



(21) 申請案號：112135070

(22) 申請日：中華民國 112 (2023) 年 09 月 14 日

(51) Int. Cl. :

C08L33/10 (2006.01)

C08K5/01 (2006.01)

C08K5/09 (2006.01)

C08K5/10 (2006.01)

C08K5/3462 (2006.01)

C09D133/10 (2006.01)

C09D7/63 (2018.01)

C09D5/03 (2006.01)

C09D11/106 (2014.01)

C09D11/03 (2014.01)

C09J133/10 (2006.01)

C09J11/06 (2006.01)

(30) 優先權：2022/10/04 日本

2022-159909

(71) 申請人：日商三菱化學股份有限公司 (日本) MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION

(JP)

日本

(72) 發明人：佐藤陽 SATO, AKIRA (JP)；金子朝子 KANEKO, ASAKO (JP)；木場裕美子 KOBAYASHI, YUMIKO (JP)；松下直樹 MATSUSHITA, NAOKI (JP)

(74) 代理人：陳長文

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：23 項 圖式數：0 共 43 頁

(54) 名稱

粒狀組合物、塗料、墨水及接著劑

(57) 摘要

本發明係一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且藉由下述方法求出之組合物之帶電抑制率為 90.0 ~ 99.9%。

(a) 具有 α 氫之酯化合物、

(b) 芳香族羧酸、或其酯、

(c) 吡化合物、

(d) 丙酮酸、或其酯、

(e) α -烯烴

依據 JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定上述組合物之鬆密度(A)、及於上述組合物每 100 mL 中添加抗靜電劑 0.1 g 並混合而成之混合物之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。

帶電抑制率(%) = [鬆密度(A)/鬆密度(B)] × 100 · · · 式(1)。

【發明摘要】

【中文發明名稱】

粒狀組合物、塗料、墨水及接著劑

【中文】

本發明係一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且藉由下述方法求出之組合物之帶電抑制率為90.0~99.9%。

(a)具有 α 氫之酯化合物、

(b)芳香族羧酸、或其酯、

(c)吡啶化合物、

(d)丙酮酸、或其酯、

(e) α -烯烴

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定上述組合物之鬆密度(A)、及於上述組合物每100 mL中添加抗靜電劑0.1 g並混合而成之混合物之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。

帶電抑制率(%)=[鬆密度(A)/鬆密度(B)] \times 100 . . . 式(1)。

【指定代表圖】

無

【代表圖之符號簡單說明】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

粒狀組合物、塗料、墨水及接著劑

【技術領域】

【0001】

本發明係關於一種包含丙烯酸系樹脂之粒狀組合物、塗料、墨水及接著劑。

本案基於2022年10月4日於日本提出申請之特願2022-159909號而主張優先權，並將其內容援引於此。

【先前技術】

【0002】

丙烯酸系樹脂由於透明性與耐候性優異，故被用於各種領域。丙烯酸系樹脂之中，粒狀丙烯酸系樹脂相較於使丙烯酸系樹脂溶解或分散於水系溶劑或非水系溶劑而成之液態丙烯酸系樹脂，每單位體積可保管之樹脂量較多。因此，粒狀丙烯酸系樹脂相較於液態丙烯酸系樹脂，保管或運輸所需之能源成本較低，保管或運輸時之環境負荷較小。因此，於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等廣泛領域中使用。

【0003】

然而，粒狀丙烯酸系樹脂由於導電性較低、比表面積較大，故具有易於帶電之性質。帶電之粒狀丙烯酸系樹脂由於流動性降低，故例如於將粒狀丙烯酸系樹脂投入至調配容器內時，於其操作性方面存在問題。

【0004】

作為提昇粒狀丙烯酸系樹脂之流動性之方法，於專利文獻1中，提出有一種於懸浮聚合後將顆粒狀聚合物利用溶解有電解質之水洗淨之方法。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本專利特開2003-306512號公報

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

【0006】

然而，藉由專利文獻1記載之方法獲得之粒狀丙烯酸系樹脂由於耐熱性較低，故於用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等要求耐熱性之各種用途時存在問題。

【0007】

本發明之目的在於提供一種包含丙烯酸系樹脂之耐熱性與流動性優異之粒狀組合物、以及使用其之塗料、墨水及接著劑。

[解決問題之技術手段]

【0008】

本發明將以下[1]~[23]作為主旨。

[1]一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且藉由下述方法求出之組合物之帶電抑制率為90.0~99.9%。

(a)具有 α 氫之酯化合物、

- (b) 芳香族羧酸、或其酯、
- (c) 吡啶化合物、
- (d) 丙酮酸、或其酯、
- (e) α -烯烴

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定上述組合物之鬆密度(A)、及於上述組合物每100 mL中添加抗靜電劑0.1 g並混合而成之混合物之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。

$$\text{帶電抑制率(\%)} = [\text{鬆密度(A)}/\text{鬆密度(B)}] \times 100 \cdots \text{式(1)}。$$

[2]一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且鈉元素量為0.2質量ppm以上200質量ppm以下。

- (a) 具有 α 氫之酯化合物、
- (b) 芳香族羧酸、或其酯、
- (c) 吡啶化合物、
- (d) 丙酮酸、或其酯、
- (e) α -烯烴。

[3]如[1]或[2]所記載之粒狀組合物，其包含上述(b)、上述(c)及上述(d)中之一種以上之化合物。

[4]如[1]至[3]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(a)於101.3 kPa下之沸點為93°C以上。

[5]如[1]至[4]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(e)之碳數為6以上12以下。

[6]如[1]至[5]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(a)、上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)之合計含量大於20質量ppm且為3000質量ppm以下。

[7]如[1]至[6]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)之合計含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

[8]如[1]至[7]中任一項所記載之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)中之兩種以上。

[9]如[1]至[8]中任一項所記載之粒狀組合物，其包含上述(a)、以及上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)中之一種以上。

[10]如[1]至[9]中任一項所記載之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(c)、上述(d)及上述(e)中之一種以上、以及上述(b)。

[11]如[1]至[10]中任一項所記載之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(b)、上述(d)及上述(e)中之一種以上、以及上述(c)。

[12]如[1]至[11]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(a)之含量大於20質量ppm且為3000質量ppm以下。

[13]如[1]至[12]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(b)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

[14]如[1]至[13]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(c)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

[15]如[1]至[14]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(d)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

[16]如[1]至[15]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述(e)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

[17]如[1]至[16]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自甲基丙烯酸甲酯之結構單元。

[18]如[1]至[17]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元。

[19]如[1]至[18]中任一項所記載之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自 α,β -不飽和羧酸之結構單元。

[20]如[1]至[19]中任一項所記載之粒狀組合物，其中鈉元素量為0.2質量ppm以上200質量ppm以下。

[21]一種塗料，其包含如上述[1]至[20]中任一項所記載之粒狀組合物。

[22]一種墨水，其包含如上述[1]至[20]中任一項所記載之粒狀組合物。

[23]一種接著劑，其包含如上述[1]至[20]中任一項所記載之粒狀組合物。

[發明之效果]

【0009】

根據本發明，可提供一種包含丙烯酸系樹脂之耐熱性與流動性優異之粒狀組合物、以及使用其之塗料、墨水及接著劑。

【實施方式】

【0010】

本發明中，「(甲基)丙烯酸」係指「丙烯酸」及「甲基丙烯酸」之總稱。「(甲基)丙烯酸酯」係指「丙烯酸酯」及「甲基丙烯酸酯」之總稱。

本說明書中，亦將化合物(a)、化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及

化合物(e)記載為「化合物(a)~(e)」，亦將化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)記載為「化合物(b)~(e)」。

本說明書中，組合物中之鈉元素量(質量ppm)係指鈉元素(Na)相對於組合物之總質量之質量比率，組合物中之化合物之含量(質量ppm)係指化合物相當於組合物之總質量之質量比率。以下，亦將「質量ppm」簡稱為「ppm」。

【0011】

本發明之第一實施方式之粒狀組合物(以下亦記載為「組合物(1)」)包含(a)具有 α 氫之酯化合物(以下亦記載為「化合物(a)」)、(b)芳香族羧酸、或其酯(以下亦記載為「化合物(b)」)、(c)吡啶化合物(以下亦記載為「化合物(c)」)、(d)丙酮酸、或其酯(以下亦記載為「化合物(d)」)及(e) α -烯烴(以下亦記載為「化合物(e)」)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且藉由下述方法求出之組合物之帶電抑制率為90.0~99.9%。

