

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-249191

(P2009-249191A)

(43) 公開日 平成21年10月29日(2009. 10. 29)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
CO 1 G 25/02 (2006.01)		CO 1 G	25/02	4 G O 4 7
CO 8 L 101/00 (2006.01)		CO 8 L	101/00	4 G O 4 8
CO 8 K 9/02 (2006.01)		CO 8 K	9/02	4 G O 7 2
CO 1 B 33/12 (2006.01)		CO 1 B	33/12 A	4 J O O 2
CO 1 G 23/00 (2006.01)		CO 1 G	23/00 C	
審査請求 未請求 請求項の数 14 O L (全 29 頁)				

(21) 出願番号 特願2008-95290 (P2008-95290)
 (22) 出願日 平成20年4月1日(2008. 4. 1)

(71) 出願人 000190024
 日揮触媒化成株式会社
 神奈川県川崎市幸区堀川町 5 8 0 番地
 (74) 代理人 100094341
 弁理士 石田 政久
 (72) 発明者 石原 庸一
 福岡県北九州市若松区北湊町 1 3 - 2 触
 媒化成工業株式会社北九州事業所内
 (72) 発明者 富山 千枝美
 福岡県北九州市若松区北湊町 1 3 - 2 触
 媒化成工業株式会社北九州事業所内
 (72) 発明者 西田 広泰
 福岡県北九州市若松区北湊町 1 3 - 2 触
 媒化成工業株式会社北九州事業所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 チタン系無機酸化物微粒子を含む液状組成物、その製造方法および該液状組成物を用いた有機系樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、150 以上の比較的高い温度領域で処理しても高沸点有機化合物、特に重合性有機化合物の色調が変化して起こる黒色化などの問題が発生しないまたはこれを抑制できる、チタン系無機酸化物微粒子を含む液状組成物に関する。

【解決手段】 チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子からなる核粒子の表面を、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を重合性有機化合物に分散してなる液状組成物であって、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に、該無機酸化物微粒子の全量に対してアルカリ金属元素を酸化物換算基準で2.0～6.0重量%含む液状組成物および該液状組成物の製造方法。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子からなる核粒子の表面を、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を重合性有機化合物に分散してなる液状組成物であって、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に、該無機酸化物微粒子の全量に対してアルカリ金属元素を酸化物換算基準で 2.0 ~ 6.0 重量% 含むことを特徴とする液状組成物。

【請求項 2】

前記チタン系複合酸化物微粒子中に、さらにスズを含有することを特徴とする請求項 1 に記載の液状組成物。

10

【請求項 3】

前記無機酸化物微粒子が、アルカリ金属化合物（酸化物を除く）を含有する水系分散液中で、その表面にアルカリ金属イオンを吸着させたものであることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の液状組成物。

【請求項 4】

前記無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の量が、該無機酸化物微粒子の全量に対して酸化物換算基準で 0.1 ~ 3.5 重量% の範囲にあることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の液状組成物。

【請求項 5】

前記アルカリ金属元素が、カリウムおよび / またはナトリウムであることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の液状組成物。

20

【請求項 6】

前記アルカリ金属元素の少なくとも一部が、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に存在する固体酸と化合した金属塩の形態で存在することを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の液状組成物。

【請求項 7】

前記無機酸化物微粒子の平均粒子径が、動的光散乱法で測定されるとき、3 ~ 80 nm の範囲にあることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の液状組成物。

【請求項 8】

前記重合性有機化合物が、室温で液状のものであることを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の液状組成物。

30

【請求項 9】

前記重合性有機化合物が、エチレングリコール、 γ -ブチロラクトン、メタクリル酸メチル、N-メチルピロリドン、メチルイソブチルケトンおよびメチルエチルケトンから選ばれた 1 種または 2 種以上の有機化合物であることを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の液状組成物。

【請求項 10】

前記液状組成物中に含まれる固形分濃度が、1 ~ 40 重量% の範囲にあることを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の液状組成物。

40

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の液状組成物に、さらに該液状組成物中に含まれる重合性有機化合物と反応可能な異種の重合性有機化合物を加えて、所定の条件下で反応させて得られる有機系樹脂組成物。

【請求項 12】

前記の異種重合性有機化合物が、テレフタル酸、イソフタル酸、p-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン芳香族ジアミン類、芳香族テトラカルボン酸無水物類、脂肪族ジアミン類および脂肪族テトラカルボン酸無水物類から選ばれた 1 種または 2 種以上の有機化合物であることを特徴とする請求項 11 に記載の有機系樹脂組成物。

【請求項 13】

50

前記有機系樹脂組成物が、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂または紫外線硬化型樹脂であることを特徴とする請求項 1 1 または 1 2 に記載の有機系樹脂組成物。

【請求項 1 4】

請求項 1 ~ 1 0 の何れかに記載の液状組成物を製造する方法であって、

(1) チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液に、少なくともジルコニウム化合物およびケイ素化合物を加えて、150 ~ 210 の温度で水熱処理することにより、前記チタン系複合酸化物微粒子の表面を少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を含む水系分散液を調製する工程、

(2) 前記工程 (1) から得られた水系分散液に、アルカリ金属化合物 (酸化物を除く) を添加して、30 ~ 80 の温度で加熱することにより、アルカリ金属イオンを表面に吸着させてなる無機酸化物微粒子を含む水系分散液を調製する工程、および

(3) 前記工程 (2) から得られた水系分散液を溶媒置換装置に供して、該水系分散液に含まれる水分を重合性有機化合物の液状物で溶媒置換することにより、前記無機酸化物微粒子を含む重合性有機化合物分散液を調製する工程

を含むことを特徴とする液状組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、チタン系無機酸化物微粒子を液状の高沸点有機化合物に分散してなる液状組成物に関するものであり、さらに詳しくは塗膜強度特性、誘電特性、光学特性、触媒特性などを備えたチタン系無機酸化物微粒子を高沸点有機化合物、特に重合性有機化合物に分散してなる液状組成物に関するものである。

【背景技術】

【0002】

酸化チタン粒子を誘電材料、光学材料、および機械的強度や平滑性を付与するための無機充填剤として樹脂フィルムなどに配合することが、よく知られている (特許文献 1 および 2) 。

このような樹脂組成物に酸化チタン粒子を配合する方法としては、樹脂の原料あるいは添加剤に酸化チタンを分散させた後、該酸化チタンの触媒作用によって前記樹脂原料などを重合させて樹脂組成物を得る方法か、あらかじめ重合させて得た樹脂粒子や樹脂ペレットなどを該樹脂が溶解可能な重合性有機化合物に溶解させて、得られた混合物に酸化チタン粒子を分散させて成型加工する方法などが知られている (特許文献 3 、 4 および 5) 。

しかし、数十 nm 程度の微細な粒子径を持つ酸化チタンは高い表面活性を有するため、樹脂組成物に配合すると酸化チタンの触媒活性によって重合物が酸化分解されたりして該樹脂組成物の色調が低下することが問題となっていた。

【0003】

そこでこのような問題を解決するため、不活性な金属の酸化物で酸化チタン粒子を被覆する方法が提案されている (特許文献 6 、 7 および 8) 。この被覆粒子を配合した樹脂組成物は、紫外線照射時や、比較的低温処理時での耐着色性および耐候性には優れるが、該被覆粒子の共存下で重合物を 150 以上の高温で処理した場合には酸化チタンが強く活性化されるため重合物の着色を抑えることはできなかった。

しかし、多くの重合性有機化合物は沸点が高く、また高強度の重合物を得るために高温処理が必要である。またこのような酸化チタン粒子を配合してなる樹脂組成物の用途は磁気記録フィルムやコンデンサ用フィルム、液晶ユニット内に供する反射性フィルムなどの電子分野にも広がってきており、これらの電子製品においては高性能化および高容量化のためより高温の使用環境下に耐えうることが要求されることから、高温で重合物を分解、着色させることなく使用することのできる酸化チタン材料が求められている。

【0004】

【特許文献 1】特開 2007 - 269028 号公報

10

20

30

40

50

【特許文献2】国際公開W O 0 5 / 0 2 6 2 4 1号公報

【特許文献3】特開2 0 0 7 - 2 9 7 5 9 7号公報

【特許文献4】特開2 0 0 5 - 3 8 8 2 1号公報

【特許文献5】特開平0 7 - 3 1 0 0 4 1号公報

【特許文献6】特開平0 8 - 0 4 8 9 4 0号公報

【特許文献7】特開2 0 0 1 - 1 0 6 9 9 3号公報

【特許文献8】特開2 0 0 5 - 2 8 1 6 4 4号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 5】

10

本発明は、上記のような従来技術の問題点を解決しようとするものであって、1 5 0 以上の比較的高い温度領域で処理しても高沸点有機化合物、特に重合性有機化合物の色調が変化して起こる黒色化などの問題が発生しないまたはこれを抑制できる、チタン系無機酸化物微粒子を含む液状組成物、その製造方法および該液状組成物を用いて製造された有機系樹脂組成物を提供することを目的としている。

なお、本発明でいう「比較的高い温度での処理」とは、1 5 0 以上の温度条件下での加熱処理、乾燥処理、硬化処理、反応処理などを意味するものである。

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 6】

20

本発明に係る液状組成物は、

チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子からなる核粒子の表面を、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を重合性有機化合物に分散してなる液状組成物であって、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に、該無機酸化物微粒子の全量に対してアルカリ金属元素を酸化物換算基準で2 . 0 ~ 6 . 0 重量%含むことを特徴としている。

【0 0 0 7】

前記チタン系複合酸化物微粒子中には、さらにスズを含有することが好ましい。

また、前記無機酸化物微粒子が、アルカリ金属化合物（酸化物を除く）を含有する水系分散液中で、その表面にアルカリ金属イオンを吸着させたものであることが好ましい。

30

さらに、前記無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の量は、該無機酸化物微粒子の全量に対して酸化物換算基準で0 . 1 ~ 3 . 5 重量%の範囲にあることが好ましい。

【0 0 0 8】

また、前記アルカリ金属元素は、カリウムおよび/またはナトリウムであることが好ましい。

さらに、前記アルカリ金属元素の少なくとも一部は、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に存在する固体酸と化合した金属塩の形態で存在することが好ましい。

【0 0 0 9】

前記無機酸化物微粒子の平均粒子径は、動的光散乱法で測定されるとき、3 ~ 8 0 n m の範囲にあることが好ましい。

40

また、前記重合性有機化合物は、水に可溶性有機化合物であって、室温で液状のものであることが好ましい。

さらに、前記重合性有機化合物は、エチレングリコール、γ -ブチロラクトン、メタクリル酸メチル、N -メチルピロリドン、メチルイソブチルケトンおよびメチルエチルケトンから選ばれた1種または2種以上の有機化合物であることが好ましい。

また、前記液状組成物中に含まれる固形分濃度は、1 ~ 4 0 重量%の範囲にあることが好ましい。

【0 0 1 0】

本発明に係る有機系樹脂組成物は、上記のいずれかに記載の液状組成物に、さらに該液

50

状組成物中に含まれる重合性有機化合物と反応可能な異種の重合性有機化合物を加えて、所定の条件下で反応させて得られたものであることを特徴としている。

また、前記の異種重合性有機化合物が、テレフタル酸、イソフタル酸、p-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン芳香族ジアミン類、芳香族テトラカルボン酸無水物類、脂肪族ジアミン類および脂肪族テトラカルボン酸無水物類から選ばれた1種または2種以上の有機化合物であることが好ましい。

