(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B1)　(11)特許番号

特許第6533863号
(P6533863)

(45)発行日　令和1年6月19日(2019.6.19)　(24)登録日　令和1年5月31日(2019.5.31)

(51)Int.Cl.		F I		
C09D 201/00	(2006.01)	C09D	201/00	
C09D 7/61	(2018.01)	C09D	7/61	
C09D 7/62	(2018.01)	C09D	7/62	
C09D 5/00	(2006.01)	C09D	5/00	D
C09D 5/29	(2006.01)	C09D	5/29	

請求項の数 8　(全 62 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2018-246182(P2018-246182)
(22)出願日　平成30年12月27日(2018.12.27)
審査請求日　平成31年1月10日(2019.1.10)
(31)優先権主張番号　特願2017-254157(P2017-254157)
(32)優先日　平成29年12月28日(2017.12.28)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

早期審査対象出願

(73)特許権者　000001409
関西ペイント株式会社
兵庫県尼崎市神崎町３３番１号
(74)代理人　110002000
特許業務法人栄光特許事務所
(72)発明者　大村　匡弘
愛知県みよし市莇生町平地１番地　関西ペイント株式会社内
(72)発明者　小松　美保
愛知県みよし市莇生町平地１番地　関西ペイント株式会社内

審査官　井上　恵理

最終頁に続く

(54)【発明の名称】塗料組成物、塗装物品及び複層塗膜形成方法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
バインダー成分（Ａ）、平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を含有する塗料組成物であって、
前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の含有量が１０～５０質量部の範囲内であり、前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有量が０．５～１０質量部の範囲内であり、
かつ前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有割合（Ｂ）／（Ｃ）が固形分質量比で２／１～５０／１の範囲内である、塗料組成物。
【請求項２】
前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さが０．１０～０．８０μｍの範囲内である、請求項１に記載の塗料組成物。
【請求項３】
前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均厚さが０．２０～０．６０μｍの範囲内である、請求項１又は２に記載の塗料組成物。
【請求項４】
前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）が酸化チタン被覆雲母顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料、並びに酸化チタ

ン及び酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料から成る群から選択される少なくとも１種を含有する、請求項１～３のいずれか１項に記載の塗料組成物。
【請求項５】
前記塗料組成物を硬化させた硬化塗膜の、膜厚１５μｍにおける下記式により求められるフリップフロップ値が２．０～３０．０の範囲内である、請求項１～４のいずれか１項に記載の塗料組成物。
フリップフロップ値＝Ｌ＊１５値／Ｌ＊７５値
（式中、Ｌ＊１５値は受光角１５度のＬ＊値を、Ｌ＊７５値は受光角７５度のＬ＊値を示す。）
【請求項６】
前記塗料組成物を硬化させた硬化塗膜の、膜厚１５μｍにおける粒状性値（Ｇ値）が５．０～１０．０の範囲内である、請求項１～５のいずれか１項に記載の塗料組成物。
【請求項７】
被塗物上に、請求項１～６のいずれか１項に記載の塗料組成物を硬化させた硬化塗膜を有する塗装物品。
【請求項８】
（１）被塗物に、ベースコート塗料組成物（Ｘ）を塗装して未硬化のベースコート塗膜を形成する工程、
（２）前記未硬化のベースコート塗膜上に、クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）を塗装して未硬化のクリヤーコート塗膜を形成する工程、並びに
（３）前記未硬化のベースコート塗膜及び前記未硬化のクリヤーコート塗膜を加熱して、両塗膜を同時に硬化させる工程を含む複層塗膜形成方法であって、
前記ベースコート塗料組成物（Ｘ）が請求項１～６のいずれか１項に記載の塗料組成物である複層塗膜形成方法。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、塗料組成物、塗装物品及び複層塗膜形成方法に関するものである。
【背景技術】
【０００２】
被塗物上に塗料を塗装する目的は、主に美観の付与及び素材の保護であり、自動車等の分野においては美観の観点から、メタリック色を有する塗膜が使用されることがある。また、そのようなメタリック色を有する塗膜を得るために、鱗片状アルミニウム顔料を含有させることが知られている。
【０００３】
上記鱗片状アルミニウム顔料は、被塗物の面に平行になるように配向し、見る方向によって色調が変化するとともに、キラキラとした輝きを持つ独特の意匠性を呈するものである。
【０００４】
このうち、見る方向によって色調が変化するという特徴はフリップフロップ性と呼ばれ、この色調の変化が大きい方が、フリップフロップ性が高いとされ、鱗片状アルミニウム顔料を含有する塗膜としての光輝感に優れるとされている。
また、キラキラとした輝きを有するという特徴は粒子感と呼ばれ、鱗片状アルミニウム顔料のそれぞれの粒子が目立つ、粒子感が高いメタリック色の開発が行われている。
【０００５】
例えば、特許文献１では、（Ａ）平均粒子径ｄ５０が１３μｍ以上、４０μｍ以下、平均厚さが０．４μｍ以上、２．５μｍ以下のアルミニウムフレーク顔料、および（Ｂ）平均粒子径ｄ５０が４μｍ以上、３０μｍ以下、平均厚さが０．１μｍ以上、０．４μｍ未満のアルミニウムフレーク顔料を含有してなり、顔料（Ｂ）に対する顔料（Ａ）の固形分質量比（（Ａ）／（Ｂ））が９０／１０～１０／９０であり、前記メタリック塗料樹脂固

形分１００質量部に対して、顔料（Ａ）と顔料（Ｂ）との固形分質量の合計値（（Ａ）＋（Ｂ））が５～５０質量部であることを特徴とする、メタリック塗料組成物が開示されている。

また、該メタリック塗料組成物は、粒子感、光輝感、フリップフロップ性及び隠蔽性に優れたメタリック塗膜を形成できることが記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００６】

【特許文献１】特開２００５－２３９８０１号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

鱗片状アルミニウム顔料を配合したメタリック塗料組成物においては、該鱗片状アルミニウム顔料の塗膜中の配向の状態等によって、メタリックムラが発生することが知られている。

しかしながら、特許文献１に記載の技術は、粒子感、光輝感、フリップフロップ性及び隠蔽性に関しては検討されているものの、メタリックムラの発生を抑制することについては検討されていない。

【０００８】

本発明は、上記従来の実情に鑑みてなされたものであって、高い粒子感を持ち、かつメタリックムラの発生が抑制された塗膜を形成することができる塗料組成物を提供することを解決すべき課題としている。

【課題を解決するための手段】

【０００９】

本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、特定の鱗片状顔料を一定の割合で用いることで、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【００１０】

すなわち、本発明は下記＜１＞～＜８＞に関するものである。

＜１＞バインダー成分（Ａ）、平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を含有する塗料組成物であって、

前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の含有量が１０～５０質量部の範囲内であり、前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有量が０．５～１０質量部の範囲内であり、かつ前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有割合（Ｂ）／（Ｃ）が固形分質量比で２／１～５０／１の範囲内である、塗料組成物。

＜２＞前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さが０．１０～０．８０μｍの範囲内である、＜１＞に記載の塗料組成物。

＜３＞前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均厚さが０．２０～０．６０μｍの範囲内である、＜１＞又は＜２＞に記載の塗料組成物。

＜４＞前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）が酸化チタン被覆雲母顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料、並びに酸化チタン及び酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料から成る群から選択される少なくとも１種を含有する、＜１＞～＜３＞のいずれか１つに記載の塗料組成物。

＜５＞前記塗料組成物を硬化させた硬化塗膜の、膜厚１５μｍにおける下記式により求められるフリップフロップ値が２．０～３０．０の範囲内である、＜１＞～＜４＞のいずれか１つに記載の塗料組成物。