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定上述組合物之鬆密度(A)、及於上述組合物每100 mL中添加抗靜電劑0.1 g並混合而成之混合物之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。

$$\text{帶電抑制率(\%)} = [\text{鬆密度(A)}/\text{鬆密度(B)}] \times 100 \cdots \text{式(1)}。$$

【0012】

本發明之第二實施方式之粒狀組合物(以下亦記載為「組合物(2)」)包含化合物(a)、化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且鈉元素量為0.2 ppm以上200 ppm以下。

【0013】

關於化合物(a)~(e)及丙烯酸系樹脂於後文中詳細地進行說明。

【0014】

藉由使組合物(1)及組合物(2)包含化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，可對組合物賦予耐熱性。

就可對組合物(1)及組合物(2)賦予更優異之耐熱性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)之合計含量較佳為大於20 ppm。又，就可防止因化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩、可確保流動性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)之合計含量較佳為3000 ppm以下。就組合物之耐熱性及流動性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)之合計含量較佳為30 ppm以上，更佳為60 ppm以上，進而較佳為95 ppm以上，特佳為110 ppm以上。又，更佳為2500 ppm以下，進而較佳為2000 ppm以下，特佳為1500 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

組合物(1)及組合物(2)可單獨包含化合物(a)~(e)中之任一種，亦可包含兩種以上。亦可包含全部化合物(a)~(e)。

【0015】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)之含量係使用氣相層析法測得之值。

【0016】

就可對組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)較佳為包含化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)

中之一種以上之化合物。

就組合物之耐熱性及流動性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)~(e)之合計含量較佳為1 ppm以上，更佳為5 ppm以上，進而較佳為10 ppm以上，特佳為20 ppm以上。又，更佳為2500 ppm以下，進而較佳為2000 ppm以下，特佳為1500 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0017】

組合物(1)及組合物(2)較佳為包含化合物(a)~(e)中之兩種以上。藉由使組合物包含化合物(a)~(e)中之兩種以上，有耐熱性提昇之傾向。

【0018】

作為化合物(a)~(e)中之兩種以上之化合物之組合，例如可例舉如下情形，但並無特別限定。

例如：包含化合物(a)、以及化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上之情形；包含化合物(a)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上、以及化合物(b)之情形；包含化合物(a)、化合物(b)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上、以及化合物(c)之情形。

就組合物(1)及組合物(2)之流動性及耐熱性良好之方面而言，組合物(1)及組合物(2)較佳為包含化合物(a)、以及化合物(b)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上。

就組合物(1)及組合物(2)之流動性及耐熱性良好之方面而言，組合物(1)及組合物(2)較佳為包含化合物(a)、化合物(c)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上、以及化合物(b)。

就組合物(1)及組合物(2)之耐熱性及流動性良好之方面而言，組合物

(1)及組合物(2)較佳為包含化合物(a)、化合物(b)、化合物(d)及化合物(e)中之一種以上、以及化合物(c)。

【0019】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)之含量較佳為大於20 ppm且為3000 ppm以下。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)之含量大於20 ppm，則可對組合物(1)及組合物(2)賦予更優異之耐熱性。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)之含量為3000 ppm以下，則可防止因化合物(a)而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩，可確保流動性。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)之含量更佳為55 ppm以上，進而較佳為100 ppm以上，又，較佳為2500 ppm以下，更佳為2000 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0020】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)之含量較佳為1 ppm以上3000 ppm以下。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)之含量為1 ppm以上，則可對組合物(1)及組合物(2)賦予更優異之耐熱性。若組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)之含量為3000 ppm以下，則可防止因化合物(b)而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩，可確保流動性。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)之含量更佳為5 ppm以上，進而較佳為10 ppm以上，特佳為20 ppm以上，又，更佳為2500 ppm以下，進而較佳為2000 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0021】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(c)之含量較佳為1 ppm以上3000 ppm以下。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(c)之含量為1 ppm以上，

則可對組合物(1)及組合物(2)賦予更優異之耐熱性。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(c)之含量為3000 ppm以下，則可防止因化合物(c)而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物之黏膩，可確保流動性。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(c)之含量更佳為5 ppm以上，進而較佳為10 ppm以上，特佳為20 ppm以上，又，更佳為2500 ppm以下，進而較佳為2000 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0022】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(d)之含量較佳為1 ppm以上3000 ppm以下。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(d)之含量為1 ppm以上，則可對組合物賦予更優異之耐熱性。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(d)之含量為3000 ppm以下，則可防止因化合物(d)而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩，可確保流動性。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(d)之含量更佳為5 ppm以上，進而較佳為10 ppm以上，特佳為20 ppm以上，又，更佳為2500 ppm以下，進而較佳為2000 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0023】

組合物(1)及組合物(2)中之化合物(e)之含量較佳為1 ppm以上3000 ppm以下。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(e)之含量為1 ppm以上，則可對組合物(1)及組合物(2)賦予更優異之耐熱性。若上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(e)之含量為3000 ppm以下，則可防止因化合物(e)而使丙烯酸系樹脂塑化從而引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩，可確保流動性。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(e)之含量更佳為5 ppm以上，進而較佳為10 ppm以上，特佳為20 ppm以上，又，更佳為2500 ppm以下，進

而較佳為2000 ppm以下。上述下限值及上述上限值可適當組合。

【0024】

就組合物(1)及組合物(2)之耐熱性及流動性之方面而言，組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)及丙烯酸系樹脂之合計含量相對於組合物(1)及組合物(2)之總質量，較佳為70質量%以上，更佳為80質量%以上，進而較佳為90質量%以上。又，較佳為100質量%以下。

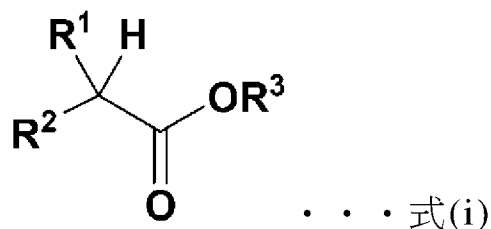
【0025】

化合物(a)為具有 α 氫之酯化合物。 α 氫係指鍵結於 α 位之碳原子之氫。

化合物(a)例如由下述式(i)表示。

【0026】

[化1]



【0027】

上述式(i)中， R^1 及 R^2 分別獨立地表示氫原子、烷基、烯基、羥基、烷氧基、胺基、包含羰基之1價基、或烷硫基，該等基可進而具有取代基，亦可於 R^1 及 R^2 中含有雜原子或不飽和鍵。 R^3 表示烷基或芳基，該等基可進而具有取代基，亦可於 R^3 中含有雜原子或不飽和鍵。 R^1 與 R^2 、 R^2 與 R^3 、 R^3 與 R^1 可分別相互鍵結而形成環狀結構。

作為包含羰基之1價基，例如可例舉：乙醯基、丙醯基、丁醯基、異丁醯基。

【0028】

作為上述化合物(a)之具體例，例如可例舉：乙酸甲酯(沸點57°C)、丙酸甲酯(沸點80°C)、異丁酸甲酯(沸點92°C)、丁酸甲酯(沸點101°C)、異戊酸甲酯(沸點118°C)、戊酸甲酯(沸點128°C)、己酸甲酯(沸點150°C)、2-甲基丁酸甲酯(沸點115°C)、乙醯乙酸甲酯(沸點170°C)、2-甲基-3-側氧丁酸甲酯(沸點177°C)等R³為甲基之具有 α 氫之酯化合物；乙酸乙酯(沸點77°C)、丙酸乙酯(沸點99°C)、異丁酸乙酯(沸點110°C)、丁酸乙酯(沸點120°C)、異戊酸乙酯(沸點134°C)、戊酸乙酯(沸點145°C)等R³為乙基之具有 α 氫之酯化合物；乙酸丙酯(沸點101°C)、丙酸丙酯(沸點122°C)、異丁酸丙酯(沸點134°C)、丁酸丙酯(沸點144°C)、異戊酸丙酯(沸點156°C)、戊酸丙酯(沸點167°C)、己酸丙酯(沸點187°C)等R³為丙基之具有 α 氫之酯化合物；丙酸異丙酯(沸點108°C)、異丁酸異丙酯(沸點120°C)、丁酸異丙酯(沸點130°C)、異戊酸異丙酯(沸點163°C)、戊酸異丙酯(沸點165°C)、己酸異丙酯(沸點168°C)等R³為異丙基之具有 α 氫之酯化合物；乙酸丁酯(沸點126°C)、丙酸丁酯(沸點146°C)、異丁酸丁酯(沸點150°C)、丁酸丁酯(沸點164°C)、異戊酸丁酯(沸點176°C)、戊酸丁酯(沸點185°C)、己酸丁酯(沸點208°C)等R³為正丁基之具有 α 氫之酯化合物；乙酸異丁酯(沸點117°C)、異戊酸異丁酯(沸點168°C)、丙酸異丁酯(沸點138°C)、異丁酸異丁酯(沸點147°C)、丁酸異丁酯(沸點157°C)、己酸異丁酯(沸點349°C)等R³為異丁基之具有 α 氫之酯化合物；異丁酸異戊酯(沸點169°C)等R³為異戊基之具有 α 氫之酯化合物；乙酸第三丁酯(沸點96°C)、丙酸第三丁酯(沸點119°C)、異丁酸第三丁酯(沸點226°C)、丁酸第三丁酯、異戊酸第三丁酯、戊酸第三丁酯、己酸第三丁酯等R³為第三丁基之具有 α 氫之酯化合物。再者，化合