さらに、前記有機系樹脂組成物は、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂または紫外線硬化型樹脂であることが好ましい。

【0011】

本発明に係る液状組成物の製造方法は、

上記のいずれかに記載の液状組成物を製造する方法であって、

(1) チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液に、少なくともジルコニウム化合物およびケイ素化合物を加えて、150～210の温度で水熱処理することにより、前記チタン系複合酸化物微粒子の表面を少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を含む水系分散液を調製する工程、

(2) 前記工程(1)から得られる水系分散液に、アルカリ金属化合物(酸化物を除く)を添加して、30～80の温度で加熱することにより、アルカリ金属イオンを表面に吸着させてなる無機酸化物微粒子を含む水系分散液を調製する工程、および

(3) 前記工程(2)から得られる水系分散液を溶媒置換装置に供して、該水系分散液中に含まれる水分を重合性有機化合物の液状物で溶媒置換することにより、前記無機酸化物微粒子を含む重合性有機化合物分散液を調製する工程

を含むことを特徴としている。

【発明の効果】

【0012】

先にも述べたとおり、従来公知のチタン系無機酸化物微粒子を分散させてなる重合性有機化合物を150以上、特に200以上の比較的高い温度領域で処理すると、その処理温度や重合性有機化合物の種類などによっても異なるが、該重合性有機化合物の色調が変化して、焦げ茶色や黒色などに変色してしまうという問題があった。これは、チタン系無機酸化物微粒子の光触媒活性に起因するところもあるが、その最大の原因は、該微粒子を調製する過程で副生される固体酸によるものと考えられる。すなわち、前記チタン系無機酸化物微粒子の内部およびその表面に存在する固体酸が、上記の温度条件下で前記重合性有機化合物に作用して該重合性有機化合物を酸化させ、結果として前記の変色を引き起こしてしまうことが考えられる。

【0013】

これに対して、本発明に係るチタン系無機酸化物微粒子を液状の重合性有機化合物に分散させてなる液状組成物によれば、チタン系無機酸化物微粒子の光触媒活性を抑制できるばかりでなく、前記固体酸による重合性有機化合物の酸化反応を抑制することができる。従って、この液状組成物を、たとえ150以上の比較的高い温度領域で処理しても、前記重合性有機化合物の変色を抑えることができる。これは、前記チタン系無機酸化物微粒子の内部およびその表面に存在する固体酸が、アルカリ金属イオンと化合してアルカリ金属塩となり、不活性化されているためと考えられる。

【0014】

これにより、塗膜強度特性、誘電特性、光学特性、触媒特性などを備えたチタン系無機酸化物微粒子を含む、変色抑制効果を備えた液状組成物を提供ことができる。すなわち、前記重合性有機化合物の種類や配合量を変更すれば、紫外線吸収剤、防汚材、抗菌剤、脱臭剤、粘剤、隠蔽材、導電材、高屈折率材、反射材、封止材、充填材、包装材、光触媒、反射防止膜材、繊維材、電極材、建材、紙、その他各種塗料の用途に使用することができる。

また、この液状組成物を用いれば、該液状組成物中に含まれる重合性有機化合物と反応可

10

20

30

40

50

能な異種の重合性有機化合物を加えて所定の条件下で反応させることにより、所望の熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、紫外線硬化型樹脂などの有機系樹脂組成物を容易に得ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0015】

以下、本発明に係る液状組成物および該組成物を用いて得られる有機系樹脂組成物について具体的に説明する。

[液状組成物]

本発明に係る液状組成物は、

チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子からなる核粒子の表面を、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子を重合性有機化合物に分散してなる液状組成物であって、前記無機酸化物微粒子の内部およびその表面に、該無機酸化物微粒子の全量に対してアルカリ金属元素を酸化物換算基準で2.0～6.0重量%含むものである。

以下に、該液状組成物中に含まれる各成分について詳細に説明する。

【0016】

無機酸化物微粒子を構成する核粒子

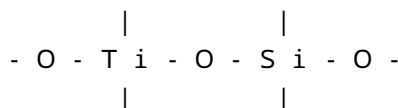
前記無機酸化物微粒子を構成する核粒子は、チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子である。

ここで、前記チタン酸化物微粒子は、一般的に知られている化学式 TiO_2 で表される酸化物の微粒子である。

また、前記チタン系複合酸化物微粒子は、少なくともチタンとケイ素を含有する複合酸化物の微粒子であり、さらにスズを含むことが好ましい。前記複合酸化物は、少なくともチタンとその他の金属元素成分からなるものであり、これらを化学式で模式的に示せば、以下の通りである。

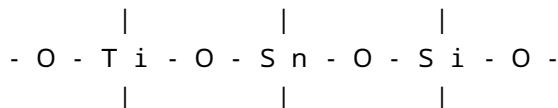
【0017】

[化1]



【0018】

[化2]



【0019】

これらのチタン系複合酸化物微粒子は、その調製条件（使用元素や各元素の含有量等を含む）によっても異なるが、主にアナターゼ型、ルチル型またはその混在型の結晶構造を有する複合酸化物の微粒子として得られる。上記の化学式において、[化1]の化学式に示すものは、一般にアナターゼ型の結晶構造を有する複合酸化物の微粒子となり、また、[化2]の化学式に示すものは、一般にルチル型の結晶構造を有する複合酸化物の微粒子となるが、後者のチタン系複合酸化物微粒子は、前者のものに較べて光触媒活性が比較的弱いので、本発明においては、後者のものを使用することが好ましい。

【0020】

前記チタン系複合酸化物微粒子に含まれるチタンとケイ素の重量比については、特に制限されるものではないが、チタンに対するケイ素の重量比が酸化物換算基準（ SiO_2/TiO_2 ）で、2/100～50/100、好ましくは6/100～30/100の範囲にあることが望ましい。ここで、前記重量比が2/100未満であると、等電点が中性付近にあるため酸性側での安定性が悪化する傾向にあり、また前記重量比が50/100を超えると、有効成分であるチタン含有量が低下するため所望の触媒活性（ただし、チタン系

酸化物による触媒活性が求められる用途に使用する場合)が得られなかったり、あるいは塗膜の屈折率が低下したりする傾向にある。

【0021】

また、前記チタン系複合酸化物微粒子中にスズを含ませる場合、該スズの含有量は、特に制限されるものではないが、チタンに対するスズの重量比が酸化物換算基準($\text{SnO}_2 / \text{TiO}_2$)で、 $3 / 100 \sim 100 / 100$ 、好ましくは $9 / 100 \sim 20 / 100$ の範囲にあることが望ましい。ここで、前記重量比が $3 / 100$ 未満であると、ルチル型とアナターゼとの混晶またはアナターゼ型の結晶構造になりやすく、また前記重量比が $100 / 100$ を超えると、有効成分であるチタン含有量が低下するため所望の触媒活性(ただし、チタン系酸化物による触媒活性が求められる用途に使用する場合)が得られなかったり、あるいは塗膜の屈折率が低下したりする傾向にあるので、好ましくない。

10

【0022】

さらに、本発明においては、前記チタン系複合酸化物微粒子(核粒子)中に、カリウムおよび/またはナトリウムのアルカリ金属元素を含むことが好ましい。

また、前記アルカリ金属元素の少なくとも一部は、前記チタン系複合酸化物微粒子の調製過程で副生される固体酸、たとえば $\text{SiO}_2 \cdot \text{TiO}_2$ 、 $\text{SnO}_2 \cdot \text{TiO}_2$ 、 $\text{SnO}_2 \cdot \text{SiO}_2$ などの固体酸と化合した金属塩の形態で存在することが好ましい。すなわち、前記チタン系複合酸化物微粒子(核粒子)中に含まれるアルカリ金属塩としては、 $x \text{SiO}_2 \cdot y \text{M} \cdot z \text{TiO}_2$ 、 $x \text{SnO}_2 \cdot y \text{M} \cdot z \text{TiO}_2$ 、 $x \text{SiO}_2 \cdot y \text{M} \cdot z \text{SnO}_2$ (式中、Mはアルカリ金属元素を意味する)などが挙げられる。

20

【0023】

さらに、前記チタン系複合酸化物微粒子の表面には、塩基として働くOH基と、酸として働くO・H基が存在していると言われている。そこで、前者の活性基(すなわち、OH基)に対しては、前記の固体酸が作用し、さらに後者の活性基(すなわち、O・H基)に対しては、前記のカリウムイオンが作用して、前記チタン系酸化物の表面活性を抑制していることが考えられる。また、これらの相互作用は、OH基のフリーラジカル化($\cdot \text{OH}$)を抑制して、種々の有機物(たとえば、重合性有機化合物)との反応を阻害していることも考えられる。

【0024】

しかし、前記重合性有機化合物の変色は、固体酸(特に、無機酸化物微粒子の表面または表面近く存在する固体酸)によるところが大であると推察されるので、核粒子としての前記チタン系複合酸化物微粒子中には、このアルカリ金属元素を必ずしも含んでいる必要はない。特に、チタン系酸化物による触媒活性が求められる用途に使用するときには、この核粒子中に、前記アルカリ金属元素を含まない方がよい場合もある。

30

なお、前記チタン系複合酸化物微粒子中には、さらに必要に応じて上記以外の元素、たとえばセリウム、ジルコニウム、タングステン、ニオブなどの元素を含んでいてもよい。

【0025】

無機酸化物微粒子を構成する被覆層

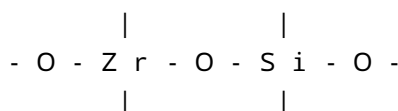
前記核粒子の表面に形成される被覆層は、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物からなるものである。

40

前記複合酸化物は、少なくともジルコニウムとケイ素からなるものであり、これを化学式で模式的に示せば、以下の通りである。

【0026】

[化3]



【0027】

前記複合酸化物に含まれるジルコニウムとケイ素の重量比については、特に制限されるものではないが、ケイ素に対するジルコニウムの重量比が酸化物換算基準(ZrO_2 / Si

50

O₂)で、20/100～100/100、好ましくは25/100～50/100の範囲にあることが望ましい。ここで、ここで、前記重量比が20/100未満であると、該無機酸化物微粒子を含む液状組成物を用いて製造された樹脂組成物の耐候性が低下したり、屈折率が低下したりすることがあるので、その用途によっては問題となる場合がある。また、前記重量比が100/100を超えると、前記複合酸化物の安定性が低下するので、好ましくない。

【0028】

さらに、本発明においては、前記複合酸化物からなる被覆層中に、カリウムおよび/またはナトリウムのアルカリ金属元素を含んでいることが望まれる。

また、前記アルカリ金属元素の少なくとも一部は、前記被覆層の調製過程で副生される固体酸、たとえばSiO₂・ZrO₂などの固体酸と化合した金属塩の形態で存在することが好ましい。すなわち、前記被覆層に含まれるアルカリ金属塩としては、xSiO₂・yM・zZrO₂(式中、Mはアルカリ金属元素を意味する)などが挙げられる。