フリップフロップ値＝Ｌ＊１５値／Ｌ＊７５値

（式中、Ｌ＊１５値は受光角１５度のＬ＊値を、Ｌ＊７５値は受光角７５度のＬ＊値を示

す。）
＜６＞前記塗料組成物を硬化させた硬化塗膜の、膜厚１５μｍにおける粒状性値（Ｇ値）が５．０～１０．０の範囲内である、＜１＞～＜５＞のいずれか１つに記載の塗料組成物。
＜７＞被塗物上に、＜１＞～＜６＞のいずれか１つに記載の塗料組成物を硬化させた硬化塗膜を有する塗装物品。
＜８＞（１）被塗物に、ベースコート塗料組成物（Ｘ）を塗装して未硬化のベースコート塗膜を形成する工程、
（２）前記未硬化のベースコート塗膜上に、クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）を塗装して未硬化のクリヤーコート塗膜を形成する工程、並びに
（３）前記未硬化のベースコート塗膜及び前記未硬化のクリヤーコート塗膜を加熱して、両塗膜を同時に硬化させる工程を含む複層塗膜形成方法であって、
前記ベースコート塗料組成物（Ｘ）が＜１＞～＜６＞のいずれか１つに記載の塗料組成物である複層塗膜形成方法。
【発明の効果】
【００１１】
本発明によれば、高い粒子感を持ち、かつメタリックムラの発生が抑制された塗膜を形成することができる塗料組成物を提供することができる。
また、本発明によれば、フリップフロップ性及び鮮映性に優れた塗膜を形成することができる塗料組成物を提供することができる。
【発明を実施するための形態】
【００１２】
以下、本発明について詳述するが、これらは望ましい実施態様の一例を示すものであり、本発明はこれらの内容に特定されるものではない。
【００１３】
［塗料組成物］
本発明の塗料組成物は、バインダー成分（Ａ）、平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を含有する。
【００１４】
〔バインダー成分（Ａ）〕
本発明で用いるバインダー成分（Ａ）としては、従来から塗料分野において使用されている、基体樹脂及び場合によりさらに硬化剤を含んでなる、それ自体既知のバインダー成分を使用することができる。該基体樹脂の種類としては、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられ、水酸基、カルボキシル基、エポキシ基等の架橋性官能基を有していることが好ましい。
バインダー成分（Ａ）としては、特に、基体樹脂としての水酸基含有樹脂（Ａ１）を硬化剤（Ａ３）と組み合わせて含んでなるものが好適である。
【００１５】
＜水酸基含有樹脂（Ａ１）＞
水酸基含有樹脂（Ａ１）は、１分子中に少なくとも１個の水酸基を有する樹脂である。
水酸基含有樹脂（Ａ１）は、得られる塗膜の耐水性等の観点から、一般に１～３００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に５～２５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に１０～１８０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の水酸基価を有することが好ましい。
水酸基含有樹脂（Ａ１）は、分子内に酸基を有することもできる。該酸基としては、例えば、カルボキシル基、スルホン酸基、燐酸基等が挙げられ、特に、カルボキシル基が好適である。
【００１６】
本発明の塗料組成物は、環境負荷を低減する等の観点から、水性塗料であることが好ましいが、その場合、酸基、好ましくはカルボキシル基を塩基性化合物で中和することによ

り、水酸基含有樹脂（Ａ１）を水溶性化又は水分散化することが好ましい。上記塩基性化合物としては、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウム、水酸化カルシウム、水酸化バリウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属の水酸化物；アンモニア；エチルアミン、プロピルアミン、ブチルアミン、ベンジルアミン、モノエタノールアミン、ネオペンタノールアミン、２－アミノプロパノール、２－アミノ－２－メチル－１－プロパノール、３－アミノプロパノール等の第１級モノアミン；ジエチルアミン、ジエタノールアミン、ジ－ｎ－プロパノールアミン、ジ－ｉｓｏ－プロパノールアミン、Ｎ－メチルエタノールアミン、Ｎ－エチルエタノールアミン等の第２級モノアミン；ジメチルエタノールアミン、トリメチルアミン、トリエチルアミン、トリイソプロピルアミン、メチルジエタノールアミン、２－（ジメチルアミノ）エタノール等の第３級モノアミン；ジエチレントリアミン、ヒドロキシエチルアミノエチルアミン、エチルアミノエチルアミン、メチルアミノプロピルアミン等のポリアミンを挙げることができる。これらの塩基性化合物は、水酸基含有樹脂（Ａ１）の酸基に対して通常０．１～１．５当量、好ましくは０．２～１．２当量の範囲内で使用することができる。

【００１７】

なお、本明細書において「水性塗料」は、有機溶剤型塗料と対比される用語であって、一般に水又は水を主成分とする媒体（水性媒体）中に、塗膜形成性樹脂成分、顔料等を分散及び／又は溶解させてなる塗料を意味する。本発明の塗料組成物が水性塗料である場合、該組成物中における水の含有量は通常１０～９０質量％、特に２０～８０質量％、さらに特に３０～７０質量％の範囲内にあることが好ましい。

【００１８】

塗料組成物の貯蔵安定性、得られる塗膜の耐水性等の観点から、水酸基含有樹脂（Ａ１）は、一般に１～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２～１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に３～９０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の酸価を有することが好ましい。また、水酸基含有樹脂（Ａ１）として酸価が１０ｍｇＫＯＨ／ｇ以下の水酸基含有樹脂を使用する場合には、上記塩基性化合物を用いて中和することに代えて、該水酸基含有樹脂と乳化剤とを混合し、機械的なせん断力を加えて撹拌して該水酸基含有樹脂を水中に強制的に分散させることにより、水性塗料として使用することもできる。

【００１９】

上記水酸基含有樹脂（Ａ１）としては、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、ポリエーテル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂、アルキド樹脂等が挙げられ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。なかでも、水酸基含有樹脂（Ａ１）は、水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）及び水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）からなる群より選ばれる少なくとも１種を含むことが好ましく、水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）を含むことがより好ましい。

【００２０】

（水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１））

水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、通常、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）及び該水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）と共重合可能な他の重合性不飽和モノマー（ｂ）を、例えば、有機溶媒中での溶液重合法、水性媒体中でのエマルション重合法等のそれ自体既知の方法によって共重合させることにより製造することができる。

【００２１】

水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）は、１分子中に水酸基及び重合性不飽和基をそれぞれ少なくとも１個有する化合物であり、例えば、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸と炭素数２～８の２価アルコールとのモノエステル化物；これらのモノエステル化物のε－カプロラクトン変性体；Ｎ－ヒドロキシメチル（メタ）アクリルアミド；アリルアルコール；分子末端に水酸基を有するポリオキシエチレン鎖を有する（メタ）アクリレート等を挙げることができる。

【００２２】
但し、本発明においては、後述する（ｘｖｉｉ）紫外線吸収性官能基を有する重合性不飽和モノマーに該当するモノマーは、上記水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）と共重合可能な他の重合性不飽和モノマー（ｂ）として規定されるべきものであり、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）からは除かれる。上記水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）は、単独でもしくは２種以上を組み合わせて使用することができる。
【００２３】
なお、本明細書において、重合性不飽和基とは、ラジカル重合しうる不飽和基を意味する。かかる重合性不飽和基としては、例えば、ビニル基、（メタ）アクリロイル基、（メタ）アクリルアミド基、ビニルエーテル基、アリル基、プロペニル基、イソプロペニル基、マレイミド基等が挙げられる。
【００２４】
なお、本明細書において、「（メタ）アクリレート」はアクリレート又はメタクリレートを意味し、「（メタ）アクリル酸」はアクリル酸又はメタクリル酸を意味する。また、「（メタ）アクリロイル」はアクリロイル又はメタクリロイルを意味する。さらに、「（メタ）アクリルアミド」はアクリルアミド又はメタクリルアミドを意味する。
【００２５】
水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）と共重合可能な他の重合性不飽和モノマー（ｂ）としては、水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）に望まれる特性に応じて適宜選択して使用することができる。該モノマー（ｂ）の具体例としては、以下の（ｉ）～（ｘｉｘ）に記載するものを挙げることができる。これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。
【００２６】
（ｉ）アルキル又はシクロアルキル（メタ）アクリレート：例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－オクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、イソステアリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、メチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、シクロドデシル（メタ）アクリレート、トリシクロデカニル（メタ）アクリレート等。
【００２７】
（ｉｉ）イソボルニル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、イソボルニル（メタ）アクリレート等。
（ｉｉｉ）アダマンチル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、アダマンチル（メタ）アクリレート等。
（ｉｖ）トリシクロデセニル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、トリシクロデセニル（メタ）アクリレート等。
（ｖ）芳香環含有重合性不飽和モノマー：例えば、ベンジル（メタ）アクリレート、スチレン、α－メチルスチレン、ビニルトルエン等。
（ｖｉ）アルコキシシリル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリス（２－メトキシエトキシ）シラン、γ－（メタ）アクリロイルオキシプロピルトリメトキシシラン、γ－（メタ）アクリロイルオキシプロピルトリエトキシシラン等。
【００２８】
（ｖｉｉ）フッ素化アルキル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、パーフルオロブチルエチル（メタ）アクリレート、パーフルオロオクチルエチル（メタ）アクリレート等のパーフルオロアルキル（メタ）アクリレート；フルオロオレフィン等。