物名後記載之各物質之沸點係於101.3 kPa下之沸點。其中，就向上述組合物(1)及組合物(2)中納入之容易度、及自上述組合物(1)及組合物(2)中揮發之難度之方面而言，較佳為化合物(a)中之於101.3 kPa下之沸點為93°C以上之化合物。若於101.3 kPa下之沸點為93°C以上，則可防止化合物自組合物(1)及組合物(2)中揮發，可對組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性。上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)於101.3 kPa下之沸點更佳為95°C以上，進而較佳為100°C以上。上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)於101.3 kPa下之沸點較佳為350°C以下。若於101.3 kPa下之沸點為350°C以下，則可防止由塑化引起之組合物(1)及組合物(2)之黏膩，可確保流動性。上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)於101.3 kPa下之沸點更佳為250°C以下，進而較佳為200°C以下。又，較佳為R³為甲基之具有 α 氫之酯化合物、R³為乙基具有 α 氫之酯化合物、R³為異丁基之具有 α 氫之酯化合物、R³為異戊基之具有 α 氫之酯化合物。其中，就可對上述組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性之方面而言，較佳為R¹與R²均為氫原子、或R¹與R²中之任一者為甲基、或R¹與R²中之任一者為異丙基之化合物，更佳為乙酸甲酯、異丁酸甲酯、異戊酸甲酯、2-甲基丁酸甲酯、丙酸乙酯、異丁酸乙酯、異戊酸乙酯、乙酸異丁酯、異丁酸異丁酯、異丁酸異戊酯、異戊酸異丁酯，進而較佳為2-甲基丁酸甲酯、異丁酸異丁酯、異丁酸異戊酯。上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)可為單獨1種，亦可為2種以上。

【0029】

化合物(b)為芳香族羧酸、或其酯。

作為化合物(b)之具體例，例如可例舉：苯甲酸、對苯二甲酸、鄰苯

二甲酸、間苯二甲酸、1,2,4-苯三甲酸、均苯四甲酸等芳香環為1個之芳香族羧酸及其酸酐；萘羧酸、萘二羧酸、4,4'-二苯基二羧酸、4,4'-二苯醚二羧酸、萘三羧酸等芳香環為2個之芳香族羧酸及其酸酐；蒽羧酸、蒽二羧酸、菲羧酸、菲二羧酸等芳香環為3個之芳香族羧酸及其酸酐；苯甲酸甲酯、苯甲酸乙酯、苯甲酸丙酯、苯甲酸異丙酯、苯甲酸丁酯、苯甲酸異丁酯、對苯二甲酸二甲酯、2,6-萘二羧酸二甲酯等該等芳香族羧酸之酯。其中，就向上述組合物(1)及組合物(2)中納入之容易度、及自上述組合物(1)及組合物(2)中揮發之難度之方面而言，較佳為芳香環為1個之芳香族羧酸及其酸酐、或其酯。又，其中，就對上述組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性之方面而言，較佳為苯甲酸、苯甲酸甲酯、對苯二甲酸、對苯二甲酸二甲酯。上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(b)可為單獨1種，亦可為2種以上。

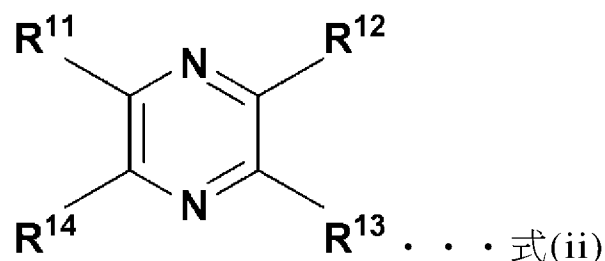
【0030】

化合物(c)為吡嘐化合物。

化合物(c)例如由下述式(ii)表示。

【0031】

[化2]



【0032】

上述式(ii)中，R¹¹、R¹²、R¹³，及R¹⁴分別獨立地表示氫原子、烷基、烯基、羥基、烷氧基、胺基、包含羰基之1價基、芳基、或烷硫基，

該等基可進而具有取代基。R¹¹、R¹²、R¹³、及R¹⁴可含有雜原子或不飽和鍵。R¹¹與R¹²、R¹²與R¹³、R¹³與R¹⁴、R¹⁴與R¹¹可分別相互鍵結而形成環狀結構。

【0033】

作為化合物(c)之具體例，例如可例舉：吡啶；甲基吡啶、乙基吡啶、丙基吡啶、正丁基吡啶、異丁基吡啶、第三丁基吡啶、2-胺基吡啶、巰基乙基吡啶、2-甲氧基吡啶、吡啶羧酸、吡啶羧酸甲酯等一取代吡啶化合物；2,3-二甲基吡啶、2,5-二甲基吡啶、2,6-二甲基吡啶、2,3-二乙基吡啶、2,5-二乙基吡啶、2,6-二乙基吡啶、2-乙基-3-甲基吡啶、2-甲基-3-乙基吡啶、2-甲基-3-丙基吡啶、2-甲基-3-異丁基吡啶、2-乙基-3-甲氧基吡啶、2-甲基-6-丙氧基吡啶、5-甲基吡啶-2-羧酸、2-胺基甲基-5-甲基吡啶、3-胺基羰基吡啶-2-羧酸、2,3-吡啶二羧酸、2-胺基-5-苯基吡啶等二取代吡啶化合物；2,3,5-三甲基吡啶、5-乙基-2,3-二甲基吡啶、5-甲基-2,3-環戊烯并吡啶、2,3-二乙基-5-甲基吡啶、2-乙基-3,5-二甲基吡啶等三取代吡啶化合物；四甲基吡啶、2,3,5,6-四甲基吡啶等四取代吡啶化合物。其中，就向組合物(1)及組合物(2)中納入之容易度、及自組合物(1)及組合物(2)中揮發之難度之方面而言，較佳為三取代吡啶化合物及四取代吡啶化合物。進而，其中，就可對組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性之方面而言，更佳為2,3,5-三甲基吡啶、2,3,5,6-四甲基吡啶。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(c)可為單獨1種，亦可為2種以上。

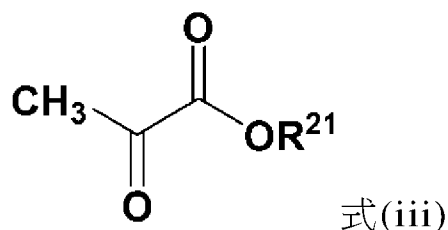
【0034】

化合物(d)為丙酮酸、或其酯。

化合物(d)例如由下述式(iii)表示。

【0035】

[化3]