【0029】

本発明においては、上記のように前記被覆層の調製過程で該被覆層中にアルカリ金属元素を含ませることも必要であるが、さらにアルカリ金属化合物(酸化物を除く)の水分散液中で処理して、その表面にアルカリ金属イオンを吸着させて、少なくとも前記被覆層の表面に存在する固体酸を不活性化しておくことが好ましい。

前記アルカリ金属化合物としては、アルカリ金属の水酸化物、硝酸塩、硫酸塩、炭酸塩、酢酸塩、ハロゲン化物、およびアルカリ金属の有機錯体などが挙げられるが、アルカリ金属の水酸化物を使用することが好ましい。また、本発明で利用できるアルカリ金属としては、カリウムおよび/またはナトリウムがある。従って、本発明においては、カリウムおよび/またはナトリウムの水酸化物を使用することが好ましい。

ここでアルカリ金属の酸化物を除外する理由は、アルカリ金属酸化物結晶が水分散液中でアルカリ金属イオンに解離し難く、固体酸を不活性化する効果が殆どないためである。なお、前記複合酸化物からなる被覆層中には、さらに必要に応じて上記以外の元素、たとえばアルミニウム、アンチモンなどの元素を含んでいてもよい。

【0030】

なお、前記核粒子上への複合酸化物の被覆は、核粒子の重量をCで表し、被覆層の重量をSで表したとき、その重量比(S/C)が酸化物基準で、7/100～150/100、好ましくは12/100～100/100の範囲となるように行うことが望ましい。

ここで、前記重量比が7/100未満であると、核粒子に対する被覆層の被覆量が充分でないため、該核粒子中に含まれる固体酸とチタンの触媒活性の影響により高温での重合性有機化合物の変色を抑制することが難しくなる。また前記重量比が150/100を超えると、前記核粒子を含む水分散液と前記被覆層を形成するための水溶液を混合したとき、該混合分散液の安定性が低下してしまうので、好ましくない。

【0031】

無機酸化物微粒子

本発明で使用される無機酸化物微粒子は、上記のように核粒子の表面に被覆層を形成してなるコア-シェル構造をとるものである。

また、本発明で使用される前記無機酸化物微粒子は、該無機酸化物微粒子の内部およびその表面に、前記微粒子の全量に対してアルカリ金属元素を酸化物換算基準で2.0～6.0重量%、好ましくは2.5～5.5重量%の範囲で含むものである。

ここで、前記アルカリ金属元素の含有量が2.0重量%未満であると、前記無機酸化物微粒子中に存在する固体酸を不活性化する度合いが充分でないため、これを重合性有機化合物に分散させた液状組成物を比較的高い温度で処理すると、該重合性有機化合物の色調が変化してしまうので、好ましくない。また、前記含有量が6.0重量%を超えると、前記液状組成物の粘度が増加して長期保存できない場合があるので、好ましくない。

【0032】

さらに、本発明において、前記無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の量

は、該無機酸化物微粒子の全量に対して酸化物換算基準で 0.1 ~ 3.5 重量%、好ましくは 1.0 ~ 3.0 重量%の範囲にあることが望ましい。ただし、この含有量（すなわち、粒子内部に存在するアルカリ金属元素の含有量）は、上記の含有量（すなわち、粒子内部と粒子表面に存在するアルカリ金属元素の含有量）より低いレベルにあるものとする。

ここで、前記アルカリ金属元素の含有量が 0.1 重量%未満であると、前記無機酸化物微粒子の内部に存在する固体酸を不活性化する度合いが充分でないため、これを重合性有機化合物に分散させた液状組成物を比較的高い温度で処理すると、該重合性有機化合物の色調が変化してしまう場合があるので、好ましくない。また、前記含有量が 3.5 重量%を超えると、粒子の結晶化度が低下してチタン成分が溶出しやすくなるため遊離のチタン成分が発生する傾向にあり、結果としてこの遊離のチタン成分を含む液状組成物を比較的高い温度で処理すると、該液状組成物中に含まれる重合性有機化合物の色調を変化させる場合があるので、好ましくない。

10

【0033】

なお、上記の無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素量とは、アルカリ処理を行う前から粒子に含まれていたアルカリ金属元素の量、すなわち核粒子および/または被覆層の調製時に添加されたアルカリ金属元素の量を意味する。ただし、核粒子および/または被覆層の調製時に過剰のアルカリ金属元素が添加されている場合には必要に応じて該粒子中の含まれる過剰のアルカリ金属元素をイオン交換処理などで除去した後の量をいう。

20

また、無機酸化物微粒子の内部およびその表面に存在するアルカリ金属元素量とは、前記アルカリ処理によって無機酸化物微粒子の表面にアルカリ金属イオンが吸着された後の無機酸化物微粒子に含まれるアルカリ金属元素の量を意味する。

【0034】

前記無機酸化物微粒子の平均粒子径は、動的光散乱法で測定されるとき、3 ~ 80 nm、好ましくは 5 ~ 60 nm の範囲にあることが望ましい。

ここで、前記平均粒子径が 3 nm 未満であると、これを重合性有機化合物中に高濃度で分散させようとする、該無機酸化物微粒子が凝集したりしてその分散性が低下するので、好ましくない。また、前記平均粒子径が 80 nm を超えると、これを重合性有機化合物に分散させた液状組成物の透明性が低下し、引いては該液状組成物を用いて調製された樹脂組成物の透明性も低下させる場合があるので、これを透明性が求められる用途に使用することが難しくなる。

30

【0035】

前記無機酸化物微粒子の形状については、特に制限されるものではないが、棒状または球状であることが好ましい。

また、前記無機酸化物微粒子は、多孔質粒子または無孔質粒子のいずれであってもよい。しかし、本発明で使用される無機酸化物微粒子においては、BET法で測定される比表面積が、80 ~ 400 m²/g、好ましくは 150 ~ 300 m²/g の範囲にあることが望ましい。

ここで、前記比表面積が 80 m²/g 未満であると、前記無機酸化物微粒子を分散させる液状組成物の透明性が悪くなり、また前記比表面積が 400 m²/g を超えると、この無機酸化物微粒子を含む液状組成物を所望の濃度まで濃縮したときに安定性が悪くなるので好ましくない。

40

【0036】

重合性有機化合物

本発明で使用される重合性有機化合物は、前記無機酸化物微粒子に対する分散媒となるものであり、また重合性成分として機能できるものである。

さらに詳しく述べれば、前記重合性有機化合物は、室温で液状の有機化合物であって、C=C結合、C=O結合、C-O結合またはN-H結合を有するものなどであり、かつ、(1) 活性エネルギー線の照射、(2) 加熱または(3) 触媒の適用により、重合反応が可能なものを意味する。なお、ここで重合反応については、(I) 前記重合性有機化合物同

50

士の開環重合反応または重縮合反応、あるいは(II)前記重合性有機化合物と、前記重合性有機化合物とは異種の重合性有機化合物との共重合反応などが含まれる。

【0037】

このような重合性有機化合物としては、エチレングリコール、メタクリル酸メチル、スチレン、酢酸ビニル、 ε -カプロラクタム、ウンデカンラクタム、ラウリルラクタム、ヘキサメチレンジアミン、アジピン酸、セバシン酸、ジペンタエリスリトールヘキサアクリレート、ネオペンチルグリコールアクリル酸安息香酸エステル、1,6-ヘキサンジオールジアクリレート、トリシクロデカンジメチロールジアクリレート、 γ -ブチロラクトン、N-メチルピロリドン、メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトンなどが挙げられる。これらの中でも、エチレングリコール、メタクリル酸メチル、 γ -ブチロラクトン、N-メチルピロリドン、メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトンのいずれか、もしくはこれらの混合物を使用することが好ましい。

10

また、これらの重合性有機化合物については、共溶媒により希釈して使用してもよい。このような共溶媒としては、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、4-ヒドロキシ-4-メチル-2-ペンタノン、1,2-プロパンジオールなどを挙げることができる。

【0038】

前記重合性有機化合物中には、前記無機酸化物微粒子の表面に存在する固体酸と化合し得なかったアルカリ金属元素が、アルカリ金属化合物として残存していても構わない。さらには、溶媒置換で除去しきれなかった水分中や前記無機酸化物微粒子表面に存在する水分中に、フリーのアルカリ金属元素イオンなどとして遊離した状態で存在していても構わない。しかし、これらの残存アルカリ金属化合物や残存アルカリ金属イオンの量が多いと、該重合性有機化合物を分散媒とする液状組成物がゲル化したり、液状組成物を他の重合性有機化合物と重合反応させる際に着色などの問題を引き起こすことがあるので好ましくない。

20

具体的には、前記残存アルカリ金属化合物および前記残存アルカリ金属イオンの量を合計した値が、アルカリ金属元素の酸化物換算基準で0.55重量%以下、好ましくは0.1重量%以下であることが望ましい。

【0039】

本発明に係る液状組成物、すなわち前記無機酸化物微粒子を前記重合性有機化合物に分散させてなる液状組成物中に含まれる固形分濃度は、1~40重量%、好ましくは10~30重量%の範囲にあることが好ましい。ここで、前記固形分濃度が1重量%未満であると、重合して得られる樹脂組成物中の有効成分の密度が低下して、期待する効果が得られない場合があり、また前記固形分濃度が40重量%を超えると、該重合性有機化合物を分散媒とする液状組成物がゲル化する場合があるので、好ましくない。

30

【0040】

[液状組成物の製造方法]

以下に、本発明に係る液状組成物の製造方法について説明するが、本発明はここに記載された造方法に限定されるものではない。

無機酸化物微粒子の調製

40

1) 核粒子の調製

本発明で使用する無機酸化物微粒子は、チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子を核粒子とするものである。

この核粒子の製造方法については、本発明において該核粒子中にアルカリ金属塩を含ませる場合があることを除けば、従来公知のものを使用することができる。参考までに、核粒子としてのアナターゼ型チタン系複合酸化物微粒子およびルチル型チタン系複合酸化物微粒子の製造例を示せば、以下の通りである。

【0041】

<アナターゼ型チタン系複合酸化物微粒子>

(A) 最初に水和酸化チタンを調製する。ここでいう水和酸化チタンとは、酸化チタンの

50

水和物、および水和酸化チタン、または含水チタン酸などの総称であって、一般的にはゲルまたはゾル状の形状にあり、例えば、次の(1)、(2)または(3)のいずれかの方法などにより得ることができる。

(1) 水溶性チタン塩(例えば四塩化チタン、オキシ塩化チタン、硫酸チタン、硫酸チタニル、硝酸チタンなど)の加水分解物(水溶液)を必要に応じてイオン交換樹脂で脱イオン処理したのちアルカリで中和し、次いで洗浄する方法。