（ｖｉｉｉ）マレイミド基等の光重合性官能基を有する重合性不飽和モノマー。
（ｉｘ）ビニル化合物：例えば、Ｎ－ビニルピロリドン、エチレン、ブタジエン、クロロプレン、プロピオン酸ビニル、酢酸ビニル等。
（ｘ）カルボキシル基含有重合性不飽和モノマー：例えば、（メタ）アクリル酸、マレイン酸、クロトン酸、β－カルボキシエチルアクリレート等。
【００２９】
（ｘｉ）含窒素重合性不飽和モノマー：例えば、（メタ）アクリロニトリル、（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド、メチレンビス（メタ）アクリルアミド、エチレンビス（メタ）アクリルアミド、２－（メタクリロイルオキシ）エチルトリメチルアンモニウムクロライド、グリシジル（メタ）アクリレートとアミン類との付加物等。
【００３０】
（ｘｉｉ）重合性不飽和基を１分子中に２個以上有する重合性不飽和モノマー：例えば、アリル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート等。
（ｘｉｉｉ）エポキシ基含有重合性不飽和モノマー：例えば、グリシジル（メタ）アクリレート、β－メチルグリシジル（メタ）アクリレート、３，４－エポキシシクロヘキシルメチル（メタ）アクリレート、３，４－エポキシシクロヘキシルエチル（メタ）アクリレート、３，４－エポキシシクロヘキシルプロピル（メタ）アクリレート、アリルグリシジルエーテル等。
【００３１】
（ｘｉｖ）分子末端にアルコキシ基を有するポリオキシエチレン鎖を有する（メタ）アクリレート。
（ｘｖ）スルホン酸基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、２－アクリルアミド－２－メチルプロパンスルホン酸、２－スルホエチル（メタ）アクリレート、アリルスルホン酸、４－スチレンスルホン酸等；これらスルホン酸のナトリウム塩、アンモニウム塩等。
（ｘｖｉ）リン酸基を有する重合性不飽和モノマー：アシッドホスホオキシエチル（メタ）アクリレート、アシッドホスホオキシプロピル（メタ）アクリレート、アシッドホスホオキシポリ（オキシエチレン）グリコール（メタ）アクリレート、アシッドホスホオキシポリ（オキシプロピレン）グリコール（メタ）アクリレート等。
【００３２】
（ｘｖｉｉ）紫外線吸収性官能基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、２－ヒドロキシ－４－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）ベンゾフェノン、２－ヒドロキシ－４－（３－アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）ベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）ベンゾフェノン、２，２’－ジヒドロキシ－４－（３－アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）ベンゾフェノン、２－（２’－ヒドロキシ－５’－メタクリロイルオキシエチルフェニル）－２Ｈ－ベンゾトリアゾール等。
【００３３】
（ｘｖｉｉｉ）光安定性重合性不飽和モノマー：例えば、４－（メタ）アクリロイルオキシ－１，２，２，６，６－ペンタメチルピペリジン、４－（メタ）アクリロイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－シアノ－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－（メタ）アクリロイル－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－（メタ）アクリロイル－４－シアノ－４－（メタ）アクリロイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－クロトノイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、４－クロトノイルアミノ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン、１－クロトノイル－４－クロトノイルオキシ－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン等。

【００３４】
（ｘｉｘ）カルボニル基を有する重合性不飽和モノマー：例えば、アクロレイン、ダイアセトンアクリルアミド、ダイアセトンメタクリルアミド、アセトアセトキシエチルメタクリレート、ホルミルスチロール、４～７個の炭素原子を有するビニルアルキルケトン（例えば、ビニルメチルケトン、ビニルエチルケトン、ビニルブチルケトン）等。
【００３５】
水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、該樹脂中の水酸基の一部にポリイソシアネート化合物をウレタン化反応させることにより伸長させ高分子量化した、いわゆるウレタン変性アクリル樹脂と併用することもできる。
【００３６】
水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）は、モノマー（ａ）及びモノマー（ｂ）の合計量を基準にして、一般に１～５０質量％、好ましくは２～４０質量％、さらに好ましくは３～３０質量％の範囲内で使用することができる。
【００３７】
水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、貯蔵安定性や得られる塗膜の耐水性等の観点から、一般に１～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２～１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に５～１００ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の水酸基価を有することが好ましい。
【００３８】
水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、また、得られる塗膜の耐水性等の観点から、一般に１～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２～１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に５～８０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の酸価を有することが好ましい。
【００３９】
水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、さらに、得られる塗膜の外観、耐水性等の観点から、一般に２，０００～５，０００，０００、特に４，０００～１，０００，０００、さらに特に８，０００～５００，０００の範囲内の重量平均分子量を有することが好ましい。
【００４０】
なお、本明細書において、数平均分子量及び重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）を用いて測定した保持時間（保持容量）を、同一条件で測定した分子量既知の標準ポリスチレンの保持時間（保持容量）に基づいて、ポリスチレンの分子量に換算して求めた値である。具体的には、ゲルパーミエーションクロマトグラフ装置として、「ＨＬＣ－８１２０ＧＰＣ」（商品名、東ソー社製）を使用し、カラムとして、「ＴＳＫｇｅｌ　Ｇ４０００ＨＸＬ」、「ＴＳＫｇｅｌ　Ｇ３０００ＨＸＬ」、「ＴＳＫｇｅｌ　Ｇ２５００ＨＸＬ」及び「ＴＳＫｇｅｌ　Ｇ２０００ＨＸＬ」（商品名、いずれも東ソー社製）の計４本を使用し、検出器として、示差屈折率計を使用し、移動相：テトラヒドロフラン、測定温度：４０℃、流速：１ｍＬ／ｍｉｎの条件下で測定することができる。
【００４１】
本発明の塗料組成物が水性塗料である場合、水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、形成塗膜のメタリックムラの発生抑制及びフリップフロップ性向上等の観点から、重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマー（ｃ）０．１～３０質量％及び重合性不飽和基を１分子中に１個有する重合性不飽和モノマー（ｄ）７０～９９．９質量％を共重合することにより得られる共重合体（Ｉ）のコアと、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）１～３５質量％、疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）５～６０質量％、ならびに水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）及び疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）５～９４質量％を共重合することにより得られる共重合体（ＩＩ）のシェルを構成成分とするコア／シェル型複層構造を有する水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）を含むことが好ましい。
【００４２】
コアを構成する重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマ

ー（ｃ）としては、例えば、アリル（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，３－ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、グリセロールジ（メタ）アクリレート、１，１，１－トリスヒドロキシメチルエタンジ（メタ）アクリレート、１，１，１－トリスヒドロキシメチルエタントリ（メタ）アクリレート、１，１，１－トリスヒドロキシメチルプロパントリ（メタ）アクリレート、トリアリルイソシアヌレート、ジアリルテレフタレート、ジビニルベンゼン等が挙げられ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【００４３】

重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマー（ｃ）は、モノマー（ｃ）及びモノマー（ｄ）の合計質量を基準として、一般に０．１～３０質量％、好ましくは０．５～１０質量％、さらに好ましくは１～５質量％の範囲内で使用することができる。

【００４４】

また、コアを構成する重合性不飽和基を１分子中に１個有する重合性不飽和モノマー（ｄ）は、重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマー（ｃ）と共重合可能な重合性不飽和モノマーであり、１分子中に１個の重合性不飽和基、例えば、ビニル基、（メタ）アクリロイル基、アリル基等を含有する化合物が包含される。