【0036】

上述式(iii)中， R^{21} 表示氫原子、烷基或芳基，該等基可進而具有取代基，可於 R^{21} 中含有雜原子或不飽和鍵。

【0037】

作為化合物(d)之具體例，例如可例舉：丙酮酸；丙酮酸甲酯、丙酮酸乙酯、丙酮酸丙酯、丙酮酸異丙酯、丙酮酸正丁酯、丙酮酸異丁酯等丙酮酸烷基酯；丙酮酸羧甲基酯、丙酮酸乙醯氧基甲酯、丙酮酸乙氧甲醯基甲酯、丙酮酸乙氧基甲酯等具有雜原子之丙酮酸酯。其中，就向組合物(1)及組合物(2)中納入之容易度、及自組合物(1)及組合物(2)中揮發之難度之方面而言，較佳為丙酮酸烷基酯。又，其中，就可對組合物(1)及組合物(2)賦予耐熱性之方面而言，更佳為丙酮酸甲酯。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(d)可為單獨1種，亦可為2種以上。

【0038】

化合物(e)為 α -烯烴。

【0039】

作為化合物(e)之具體例，例如可例舉：1-己烯、1-庚烯、1-辛烯、1-十二烯、2-乙基-1-己烯。

作為化合物(e)，就向組合物(1)及組合物(2)中納入之容易度、及自組

合物(1)及組合物(2)中揮發之難度之方面而言，較佳為碳數6以上12以下之 α -烯烴。又，其中，就可對組合物(1)及組合物(2)賦予優異之耐熱性之方面而言，更佳為1-辛烯、1-十二烯、2-乙基-1-己烯。組合物(1)及組合物(2)中之化合物(e)可為單獨1種，亦可為2種以上。

【0040】

丙烯酸系樹脂具有1種以上之源自(甲基)丙烯酸酯之結構單元。

丙烯酸系樹脂亦可進而具有源自除(甲基)丙烯酸酯以外之單體之結構單元。

將丙烯酸系樹脂用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等廣泛領域時，就對所形成之塗膜或接著層賦予耐候性與耐久性之方面而言，源自(甲基)丙烯酸酯之結構單元相對於構成丙烯酸系樹脂之全部結構單元之合計質量的比率較佳為50質量%以上，更佳為70質量%以上，進而較佳為85質量%以上。又，較佳為100質量%以下。

【0041】

作為上述(甲基)丙烯酸酯之具體例，例如可例舉：(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸異丙酯、(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)丙烯酸正戊酯、(甲基)丙烯酸異戊酯、(甲基)丙烯酸正己酯、(甲基)丙烯酸正辛酯、(甲基)丙烯酸2-乙基己酯、(甲基)丙烯酸月桂酯、(甲基)丙烯酸硬脂酯、及(甲基)丙烯酸異硬脂酯等(甲基)丙烯酸烷基酯等具有直鏈或支鏈狀之烴骨架之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸環己酯、(甲基)丙烯酸4-第三丁基環己酯、(甲基)丙烯酸異苜酯、(甲基)丙烯酸金剛烷基酯、(甲

基)丙烯酸三環癸酯、(甲基)丙烯酸二環戊二烯基酯及(甲基)丙烯酸雙環戊酯等具有脂環式骨架之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸縮水甘油酯及(甲基)丙烯酸羥基丁酯縮水甘油醚等具有縮水甘油基之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸苯氧基酯、(甲基)丙烯酸苄基酯、(甲基)丙烯酸苯基酯、(甲基)丙烯酸苯氧基乙酯、苯氧基聚乙二醇(甲基)丙烯酸酯、壬基苯酚EO加成物(甲基)丙烯酸酯及(甲基)丙烯酸鄰聯苯氧基乙酯等具有芳香族環之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸四氫呋喃甲酯等具有環狀醚之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸N-二甲基胺基乙酯及(甲基)丙烯酸N-二乙基胺基乙酯等具有胺基之(甲基)丙烯酸酯；酸性磷酸2-(甲基)丙烯醯氧基乙酯及酸性磷酸2-(甲基)丙烯醯氧基乙酯-單乙醇胺鹽、((甲基)丙烯醯氧基乙基)磷酸二苯酯、酸性磷酸(甲基)丙烯醯氧基丙酯、3-氯-2-酸性二氧磷基丙基(甲基)丙烯酸酯、酸性二氧磷基聚氧乙二醇單(甲基)丙烯酸酯及酸性二氧磷基聚氧丙二醇(甲基)丙烯酸酯等具有磷酸基之(甲基)丙烯酸酯；(甲基)丙烯酸2-羥基乙酯、(甲基)丙烯酸2-羥基丙酯、(甲基)丙烯酸2-羥基丁酯、(甲基)丙烯酸4-羥基丁酯、(甲基)丙烯酸6-羥基己酯、(甲基)丙烯酸1,2-二羥基乙酯、(甲基)丙烯酸1,2-二羥基丙酯、(甲基)丙烯酸1,2-二羥基丁酯、(甲基)丙烯酸1,2-二羥基5-乙基己酯、(甲基)丙烯酸1,1-二羥基乙酯、(甲基)丙烯酸1,1-二羥基丙酯、(甲基)丙烯酸1,1-二羥基丁酯、(甲基)丙烯酸1,2,3-三羥基丙酯、(甲基)丙烯酸1,2,3-三羥基丁酯、(甲基)丙烯酸1,1,2-三羥基丙酯及(甲基)丙烯酸1,1,2-三羥基丁酯等(甲基)丙烯酸羥基烷基酯；(甲基)丙烯酸2-羥基-3-苯氧基丙酯等具有羥基及芳香環之(甲基)丙烯酸酯；羥基聚環氧乙烷單(甲基)丙烯酸酯、羥基聚環氧丙烷單(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧乙烷-聚環氧丙烷)單(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧乙烷-環氧丙烷)單

(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧乙烷-聚四氫呋喃)單(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧乙烷-四氫呋喃)單(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧丙烷-聚四氫呋喃)單(甲基)丙烯酸酯、羥基(聚環氧丙烷-聚四氫呋喃)單(甲基)丙烯酸酯、1,2-二羥基聚環氧乙烷(甲基)丙烯酸酯、1,2-二羥基聚環氧丙烷(甲基)丙烯酸酯、(甲基)丙烯酸聚羥基烷基酯；1,2,3-三羥基丙二醇(甲基)丙烯酸酯及1,1,2-三羥基丙二醇(甲基)丙烯酸酯等羥基聚環氧烷(甲基)丙烯酸酯；琥珀酸單(2-(甲基)丙烯醯氧基乙基)酯及 ω -羧基-聚己內酯單(甲基)丙烯酸酯等具有羧基之(甲基)丙烯酸酯。上述(甲基)丙烯酸酯單體可單獨使用一種，亦可併用兩種以上。就降低環境負荷之方面而言，上述(甲基)丙烯酸酯單體較佳為其原料之部分或全部使用由動植物產生之有機性資源而獲得的源自生質之(甲基)丙烯酸酯單體。

【0042】

作為除(甲基)丙烯酸酯以外之單體，例如可例舉源自如下單體之結構單元：(甲基)丙烯酸、丁烯酸、異丁烯酸、肉桂酸、伊康酸、馬來酸、富馬酸、檸康酸、中康酸及戊烯二酸等 α,β -不飽和羧酸等具有羧基之單體；(甲基)丙烯酸銨、(甲基)丙烯酸鈉及(甲基)丙烯酸鉀等(甲基)丙烯酸鹽；(甲基)丙烯醯胺、(甲基)丙烯醯胺二丙酮丙烯醯胺、N-羥甲基(甲基)丙烯醯胺、N-甲氧基甲基(甲基)丙烯醯胺、N-乙氧基甲基(甲基)丙烯醯胺、N-丁氧基甲基(甲基)丙烯醯胺及(甲基)丙烯醯味啉等(甲基)丙烯醯胺衍生物；苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯、乙烯基甲苯及氯苯乙烯等芳香族乙烯系單體；丙烯腈、甲基丙烯腈、 α -氰基丙烯酸酯、二氰基亞乙烯及反丁烯二腈等氰化乙烯系單體；乙烯基磺酸及2-丙烯醯胺-2-甲基丙磺酸等具有磺酸基之單體；二烯基苯、二烯基萘及二烯基醚等多官能單

體；乙酸乙烯酯及丙酸乙烯酯等乙烯系單體；1,3-丁二烯、異戊二烯、2-氯-1、3-丁二烯及氯丁二烯等共軛二烯系單體。該等除(甲基)丙烯酸酯單體以外之單體可單獨使用一種，亦可併用兩種以上。

【0043】

就抑制由化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物引起之塑化而使組合物(1)及(2)不易黏膩之方面而言，上述丙烯酸系樹脂較佳為包含源自甲基丙烯酸甲酯之結構單元。