(2) 前記水溶性チタン塩の加水分解物(水溶液)を、陰イオン交換樹脂を用いて脱イオン処理する方法。

(3) チタンアルコキシドを加水分解する方法。

なお、上記の水和酸化チタンのゲルまたはゾルに含まれる水和酸化チタン粒子は非晶質であることが好ましい。

【0042】

(B) 次いで、このようにして得られた水和酸化チタンのゲルまたはゾルを水と混合し、次の(1)または(2)の方法により解膠して、ポリチタン酸水溶液を得る。

(1) 過酸化水素等の錯化剤と混合して錯イオンとして溶解したものを加熱する方法。

(2) 塩酸あるいは一塩基酸で解膠する方法。

なお、このとき水和酸化チタンの濃度が高すぎると、その溶解に長時間を要したり、更に未溶解のゲルが沈殿したり、水和酸化チタンのゲルまたはゾルの水溶液自体がゲル化したりするため、該水和酸化チタン水溶液のチタン含有量は、 TiO_2 換算基準で約10重量%以下、好ましくは約5重量%以下であることが好ましい。

【0043】

また、上記(1)の方法において、過酸化水素の混合量は、水和酸化チタンを TiO_2 で表したとき、そのモル比(H_2O_2 / TiO_2)が4以上であれば十分、水和酸化チタンを0.5~20時間で完全に溶解可能であり、望ましくは4~5の範囲であることが好ましい。

過酸化水素を多く用いるほど溶解は早く終了するが、あまりに過剰な過酸化水素を用いても不経済である。また、前記重量比(H_2O_2 / TiO_2)が4未満ではポリチタン酸として完全に溶解することができないので好ましくない。また過酸化水素を加えたのちは50前後の温度で加熱するか、攪拌して反応を行うことが好ましい。

【0044】

(C) このようにして得られたポリチタン酸水溶液に、必要に応じてアルカリ金属化合物(酸化物を除く)を添加する。前記アルカリ金属化合物の添加量は、副生される固体酸の不活性化とチタン系酸化物の光触媒活性の抑制をどこまで行うかによっても異なるが、ポリチタン酸水溶液に含まれる TiO_2 に対するアルカリ金属化合物を M_2O で表したとき、その重量比(M_2O / TiO_2)が20/100以下の範囲にあることが好ましい。

前記アルカリ金属化合物としては、アルカリ金属の水酸化物、硝酸塩、硫酸塩、炭酸塩、酢酸塩、ハロゲン化物、水素化物、過酸化物、硫化物やアルカリ金属の有機錯体などが挙げられるが、この中でも、カリウムおよび/またはナトリウムの水酸化物を使用することが好ましい。

【0045】

(D) 前記(B)で得られたポリチタン酸水溶液または前記(C)で得られたアルカリ金属化合物を含むポリチタン酸水溶液に、ケイ素化合物を所定量混合して140~200の温度で8~48時間、水熱処理することにより、ポリチタン酸化合物を加水分解して、結晶質のアナターゼ型チタン系複合酸化物微粒子のゾルを得ることができる。この場合、前記水熱処理は、オートクレーブ中で行うことが好ましい。

ここで、前記ケイ素化合物は、前記ゾルの安定性を向上させる(すなわち、ゲル化抑制)ために添加されるものであって、その添加量は、ポリチタン酸水溶液に含まれる TiO_2 に対して、添加されるケイ素化合物に含まれる SiO_2 の重量比(SiO_2 / TiO_2)が1/100~20/100の範囲にあることが好ましい。また、前記ケイ素化合物としては、水ガラスなどのアルカリ金属ケイ酸塩や、該アルカリ金属ケイ酸塩を必要に応じて脱

10

20

30

40

50

アルカリして得られるケイ酸液、さらにはシリカゾルやシリカゲルなどを用いることができる。

【 0 0 4 6 】

< ルチル型チタン系複合酸化物微粒子 >

(E) ルチル型チタン系複合酸化物微粒子の水系分散液は、上記 (A) ~ (D) のアナターゼ型チタン系複合酸化物微粒子の製造方法に、以下の (1) ~ (3) のいずれかの工程を追加することによって得られる。

(1) 上記 (B) の (1) の工程で過酸化水素と同時に、または過酸化水素の添加前にスズ化合物を添加し、加熱して加水分解を行う工程。

(2) 上記 (A) ~ (B) の方法で得られたポリチタン酸水溶液にスズ化合物を添加する工程。

(3) 上記 (A) で得られた水和酸化チタンのゲルまたはゾル、あるいは上記 (A) ~ (B) の工程で得られたポリチタン酸水溶液をアルカリ処理したのち、強酸で解膠する工程。

【 0 0 4 7 】

前記 (1) および (2) で使用されるスズ化合物としては、塩化スズ、硝酸スズ、スズ酸カリウムやスズ酸ナトリウムなどのスズ酸塩、蔞酸スズ、オクチル酸スズ等の有機酸塩、酸化スズ、水酸化スズ、金属スズなどが挙げられる。また、これらのスズ化合物は、水溶液として添加してもよく、粉末状のものを添加してもよく、さらには酸化スズ水和物などのゲルまたはゾルとして添加してもよい。

また、チタン塩水溶液に所定の条件下にて、直接過酸化水素と金属スズを添加したのち熟成して、更に限外濾過膜法やイオン交換樹脂法などにより電解質を除去してから解膠する方法や、四塩化チタン水溶液と塩酸が含まれる水とを混合し、特定の条件下で加水分解する方法などによってもルチル型酸化チタンの水系分散液を得ることができる。

なお、前記 (2) においてポリチタン酸水溶液に添加されるスズ化合物は、スズ酸カリウムやスズ酸ナトリウムなどから選択する場合があるので、この場合は、前記 (C) に示す工程に供して、外部からアルカリ金属化合物を添加することは必ずしも必要ない。

【 0 0 4 8 】

2) 被覆層の形成

前記無機酸化物微粒子の被覆層は、核粒子の分散液に、少なくともジルコニウム化合物およびケイ素化合物を添加して、150 ~ 210 の温度で水熱処理することにより、前記核粒子上に形成される。この場合、前記水熱処理は、オートクレーブ中で行うことが好ましい。

前記ジルコニウム化合物としては、ジルコニウムの無機塩、有機塩、酸化物、水酸化物またはアルコキシドなどが挙げられる。また、ジルコニウム化合物については、好ましくは水溶液またはスラリーの状態で用いられる。この中でも、前記ジルコニウム化合物としては、過酸化ジルコニウムの水溶液を使用することが好ましい。

また、前記ケイ素化合物としては、アルカリ金属珪酸塩を陽イオン交換樹脂を用いて脱アルカリして得られる珪酸液、アルカリ金属ケイ酸塩、シリコンアルコキシド、シリカゾルなどが挙げられる。この中でも、前記ケイ素化合物としては、珪酸液の水溶液を使用することが好ましい。

【 0 0 4 9 】

前記ジルコニウム化合物およびケイ素化合物の添加割合については、特に制限されるものではないが、前記ジルコニウム化合物を ZrO_2 で表し、さらに前記ケイ素化合物を SiO_2 で表したとき、その重量比 (ZrO_2 / SiO_2) が $20 / 100 \sim 100 / 100$ となるように行うことが好ましい。

さらに、本発明においては、前記水熱処理を施す前の水系分散液中にアルカリ金属化合物を含ませておくことが望まれる。

前記アルカリ金属化合物としては、上記の場合と同様に、アルカリ金属の水酸化物、硝酸塩、硫酸塩、炭酸塩、酢酸塩、ハロゲン化物、水素化物、過酸化物、硫化物やアルカリ金

10

20

30

40

50

属の有機錯体などが挙げられるが、この中でも、カリウムおよび／またはナトリウムの水酸化物を使用することが好ましい。

【 0 0 5 0 】

しかし、前記核粒子を含む水系分散液に添加されるジルコニウム化合物（たとえば、過酸化ジルコニウム酸）は、pH調整などを目的として水酸化カリウムなどの存在下で調製されることがあるので、この場合は、上記のように、外部からアルカリ金属化合物を添加することは必ずしも必要ない。

例えば、ジルコニウム化合物として過酸化ジルコニウム酸水溶液を使用する場合にあっては、オキシ塩化ジルコニウムのスラリーのpHを9以上に調整し、過酸化水素を加えて、加熱することにより過酸化ジルコニウム酸水溶液を調製する工程において、pHの調整剤として水酸化カリウムなどのアルカリ金属化合物が使用される。ただし、ここで添加されたアルカリ金属化合物の量では不十分である場合には、外部から添加してもよいことは勿論である。

【 0 0 5 1 】

前記アルカリ金属化合物の添加（pH調整などの目的で添加されたものを含む）は、前記核粒子の表面に被覆層を形成してなる無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属塩が酸化物換算基準で0.1～3.5重量%となるように行うことが好ましい。

また、前記アルカリ金属化合物の添加（pH調整などの目的で添加されたものを含む）は、特にこれに制限されるものではないが、前記ジルコニウム化合物および前記ケイ素化合物の合計量に対して、酸化物換算基準でその重量比（ $M_2O / (ZrO_2 + SiO_2)$ ）が10/100～50/100となるように行うことが好ましい。

【 0 0 5 2 】

このようにして、前記核粒子の表面に、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物の被覆層が形成されるが、該複合酸化物の被覆は、核粒子の重量をCで表し、被覆層の重量をSで表したとき、その重量比（ S / C ）が酸化物換算基準で7/100～150/100、好ましくは12/100～100/100の範囲となるように行うことが望ましい。

【 0 0 5 3 】

無機酸化物微粒子のアルカリ処理

上記で得られた無機酸化物微粒子の水系分散液に、アルカリ金属化合物（酸化物を除く）を含有する水溶液を添加して、30～80の温度で加熱処理することにより、アルカリ金属イオンを表面に吸着させてなる無機酸化物微粒子を含む水系分散液を調製する。この際、上記の無機酸化物微粒子の調製過程でアルカリ金属化合物が多量に添加されている場合には、該無機酸化物微粒子の水系分散液中に多くのアルカリ金属化合物を含む場合がある。

このような場合は、前記水系分散液中に含まれるアルカリ金属化合物（アルカリ金属イオン）を陽イオン交換樹脂などを用いて予め除去してから、所定量のアルカリ金属化合物を含む水溶液を添加することが望ましい。

【 0 0 5 4 】

その理由は、前記水系分散液中にフリーのアルカリ金属化合物が多量に存在するところに、アルカリ金属化合物を新たに添加すると、該水系分散液の粘度が上昇してしまうことがあるためである。さらに、この水系分散液を溶媒置換して得られる液状組成物中にフリーのアルカリ金属化合物が多量に含まれて問題を引き起こしてしまうことがあるので、これらを未然に防止するためである。ただし、上記の無機酸化物微粒子の調製過程でアルカリ金属化合物を多量に添加していない場合には、アルカリ金属化合物を予め除去しておく必要はない。

【 0 0 5 5 】

また、前記の「所定量のアルカリ金属化合物」とは、上記の無機酸化物微粒子の調製過程、特に被覆層の形成過程で、該微粒子の表面またはその近くに存在する固体酸を不活性化するために必要な量をいい、ここでは、過剰のアルカリ金属化合物を添加しないことを

意味する。即ち、上記の被覆層の形成過程で、前記無機酸化物微粒子の表面またはその近くに存在する固体酸の大部分が不活性化されている場合は、その添加量が少なくなり、また前記固体酸の一部しか不活性化されていない場合は、その添加量が多くなる。

