 軋輥與第 2 軋輥之間並以 6MPa·cm 的線壓緊壓，且一邊與第 3 軋輥接觸、一邊通過第 2 軋輥與第 3 軋輥之間，以形成被覆層的厚度為 50 μm、基板層的厚度為 5mm、寬度控制在 1,000mm 之積層片。

評價所得之共擠壓積層片的性能，並將其結果表示於表 1 及表 2。又，所使用之化合物以及評價方法係如以下所示。

調配成分

[1]紫外線吸收劑：

(i) 2,2-亞甲基雙[4-(1,1,3,3-四甲基丁基)-6-(2H-苯并三唑-2-基)酚](ADEKA(股)製 LA-31(商品名))

(ii) 2-(4,6-二苯基-1,3,5-三吡啶-2-基)-5-[(己基)氧基]-酚(汽巴特殊化學品公司製 TINUVIN1577FF(商品名))

(iii) 2,2'-p-伸苯基雙(3,1-苯并噁吡啶-4-酮)(竹本油脂(股)製 CEi-P(商品名))

[2]防結塊劑：

(i) 碳酸鈣(SHIPRO 化成(股)製 SHIPRON A(商品名)、平均徑 5 μm)

[3]熱安定劑：

(1)硫醚系化合物

(i) 異戊四醇肆(3-月桂基硫代丙酸酯)(住友化學工業(股)製 SMILIZER TP-D(商品名))

(2)受阻酚系化合物

(i)異戊四醇肆[3-(3,5)二-第三丁基-4-羥苯基]丙酸酯](汽巴特殊化學品公司製 IRGANOX 1010(商品名))

(3)磷系化合物

(i)參(2,4-二-第三丁基苯基)亞磷酸酯(汽巴特殊化學品(股)製 IRGANFOX 168)

(ii)肆-2,4-二-第三丁基苯基-4,4'-伸聯苯基二次膦酸(克拉瑞日本(股)製 FORSTERNOX P-EPQ(商品名))

[4]脫膜劑：

(i)甘油脂肪酸酯(Cognis 日本(股)製 ROXYOL VPG861)商品名))

[5]上藍劑：

(i)蔥醌系化合物(拜耳(股)製：Microlex Violet B(商品名))

評價方法

(1)丸粒的藍色調：

基板層用丸粒的藍色調係根據使用日本電色(股)製色差計 SE-2000 型以 C 光源反射法所測定之 b 值來加以評價。藍色調越強時，b 值成為越低之值。

(2)積層片的藍色調：

在實施例所得之厚度為 5mm 的積層片之色相，係使用日本電色(股)製色差計 SE-2000 型以 C 光源反射法所測定的。藍色調越強，b 值成為越低之值。此外，表中的○、×係表示根據下述的基準以目視判定的結果。

○：在重疊 3 片 5mm 板且觀察側面之際，感覺到藍色

調。

×；在重疊 3 片 5mm 板且觀察側面之際，感覺到為無色。

(3)耐紫外線性(耐候性)：

在實施例所得之厚度為 5mm 的積層片係使用日照天氣儀(SUGA 試驗機(股)製：WEL-SUN：HC-B)，測定在黑面板溫度 63℃、濕度 50%、以 18 分鐘水噴霧與 102 分鐘無噴霧的合計 120 分鐘為週期，處理 1000 小時的前後之色相變化(ΔYI 值)。 YI 值係由使用日本電色(股)製色差計 SE-2000 型以 C 光源透過法所測定之 X、Y 及 Z 值，依照 ASTM-E1925，使用下述式來算出的。 ΔYI 值越大，成形板的黃色味顯示越強。此外，表中的○、×係根據下述的基準來判定。

$$YI = [100(1.28X - 1.06Z)] / Y$$

$$\Delta YI = YI(1000 \text{ 小時處理後}) - YI(\text{處理前})$$

○； ΔYI 值低於 5

×； ΔYI 值為 5 以上

(4)平滑性：

依照 ISO8295，將在實施例所得之厚度為 5mm 的積層片以接觸面積為 40cm² 放置於試驗片表面，並以速度 50mm/min 進行試驗，求得動摩擦係數後評價。此外，表中的○、×係根據下述的基準來判定。