源自甲基丙烯酸甲酯之結構單元相對於構成上述丙烯酸系樹脂之全部結構單元之合計質量的比率較佳為2質量%以上，更佳為10質量%以上。又，較佳為100質量%以下，更佳為90質量%以下。

【0044】

就提昇於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等廣泛領域中使用時所形成之塗膜或接著層之柔軟性、或者對塑膠或金屬等基材之接著性之方面而言，上述丙烯酸系樹脂較佳為除包含源自甲基丙烯酸甲酯之結構單元以外，還包含源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元、及源自 α,β -不飽和羧酸之結構單元中之任一者或兩者，更佳為包含兩者。

源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元相對於構成上述丙烯酸系樹脂之全部結構單元之合計質量的比率較佳為0~100質量%，更佳為5~90質量%。

源自 α,β -不飽和羧酸之結構單元相對於構成上述丙烯酸系樹脂之全部結構單元之合計質量的比率較佳為0~30質量%，更佳為0.5~20質量%。

【0045】

丙烯酸系樹脂可具有均聚物、無規共聚物、接枝共聚物、嵌段共聚物等任何結構。

【0046】

丙烯酸系樹脂之玻璃轉移溫度(以下亦記載為「T_g」)較佳為-10°C以上，更佳為0°C以上，進而較佳為20°C以上。又，丙烯酸系樹脂之T_g較佳為180°C以下，更佳為150°C以下，進而較佳為120°C以下。若T_g為-10°C以上，則可抑制組合物(1)及組合物(2)極度黏膩，而提昇流動性。若玻璃轉移溫度為180°C以下，則化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物易於納入至丙烯酸系樹脂中。

【0047】

本說明書中，丙烯酸系樹脂之T_g係指利用由下述式(2)表示之Fox計算式計算出之值(單位：°C)。

【0048】

[數1]

$$\frac{1}{Tg + 273} = \sum_{i=1}^n \frac{Wi}{Tgi + 273} \dots \text{式(2)}$$

【0049】

式(2)中，W_i表示單體i之質量百分率，T_{gi}表示單體i之均聚物之T_g(°C)。

再者，均聚物之T_g可使用「聚合物手冊(Polymer Handbook)，第4版，John Wiley & Sons出版」中所記載之數值。

【0050】

丙烯酸系樹脂之重量平均分子量(以下亦記載為「M_w」)較佳為500以上2,000,000以下，更佳為5,000以上1,000,000以下，進而較佳為15,000

以上500,000以下。若M_w為500以上，則可抑制組合物(1)及組合物(2)極度黏膩。若M_w為2,000,000以下，則易於在丙烯酸系樹脂中保持化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物。

【0051】

本說明書中，「重量平均分子量」係指藉由GPC-LS法(Gel Permeation Chromatography-Light Scattering Method，凝膠滲透層析-光散射法)測得之聚苯乙烯換算之重量平均分子量。

【0052】

就上述組合物(1)及組合物(2)之流動性良好之方面而言，丙烯酸系樹脂之形狀較佳為粒狀。

粒狀丙烯酸系樹脂之質量平均粒徑可為1 μm以上，亦可未達1 μm。質量平均粒徑未達1 μm之粒狀亦稱為粉末狀。

粒狀丙烯酸系樹脂之質量平均粒徑較佳為5 μm以上1000 μm以下，更佳為20 μm以上800 μm以下，進而較佳為35 μm以上500 μm以下。若質量平均粒徑為5 μm以上，則可抑制粒狀物質彼此之接觸面積極度增加，故可抑制組合物(1)及組合物(2)極度黏膩。有質量平均粒徑越大，則粒狀組合物越不易黏膩之傾向。若質量平均粒徑為1000 μm以下，則用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等各種領域時之操作性良好，例如溶解於溶劑時之溶解容易度、或與其他調配物之混和性、於製造裝置之配管內之流動性等良好。

【0053】

本說明書中，「質量平均粒徑」係指將組合物20 g置於標準篩中，以2個往復/秒之振盪速度使其振盪5分鐘進行分級並求出其平均粒徑時所得

之值。

【0054】

於上述組合物(1)及組合物(2)包含粒狀丙烯酸系樹脂之情形時，根據含量，於不損害本發明之效果之範圍內，可進而包含溶液狀之丙烯酸系樹脂、乳液狀之丙烯酸系樹脂。即，本發明之組合物(1)及組合物(2)可包含粒狀丙烯酸系樹脂、及溶液狀之丙烯酸系樹脂及乳液狀之丙烯酸系樹脂中之1種以上之丙烯酸系樹脂。

【0055】

上述組合物(1)及組合物(2)之形狀為粒狀。若組合物(1)及組合物(2)之形狀為粒狀，則操作性良好。再者，作為組合物(1)及組合物(2)之形狀，可不僅包含一次粒子之形狀，亦包含複數個一次粒子聚集而形成之二次粒子之形狀。

【0056】

組合物(1)及組合物(2)之質量平均粒徑可為1 μm 以上，亦可未達1 μm 。

組合物(1)及組合物(2)之質量平均粒徑較佳為5 μm 以上1000 μm 以下，更佳為20 μm 以上800 μm 以下，進而較佳為35 μm 以上500 μm 以下。若質量平均粒徑為5 μm 以上，則可抑制粒狀組合物彼此之接觸面積極度增加，故可抑制組合物(1)及組合物(2)極度黏膩。有質量平均粒徑越大，則組合物(1)及組合物(2)越不易黏膩之傾向。若質量平均粒徑為1000 μm 以下，則用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等各種領域時之操作性良好，例如溶解於溶劑時之溶解容易度、或與其他調配物之混和性、於製造裝置之配管內之流動性等良好。

【0057】

關於組合物(1)及組合物(2)之製造方法，並無特別限制，例如可例舉以下之方法1、方法2。

【0058】

[方法1]

一種方法，其藉由塊狀聚合、懸浮聚合、乳化聚合及溶液聚合等公知方法使單體組合物聚合，該單體組合物包含含有一種以上之(甲基)丙烯酸酯之一種以上之單體、與化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物。

【0059】

[方法2]

一種方法，其向藉由塊狀聚合、懸浮聚合、乳化聚合及溶液聚合等公知方法獲得之丙烯酸系樹脂中，後添加化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物。

【0060】

於方法1、方法2中之任一者中，作為聚合方法，就粒徑之控制容易度及合成容易度之方面而言，較佳為懸浮聚合與乳化聚合，更佳為懸浮聚合。

聚合溫度並無特別限制，通常可於-100~250℃之溫度範圍內進行聚合，較佳為可於0~200℃之溫度範圍內進行聚合。

聚合後，視需要進行產物之洗淨、乾燥等。

【0061】

聚合時，亦可使用鏈轉移劑或自由基聚合起始劑。

作為鏈轉移劑，例如可例舉：氫、硫醇類、 α 甲基苯乙烯二聚物、

(甲基)丙烯酸系單體之二聚體～二十聚體、萜類及鈷鏈轉移劑類，並無特別限制。鏈轉移劑可單獨使用一種或組合兩種以上而使用。作為適宜用作鏈轉移劑之硫醇類之具體例，可例舉：正辛硫醇、正十二烷硫醇、第三-十二烷硫醇、正辛硫醇、正十四烷硫醇、正己硫醇及硫代乙醇酸2-乙基己酯等，並無特別限制。

就容易調整所獲得之丙烯酸系樹脂之分子量之方面而言，鏈轉移劑之添加量相對於所使用之單體之合計100質量份較佳為0.01～5質量份。

【0062】

作為自由基聚合起始劑，可例舉：有機過氧化物或偶氮化合物、過硫酸化合物等，並無特別限制。自由基聚合起始劑可單獨使用一種或組合兩種以上而使用。作為適宜用作自由基聚合起始劑之有機過氧化物之具體例，例如可例舉：過氧化特戊酸第三丁酯、過氧化鄰甲基苯甲醯、過氧化雙-3,5,5-三甲基己醯、過氧化辛醯、過氧化環己酮、過氧化苯甲醯、過氧化甲基乙基酮、過氧化二異丙苯、過氧化月桂醯、二異丙基苯過氧化氫、第三丁基過氧化氫、過氧化二第三丁基、過氧化2-乙基己酸第三丁酯及過氧化2-乙基己酸1,1,3,3-四甲基丁酯，並無特別限制。又，作為偶氮化合物之具體例，例如可例舉：2,2'-偶氮二異丁腈、2,2'-偶氮雙(2-甲基丁腈)、2,2'-偶氮雙(2,4-二甲基戊腈)及2,2'-偶氮雙(2,4-二甲基-4-甲氧基戊腈)，並無特別限制。又，作為過硫酸化合物之具體例，例如可例舉：過硫酸銨、過硫酸鉀，並無特別限制。其中，就單體之聚合性良好之方面而言，較佳為過氧化苯甲醯、過氧化月桂醯、過氧化2-乙基己酸1,1,3,3-四甲基丁酯、2,2'-偶氮二異丁腈、2,2'-偶氮雙(2,4-二甲基戊腈)及2,2'-偶氮雙(2,4-二甲基戊腈)。