【００４５】

重合性不飽和基を１分子中に１個有する重合性不飽和モノマー（ｄ）の具体例としては、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－オクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、「イソステアリルアクリレート」（商品名、大阪有機化学工業社製）、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、メチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、シクロドデシル（メタ）アクリレート等のアルキル又はシクロアルキル（メタ）アクリレート；イソボルニル（メタ）アクリレート等のイソボルニル基を有する重合性不飽和モノマー；アダマンチル（メタ）アクリレート等のアダマンチル基を有する重合性不飽和モノマー；スチレン、α－メチルスチレン、ビニルトルエン等のビニル芳香族化合物；２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸と炭素数２～８の２価アルコールとのモノエステル化物、該（メタ）アクリル酸と炭素数２～８の２価アルコールとのモノエステル化物のε－カプロラクトン変性体、アリルアルコール、分子末端が水酸基であるポリオキシエチレン鎖を有する（メタ）アクリレート等の水酸基含有重合性不飽和モノマー；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、クロトン酸、β－カルボキシエチルアクリレート等のカルボキシル基含有重合性不飽和モノマー；（メタ）アクリロニトリル、（メタ）アクリルアミド、ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレートとアミン類との付加物等の含窒素重合性不飽和モノマー等が挙げられ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【００４６】

他方、シェルを構成する水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）としては、前述したよ

うに、例えば、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸と炭素数２～８の２価アルコールとのモノエステル化物；（メタ）アクリル酸と炭素数２～８の２価アルコールとのモノエステル化物のε－カプロラクトン変性体；アリルアルコール；分子末端が水酸基であるポリオキシエチレン鎖を有する（メタ）アクリレート等を挙げることができ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【００４７】

水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）は、モノマー（ａ）、モノマー（ｅ）及びモノマー（ｆ）の合計質量を基準として、一般に１～３５質量％、好ましくは５～２５質量％、さらに好ましくは８～２０質量％の範囲内で使用することができる。

【００４８】

また、シェルを構成する疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）には、炭素数が６以上の直鎖状、分岐状もしくは環状で飽和又は不飽和の炭化水素基を含有する重合性不飽和モノマーが包含され、具体的には、例えば、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－オクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、ノニル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、「イソステアリルアクリレート」（商品名、大阪有機化学工業社製）、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、メチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチルシクロヘキシル（メタ）アクリレート、シクロドデシル（メタ）アクリレート等のアルキル又はシクロアルキル（メタ）アクリレート；イソボルニル（メタ）アクリレート等のイソボルニル基を有する重合性不飽和モノマー；アダマンチル（メタ）アクリレート等のアダマンチル基を有する重合性不飽和モノマー；スチレン、α－メチルスチレン、ビニルトルエン等のビニル芳香族化合物等を挙げることができ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）に用いる疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）としては、形成塗膜の平滑性、鮮映性等の観点から、なかでも、ビニル芳香族化合物が好ましく、スチレンが特に好ましい。

【００４９】

疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）は、モノマー（ａ）、モノマー（ｅ）及びモノマー（ｆ）の合計量を基準として、一般に５～６０質量％、特に８～４０質量％、さらに特に１１～２５質量％の範囲内で使用することが好ましい。

【００５０】

また、シェルを構成する水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）及び疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）としては、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－プロピル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチル（メタ）アクリレート等のアルキル（メタ）アクリレート；（メタ）アクリル酸、マレイン酸、クロトン酸、β－カルボキシエチルアクリレート等のカルボキシル基含有重合性不飽和モノマー等を挙げることができ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【００５１】

水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）及び疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）は、形成塗膜の平滑性を確保できる点から、その成分の少なくとも一部として、カルボキシル基含有重合性不飽和モノマー（ｇ）を含むことが好適である。

【００５２】

カルボキシル基含有重合性不飽和モノマー（ｇ）としては、例えば、（メタ）アクリル酸、マレイン酸、クロトン酸、β－カルボキシエチルアクリレート等を挙げることができ、なかでも、（メタ）アクリル酸が好適である。

【００５３】
カルボキシル基含有重合性不飽和モノマー（ｇ）は、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）の水性媒体中における安定性ならびに形成塗膜の平滑性及び耐水性等の観点から、モノマー（ａ）、モノマー（ｅ）及びモノマー（ｆ）の合計質量を基準として、一般に１～４０質量％、特に６～２５質量％、さらに特に１１～１９質量％の範囲内で使用することが好ましい。
【００５４】
水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、形成塗膜の耐水性等の観点から、一般に１～７０ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２～６０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に５～４５ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の水酸基価を有することが好適である。
【００５５】
また、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、貯蔵安定性や形成塗膜の耐水性等の観点から、一般に５～９０ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に１０～７０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に１５～５０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の酸価を有することが好適である。
【００５６】
さらに、形成塗膜のメタリックムラの発生抑制及びフリップフロップ性向上等の観点から、モノマー（ａ）、モノマー（ｅ）及びモノマー（ｆ）として、重合性不飽和基を１分子中に１個のみ有する重合性不飽和モノマーを使用し、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）のシェルを未架橋型とすることが好ましい。
【００５７】
水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、例えば、重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマー（ｃ）０．１～３０質量％及び重合性不飽和基を１分子中に１個有する重合性不飽和モノマー（ｄ）７０～９９．９質量％を含有するモノマー混合物（Ｉ）を乳化重合して得られるエマルション中に、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）１～３５質量％、疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）５～６０質量％及び上記モノマー（ａ）及びモノマー（ｄ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）５～９４質量％を含有するモノマー混合物（ＩＩ）を添加し、さらに重合させることによって得ることができる。
【００５８】
上記モノマー混合物の乳化重合は、それ自体既知の方法、例えば、乳化剤の存在下で重合開始剤を使用して行うことができる。
【００５９】
上記乳化剤としては、アニオン性乳化剤又はノニオン性乳化剤が好適である。該アニオン性乳化剤としては、例えば、アルキルスルホン酸、アルキルベンゼンスルホン酸、アルキルリン酸等の有機酸のナトリウム塩やアンモニウム塩が挙げられ、また、該ノニオン系乳化剤としては、例えば、ポリオキシエチレンオレイルエーテル、ポリオキシエチレンステアリルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシエチレントリデシルエーテル、ポリオキシエチレンフェニルエーテル、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンモノラウレート、ポリオキシエチレンモノステアレート、ポリオキシエチレンモノオレエート、ソルビタンモノラウレート、ソルビタンモノステアレート、ソルビタンモノステアレート、ソルビタントリオレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート等が挙げられる。
【００６０】
１分子中にアニオン性基とポリオキシエチレン基、ポリオキシプロピレン基等のポリオキシアルキレン基を有するポリオキシアルキレン基含有アニオン性乳化剤や、１分子中に該アニオン性基とラジカル重合性不飽和基とを有する反応性アニオン性乳化剤を使用してもよく、なかでも、反応性アニオン性乳化剤を使用することが好適である。
【００６１】
上記反応性アニオン性乳化剤としては、（メタ）アリル基、（メタ）アクリロイル基、

プロペニル基、ブテニル基等のラジカル重合性不飽和基を有するスルホン酸化合物のナトリウム塩やアンモニウム塩を挙げることができる。なかでも、形成塗膜の耐水性に優れるため、ラジカル重合性不飽和基を有するスルホン酸化合物のアンモニウム塩が好ましい。該スルホン酸化合物のアンモニウム塩としては、例えば、「ラテムルＳ－１８０Ａ」（商品名、花王社製）等の市販品を挙げることができる。

【００６２】

上記ラジカル重合性不飽和基を有するスルホン酸化合物のアンモニウム塩の中でも、ラジカル重合性不飽和基とポリオキシアルキレン基を有するスルホン酸化合物のアンモニウム塩がさらに好ましい。上記ラジカル重合性不飽和基とポリオキシアルキレン基を有するスルホン酸化合物のアンモニウム塩としては、例えば、「アクアロンＫＨ－１０」（商品名、第一工業製薬社製）、「ＳＲ－１０２５Ａ」（商品名、旭電化工業社製）等の市販品を挙げることができる。

【００６３】

上記乳化剤は、使用される全モノマーの合計量を基準にして、通常０．１～１５質量％、好ましくは０．５～１０質量％、さらに好ましくは１～５質量％の範囲内で使用することができる。