○；動摩擦係數低於 0.3

×；動摩擦係數為 0.3 以上

(5)軋輥污染：

針對連續 6 小時成形後的第 1 軋輥之混濁狀態，以目視來判定，影響製品的外觀不良之混濁為顯著的情形判定為 x，觀察不到對製品的影響但混濁為顯著者判定為 △、混濁並不顯著者判定為 。

表 1

			實施例 1	實施例 2	實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6	實施例 7
被覆層(B)	主成分	PC	重量份						
	防結塊成分	(i)	重量份	100	100	100	100	100	100
	紫外線吸收劑成分	(i)	重量份	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35	0.35
		(ii)	重量份	3	3	6	3		
		(iii)	重量份					3	
基板層(A)	主成分	PC	重量份	100	100	100	100	100	100
	熱安定劑成分	硫醚系	重量份	0.02	0.05	0.02	0.02	0.03	0.03
		受阻酚系	重量份				0.01		
		磷系(i)	重量份						
		磷系(ii)	重量份						
	脫膜劑	(i)	重量份	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
	上藍劑	MB	ppm	0.75	0.75	0.75	0.75	0.75	0.75
	丸粒的藍色調	b	-	-4.0	-3.9	-4.0	-4.0	-4.0	-3.9
		黃色度(b 值)		-0.5	-0.4	-0.6	-0.7	-0.3	-0.5
		根據目視來判定		○	○	○	○	○	○
積層片的特性	積層片的藍色調	色相變化(ΔYI 值)		3.0	3.0	2.0	2.1	2.5	2.8
	耐紫外線性	判定		○	○	○	○	○	○
	平滑性	判定		○	○	○	○	○	○
	軋輥污染	判定		○	○	○	○	○	○

表 2

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
被覆層(B)	主成分	PC	重量份				
	防結塊成分	(i)	重量份	100	100	100	100
	紫外線吸收劑成分	(i)	重量份	3	1		
		(ii)	重量份			3	
		(iii)	重量份				3
基板層(A)	主成分	PC	重量份	100	100	100	100
	熱安定劑成分	硫醚系	重量份		0.02		
		受阻酚系	重量份				
		磷系(i)	重量份	0.02	0.02	0.02	0.02
		磷系(ii)	重量份		0.02		
	脫膜劑	(i)	重量份	0.03	0.03	0.03	0.03
	上藍劑	MB	ppm	0.75	0.75	0.75	0.75
	丸粒的藍色調	b	-	-4.0	-3.9	-4.0	-3.9
		黃色度(b 值)		0.6	0.8	0.5	0.4
		根據目視來判定		x	x	x	x
積層片的特性	積層片的藍色調						
	耐紫外線性	色相變化(ΔYI 值)		3.0	9.0	3.1	3.3
	平滑性	判定		o	x	o	o
	軋輥污染	判定		o	x	o	o

發明之效果

本發明的積層片係耐候性及色相優異。根據本發明的製造方法，藉由濃縮特定的紫外線吸收劑使其存在於被覆層上，可減低對於樹脂板全體之紫外線吸收劑量。又藉由使特定的硫醚系化合物以特定的比例含有於基板層上，能夠得到可抑制從丸粒之共擠壓成形時的變色，色相及透明性優異，即使在長期使用後色相的劣化亦受到抑制的積層片。

產業上的利用可能性

本發明的積層片係可使用於建材。

【圖式簡單說明】

無。

【主要元件符號說明】

無。

發明專利說明書

PD1095024(9)

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：98104470

※申請日：98.2.12

※IPC 分類：

B32B 21/28 (2006.01)

C08K 5/357 (2006.01)

5/134 (2006.01)

5/372 (2006.01)