就單體之聚合性良好、製造成本便宜之方面而言，自由基聚合起始劑之添加量相對於單體之合計100質量份較佳為0.0001~10質量份。

【0063】

為了聚合時對單體之油滴賦予穩定性，可使用分散劑或分散助劑。作為分散劑，例如可例舉使單體穩定地分散於水中之界面活性劑，具體而言，例如可例舉：甲基丙烯酸2-磺乙基鈉與甲基丙烯酸鉀與甲基丙烯酸甲酯之共聚物、甲基丙烯酸3-磺丙基鈉與甲基丙烯酸甲酯之共聚物、甲基丙烯酸鈉與甲基丙烯酸之共聚物、聚乙烯醇、聚乙烯吡咯啉酮、羥乙基纖維素、羥丙基纖維素、陰離子性乳化劑(十二烷基苯磺酸鈉、月桂基磺酸鈉、月桂基硫酸鈉、烯基琥珀酸二鉀、二烷基磺基琥珀酸鈉等)、包含聚氧乙烯基之陰離子性乳化劑、非離子性乳化劑(聚氧乙烯壬基苯醚、聚氧乙烯月桂醚等)及於分子中具有乙烯聚合性雙鍵之反應性乳化劑。作為分散助劑，例如可例舉：硫酸鈉、碳酸鈉、磷酸二氫鈉、磷酸氫二鈉、氯化鉀、乙酸鈣、硫酸鎂、硫酸錳。

【0064】

就化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物向丙烯酸系樹脂中納入之容易度之方面而言，作為上述組合物(1)及組合物(2)之製造方法，較佳為上述方法1。

本發明中，上述組合物(1)及組合物(2)中之化合物(a)~(e)可為製造(甲基)丙烯酸酯單體時之副產物，換而言之，可為非有意地添加至(甲基)丙烯酸酯單體中之化合物，亦可為有意地添加之另外製造或購買之化合物。

【0065】

組合物(2)包含0.2 ppm以上200 ppm以下之鈉元素。組合物(1)較佳為包含0.2 ppm以上200 ppm以下之鈉元素。組合物(1)及組合物(2)中之鈉元素量更佳為1 ppm以上150 ppm以下，進而較佳為2 ppm以上130 ppm以下。若鈉元素量為0.2 ppm以上，則可抑制帶電，確保流動性。若鈉元素量為200 ppm以下，則可抑制用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等各種領域時鈉元素對品質之不良影響。

組合物(1)及組合物(2)中之鈉元素可為源自製造丙烯酸系聚合物粒子時所使用之分散劑或分散助劑、洗淨液中含有之鈉鹽等之鈉元素，亦可為於丙烯酸系聚合物粒子之製造後有意地添加之鈉元素。

【0066】

本發明中之組合物(1)及組合物(2)中之鈉元素量係指使用高頻感應耦合電漿(ICP)發射光譜分析裝置測得之值。

【0067】

組合物(1)之藉由下述方法求出之帶電抑制率為90.0~99.9%。組合物(2)之藉由下述方法求出之帶電抑制率較佳為90.0~99.9%。若帶電抑制率處於上述範圍內，則包含丙烯酸系樹脂之粒狀組合物之流動性良好。組合物(1)及組合物(2)之帶電抑制率更佳為92.0~99.9%，進而較佳為95.0~99.9%。

(帶電抑制率之求出方法)

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測得組合物之鬆密度(A)、及於組合物每100 mL中添加抗靜電劑0.1 g並混合而成之混合物之鬆密度(B)。根據測得之鬆密度(A)及鬆密度

(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。作為抗靜電劑，例如適宜為鋁矽酸鹽，諸如水澤化學工業股份有限公司製造之「SILTON AMT-100R」或「SILTON JC-40」。再者，鬆密度(A)、(B)之單位為g/mL。

$$\text{帶電抑制率(\%)} = [\text{鬆密度(A)}/\text{鬆密度(B)}] \times 100 \cdots \text{式(1)}$$

通常，於不使用抗靜電劑之情況下進行測定時，因由靜電引起之排斥，而有鬆密度降低之傾向，於使用抗靜電劑之情況下進行測定時，由靜電引起之排斥減輕，因此有鬆密度提高之傾向。添加抗靜電劑之前與之後之鬆密度之變化越小，則粒狀組合物之靜電量越少，帶電越得到抑制，由此利用上述式(1)求出之帶電抑制率越接近100%。若帶電抑制率處於上述範圍內，則流動性優異。

【0068】

上述帶電抑制率例如可藉由調整上述粒狀組合物中之鈉元素量來調整。雖亦取決於丙烯酸系聚合物之源自單體之結構單元之種類，但藉由將上述粒狀組合物中之鈉元素量調整為0.2 ppm以上，可將上述帶電抑制率為90.0%以上。又，藉由將上述粒狀組合物中之鈉元素量調整為200 ppm以下，可將上述帶電抑制率為99.9%以下。藉由增加上述粒狀組合物中之鈉元素量，可提高上述帶電抑制率之值。又，藉由減少上述粒狀組合物中之鈉元素量，可降低上述帶電抑制率之值。粒狀組合物中之鈉元素量亦可藉由製造丙烯酸系樹脂時所使用之分散劑或分散助劑、洗淨液中含有之鈉鹽等之使用量來調整，亦可於丙烯酸系聚合物粒子之製造後有意地添加鈉元素來調整。

藉由提高源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元相對於丙烯酸系樹脂之全部結構單元之比率，可提高上述帶電抑制率之值。

另一方面，藉由降低源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元相對於丙烯酸系樹脂之全部結構單元之比率，可降低上述帶電抑制率之值。

【0069】

就於調配塗料時丙烯酸系樹脂之流動性良好、操作性良好、可對塗膜賦予耐熱性之方面而言，本發明之塗料較佳為含有組合物(1)或(2)。

【0070】

就於調配墨水時丙烯酸系樹脂之流動性良好、操作性良好、可對墨水賦予耐熱性之方面而言，本發明之墨水較佳為含有組合物(1)或(2)。

【0071】

就於調配接著劑時丙烯酸系樹脂之流動性良好、操作性良好、可對接著劑賦予耐熱性之方面而言，本發明之接著劑較佳為含有組合物(1)或(2)。

【0072】

作為本發明之塗料、墨水及接著劑之各製造方法，例如可例舉如下方法：使用通常之攪拌機將上述化合物(a)~(e)中之一種以上之化合物、丙烯酸系樹脂、及視需要之作為其他任意成分之有機溶劑、顏料、染料等加以攪拌混合而進行製造。

[實施例]

【0073】

以下，藉由實施例及比較例對本發明具體地進行說明，但本發明並不限定於該等。

【0074】

<重量平均分子量(Mw)之測定>

重量平均分子量之測定係使用東曹製造之高速GPC裝置HLC-8320GPC型(檢測器：RI檢測器)。作為管柱，將東曹公司製造之TSKgel superHZM-M(4.6 mmID×15cmL)2根與東曹公司製造之TSKgel HZ2000(4.6 mmID×15cmL)1根連結加以使用。溶離液使用四氫呋喃(包含穩定劑之二丁基羥基甲苯)，設為流速0.35 mL/分鐘、注入口溫度40℃、烘箱溫度40℃、RI檢測器溫度40℃。作為樣品，注入10 μL之以組合物之濃度成為0.2質量%之方式利用四氫呋喃調整所得者。