【００６４】

前記重合開始剤としては、油溶性、水溶性のいずれのタイプのものであってもよく、例えば、ベンゾイルパーオキシド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキシド、ステアロイルパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキサイド、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシラウレート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、ｔｅｒｔ－ブチルパーオキシアセテート、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド等の有機過酸化物；アゾビスイソブチロニトリル、アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）、アゾビス（２－メチルプロピオンニトリル）、アゾビス（２－メチルブチロニトリル）、４、４’－アゾビス（４－シアノブタン酸）、ジメチルアゾビス（２－メチルプロピオネート）、アゾビス［２－メチル－Ｎ－（２－ヒドロキシエチル）－プロピオンアミド］、アゾビス｛２－メチル－Ｎ－［２－（１－ヒドロキシブチル）］－プロピオンアミド｝等のアゾ化合物；過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム、過硫酸ナトリウム等の過硫酸塩等が挙げられる。これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて用いることができる。

【００６５】

また、上記重合開始剤に、必要に応じて、例えば、糖、ナトリウムホルムアルデヒドスルホキシレート、鉄錯体等の還元剤を併用し、レドックス重合系としてもよい。

【００６６】

上記重合開始剤は、使用される全モノマーの合計質量を基準にして、通常０．１～５質量％、特に０．２～３質量％の範囲内で使用することが好ましい。該重合開始剤の添加方法は、特に制限されるものではなく、その種類や量等に応じて適宜選択することができる。例えば、該重合開始剤は、予めモノマー混合物又は水性媒体に含ませてもよく、或いは重合時に一括して添加してもよく又は滴下してもよい。

【００６７】

水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、上記のようにして得られるエマルションに、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）、疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）ならびに上記モノマー（ａ）及びモノマー（ｅ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）を含むモノマー混合物（ＩＩ）を添加し、さらに重合させることによって得ることができる。

モノマー混合物（ＩＩ）は、必要に応じて、前記で列記したような重合開始剤、連鎖移動剤、還元剤、乳化剤等の成分を適宜含有することができる。

【００６８】

また、モノマー混合物（ＩＩ）はそのまま滴下することもできるが、モノマー混合物（ＩＩ）を水性媒体に分散し、モノマー乳化物として滴下することが望ましい。この場合におけるモノマー乳化物の粒子径は特に制限されるものではない。

【００６９】
モノマー混合物（ＩＩ）の重合は、例えば、乳化されていてもよいモノマー混合物（ＩＩ）を一括で又は滴下で上記エマルションに添加し、撹拌しながら適当な温度に加熱することにより行うことができる。
【００７０】
上記の如くして得られる水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、重合性不飽和基を１分子中に少なくとも２個有する重合性不飽和モノマー（ｃ）及び重合性不飽和基を１分子中に１個有する重合性不飽和モノマー（ｄ）を含有するモノマー混合物（Ｉ）から形成される共重合体（Ｉ）をコアとし、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）、疎水性重合性不飽和モノマー（ｅ）ならびに上記モノマー（ａ）及び（ｅ）以外の重合性不飽和モノマー（ｆ）を含有するモノマー混合物（ＩＩ）から形成される共重合体（ＩＩ）をシェルとするコア／シェル型複層構造を有することができる。
【００７１】
また、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、共重合体（Ｉ）を得る工程と共重合体（ＩＩ）を得る工程の間に、他の樹脂層を形成する重合性不飽和モノマー（１種又は２種以上の混合物）を供給して乳化重合を行なう工程を追加することによって、３層又はそれ以上の層からなる樹脂粒子としてもよい。
【００７２】
なお、本発明において、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）の「シェル」は樹脂粒子の最外層に存在する重合体層を意味し、「コア」は上記シェル部を除く樹脂粒子内層の重合体層を意味し、「コア／シェル型構造」は上記コアとシェルを有する構造を意味するものである。上記コア／シェル型構造は、通常、コアがシェルに完全に被覆された層構造が一般的であるが、コアとシェルの質量比率等によっては、シェルのモノマー量が層構造を形成するのに不十分な場合もあり得る。そのような場合は、上記のような完全な層構造である必要はなく、コアの一部をシェルが被覆した構造であってもよく、あるいはコアの一部にシェルの構成要素である重合性不飽和モノマーがグラフト重合した構造であってもよい。また、上記コア／シェル型構造における多層構造の概念は、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）においてコアに多層構造が形成される場合にも同様に当てはまるものとする。
【００７３】
コア／シェル型復層構造を有する水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）における共重合体（Ｉ）と共重合体（ＩＩ）の割合は、形成塗膜のメタリックムラの発生抑制及びフリップフロップ性向上等の観点から、共重合体（Ｉ）／共重合体（ＩＩ）の固形分質量比で、一般に１０／９０～９０／１０、特に５０／５０～８５／１５、さらに特に６５／３５～８０／２０の範囲内にあることが好ましい。
【００７４】
上記のようにして得られる水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）は、一般に１０～１，０００ｎｍ、特に２０～５００ｎｍの範囲内の平均粒子径を有することができる。なお、上記水酸基含有アクリル樹脂の平均粒子径は、測定温度２０℃で、コールターカウンター法によって測定された値である。この測定は、例えば、「ＣＯＵＬＴＥＲ　Ｎ４型」（商品名、ベックマン・コールター社製）を用いて行うことができる。
【００７５】
得られる水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）の水分散体粒子の機械的安定性を向上させるために、水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）が有するカルボキシル基等の酸性基を中和剤により中和することが望ましい。該中和剤としては、酸性基を中和することができるものであれば特に制限はなく使用することができ、例えば、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、トリメチルアミン、２－（ジメチルアミノ）エタノール、２－アミノ－２－メチル－１－プロパノール、トリエチルアミン、アンモニア水等が挙げられ、これらの中和剤は、中和後の水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１’）の水分散液のｐＨが約６．５～約９．０となるような量で用いることが望ましい。

【００７６】
また、本発明の塗料組成物において、水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）は、形成塗膜のメタリックムラの発生抑制及びフリップフロップ性向上等の観点から、水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）を含むことが好ましい。
【００７７】
上記水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）は、前記水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）及び前記リン酸基を有する重合性不飽和モノマー（ｘｖｉ）、ならびに必要に応じて配合されるその他の重合性不飽和モノマーからなるモノマー成分を、それ自体既知の方法、例えば、有機溶媒中での溶液重合法、水中でのエマルション重合法等の方法により共重合せしめることによって製造することができる。なかでも、溶液重合法が好適である。
【００７８】
上記水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）において、水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）、リン酸基を有する重合性不飽和モノマー（ｘｖｉ）及びその他の重合性不飽和モノマーの使用割合は、これらのモノマーの合計量を基準にして下記の範囲内とすることができる。
【００７９】
水酸基含有重合性不飽和モノマー（ａ）：１～５０質量％、好ましくは５～４０質量％、さらに好ましくは１０～３０質量％、
リン酸基含有重合性不飽和モノマー（ｘｖｉ）：１～７０質量％、好ましくは１０～５５質量％、さらに好ましくは２０～４５質量％、
その他の重合性不飽和モノマー：０～９８質量％、好ましくは５～８５質量％、さらに好ましくは２５～７０質量％。
【００８０】
上記水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）は、一般に１５～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２０～１４０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に３０～１００ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の水酸基価を有することが好適である。
【００８１】
また、該水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）は、一般に１０～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に４０～１７０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に６０～１５０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の酸価を有することが好適である。
【００８２】
さらに、該水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１’’）は、一般に２，０００～１００，０００、特に４，０００～５０，０００、さらに特に８，０００～３０，０００の範囲内の数平均分子量を有することが好適である。
【００８３】
（水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２））
本発明の塗料組成物において、バインダー成分（Ａ）の基体樹脂として、水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）を使用することによって、得られる塗膜の平滑性を向上させることができる。
【００８４】
水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、通常、酸成分とアルコール成分とのエステル化反応又はエステル交換反応によって製造することができる。
上記酸成分としては、ポリエステル樹脂の製造に際して、酸成分として通常使用される化合物を使用することができる。かかる酸成分としては、例えば、脂肪族多塩基酸、脂環族多塩基酸、芳香族多塩基酸等を挙げることができる。
【００８５】
上記脂肪族多塩基酸は、一般に、１分子中に２個以上のカルボキシル基を有する脂肪族化合物、該脂肪族化合物の酸無水物及び該脂肪族化合物のエステル化物である。脂肪族多塩基酸としては、例えば、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸

、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、ブラシル酸、オクタデカン二酸、クエン酸、ブタンテトラカルボン酸等の脂肪族多価カルボン酸；該脂肪族多価カルボン酸の無水物；該脂肪族多価カルボン酸の炭素数１～６、好ましくは１～４の低級アルキルエステル化物等が挙げられる。上記脂肪族多塩基酸はそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。上記脂肪族多塩基酸としては、得られる塗膜の平滑性の観点から、アジピン酸及び／又はアジピン酸無水物を用いることが特に好ましい。

【００８６】

上記脂環族多塩基酸は、一般に、１分子中に１個以上の脂環式構造と２個以上のカルボキシル基を有する化合物、該化合物の酸無水物及び該化合物のエステル化物である。脂環式構造は、主として４～６員環構造であることができる。脂環族多塩基酸としては、例えば、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸、１，３－シクロヘキサンジカルボン酸、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸、４－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸、３－メチル－１，２－シクロヘキサンジカルボン酸、４－メチル－１，２－シクロヘキサンジカルボン酸、１，２，４－シクロヘキサントリカルボン酸、１，３，５－シクロヘキサントリカルボン酸等の脂環族多価カルボン酸；該脂環族多価カルボン酸の無水物；該脂環族多価カルボン酸の炭素数１～６、好ましくは１～４の低級アルキルエステル化物等が挙げられる。上記脂環族多塩基酸はそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。上記脂環族多塩基酸としては、得られる塗膜の平滑性の観点から、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸無水物、１，３－シクロヘキサンジカルボン酸、１，４－シクロヘキサンジカルボン酸、４－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸、４－シクロヘキセン－１，２－ジカルボン酸無水物を用いることが好ましく、なかでも、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸及び／又は１，２－シクロヘキサンジカルボン酸無水物を用いることがより好ましい。

【００８７】

上記芳香族多塩基酸は、一般に、１分子中に２個以上のカルボキシル基を有する芳香族化合物、該芳香族化合物の酸無水物及び該芳香族化合物のエステル化物である。芳香族多塩基酸としては、例えば、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、４，４’－ビフェニルジカルボン酸、トリメリット酸、ピロメリット酸等の芳香族多価カルボン酸；該芳香族多価カルボン酸の無水物；該芳香族多価カルボン酸の炭素数１～６、好ましくは１～４の低級アルキルエステル化物等が挙げられる。上記芳香族多塩基酸はそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。上記芳香族多塩基酸としては、なかでも、フタル酸、無水フタル酸、イソフタル酸、トリメリット酸、無水トリメリット酸を使用することが好ましい。

【００８８】

また、上記脂肪族多塩基酸、脂環族多塩基酸及び芳香族多塩基酸以外の酸成分を使用することもできる。かかる酸成分としては、特に限定されず、例えば、ヤシ油脂肪酸、綿実油脂肪酸、麻実油脂肪酸、米ぬか油脂肪酸、魚油脂肪酸、トール油脂肪酸、大豆油脂肪酸、アマニ油脂肪酸、桐油脂肪酸、ナタネ油脂肪酸、ヒマシ油脂肪酸、脱水ヒマシ油脂肪酸、サフラワー油脂肪酸等の脂肪酸；ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、安息香酸、ｐ－ｔｅｒｔ－ブチル安息香酸、シクロヘキサン酸、１０－フェニルオクタデカン酸等のモノカルボン酸；乳酸、３－ヒドロキシブタン酸、３－ヒドロキシ－４－エトキシ安息香酸等のヒドロキシカルボン酸等が挙げられる。これらの酸成分は、それぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【００８９】

前記アルコール成分としては、１分子中に２個以上の水酸基を有する多価アルコールを好適に使用することができる。該多価アルコールとしては、例えば、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、トリメチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、１，４－ブタンジ

オール、１，３－ブタンジオール、２，３－ブタンジオール、１，２－ブタンジオール、２－メチル－１，３－プロパンジオール、３－メチル－１，２－ブタンジオール、２－ブチル－２－エチル－１，３－プロパンジオール、１，２－ペンタンジオール、１，５－ペンタンジオール、１，４－ペンタンジオール、２，４－ペンタンジオール、２，３－ジメチルトリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、３－メチル－４，３－ペンタンジオール、３－メチル－１，５－ペンタンジオール、２，２，４－トリメチル－１，３－ペンタンジオール、１，６－ヘキサンジオール、１，５－ヘキサンジオール、１，４－ヘキサンジオール、２，５－ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、１，４－シクロヘキサンジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、ヒドロキシピバリン酸ネオペンチルグリコールエステル、水添ビスフェノールＡ、水添ビスフェノールＦ、ジメチロールプロピオン酸等の２価アルコール；これらの２価アルコールにε－カプロラクトン等のラクトン化合物を付加したポリラクトンジオール；ビス（ヒドロキシエチル）テレフタレート等のエステルジオール化合物；ビスフェノールＡのアルキレンオキサイド付加物、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリブチレングリコール等のポリエーテルジオール化合物；グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ジグリセリン、トリグリセリン、１，２，６－ヘキサントリオール、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、トリス（２－ヒドロキシエチル）イソシアヌル酸、ソルビトール、マンニット等の３価以上のアルコール；これらの３価以上のアルコールにε－カプロラクトン等のラクトン化合物を付加させたポリラクトンポリオール化合物；グリセリンの脂肪酸エステル化物等が挙げられる。

【００９０】

また、上記多価アルコール以外のアルコール成分を使用することもできる。かかるアルコール成分としては、特に限定されず、例えば、メタノール、エタノール、プロピルアルコール、ブチルアルコール、ステアリルアルコール、２－フェノキシエタノール等のモノアルコール；プロピレンオキサイド、ブチレンオキサイド、「カージュラＥ１０」（商品名、Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ　Ｓｐｅｃｉａｌｔｙ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ社製、合成高分岐飽和脂肪酸のグリシジルエステル）等のモノエポキシ化合物と酸を反応させて得られるアルコール化合物等が挙げられる。

【００９１】

水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）の製造方法は、特に限定されるものではなく、通常の方法に従って行なうことができる。例えば、前記酸成分とアルコール成分とを、窒素気流中、１５０～２５０℃程度で、５～１０時間程度加熱し、該酸成分とアルコール成分のエステル化反応又はエステル交換反応を行なう方法により、水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）を製造することができる。

【００９２】

上記酸成分及びアルコール成分をエステル化反応又はエステル交換反応せしめる際には、反応容器中に、これらの成分を一度に添加してもよいし、一方又は両者を数回に分けて添加してもよい。また、まず、水酸基含有ポリエステル樹脂を合成した後、得られる水酸基含有ポリエステル樹脂に酸無水物を反応させてハーフエステル化させてカルボキシル基及び水酸基含有ポリエステル樹脂としてもよい。また、まず、カルボキシル基含有ポリエステル樹脂を合成した後、上記アルコール成分を付加させて水酸基含有ポリエステル樹脂を製造してもよい。

【００９３】

前記エステル化又はエステル交換反応の際には、反応を促進させるための触媒として、ジブチル錫オキサイド、三酸化アンチモン、酢酸亜鉛、酢酸マンガン、酢酸コバルト、酢酸カルシウム、酢酸鉛、テトラブチルチタネート、テトライソプロピルチタネート等のそれ自体既知の触媒を使用することができる。

【００９４】

また、前記水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、該樹脂の製造中又は製造後に、脂肪酸、モノエポキシ化合物、ポリイソシアネート化合物等で変性することができる。