【0056】

本発明においては、アルカリ金属化合物を添加した後、30～80の温度で30～120分間、加熱処理を行うことが望ましい。ここで、前記温度が30未満であると、アルカリ金属元素が固体酸と十分に反応しないため該固体酸が不活性化されない場合があり、また前記温度が80を超えると、無機酸化物微粒子が凝集しやすくなるので、好ましくない。

前記アルカリ金属化合物としては、上記の場合と同様に、アルカリ金属の水酸化物、硝酸塩、硫酸塩、炭酸塩、酢酸塩、ハロゲン化物、水素化物、過酸化物、硫化物やアルカリ金属の有機錯体などが挙げられるが、この中でも、カリウムおよび/またはナトリウムの水酸化物を使用することが好ましい。また、前記アルカリ金属化合物は、水溶液の状態で使用することが望ましく、またその濃度は、 M_2O 換算基準で0.1～3重量%の範囲にあることが好ましい。

【0057】

水系分散液の溶媒置換

上記で得られた無機酸化物微粒子の水系分散液を溶媒置換装置に供して、該水系分散液に含まれる水分を重合性有機化合物の液状物で溶媒置換することにより、前記無機酸化物微粒子を含む重合性有機化合物分散液を調製する。

すなわち、上記の無機酸化物微粒子の水系分散液と、所望量の重合性有機化合物とを混合し、ロータリーエバポレーターを用いるか、限外濾過膜法を用いるか、またはその他の従来公知の方法を用いて、前記水系分散液に含まれる水分を重合性有機化合物と溶媒置換を行うものである。この場合、前記水分を完全に溶媒置換できない場合があるが、本発明の目的を損なわない範囲で、前記重合性有機化合物の分散液中に水分を含んでいても構わない。

【0058】

また、前記重合性有機化合物中での無機酸化物微粒子の分散性を向上させるため、必要に応じて表面改質剤を用いて該無機酸化物微粒子表面に疎水化処理を行ってもよい。この疎水化処理は、前記の溶媒置換前に行ってもよく、溶媒置換と同時に行ってもよく、また溶媒置換後に行っても構わない。

前記表面改質剤としては、例えばテトラエトキシシラン、トリイソプロポキシアルミニウムなどのアルコキシド化合物、シランカップリング剤、チタンカップリング剤などのカップリング剤、ノニオン系、カチオン系、アニオン系などの低分子または高分子界面活性剤、脂肪酸の金属塩、ナフテン酸の金属塩などの金属石鹸塩などが挙げられる。

【0059】

この溶媒置換工程においては、得られる液状組成物中に含まれる固形分濃度が1～40重量%となるように、前記重合性有機化合物を溶媒置換装置、特にロータリーエバポレーター中に加えることが望ましい。しかし、この固形分濃度が所望値より高い場合は、溶媒置換後に前記重合性有機化合物を添加して調整してもよいことは勿論である。

また、前記重合性有機化合物中に含まれるアルカリ金属化合物の量が、 M_2O 換算基準で0.55重量%以下となるように予め調整しておくことが好ましい。これは、上記の無機酸化物微粒子のアルカリ処理のところで述べた方法で行うことができる。

【0060】

[有機系樹脂組成物]

本発明に係る有機系樹脂組成物は、前記液状組成物に、さらに該液状組成物中に含まれる重合性有機化合物と反応可能な異種の重合性有機化合物を加えて、所定の条件下で反応させることにより得ることができる。

前記の異種重合性有機化合物としては、例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、p-フェニレンジアミン、m-フェニレンジアミン芳香族ジアミン類、芳香族テトラカルボン酸無

10

20

30

40

50

水物類、脂肪族ジアミン類および脂肪族テトラカルボン酸無水物類から選ばれた1種または2種以上の有機化合物を挙げることができる。

また、前記有機系樹脂組成物としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、紫外線硬化型樹脂などが挙げられる。

【0061】

例えば、次のような方法で、本発明に係る有機系樹脂組成物を調製することができる。

(1) 重合性有機化合物としてメタクリル酸メチルを用いた本発明の液状組成物を調製して、これに必要に応じて適当なモノマー、溶媒、およびラジカル重合開始剤などを加えて加熱（一般的には150以下の温度）して重合させてメタクリル樹脂を合成し、得られたメタクリル樹脂を180～300の温度で成形して樹脂組成物を得る方法。なお、前記成形には真空成形法、圧空成形法、曲げ加工法などの従来公知の方法を用いることができる。

10

【0062】

(2) 重合性有機化合物としてγ-ブチロラクトンを用いた本発明の液状組成物を調製し、これに必要に応じて適当な開始剤を加えて重合（一般的には80～230の温度）させて、ラクトン重合体を形成し、得られたラクトン重合体を異種の重合性モノマーまたは重合性ポリマーと反応させて所定の樹脂を合成する方法。（例えば、前記ラクトン重合体をイソシアネート化合物と反応させてウレタン樹脂を合成する方法。）

(3) 前記ラクトン重合体を添加剤または改質剤として、ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリ塩化ビニル樹脂、アクリロニトリル、スチレン系樹脂などの各樹脂の反応系に添加して縮重合させて上記樹脂を合成する方法。

20

【0063】

(4) 重合性有機化合物としてγ-ブチロラクトン、またはN-メチルピロリドンなどを用いた本発明の液状組成物を調製し、これを溶媒とした混合物中で例えばテトラカルボン酸無水和物類とジアミン、またはテトラカルボン酸無水和物類とジイソシアネートを所定の条件下で反応（一般には80～300の温度）させてポリイミド樹脂（アラミド樹脂）を得る方法。

(5) 重合性有機化合物としてエチレングリコールを用いた本発明の液状組成物を調製し、これにテレフタル酸および/またはジメチルテレフタレートを加えて所定の条件下で反応（一般的には220～290の温度）させて、ポリエチレンテレフレート（PET）を合成する方法。

30

【実施例】

【0064】

[測定方法]

本発明の実施例および比較例で使用した測定方法を以下に示す。

(1) 粒子の平均粒子径

無機酸化物微粒子の水分散ゾル（固形分含有量20重量%）7.0gを長さ3cm、幅2cm、高さ2cmの透過窓付き円柱状ステンレスセルに入れて、動的光散乱法による超微粒子粒度分析装置（Honeywell社製、型式9340-UPA150）を用いて、粒子径分布を測定し、これより平均粒子径を算出する。

40

【0065】

(2) 粒子の比表面積

無機酸化物粒子分散液の乾燥粉体を磁性ルツボ（B-2型）に約30ml採取し、温度300で2時間乾燥後、デシケータに入れて、室温まで冷却する。次に測定用試料を1g採取し、全自動表面積測定装置（湯浅アイオニクス社製、マルチソープ12型）を用いて、比表面積（ m^2/g ）をBET法により測定した。

【0066】

(3) 粒子中に含まれる各金属元素の含有量

(a) チタン、スズおよびケイ素

試料（核粒子または無機酸化物微粒子の水分散液）をジルコニアボールに採取し、乾燥

50

させて水分を除去し、焼成した後、 Na_2O と NaOH を加えて溶融した。さらに、 H_2SO_4 と HCl で溶解し、純水で希釈した後、ICP装置（島津製作所(株)製、ICPS-8100）を用いて、チタン、スズおよびケイ素の含有量（重量％）を酸化物換算基準（ TiO_2 、 SnO_2 および SiO_2 ）で測定した。

(b) ジルコニウム

無機酸化物微粒子の水分散液（試料）を白金皿に採取し、乾燥させて水分を除去し、焼成したのち、 HF と H_2SO_4 を加えて加熱した。さらに、これを HCl で溶解したのち、純水で希釈してICP装置（(株)島津製作所製、ICPS-8100）を用いてジルコニウムの含有量（重量％）を酸化物換算基準（ ZrO_2 ）で測定した。

【0067】

10

(4) 無機酸化物微粒子または核粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の含有量

無機酸化物微粒子または核粒子の水系分散液（アルカリ処理前の核粒子または無機酸化物微粒子の水系分散液であって、必要に応じてイオン交換樹脂などで過剰なアルカリ金属元素を除去したもの）を白金皿に採取し、乾燥させて水分を除去したのち、電気炉を用いて1000℃で1分以上焼成して、 HF と H_2SO_4 を加えて加熱し、 HCl で溶解した。さらに、これを純水で希釈した後、原子吸光装置（(株)日立製作所製、Z-5300）を用いてアルカリ金属元素の含有量（重量％）を酸化物換算基準（ M_2O 、Mはアルカリ金属）で測定した。

【0068】

(5) 無機酸化物微粒子または核粒子の内部およびその表面に含まれるアルカリ金属元素の含有量

20

アルカリ化合物を水系分散液に添加して加熱する処理（アルカリ処理）を行った後の無機酸化物微粒子または核粒子の水系分散液10mLを、超遠心分離機（日立工機株式会社製、CS150GXL）のローター（型式：S140AT、容量：10mL）に連続的に注入し、1,000,000Gにて30分間遠心分離することにより、ローター内で無機酸化物微粒子または核粒子を完全沈降させ水系溶媒と分離した。

上記で沈殿させた無機酸化物微粒子または核粒子のケーキを回収し、上記(4)と同様の方法で無機酸化物微粒子または核粒子の内部およびその表面に含まれるアルカリ金属の含有量を酸化物換算基準（ M_2O 、Mはアルカリ金属）で測定した。

上記の遠心分離工程は、無機酸化物微粒子または核粒子の内部および粒子表面に含まれる固体酸と化合し得なかったアルカリ金属元素、すなわち粒子に含まれず水系溶媒中に残存するアルカリ金属元素を分離する目的で行ったものである。また、上記の溶媒中に残存するアルカリ金属元素の量は、溶媒置換前後で変化しないと仮定し、本発明においては水系分散液中の核粒子または無機酸化物微粒子の内部および表面に含まれるアルカリ金属元素の量は液状組成物中の無機酸化物微粒子の内部および表面に含まれるアルカリ金属元素の量と同じであるとみなした。

30

【0069】

(6) 乾燥組成物の色および明度

実施例および比較例で得られた乾燥組成物の色を目視で観測した。さらに、前記乾燥組成物0.6gをセル中に収納し、光反射型分光光度計（日本電色工業(株)製Spectrophotometer SE2000）を用いて、JIS Z 8729およびCIE 1976 $L^*a^*b^*$ に規定される明度（ L^* ）を測定した。

40

【0070】

(7) 核粒子の結晶形態

核粒子の水分散液を磁性ルツボ（B-2型）に約30mL採取し、110℃12時間乾燥後、デシケータに入れて室温まで冷却する。次に、乳鉢にて15分粉碎後、X線回折装置（理学電気(株)製、RINT1400）を用いて結晶形態を測定した。

【0071】

(8) 粒子中に含まれる固体酸の残量

アルカリ金属を水系分散液に添加して加熱する処理（アルカリ処理）を行った後の無機酸

50

化物微粒子または核粒子の水分散ゾルを磁性ルツボ（Ｂ－２型）に約３０ｍｌ採取し、２００で３時間乾燥後、デシケータに入れて室温まで冷却する。次に、サンプルを１．５ｇ取り、MULTI MICRO CALORIMETER（（株）東京理工製、MMC-511SV）を用いて、フリーの固体酸量（すなわち、固体酸残量）を吸着熱量７０kJ/mol以上におけるアンモニアの吸着量として測定する。これにより、前記無機酸化物微粒子中に存在する固体酸のうち、アルカリ金属元素に吸着されていないものの残量を確認する。