【0075】

<質量平均粒徑之測定>

使用標準篩，以2個往復/秒之振盪速度使組合物20 g振盪5分鐘進行分級，測定質量平均粒徑。

【0076】

<鈉元素量之測定>

將組合物0.15 g採取至鉑坩堝中，於加熱板上歷時1小時自150℃升溫至540℃，於540℃下加熱30分鐘。繼而，利用馬弗爐以575℃、1小時使組合物灰化。向其中加入1質量%之硝酸水溶液250 μL進行溶解，利用超純水稀釋至25 mL，將所得者供至ICP發射光譜分析裝置，測定鈉元素量(Na元素量)。再者，測定條件如下所述。

(ICP測定條件)

- 裝置名：Thermo Fisher Scientific公司製造之iCAP 6500
- RF功率：750 w
- 泵流量：50 rpm

- 輔助氣體流量：1 L/min
- 霧化氣體流量：0.5 L/min
- 冷卻氣體流量：12 L/min
- 沖洗氣體流量：常規
- 測定波長：589.592 nm

【0077】**<流動性>**

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定組合物之鬆密度(A)。又，測定於組合物每100 mL中添加抗靜電劑(水澤化學工業股份有限公司製造，「SILTON JC-40」)0.1 g並充分混合而成之樣品之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率。

$$\text{帶電抑制率(\%)} = [\text{鬆密度(A)}/\text{鬆密度(B)}] \times 100 \dots \text{式(1)}$$

對藉由式(1)計算出之值，以下述基準評價流動性。

A：98.5%以上

B：95%以上且未達98.5%

C：90%以上且未達95%

D：未達90%

【0078】**<耐熱性>**

使用熱重量測定裝置(Rigaku公司製造之Thermo Plus EVO TG8120)，測定將組合物於氮氣氛圍、300°C之環境下放置一定時間時之熱重量損失率。對測得之熱重量損失率，以下述基準評價耐熱性。

A：未達15%

B：15%以上且未達25%

C：25%以上且未達32%

D：32%以上

【0079】

<實施例1～實施例20>

向具備攪拌機、冷凝管及溫度計之聚合裝置中，加入去離子水145 g、硫酸鈉(Na_2SO_4)0.10 g及作為分散劑之甲基丙烯酸2-磺乙基鈉與甲基丙烯酸鉀與甲基丙烯酸甲酯之共聚物0.01 g並進行攪拌，製成均勻之水溶液。繼而，加入表1～表2之調配組成所示之材料，製成分散液。其後，對聚合裝置內充分地進行氮氣置換，一面繼續攪拌一面使分散液升溫至80℃後保持2小時，進而升溫至90℃並保持1小時，獲得包含組合物之懸濁液。利用過濾布將上述懸濁液過濾，利用去離子水將過濾布上殘留之殘留物洗淨，進行脫水，於40℃下乾燥16小時，獲得包含丙烯酸系樹脂與化合物(a)～(e)中之一種以上之粒狀組合物。

【0080】

<實施例21>

過濾後不進行殘留物之洗淨，除此以外，與實施例20同樣地操作，獲得包含丙烯酸系樹脂與化合物(a)～(e)中之一種以上之粒狀組合物。

【0081】

<實施例22～實施例28>

向具備攪拌機、冷凝管及溫度計之聚合裝置中，加入去離子水145 g、硫酸鈉(Na_2SO_4)0.10 g及作為分散劑之甲基丙烯酸2-磺乙基鈉與甲基丙烯酸鉀與甲基丙烯酸甲酯之共聚物0.01 g並進行攪拌，製成均勻之水溶

液。繼而，加入表3之調配組成所示之材料，製成分散液。其後，對聚合裝置內充分地進行氮氣置換，一面繼續攪拌一面使分散液升溫至80°C後保持2小時，進而升溫至90°C並保持1小時，獲得包含組合物之懸濁液。利用過濾布將上述懸濁液過濾，利用去離子水將過濾布上殘留之殘留物洗淨，進行脫水，於40°C下乾燥16小時，獲得包含丙烯酸系樹脂與化合物(a)~(e)中之一種以上之粒狀組合物。

【0082】

對實施例1~實施例28中獲得之粒狀組合物，測定重量平均分子量、質量平均粒徑、鈉元素量，並評價流動性、耐熱性。又，使用氣相層析法測定所獲得之組合物中之化合物(a)~(e)之含量。將結果示於表1~表3。

【0083】

<比較例1>

向具備攪拌機、冷凝管及溫度計之聚合裝置中，加入去離子水145 g、硫酸鈉(Na_2SO_4)0.10 g及作為分散劑之甲基丙烯酸2-磺乙基鈉與甲基丙烯酸鉀與甲基丙烯酸甲酯之共聚物0.01 g並進行攪拌，製成均勻之水溶液。繼而，加入表3之調配組成所示之材料，製成分散液。其後，對聚合裝置內充分地進行氮氣置換，一面繼續攪拌一面使分散液升溫至80°C後保持2小時，進而升溫至90°C並保持1小時，獲得包含組合物之懸濁液。利用過濾布將上述懸濁液過濾，利用去離子水將過濾布上殘留之殘留物洗淨，進行脫水，於40°C下乾燥16小時，獲得包含丙烯酸系樹脂之粒狀組合物。

【0084】

對比較例1中獲得之粒狀組合物，測定重量平均分子量、質量平均粒徑、鈉元素量，並評價流動性、耐熱性。又，使用氣相層析法分析所獲得之組合物後，未檢測到化合物(a)~(e)。將結果示於表3。

【0085】

[表1]

			實施例										
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	
調配組成	MMA	g	100	100	100	100	100	99	100	100	100	100	
	nBMA	g											
	MAA	g						1					
	AMBN	g	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	
	nDM	g	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	g		0.001	0.2							
		2-甲基丁酸甲酯	g				0.05		0.05				
		異丁酸異戊酯	g					0.05					
		異丁酸甲酯	g							0.05			
	化合物(b)	對苯二甲酸	g								0.2		
		對苯二甲酸二甲酯	g									0.001	
		苯甲酸	g										0.001
	化合物(c)	2,3,5-三甲基吡啶	g										
		2,3,5,6-四甲基吡啶	g										
	化合物(d)	丙酮酸甲酯	g										
	化合物(e)	1-辛烯	g										
		1-十二烯	g										
組合物特性	重量平均分子量(Mw)		37000	36000	37000	37000	36000	36000	36000	36000	37000	37000	
	質量平均粒徑	μm	234	216	199	211	201	263	204	406	264	254	
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	ppm		10	1740							
		2-甲基丁酸甲酯	ppm				680		480				
		異丁酸異戊酯	ppm					480					
		異丁酸甲酯	ppm	120	110	120	120	100	100	560	110	130	110
	化合物(b)	對苯二甲酸	ppm								1790		
		對苯二甲酸二甲酯	ppm									10	
		苯甲酸	ppm										6
	化合物(c)	2,3,5-三甲基吡啶	ppm										
		2,3,5,6-四甲基吡啶	ppm										
	化合物(d)	丙酮酸甲酯	ppm										
	化合物(e)	1-辛烯	ppm										
		1-十二烯	ppm										
		Na元素量	ppm	2.6	1.6	1.5	1.1	1.2	0.9	1.2	1.5	1.9	1.1
	流動性	帶電抑制率	%	99.0	98.5	98.3	98.1	99.1	98.4	98.6	97.1	98.6	98.2
		評價		A	A	B	B	A	B	A	B	A	B
耐熱性	25分鐘後熱重量損失率	%	16.3	14.6	13.6	12.9	14.5	9.1	14.1	13.4	13.7	14.3	
	評價		B	A	A	A	A	A	A	A	A	A	

【0086】

[表2]