【００９５】
上記脂肪酸としては、例えば、ヤシ油脂肪酸、綿実油脂肪酸、麻実油脂肪酸、米ぬか油脂肪酸、魚油脂肪酸、トール油脂肪酸、大豆油脂肪酸、アマニ油脂肪酸、桐油脂肪酸、ナタネ油脂肪酸、ヒマシ油脂肪酸、脱水ヒマシ油脂肪酸、サフラワー油脂肪酸等が挙げられ、上記モノエポキシ化合物としては、例えば、「カージュラＥ１０Ｐ」（商品名、Ｍｏｍｅｎｔｉｖｅ　Ｓｐｅｃｉａｌｔｙ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ社製、合成高分岐飽和脂肪酸のグリシジルエステル）を好適に用いることができる。
【００９６】
また、上記ポリイソシアネート化合物としては、例えば、リジンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサンジイソシアネート等の脂肪族ジイソシアネート化合物；水素添加キシリレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、メチルシクロヘキサン－２，４－ジイソシアネート、メチルシクロヘキサン－２，６－ジイソシアネート、４，４’－メチレンビス（シクロヘキシルイソシアネート）、１，３－（イソシアナトメチル）シクロヘキサン等の脂環族ジイソシアネート化合物；トリレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート化合物；リジントリイソシアネート等の３価以上のポリイソシアネート等の有機ポリイソシアネートそれ自体；これらの各有機ポリイソシアネートと多価アルコール、低分子量ポリエステル樹脂、水等との付加物；これらの各有機ポリイソシアネート同士の環化重合体（例えば、イソシアヌレート）、ビウレット型付加物等が挙げられる。これらのポリイソシアネート化合物は、単独でもしくは２種以上混合して使用することができる。
【００９７】
水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）としては、得られる塗膜の平滑性及び耐水性に優れる観点から、原料の酸成分中の脂環族多塩基酸の含有量が、該酸成分の合計量を基準として２０～１００ｍｏｌ％であるものが好ましく、２５～９５ｍｏｌ％であるものがより好ましく、３０～９０ｍｏｌ％であるものが更に好ましい。特に、上記脂環族多塩基酸が、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸及び／又は１，２－シクロヘキサンジカルボン酸無水物であることが、得られる塗膜の平滑性の観点から、好ましい。
【００９８】
水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、得られる塗膜の耐水性等の観点から、一般に１～２００ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に２～１８０ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に５～１７０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の水酸基価を有することが好適である。
【００９９】
また、水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、得られる塗膜の平滑性、耐水性等の観点から、一般に５００～５０，０００、特には１，０００～３０，０００、さらに特に１，２００～１０，０００の範囲内の数平均分子量を有することが好適である。
【０１００】
本発明の塗料組成物が水性塗料である場合、上記水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、カルボキシル基を有することが好ましく、この場合、水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）は、一般に５～１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、特に１０～１００ｍｇＫＯＨ／ｇ、さらに特に１５～８０ｍｇＫＯＨ／ｇの範囲内の酸価を有することが好適である。
【０１０１】
（水酸基含有ポリウレタン樹脂（Ａ１－３））
本発明の塗料組成物において、バインダー成分（Ａ）の基体樹脂として、水酸基含有ポリウレタン樹脂（Ａ１－３）を使用することによって、得られる塗膜の耐チッピング性を向上させることができる。
【０１０２】
水酸基含有ポリウレタン樹脂（Ａ１－３）としては、例えば、脂肪族及び／又は脂環式ジイソシアネート；ポリエーテルジオール、ポリエステルジオール及びポリカーボネートジオールからなる群より選ばれる少なくとも１種のジオール；低分子量ポリヒドロキシ化

合物ならびにジメチロールアルカン酸を反応させてウレタンプレポリマーを作製し、これを第３級アミンで中和し、水中に乳化分散させた後、必要に応じてポリアミン等の鎖伸長剤、架橋剤及び／又は停止剤を含む水性媒体と混合して、イソシアネート基が実質的に無くなるまで反応させてなるものを挙げることができる。

上記方法により、通常、平均粒径が約０．００１～約３μｍの水分散性水酸基含有ポリウレタン樹脂等を挙げることができる。

【０１０３】

本発明の塗料組成物は、バインダー成分（Ａ）における基体樹脂として、水酸基含有樹脂（Ａ１）以外に、実質的に水酸基を含有しない樹脂（以下、これを「水酸基不含樹脂」という。）（Ａ２）を使用することもできる。

【０１０４】

＜水酸基不含樹脂（Ａ２）＞

水酸基不含樹脂（Ａ２）としては、例えば、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、アクリル樹脂、アルキド樹脂、シリコン樹脂、フッ素樹脂、エポキシ樹脂等が挙げられ、得られる塗膜の耐チッピング性、耐水性等の観点から、なかでも、ポリウレタン樹脂が好適である。これらの樹脂は、例えば、カルボキシル基、エポキシ基等の官能基を有していることができ、特に、カルボキシル基を有していることが好ましい。これらの樹脂はそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができるが、通常、水酸基含有樹脂（Ａ１）と組み合わせて使用することが好ましい。

【０１０５】

＜硬化剤（Ａ３）＞

硬化剤（Ａ３）は、水酸基含有樹脂（Ａ１）中に存在する水酸基及び場合により存在しうるカルボキシル基、エポキシ基等の架橋性官能基と反応して、本発明の塗料組成物を硬化させ得る官能基含有化合物である。硬化剤（Ａ３）としては、例えば、アミノ樹脂、ポリイソシアネート化合物、ブロック化ポリイソシアネート化合物、エポキシ基含有化合物、カルボキシル基含有化合物、カルボジイミド基含有化合物等が挙げられ、これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。なかでも、得られる塗膜のメタリックムラの発生抑制、粒子感、フリップフロップ性向上、耐水性及び耐チッピング性等の観点から、水酸基と反応し得るアミノ樹脂、ポリイソシアネート化合物及びブロック化ポリイソシアネート化合物が好ましく、さらに、得られる塗料の貯蔵安定性の観点から、アミノ樹脂が特に好ましい。

【０１０６】

上記アミノ樹脂としては、アミノ成分とアルデヒド成分との反応によって得られる部分メチロール化アミノ樹脂又は完全メチロール化アミノ樹脂を使用することができる。アミノ成分としては、例えば、メラミン、尿素、ベンゾグアナミン、アセトグアナミン、ステログアナミン、スピログアナミン、ジシアンジアミド等が挙げられる。アルデヒド成分としては、例えば、ホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。

【０１０７】

上記メチロール化アミノ樹脂のメチロール基を適当なアルコールによって部分的に又は完全にエーテル化したものも使用することができる。エーテル化に用いうるアルコールとしては、例えば、メチルアルコール、エチルアルコール、ｎ－プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ｎ－ブチルアルコール、イソブチルアルコール、２－エチル－１－ブタノール、２－エチル－１－ヘキサノール等が挙げられる。

【０１０８】

アミノ樹脂としてはメラミン樹脂が好ましい。特に、部分又は完全メチロール化メラミン樹脂のメチロール基をメチルアルコールで部分的に又は完全にエーテル化したメチルエーテル化メラミン樹脂、部分又は完全メチロール化メラミン樹脂のメチロール基をブチルアルコールで部分的に又は完全にエーテル化したブチルエーテル化メラミン樹脂、部分又は完全メチロール化メラミン樹脂のメチロール基をメチルアルコール及びブチルアルコー

ルで部分的に又は完全にエーテル化したメチル－ブチル混合エーテル化メラミン樹脂が好ましく、メチル－ブチル混合エーテル化メラミン樹脂がより好ましい。

【０１０９】

なかでも、耐水性等に優れた塗膜が得られるという観点から、水酸基含有樹脂（Ａ１）として、原料の酸成分中の脂肪族多塩基酸及び脂環族多塩基酸の合計含有量が、該酸成分の合計量を基準として３０～９７ｍｏｌ％の範囲内にあり且つ芳香族多塩基酸の含有量が３～７０ｍｏｌ％の範囲内にある酸成分を用いて製造される水酸基含有ポリエステル樹脂を用い、且つ硬化剤（Ａ３）として、上記メチルエーテル化メラミン樹脂、ブチルエーテル化メラミン樹脂及びメチル－ブチル混合エーテル化メラミン樹脂から選ばれる少なくとも１種のアルキルエーテル化メラミン樹脂を用いてなる塗料組成物が特に好適である。