C08L 69/00 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

聚碳酸酯樹脂積層片

POLYCARBONATE RESIN LAMINATING SHEET

二、中文發明摘要：

本發明的目的係提供含有聚碳酸酯樹脂、耐候性及色相優異之積層片。

本發明之積層片係含有基板層及被覆基板層之至少單面的被覆層，

(i)基板層係含有聚碳酸酯樹脂以及特定的硫醚系化合物，

(ii)被覆層係含有聚碳酸酯樹脂、以及由分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡系及特定的環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑。

三、英文發明摘要：

The purpose of the present invention provides a laminating sheet which comprises polycarbonate resin, and has excellent properties of weathering resistance and hues.

The laminating sheet of the present invention comprises a substrate layer and a coating layer which cover at least one side of the said substrate layer.

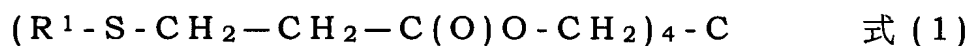
(i) The said substrate comprises polycarbonate resin and specific thioether-based compound;

(ii) The said coating layer comprises polycarbonate resin, and at least one ultraviolet absorber selected from the group consisting of benzotriazole series with molecular weight of 380 or more, triazole series with molecular weight of 400 or more, and specific cyclic iminoester series.

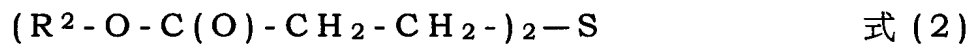
七、申請專利範圍：

1. 一種積層片，其係具有厚度 0.05~10mm 的基板層及被覆基板層的至少單面之厚度為 0.01~1mm 的被覆層，

(i) 基板層係含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及 0.005~0.1 重量份的由下述式 (1) 及 (2) 構成之群組所選出之至少 1 種硫醚系化合物，

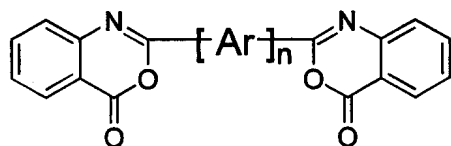


[式中， R^1 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 4~20 的烴基]



[式中， R^2 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 6~22 的烴基]；

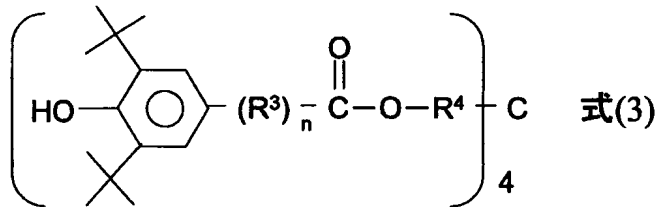
(ii) 被覆層係含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，以及合計為 2~10 重量份的、由分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡系及下述式 (5) 所示之環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑



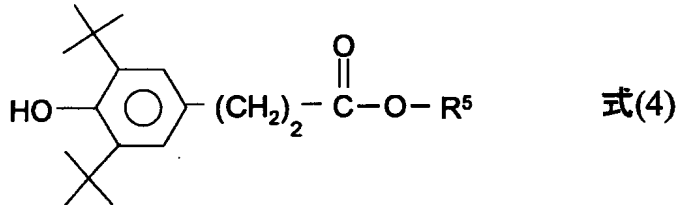
式 (5)

[式中， Ar 係碳數 6~12 之二價芳香族烴基殘基，又 Ar 亦可含有雜原子， n 表示 0 或 1]。

2. 如申請專利範圍第 1 項之積層片，其中基板層係更含有由下述式 (3) 及 (4) 構成群組所選出之至少 1 種的受阻酚化合物，且相對於 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，硫醚系化合物與受阻酚化合物之合計含量為 0.005~0.1 重量份，

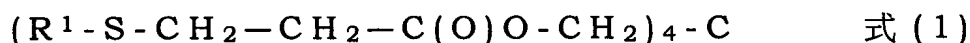


[式中， R^3 、 R^4 係各自獨立地、為直鏈狀的碳數 1~6 的烴基， n 為 2~6 中的任一整數]