			實施例										
			11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	
調配組成	MMA	g	100	100	100	100	100	100	100	100	100	60	
	nBMA	g										39	
	MAA	g										1	
	AMBN	g	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	
	nDM	g	0.9	0.9	0.9	0.9	1.7	0.9	0.9	0.4	0.4	0.9	
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	g										
		2-甲基丁酸甲酯	g										0.05
		異丁酸異戊酯	g										
	化合物(b)	異丁酸甲酯	g										
		對苯二甲酸	g										
		對苯二甲酸二甲酯	g										
		苯甲酸	g										
	化合物(c)	2,3,5-三甲基吡啶	g		0.2								
		2,3,5,6-四甲基吡啶	g			0.001	0.2	0.2				0.2	
	化合物(d)	丙酮酸甲酯	g						0.001	0.2			
化合物(e)	1-辛烯	g											
	1-十二烯	g											
組合物特性	重量平均分子量(Mw)		37000	39000	36000	36000	21000	38000	38000	72000	74000	35000	
	質量平均粒徑	μm	194	200	221	210	210	190	331	277	323	167	
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	ppm										
		2-甲基丁酸甲酯	ppm										500
		異丁酸異戊酯	ppm										
	化合物(b)	異丁酸甲酯	ppm	100	110	130	120	110	130	110	130	150	40
		對苯二甲酸	ppm										
		對苯二甲酸二甲酯	ppm										
		苯甲酸	ppm										
	化合物(c)	2,3,5-三甲基吡啶	ppm		1670								
		2,3,5,6-四甲基吡啶	ppm			10	1830	1780				1890	
	化合物(d)	丙酮酸甲酯	ppm						50	800			
	化合物(e)	1-辛烯	ppm										
		1-十二烯	ppm										
		Na元素量	ppm	1.5	1.5	1.3	1.1	1.1	1.0	0.3	2.1	1.2	1.9
流動性	帶電抑制率	%	99.0	98.3	98.4	98.2	97.2	99.2	98.1	98.0	97.6	98.5	
	評價		A	B	B	B	B	A	B	B	B	A	
耐熱性	25分鐘後熱重量損失率	%	14.5	15.6	16.2	14.5	10.7	16.0	14.0	16.3	15.5	23.4	
	評價		A	B	B	A	A	B	A	B	B	B	

【0087】

[表3]

			實施例								比較例		
			21	22	23	24	25	26	27	28			
調配組成	MMA	g	60	39.8	39.8	39.8				100	100		
	nBMA	g	39	60	60	60	100	100				100	
	MAA	g	1	0.2	0.2	0.2							
	AMBN	g	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	
	nDM	g	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	g										
		2-甲基丁酸甲酯	g	0.05	0.05								
		異丁酸異戊酯	g										
	化合物(b)	異丁酸甲酯	g										
		對苯二甲酸	g										
		對苯二甲酸二甲酯	g										
	化合物(c)	苯甲酸	g						0.05				
		苯甲酸甲酯	g										
		2,3,5-三甲基吡啶	g										
	化合物(d)	2,3,5,6-四甲基吡啶	g			0.05				0.05			
丙酮酸甲酯		g				0.05							
化合物(e)	1-辛烯	g								0.05			
	1-十二烯	g									0.05		
組合物特性	重量平均分子量(Mw)		35000	35000	35000	35000	34000	34000	37000	37000	34000		
	質量平均粒徑	μm	164	209	227	226	325	341	202	193	309		
	化合物(a)	異丁酸異丁酯	ppm										
		2-甲基丁酸甲酯	ppm	490	500								
		異丁酸異戊酯	ppm										
	化合物(b)	異丁酸甲酯	ppm	30	20	20	20			100	90		
		對苯二甲酸	ppm										
		對苯二甲酸二甲酯	ppm										
	化合物(c)	苯甲酸	ppm										
		苯甲酸甲酯	ppm					40					
		2,3,5-三甲基吡啶	ppm										
	化合物(d)	2,3,5,6-四甲基吡啶	ppm			370			70				
		丙酮酸甲酯	ppm				70						
	化合物(e)	1-辛烯	ppm							530			
		1-十二烯	ppm								510		
Na元素量	ppm	130.0	1.2	4.1	2.9	2.7	2.5	1.3	1.8	3.4			
流動性	帶電抑制率	%	99.1	92.5	92.0	92.2	94.0	91.3	99.2	97.2	95.8		
	評價		A	C	C	C	C	C	A	B	B		
耐熱性	25分鐘後熱重量損失率	%	20.6	28.5	28.4	29.8	31.7	26.2	15.5	15.1	35.1		
	評價		B	C	C	C	C	C	B	B	D		

*不洗淨

【0088】

表1～3中記載之各縮寫如下所述。

MMA：甲基丙烯酸甲酯(Mitsubishi Chemical(股)製造，Acryester M)

nBMA：甲基丙烯酸正丁酯(Mitsubishi Chemical(股)製造，Acryester B)

MAA：甲基丙烯酸(Mitsubishi Chemical(股)製造，甲基丙烯酸)

AMBN：2,2'-偶氮雙-2-甲基丁腈(大塚化學公司製造)

nDM：正十二烷硫醇(Chevron Phillips Chemical公司製造)

【0089】

實施例1、實施例18未有意地調配化合物(a)～(e)之任一者，但於粒狀組合物中包含異丁酸甲酯作為化合物(a)。推測該異丁酸甲酯源自在丙烯酸系樹脂之製造中使用之單體中之雜質。

【0090】

比較例1由於不含有化合物(a)～(e)中之任一者，故熱重量損失率高達35.1%，耐熱性較差。

另一方面，實施例1～28由於包含丙烯酸系樹脂，並包含化合物(a)～(e)中之一種以上之化合物，故熱重量損失率均未達35%，與比較例1相比，顯示出優異之耐熱性。又，帶電抑制率均為90%以上，顯示出優異之流動性。

[產業上之可利用性]

【0091】

本發明之粒狀組合物可適宜地用於塗料、墨水、接著劑、增色劑、

光學材料、車輛用零件、照明用材料、建築用材料、看板標識等各種領域。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】

一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且藉由下述方法求出之組合物之帶電抑制率為90.0~99.9%：

- (a)具有 α 氫之酯化合物、
- (b)芳香族羧酸、或其酯、
- (c)吡啶化合物、
- (d)丙酮酸、或其酯、
- (e) α -烯烴

依據JIS K 7365：1999「塑膠-可自規定漏斗流出之材料之表觀密度的求法」，測定上述組合物之鬆密度(A)、及於上述組合物每100 mL中添加抗靜電劑0.1 g並混合而成之混合物之鬆密度(B)，藉由下述式(1)計算出帶電抑制率：

$$\text{帶電抑制率(\%)} = [\text{鬆密度(A)}/\text{鬆密度(B)}] \times 100 \dots \text{式(1)}。$$

【請求項2】

一種粒狀組合物，其包含下述(a)、下述(b)、下述(c)、下述(d)及下述(e)中之一種以上之化合物、以及丙烯酸系樹脂，且鈉元素量為0.2質量ppm以上200質量ppm以下：

- (a)具有 α 氫之酯化合物、
- (b)芳香族羧酸、或其酯、
- (c)吡啶化合物、
- (d)丙酮酸、或其酯、

(e) α -烯烴。

【請求項3】

如請求項1或2之粒狀組合物，其包含上述(b)、上述(c)及上述(d)中之一種以上之化合物。

【請求項4】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(a)於101.3 kPa下之沸點為93°C以上。

【請求項5】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(e)之碳數為6以上12以下。

【請求項6】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(a)、上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)之合計含量大於20質量ppm且為3000質量ppm以下。

【請求項7】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)之合計含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

【請求項8】

如請求項1或2之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)中之兩種以上。

【請求項9】

如請求項1或2之粒狀組合物，其包含上述(a)、以及上述(b)、上述(c)、上述(d)及上述(e)中之一種以上。

【請求項10】

如請求項1或2之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(c)、上述(d)及上

述(e)中之一種以上、以及上述(b)。

【請求項11】

如請求項1或2之粒狀組合物，其包含上述(a)、上述(b)、上述(d)及上述(e)中之一種以上、以及上述(c)。

【請求項12】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(a)之含量大於20質量ppm且為3000質量ppm以下。

【請求項13】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(b)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

【請求項14】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(c)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

【請求項15】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(d)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

【請求項16】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述(e)之含量為1質量ppm以上3000質量ppm以下。

【請求項17】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自甲基丙烯酸甲酯之結構單元。

【請求項18】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自烷基之碳數為2~8之(甲基)丙烯酸烷基酯之結構單元。

【請求項19】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中上述丙烯酸系樹脂具有源自 α,β -不飽和羧酸之結構單元。

【請求項20】

如請求項1或2之粒狀組合物，其中鈉元素量為0.2質量ppm以上200質量ppm以下。

【請求項21】

一種塗料，其包含如請求項1或2之粒狀組合物。

【請求項22】

一種墨水，其包含如請求項1或2之粒狀組合物。

【請求項23】

一種接著劑，其包含如請求項1或2之粒狀組合物。