【００７２】

次に、本発明を実施例に基づき具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に記載された範囲に限定されるものではない。なお、以下の実施例および比較例において、単に「無機酸化物微粒子」と表示されている場合については、「チタン酸化物微粒子または少なくともチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子からなる核粒子の表面を、少なくともジルコニウムおよびケイ素を含有する複合酸化物で被覆してなる無機酸化物微粒子」を意味する。

【００７３】

[実施例１]

アナターゼ型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の調製

TiO₂に換算して濃度が７．７５重量％の四塩化チタン（住友チタニウム（株）製）の水溶液９２．３kgと、濃度１５重量％のアンモニア水３５．８kgとを混合して中和したのち、純水によって洗浄し、５３．８kgの含水チタン酸ケーキを得た。

次いで、この含水チタン酸ケーキ５．６２kgに、過酸化水素水（過酸化水素濃度３５重量％、三菱瓦斯化学（株）製）６．２kgと、水１３．６kgとを加えた後、８０で５時間加熱し、TiO₂濃度が２．０重量％の過酸化チタン酸水溶液２５．３kgを得た。

なお、この過酸化チタン酸水溶液は、透明な黄褐色でpHは８．１であった。

【００７４】

次に、動的光散乱法により測定した平均粒子径が１０nmのシリカ微粒子が水に分散してなるシリカゾル（SiO₂濃度が１５重量％、触媒化成工業株式会社製、カタロイドSN-350）７７０gと、前記過酸化チタン酸水溶液２３．１kgおよび純水２８．０kgとを混合し、オートクレーブ（株式会社菱化製作所製）中で１７０、２０時間加熱した。その結果、チタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液を得た。

【００７５】

次いで、得られたチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が１０重量％のチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の水分散液５．４kgを調製した。

この水分散液の外観は透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれるチタンとケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は１１nmであった。また、チタンとケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子のエクス線回折法により測定したところ、その結晶構造は、アナターゼ型であることが分かった。

【００７６】

過酸化ジルコニウム酸水溶液の調製

オキシ塩化ジルコニウム（太陽鋳工（株）製）５．６kgを純水１０．０kgに溶解させて、ZrO₂濃度が２．０重量％のオキシ塩化ジルコニウム水溶液を調製した。このオキシ塩化ジルコニウム水溶液にアンモニア水溶液（濃度１５重量％）を添加し、加水分解させることにより、pH８．５の含水ジルコニウム酸のスラリーを得た。

このスラリーを濾過することにより洗浄し、ZrO₂濃度が１０．０重量％のケーキを得た。そして、このケーキ１．４kgに純水３．６kgを加え、さらにKOH純度８６重量％の水酸化カリウム（関東化学（株）製）０．２７kgを加えてアルカリ性とし、これに過酸化水素水１０．６kg（H₂O₂濃度３５重量％）を加えて、温度５０で加熱することにより溶解させて、ZrO₂としての濃度が２重量％の過酸化ジルコニウム酸水溶液７．２

10

20

30

40

50

kg を調製した。

【0077】

珪酸液の調製

市販の水ガラス（3号水硝子、AGCエスアイテック（株）製）1.7kgを純水で希釈したのち、陽イオン交換樹脂（三菱化学（株）製）で、脱アルカリし、 SiO_2 濃度が2重量%のケイ酸液22.9kgを調製した。なお、このケイ酸水溶液のpHは、2.3であった。

【0078】

無機酸化物微粒子の調製

上記で得られたチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液5.0kgに、純水20.0kgを加えて固形分濃度を2重量%に調整した。そのうち5.0kgをピーカに移し、温度90℃に加熱した。これに前記過酸化ジルコニウム酸水溶液（ ZrO_2 濃度2重量%）1.188kgと、前記ケイ酸液（ SiO_2 濃度2重量%）3.563kgを添加し、混合溶液を調製した。

次いで、前記混合溶液をオートクレーブに入れて、温度170℃で18時間、加熱処理を行った。その結果、前記チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の表面に、ジルコニウムとケイ素を含有する複合酸化物が被覆されてなる無機酸化物微粒子の水分散液を得た。

【0079】

次いで、得られた無機酸化物微粒子の水分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が10重量%の無機酸化物微粒子の水分散液5.8kgを調製した。この水分散液の外観は淡青白色であり、また、該水分散液中に分散した複合酸化物粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は13nmであり、BET法により測定した比表面積は221m²/gであった。

次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液3.0kgに、陽イオン交換樹脂（三菱化学（株）製）75.0gを加えて攪拌したのち陽イオン交換樹脂を分離して、イオン交換処理された無機酸化物微粒子の水分散液（固形分濃度10重量%）を得た。この無機酸化物微粒子に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（4）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で1.4重量%であった。この量を無機酸化物微粒子の内部に含まれるカリウム元素の量とした。

【0080】

次いで、水酸化カリウム（関東化学株式会社製）を溶解した8重量%濃度の水酸化カリウム水溶液25.1gを上記の無機酸化物微粒子の水分散液（3.0kg）に添加し、温度50℃で1時間加熱した。（アルカリ処理）次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液を、室温まで冷却した。

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液25.1gに含まれるカリウム元素は K_2O 換算で3.37gであり、上記の無機酸化物微粒子の重量300gと、添加された K_2O の重量3.37gの合計量に対して添加された K_2O が占める割合は1.11重量%であった。このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子）に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で2.5重量%であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0.11mmol/gであった。

【0081】

液状組成物の調製

次いで、前記前記無機酸化物微粒子の水分散液中にエチレングリコール2.2kgを添加し、ロータリーエバポレーターを用いて、分散媒を水からエチレングリコールに置換し、固形分濃度が12重量%の無機酸化物微粒子がエチレングリコールに分散してなる液状組成物2.5kgを調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は13nmであった。

【0082】

10

20

30

40

50

乾燥組成物 (1) の調製

前記液状組成物 10 . 0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220 、大気圧中で 1 時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物 1 . 1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調は黄色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度 (L^*) は 59 . 6 であった。

【 0083 】

[実施例 2]

無機酸化物微粒子の調製

実施例 1 に示す無機酸化物微粒子の調製工程において、イオン交換処理された前記無機酸化物微粒子の水分散液 (3 . 0 k g) に添加する水酸化カリウム水溶液 (8 重量 %) の添加量を 25 . 1 g から 84 . 7 g に変更した以外は、実施例 1 と同様の方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液 84 . 7 g に含まれるカリウム元素は K_2O 換算で 11 . 37 g であり、上記の無機酸化物微粒子の重量 300 g と、添加された K_2O の重量 11 . 37 g の合計量に対して添加された K_2O が占める割合は 3 . 65 重量 % であった。

このようにして得られた無機酸化物微粒子 (すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子) に含まれるカリウム元素の含有量を、上記 (5) に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で 5 . 0 重量 % であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0 . 04 mmol / g であった。

【 0084 】

液状組成物の調製

実施例 1 と同様な方法で、無機酸化物微粒子をエチレングリコールに分散してなる液状組成物 (固形分濃度 12 重量 %) を調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は 13 nm であった。

【 0085 】

乾燥組成物 (2) の調製

前記液状組成物 10 . 0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220 、大気圧中で 1 時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物 1 . 1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調はクリーム色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度 (L^*) は 70 . 4 であった。

【 0086 】

[実施例 3]

無機酸化物微粒子の調製

実施例 1 に示す無機酸化物微粒子の調製工程において、イオン交換処理された前記無機酸化物微粒子の水分散液 (3 . 0 k g) に添加する水酸化カリウム水溶液 (8 重量 %) の添加量を 25 . 1 g から 94 . 5 g に変更した以外は、実施例 1 と同様の方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液 94 . 5 g に含まれるカリウム元素は K_2O 換算で 12 . 69 g であり、上記の無機酸化物微粒子の重量 300 g と、添加された K_2O の重量 12 . 69 g の合計量に対して添加された K_2O が占める割合は 4 . 06 重量 % であった。

このようにして得られた無機酸化物微粒子 (すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子) に含まれるカリウム元素の含有量を、上記 (5) に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で 5 . 4 重量 % であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体

酸残量を上記に示す方法で測定したところ、 0.03 mmol/g であった。

【0087】

液状組成物の調製

実施例1に示す液状組成物の調製工程において、重合性有機化合物をエチレングリコールから γ -ブチロラクトンに変更した以外は実施例1と同様の方法で、無機酸化物微粒子を γ -ブチロラクトンに分散してなる液状組成物（固形分濃度12重量%）を得た。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は13nmであった。

【0088】

乾燥組成物（3）の調製

前記液状組成物10.0gを磁性ルツボに入れて、温度220、大気圧中で1時間、処理して γ -ブチロラクトンを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物1.1gを得た。

この乾燥組成物の外観色調は白色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（ L^* ）は72.8であった。

【0089】

[実施例4]

無機酸化物微粒子の調製

実施例1に示す無機酸化物微粒子の調製工程と同様な方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子）に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で2.5重量%であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、 0.11 mmol/g であった。

【0090】

液状組成物の調製

次いで、 γ -(メタクリロキシプロピル)トリメトキシシラン（信越化学工業（株）製）0.07kgを溶解したメタノール溶液3.0kgに上記の無機酸化物微粒子の水分散液をそれぞれ添加した後、50の温度で3時間加熱した。

次に、この水分散液を室温まで冷却してから、限外濾過膜装置を用いて分散媒を水からメタノールに置換した。

さらに、得られたメタノール分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が10重量%のチタニウム・ケイ素複合酸化物粒子のメタノール分散液2.9kgを調製した。

上記で得られたチタニウム・ケイ素・ジルコニウム複合酸化物粒子のメタノール分散液2.9kgにメタクリル酸メチル2.4kgを添加した後、ロータリーエバポレーターを用いて分散媒を水からエチレングリコールに置換して固形分濃度が12重量%のチタニウム・ケイ素・ジルコニウム複合酸化物粒子のメタクリル酸メチル分散液2.5kgを調製した。このメタクリル酸メチル分散液の外観は、透明な淡青白色であり、また該分散液に含まれる複合酸化物粒子の平均粒子径は13nmであった。

【0091】

乾燥組成物（4）の調製

前記液状組成物10.0gを磁性ルツボに入れて、温度220、大気圧中で1時間、処理してメタクリル酸メチルを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物1.1gを得た。

この乾燥組成物の外観色調は淡い白色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（ L^* ）は73.2であった。

【0092】

[実施例5]

無機酸化物微粒子の調製

実施例 1 に示す無機酸化物微粒子の調製工程において、イオン交換処理された前記無機酸化物微粒子の水分散液 (3 . 0 k g) に、水酸化カリウム水溶液 (8 重量 %) の添加量を 2 5 . 1 g を添加することに代えて、水酸化ナトリウム (関東化学株式会社製) を溶解した 8 重量 % 水酸化ナトリウム溶液 1 6 . 6 g を添加した以外は実施例 1 と同様の方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