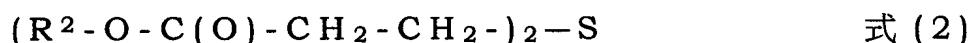


[式中， R^5 係直鏈狀或分枝狀之碳數 16~22 的烴基]。

3. 如申請專利範圍第 1 項之積層片，其中相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，基板層係含有 0.005~2.0 重量份的脫膜劑。
4. 如申請專利範圍第 1 項之積層片，其中基板層含有 0.05~1.5 ppm 的上藍劑。
5. 如申請專利範圍第 1 項之積層片，其中相對於聚碳酸酯樹脂 100 重量份，被覆層係含有 0.1~3 重量份的防結塊劑。
6. 一種積層片之製造方法，其係將 (i) 含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及 0.005~0.1 重量份的由下述式 (1) 及 (2) 構成群組所選出之至少 1 種的硫醚系化合物之樹脂組成物 (A) 熔融擠壓而成之薄片，與

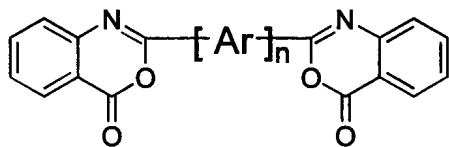


[式中， R^1 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 4~20 的烴基]



[式中， R^2 係可相同或不同、直鏈狀或分枝狀的碳數 6~22 的烴基]

將(ii)含有 100 重量份的聚碳酸酯樹脂、以及由 2~10 重量份的分子量 380 以上的苯并三唑系、分子量 400 以上的三吡系及下述式(5)所示之環狀亞胺酸酯系構成群組所選出之至少 1 種的紫外線吸收劑之樹脂組成物(B)熔融擠壓而成之薄膜，

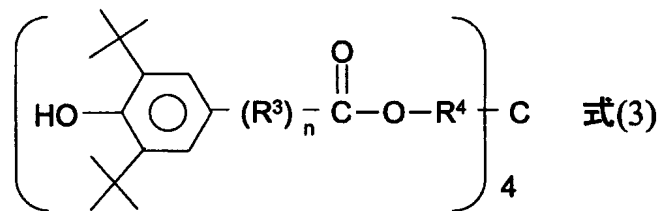


式(5)

[式中，Ar 係碳數 6~12 之二價芳香族烴基殘基，又 Ar 亦可含有雜原子，n 表示 0 或 1]

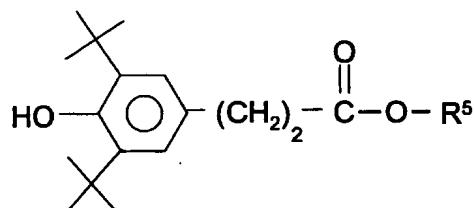
在熔融狀態下進行積層而形成的。

7.如申請專利範圍第 6 項之製造方法，其中樹脂組成物(A)係更含有由下述式(3)及(4)構成群組所選出之至少 1 種的受阻酚化合物，



式(3)

[式中， R^3 、 R^4 係各自獨立地、為直鏈狀的碳數 1~6 的烴基，n 為 2~6 中的任一整數]



式(4)

[式中， R^5 係直鏈狀或分枝狀之碳數 16~22 的烴基]

且相對於 100 重量份的聚碳酸酯樹脂，硫醚系化合物與

受阻酚化合物之合計含量為 0.005~0.1 重量份。

- 8.如申請專利範圍第 6 項之製造方法，其中樹脂組成物 (A) 及 (B) 為丸粒。

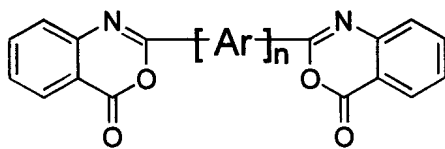
四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：無。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無。

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



式 (5)