ここで、添加された水酸化ナトリウム水溶液 1 6 . 6 g に含まれるナトリウム元素は Na_2O 換算で 2 . 0 6 g であり、上記の無機酸化物微粒子の重量 3 0 0 g と、添加された K_2O の重量 2 . 0 6 g の合計量に対して添加された Na_2O が占める割合 0 . 6 8 重量 % であった。このようにして得られた無機酸化物微粒子 (すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子) に含まれるカリウム元素およびナトリウム元素の含有量を、それぞれ上記に示す方法で測定したところ、前者が K_2O 換算基準で 1 . 3 9 重量 % であり、後者が Na_2O 換算基準で 0 . 6 8 重量 % であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、 0 . 2 5 m m o l / g であった。

【 0 0 9 3 】

液状組成物の調製

実施例 1 に示す液状組成物の調製工程と同様な方法で、無機酸化物微粒子をエチレングリコールに分散してなる液状組成物 (固形分濃度 1 2 重量 %) を得た。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は 1 3 n m であった。

【 0 0 9 4 】

乾燥組成物 (5) の調製

前記液状組成物 1 0 . 0 g を磁性ルツボに入れて、温度 2 2 0 、大気圧中で 1 時間、処理してメタクリル酸メチルを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物 1 . 1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調は淡い白色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度 (L^*) は 5 1 . 6 であった。

【 0 0 9 5 】

[実施例 6]

ルチル型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子 (核粒子) の調製

TiO_2 に換算して濃度が 7 . 7 5 重量 % の四塩化チタン (住友チタニウム (株) 製) の水溶液 9 3 . 7 k g と、濃度 1 5 重量 % のアンモニア水 3 6 . 3 k g とを混合して中和したのち、純水によって洗浄し、 5 4 . 6 k g の含水チタン酸ケーキを得た。

次いで、この含水チタン酸ケーキ 5 . 5 5 k g に、過酸化水素水 (過酸化水素濃度 3 5 重量 % 、三菱瓦斯化学 (株) 製) 6 . 1 k g と、水 1 3 . 4 k g とを加えた後、 8 0 で 5 時間加熱し、 TiO_2 濃度が 2 . 0 重量 % の過酸化チタン酸水溶液 2 5 . 0 k g を得た。

なお、この過酸化チタン酸水溶液は、透明な黄褐色で p H は 8 . 1 であった。

【 0 0 9 6 】

次に、この過酸化チタン酸水溶液に、 SnO_2 換算基準で 6 2 . 5 g を含むように調製した濃度 1 . 0 2 重量 % のスズ酸カリウム水溶液 1 2 . 0 k g を添加して、攪拌により混合したのち、陽イオン交換樹脂を用いて脱アルカリ処理してチタン酸・スズ酸の混合溶液を得た。

次いで、動的光散乱法により測定した平均粒子径が 1 0 n m のシリカ微粒子が水に分散してなるシリカゾル (SiO_2 濃度が 1 5 重量 % のシリカゾル、触媒化成工業 (株) 製、カタロイド S N - 3 5 0) 3 7 7 g と、前記チタン酸・スズ酸混合溶液 2 2 . 5 k g および純水 1 7 . 0 k g とを混合し、オートクレーブ ((株) 菱化製作所製) 中で 1 7 0 、 2 0 時間加熱した。その結果、チタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液を得た。

【 0 0 9 7 】

次いで、得られたチタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の

水系分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が10重量%のチタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の水分散液3.2kgを調製した。

この水分散液の外観は透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれるチタンとケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は16nmであった。

また、チタンとケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子のエクス線回折法により測定したところ、その結晶構造は、ルチル型であることが分かった。

【0098】

無機酸化物微粒子の調製

上記で得られたチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液3.0kgに、純水12.0kgを加えて固形分濃度を2重量%に調整した。そのうち3.0kgをビーカーに移し、温度90℃に加熱した。これに実施例1で調製した過酸化ジルコン酸水溶液（ZrO₂濃度2重量%）530gと、ケイ酸液（SiO₂濃度2重量%）160gを添加し、混合溶液を調製した。

次いで、前記混合溶液をオートクレーブに入れて、温度170℃で18時間、加熱処理を行った。その結果、前記チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の表面に、ジルコニウムとケイ素を含有する複合酸化物が被覆されてなる無機酸化物微粒子の水分散液を得た。

【0099】

次いで、得られた無機酸化物微粒子の水分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が10重量%の無機酸化物微粒子の水分散液3.5kgを調製した。この水分散液の外観は淡青白色であり、また、該水分散液中に分散した複合酸化物粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は16nmであり、BET法により測定した比表面積は226m²/gであった。

次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液3.0kgに、陽イオン交換樹脂（三菱化学（株）製）75.0gを加えて攪拌したのち、陽イオン交換樹脂を分離して、イオン交換処理された無機酸化物微粒子の水分散液（固形分濃度10重量%）を得た。この無機酸化物微粒子に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（4）に示す方法で測定したところ、K₂O換算基準で2.4重量%であった。この量を無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の量とした。

【0100】

次いで、水酸化カリウム（関東化学株式会社製）を溶解した8重量%濃度の水酸化カリウム水溶液11.4gを上記の無機酸化物微粒子の水分散液（3.0kg）に添加し、温度50℃で1時間加熱した。次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液を、室温まで冷却した。（アルカリ処理）

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液11.4gに含まれるカリウム元素はK₂O換算で1.53gであり、上記の無機酸化物微粒子の重量300gと、添加されたK₂Oの重量1.53gの合計量に対して添加されたK₂Oが占める割合は0.51重量%であった。

このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、核粒子および被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子）に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、K₂O換算基準で2.9重量%であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0.20mmol/gであった。

【0101】

液状組成物の調製

次いで、前記無機酸化物微粒子の水分散液中にエチレングリコール2.2kgを添加し、ロータリーエバポレーターを用いて、分散媒を水からエチレングリコールに置換し、固形分濃度が12重量%の無機酸化物微粒子がエチレングリコールに分散してなる液状組成物2.5kgを調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は16nmであった。

【 0 1 0 2 】

乾燥組成物 (6) の調製

前記液状組成物 10 . 0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220 、大気圧中で 1 時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物 1 . 1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調はクリーム色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度 (L^*) は 64 . 0 であった。

【 0 1 0 3 】

[実施例 7]

ルチル型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子 (核粒子) の調製

TiO₂ に換算して濃度が 7 . 75 重量 % の四塩化チタン (住友チタニウム (株) 製) の水溶液 93 . 7 kg と、濃度 15 重量 % のアンモニア水 36 . 3 kg とを混合して中和したのち、純水によって洗浄し、54 . 6 kg の含水チタン酸ケーキを得た。

次いで、この含水チタン酸ケーキ 5 . 55 kg に、過酸化水素水 (過酸化水素濃度 35 重量 % 、三菱瓦斯化学 (株) 製) 6 . 1 kg と、水 13 . 4 kg とを加えた後、80 で 5 時間加熱し、TiO₂ 濃度が 2 . 0 重量 % の過酸化チタン酸水溶液 25 . 0 kg を得た。

なお、この過酸化チタン酸水溶液は、透明な黄褐色で pH は 8 . 1 であった。

【 0 1 0 4 】

次に、この過酸化チタン酸水溶液に、SnO₂ 換算基準で 62 . 5 g を含むように調製した濃度 1 . 02 重量 % のスズ酸カリウム水溶液 12 . 0 kg を添加して、攪拌により混合したのち、陽イオン交換樹脂を用いて脱アルカリ処理してチタン酸・スズ酸の混合溶液を得た。

次いで、動的光散乱法により測定した平均粒子径が 10 nm のシリカ微粒子が水に分散してなるシリカゾル (SiO₂ 濃度が 15 重量 % のシリカゾル、触媒化成工業 (株) 製、カタロイド SN - 350) 297 g と、前記チタン酸・スズ酸混合溶液 23 . 5 kg および純水 17 . 0 kg とを混合し、オートクレーブ ((株) 菱化製作所製) 中で 170 、20 時間加熱した。その結果、チタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液を得た。

【 0 1 0 5 】

次いで、得られたチタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の水系分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が 10 重量 % のチタンおよびケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の水分散液 3 . 2 kg を調製した。

この水分散液の外観は透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれるチタンとケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は 16 nm であった。また、チタンとケイ素およびスズを含有するチタン系複合酸化物微粒子のエクス線回折法により測定したところ、その結晶構造は、ルチル型であることが分かった。

【 0 1 0 6 】

無機酸化物微粒子の調製

上記で得られたチタン系複合酸化物微粒子 (核粒子) の水分散液 3 . 0 kg に、純水 12 . 0 kg を加えて固形分濃度を 2 重量 % に調整した。そのうち 3 . 0 kg をビーカーに移し、温度 90 に加熱した。これに実施例 1 で調製したものと同様の過酸化ジルコニウム酸水溶液 (ZrO₂ 濃度 2 重量 %) 188 g と、ケイ酸液 (SiO₂ 濃度 2 重量 %) 563 g を添加し、混合溶液を調製した。

次いで、前記混合溶液をオートクレーブに入れて、温度 170 で 18 時間、加熱処理を行った。その結果、前記チタン系複合酸化物微粒子 (核粒子) の表面に、ジルコニウムとケイ素を含有する複合酸化物が被覆されてなる無機酸化物微粒子の水分散液を得た。

【 0 1 0 7 】

次いで、得られた無機酸化物微粒子の水分散液を限外濾過膜装置で濃縮して、固形分濃度が 10 重量 % の無機酸化物微粒子の水分散液 3 . 5 kg を調製した。この水分散液の外観

10

20

30

40

50

は淡青白色であり、また、該水分散液中に分散した複合酸化物粒子の動的光散乱法により測定された平均粒子径は16nmであり、BET法により測定した比表面積は228m²/gであった。

次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液3.0kgに、陽イオン交換樹脂（三菱化学（株）製）75.0gを加えて攪拌して、脱アルカリ処理された無機酸化物微粒子の水分散液（固形分濃度10重量%）を得た。この無機酸化物微粒子に含まれるカリウム元素濃度を、上記（4）に示す方法で測定したところ、K₂O換算基準で2.8重量%であった。

【0108】

次いで、水酸化カリウム（関東化学株式会社製）を溶解した8重量%濃度の水酸化カリウム水溶液27.1gを上記の無機酸化物微粒子の水分散液（3.0kg）に添加し、温度50で1時間加熱した。次に、前記無機酸化物微粒子の水分散液を、室温まで冷却した。（アルカリ処理）

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液27.1gに含まれるカリウム元素はK₂O換算で3.64gであり、上記の無機酸化物微粒子の重量300gと、添加されたK₂Oの重量3.64gの合計量に対して添加されたK₂Oが占める割合は1.20重量%であった。

このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、核粒子および被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子）に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、K₂O換算基準で4.0重量%であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0.05mmol/gであった。

【0109】

液状組成物の調製

次いで、前記無機酸化物微粒子の水分散液中にエチレングリコール2.2kgを添加し、ロータリーエバポレーターを用いて、分散媒を水からエチレングリコールに置換し、固形分濃度が12重量%の無機酸化物微粒子がエチレングリコールに分散してなる液状組成物2.5kgを調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は16nmであった。

【0110】

乾燥組成物（7）の調製

前記液状組成物10.0gを磁性ルツボに入れて、温度220、大気圧中で1時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物1.1gを得た。

この乾燥組成物の外観色調はクリーム色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（L*）は71.6であった。

【0111】

[比較例1]

アナターゼ型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の調製

実施例1の「アナターゼ型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子を含むチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の調製」と同様の方法で固形分濃度が10重量%のチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液5.3kgを調製した。この水分散液の外観は透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれる複合酸化物粒子の動的光散乱法で測定した平均粒子径は10nmであった。なお、酸化チタン系粒子のX線回折により測定した結晶構造は、アナターゼ型であった。

【0112】

上記で得られたチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液3.0kgに陽イオン交換樹脂（三菱化学（株）製）75.0gを加えて攪拌したのち、陽イオン交換樹脂を分離して、イオン交換処理されたチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液を得た。このチタン系複合酸化物微粒子について、上記（4）に示す方法でカリウム元素の含有量（K₂O換算基準）を測定したところ、0.0重量%であっ

た。さらに、このチタン系複合酸化物微粒子（アルカリ金属元素を含まない核粒子）中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、 0.48 mmol/g であった。

【0113】

液状組成物の調製

次に、前記チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液にエチレングリコール 2.2 K g を添加した後、ロータリーエバポレーターを用いて分散媒を水からエチレングリコールに置換して固形分濃度が 12 重量%のチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）がエチレングリコールに分散してなる液状組成物 2.5 k g を調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれるチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の動的光散乱法により測定した平均粒子径は 10 nm であった。

10

【0114】

乾燥組成物（8）の調製

前記液状組成物 10.0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220°C 、大気圧中で 1 時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）を含む乾燥組成物 1.1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調はクリーム色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（ L^* ）は 26.9 であった。

【0115】

[比較例 2]

20

アナターゼ型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の調製

実施例 1 の「アナターゼ型結晶構造を有するチタン系複合酸化物微粒子を含むチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の調製」と同様の方法で固形分濃度が 10 重量%のチタンおよびケイ素を含有するチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液 5.3 k g を調製した。この水分散液の外観は透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれる複合酸化物粒子の動的光散乱法で測定した平均粒子径は 10 nm であった。なお、酸化チタン系粒子の X 線回折により測定した結晶構造は、アナターゼ型であった。次いで、水酸化カリウム（関東化学（株）製）を溶解した 8 重量%水酸化カリウム水溶液 127.5 g を上記の水分散液（3.0 k g）に添加した後、 50°C の温度で 1 時間加熱した。（アルカリ処理）次に、前記チタン系複合酸化物微粒子の水分散液を、室温まで冷却した。

30

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液 127.5 g に含まれるカリウム元素は K_2O 換算で 17.12 g であり、上記の無機酸化物微粒子の重量 300 g と、添加された K_2O の重量 17.12 g の合計量に対して添加された K_2O が占める割合は 5.40 重量%であった。

【0116】

このようにして得られたチタン系複合酸化物微粒子（すなわち、アルカリ金属元素を含まない核粒子表面に上記アルカリ処理によってアルカリ金属イオンを吸着させた粒子に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で 5.4 重量%であった。さらに、このチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、 0.08 mmol/g であった。

40

【0117】

液状組成物の調製

次に、前記チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の水分散液にエチレングリコール 2.2 K g を添加した後、ロータリーエバポレーターを用いて分散媒を水からエチレングリコールに置換して固形分濃度が 12 重量%のチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）がエチレングリコールに分散してなる液状組成物 2.5 k g を調製した。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該分散液中に含まれるチタン系複合酸化物微粒子（核粒子）の動的光散乱法により測定した平均粒子径は 10 nm であった。

【0118】

乾燥組成物（9）の調製

50

前記液状組成物 10.0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220、大気圧中で 1 時間、処理してエチレングリコールを蒸発させることにより、チタン系複合酸化物微粒子（核粒子）を含む乾燥組成物 1.1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調はクリーム色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（ L^* ）は 41.1 であった。

【0119】

[比較例 3]

実施例 1 に示す無機酸化物微粒子の調製工程において、イオン交換処理された前記無機酸化物微粒子の水分散液（3.0 kg）に添加する水酸化カリウム水溶液（8 重量％）の添加量を 25.1 g から 0.0 g に変更した以外は、実施例 1 と同様の方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（4）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で 1.4 重量％であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0.34 mmol / g であった。

【0120】

液状組成物の調製

実施例 1 に示す液状組成物の調製工程と同様な方法で、無機酸化物微粒子をエチレングリコールに分散してなる液状組成物（固形分濃度 12 重量％）を得た。この液状組成物の外観は、透明な淡青白色であり、また該液状組成物中に含まれる無機酸化物微粒子の平均粒子径は 13 nm であった。

【0121】

乾燥組成物（10）の調製

前記液状組成物 10.0 g を磁性ルツボに入れて、温度 220、大気圧中で 1 時間、処理して γ -ブチロラクトンを蒸発させることにより、無機酸化物微粒子を含む乾燥組成物 1.1 g を得た。

この乾燥組成物の外観色調は白色を呈しており、上記に示す方法で測定された明度（ L^* ）は 40.1 であった。

【0122】

[比較例 4]

実施例 1 に示す無機酸化物微粒子の調製工程において、イオン交換処理された前記無機酸化物微粒子の水分散液（3.0 kg）に添加する水酸化カリウム水溶液（8 重量％）の添加量を 25.1 g から 160.3 g に変更した以外は、実施例 1 と同様の方法で、無機酸化物微粒子の水分散液を調製した。

ここで、添加された水酸化カリウム水溶液 160.3 g に含まれるカリウム元素は K_2O 換算で 21.53 g であり、上記の無機酸化物微粒子の重量 300 g と、添加された K_2O の重量 21.53 g の合計量に対して添加された K_2O が占める割合は 6.70 重量％であった。

このようにして得られた無機酸化物微粒子（すなわち、被覆層にアルカリ金属元素を含む無機酸化物微粒子表面に上記アルカリ処理によって更にアルカリ金属イオンを吸着させた粒子）に含まれるカリウム元素の含有量を、上記（5）に示す方法で測定したところ、 K_2O 換算基準で 5.0 重量％であった。さらに、この無機酸化物微粒子中に含まれる固体酸残量を上記に示す方法で測定したところ、0.06 mmol / g であった。

【0123】

液状組成物の調製

実施例 1 に示す液状組成物の調製工程と同様な方法で、無機酸化物微粒子をエチレングリコールに分散してなる液状組成物（固形分濃度 12 重量％）を得た。この液状組成物の外観は、白濁しており、前記無機酸化物微粒子は凝集してゲル状となっていた。

乾燥組成物（11）の調製

上記の液状組成物がゲル状物となっていたため、乾燥組成物の調製は行わなかった。

【 0 1 2 4 】

上記の実施例 1 ～ 7 および比較例 1 ～ 4 に示す各データの比較を容易にするため、前記液状組成物の調製に係わるデータを以下の表 1 および表 2 に示し、また前記液状組成物または該液状組成物に含まれる成分の性状に係わるデータを以下の表 3 に示す。

【 0 1 2 5 】

【 表 1 】

	アルカリ処理前の無機酸化物微粒子または核粒子							
	構造		平均 粒 子 径 (nm)	組成(酸化物換算)				
	コアシェル	結晶構造		TiO ₂ (%)	SiO ₂ (%)	SnO ₂ (%)	ZrO ₂ (%)	K ₂ O(%) (注1)
実施例1	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
実施例2	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
実施例3	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
実施例4	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
実施例5	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
実施例6	コア／シェル	ルチル	16	66.7	20.36	9.07	1.46	2.4
実施例7	コア／シェル	ルチル	16	57.0	28.35	7.67	4.18	2.8
比較例1	コアのみ	アナターゼ	10	81.8	18.2	0	0	0
比較例2	コアのみ	アナターゼ	10	81.8	18.2	0	0	0
比較例3	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4
比較例4	コア／シェル	アナターゼ	13	49.8	35.6	0	13.2	1.4

(注1) 無機酸化物微粒子の内部に含まれるアルカリ金属元素の量
(比較例 1、2 においては核粒子中のみ)

【 0 1 2 6 】

10

20

30

【表 2】

	アルカリ処理工程で粒子の水分散液に添加する アルカリ金属化合物			アルカリ処理後の 無機酸化物微粒子または核粒子	
	種類	添加量 (g)	粒子に対する 添加量 (酸化物基準 で粒子に対する 重量%)	アルカリ処理後の 粒子内部および表面のアル カリ金属元素量 (重量%) (酸化物 基準)	無機酸化物 微粒子中の 固体酸残量 mmol/g
実施例1	8 重量%水酸化カリウム水溶液	25.1	1.11	2.5	0.11
実施例2	8 重量%水酸化カリウム水溶液	84.7	3.65	5.0	0.04
実施例3	8 重量%水酸化カリウム水溶液	94.5	4.06	5.4	0.03
実施例4	8 重量%水酸化カリウム水溶液	25.1	1.11	2.5	0.11
実施例5	8 重量%水酸化ナトリウム水溶液	16.6	0.68	2.1(注2)	0.25
実施例6	8 重量%水酸化カリウム水溶液	11.4	0.51	2.9	0.2
実施例7	8 重量%水酸化カリウム水溶液	27.1	1.20	4.0	0.05
比較例1	—	0	0.00	0.0	0.48
比較例2	8 重量%水酸化カリウム水溶液	127.5	5.40	5.4	0.08
比較例3	—	0	0.00	1.4	0.34
比較例4	8 重量%水酸化カリウム水溶液	160.3	6.70	5.0	0.06

(注2) KとNaの合計量

【 0 1 2 7 】

【表 3】

	液状組成物または液状組成物に含ま れる成分の性状		液状組成物の乾燥組成物	
	重合性有機化合物 の種類	アルカリ金属 の種類	外観色調	明度L*
実施例1	エチレングリコール	K	黄色	59.6
実施例2	エチレングリコール	K	クリーム色	70.4
実施例3	γ-ブチロラクトン	K	白色	72.8
実施例4	メタクリル酸メチル	K	白色	73.2
実施例5	エチレングリコール	KおよびNa	黄色	51.6
実施例6	エチレングリコール	K	クリーム色	64.0
実施例7	エチレングリコール	K	クリーム色	71.6
比較例1	エチレングリコール	—	黒	26.9
比較例2	エチレングリコール	K	茶	41.1
比較例3	エチレングリコール	—	茶	40.1
比較例4	エチレングリコール	K	—(ゲル化)	—(ゲル化)

フロントページの続き

F ターム(参考) 4G047 CA01 CA06 CB05 CB09 CC02 CD04
4G048 AA03 AB06 AC02 AC08 AD04 AE05
4G072 AA35 AA37 AA38 BB05 GG02 HH18 HH21 QQ09 TT01 TT06
UU07
4J002 AA011 AA021 BC021 BD031 BG061 BG091 CF001 CF061 CF191 CG001
CK021 CM041 DJ006 DJ016 FB076 GG02 GK00 GL00 GQ00