【０１１０】

また、上記メラミン樹脂は、一般に４００～６，０００、特に７００～４，０００、さらに特に１，０００～３，０００の範囲内の重量平均分子量を有することが好ましい。

【０１１１】

メラミン樹脂としては市販品を使用でき、具体的には、例えば、「サイメル２０２」、「サイメル２０３」、「サイメル２０４」、「サイメル２１１」、「サイメル２３８」、「サイメル２５０」、「サイメル２５１」、「サイメル３０３」、「サイメル３２３」、「サイメル３２４」、「サイメル３２５」、「サイメル３２７」、「サイメル３５０」、「サイメル３８５」、「サイメル１１５６」、「サイメル１１５８」、「サイメル１１１６」、「サイメル１１３０」（以上、オルネクスジャパン社製、商品名）、「ユーバン１２０」、「ユーバン２０ＨＳ」、「ユーバン２０ＳＥ６０」、「ユーバン２０２１」、「ユーバン２０２８」、「ユーバン２８－６０」（以上、三井化学社製、商品名）等が挙げられる。

【０１１２】

また、硬化剤（Ａ３）としてメラミン樹脂を使用する場合、パラトルエンスルホン酸、ドデシルベンゼンスルホン酸、ジノニルナフタレンスルホン酸等のスルホン酸；モノブチルリン酸、ジブチルリン酸、モノ２－エチルヘキシルリン酸、ジ２－エチルヘキシルリン酸等のアルキルリン酸エステル；これらの酸とアミンとの塩等を触媒として使用することができる。

【０１１３】

前記ポリイソシアネート化合物は、１分子中に少なくとも２個のイソシアネート基を有する化合物であり、例えば、脂肪族ポリイソシアネート、脂環族ポリイソシアネート、芳香脂肪族ポリイソシアネート、芳香族ポリイソシアネート、該ポリイソシアネートの誘導体等が包含される。

【０１１４】

上記脂肪族ポリイソシアネートとしては、例えば、トリメチレンジイソシアネート、テトラメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、ペンタメチレンジイソシアネート、１，２－プロピレンジイソシアネート、１，２－ブチレンジイソシアネート、２，３－ブチレンジイソシアネート、１，３－ブチレンジイソシアネート、２，４，４－又は２，２，４－トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、ダイマー酸ジイソシアネート、２，６－ジイソシアナトヘキサン酸メチル（慣用名：リジンジイソシアネート）等の脂肪族ジイソシアネート；２，６－ジイソシアナトヘキサン酸２－イソシアナトエチル、１，６－ジイソシアナト－３－イソシアナトメチルヘキサン、１，４，８－トリイソシアナトオクタン、１，６，１１－トリイソシアナトウンデカン、１，８－ジイソシアナト－４－イソシアナトメチルオクタン、１，３，６－トリイソシアナトヘキサン、２，５，７－トリメチル－１，８－ジイソシアナト－５－イソシアナトメチルオクタン等の脂肪族トリイソシアネート等を挙げることができる。

【０１１５】

前記脂環族ポリイソシアネートとしては、例えば、１，３－シクロペンテンジイソシアネート、１，４－シクロヘキサンジイソシアネート、１，３－シクロヘキサンジイソシア

ネート、３－イソシアナトメチル－３，５，５－トリメチルシクロヘキシルイソシアネート（慣用名：イソホロンジイソシアネート）、メチル－２，４－シクロヘキサンジイソシアネート、メチル－２，６－シクロヘキサンジイソシアネート、１，３－もしくは１，４－ビス（イソシアナトメチル）シクロヘキサン（慣用名：水添キシリレンジイソシアネート）又はその混合物、ノルボルナンジイソシアネート等の脂環族ジイソシアネート；１，３，５－トリイソシアナトシクロヘキサン、１，３，５－トリメチルイソシアナトシクロヘキサン、２－（３－イソシアナトプロピル）－２，５－ジ（イソシアナトメチル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン、２－（３－イソシアナトプロピル）－２，６－ジ（イソシアナトメチル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン、３－（３－イソシアナトプロピル）－２，５－ジ（イソシアナトメチル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン、５－（２－イソシアナトエチル）－２－イソシアナトメチル－３－（３－イソシアナトプロピル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン、６－（２－イソシアナトエチル）－２－イソシアナトメチル－３－（３－イソシアナトプロピル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン、５－（２－イソシアナトエチル）－２－イソシアナトメチル－２－（３－イソシアナトプロピル）－ビシクロ（２．２．１）－ヘプタン、６－（２－イソシアナトエチル）－２－イソシアナトメチル－２－（３－イソシアナトプロピル）－ビシクロ（２．２．１）ヘプタン等の脂環族トリイソシアネート等を挙げることができる。

【０１１６】

前記芳香脂肪族ポリイソシアネートとしては、例えば、１，３－もしくは１，４－キシリレンジイソシアネート又はその混合物、ω，ω’－ジイソシアナト－１，４－ジエチルベンゼン、１，３－もしくは１，４－ビス（１－イソシアナト－１－メチルエチル）ベンゼン（慣用名：テトラメチルキシリレンジイソシアネート）又はその混合物等の芳香脂肪族ジイソシアネート；１，３，５－トリイソシアナトメチルベンゼン等の芳香脂肪族トリイソシアネート等を挙げることができる。

【０１１７】

前記芳香族ポリイソシアネートとしては、例えば、ｍ－フェニレンジイソシアネート、ｐ－フェニレンジイソシアネート、４，４’－ジフェニルジイソシアネート、１，５－ナフタレンジイソシアネート、２，４’－もしくは４，４’－ジフェニルメタンジイソシアネート又はその混合物、２，４－もしくは２，６－トリレンジイソシアネート又はその混合物、４，４’－トルイジンジイソシアネート、４，４’－ジフェニルエーテルジイソシアネート等の芳香族ジイソシアネート；トリフェニルメタン－４，４’，４’’－トリイソシアネート、１，３，５－トリイソシアナトベンゼン、２，４，６－トリイソシアナトトルエン等の芳香族トリイソシアネート；４，４’－ジフェニルメタン－２，２’，５，５’－テトライソシアネート等の芳香族テトライソシアネート等を挙げることができる。

【０１１８】

前記ポリイソシアネートの誘導体としては、例えば、上記したポリイソシアネート化合物のダイマー、トリマー、ビウレット、アロファネート、ウレトジオン、ウレトイミン、イソシアヌレート、オキサジアジントリオン、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート（クルードＭＤＩ、ポリメリックＭＤＩ）、クルードＴＤＩ等を挙げることができる。

【０１１９】

上記ポリイソシアネート及びその誘導体は、それぞれ単独で用いてもよく又は２種以上併用してもよい。これらポリイソシアネートのうち、脂肪族ジイソシアネート、脂環族ジイソシアネート及びこれらの誘導体をそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することが好適である。

【０１２０】

また、前記ポリイソシアネート化合物としては、上記ポリイソシアネート及びその誘導体と、多価アルコール、低分子量ポリエステル樹脂又は水とをイソシアネート基過剰の条件でウレタン化反応させてなるプレポリマーを使用することもできる。

【０１２１】

ポリイソシアネート化合物は、得られる塗膜の耐水性の観点から、該ポリイソシアネート化合物中のイソシアネート基と前記水酸基含有樹脂（Ａ１）中の水酸基との当量比（ＮＣＯ／ＯＨ）が通常０．５～２．０、特に０．８～１．５の範囲内となる割合で使用することが好ましい。

【０１２２】

前記ブロック化ポリイソシアネート化合物は、上記ポリイソシアネート化合物のイソシアネート基を、ブロック剤でブロックした化合物である。

【０１２３】

上記ブロック剤としては、例えば、フェノール、クレゾール、キシレノール、ニトロフェノール、エチルフェノール、ヒドロキシジフェニル、ブチルフェノール、イソプロピルフェノール、ノニルフェノール、オクチルフェノール、ヒドロキシ安息香酸メチル等のフェノール系；ε－カプロラクタム、δ－バレロラクタム、γ－ブチロラクタム、β－プロピオラクタム等のラクタム系；メタノール、エタノール、プロピルアルコール、ブチルアルコール、アミルアルコール、ラウリルアルコール等の脂肪族アルコール系；エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、メトキシメタノール等のエーテル系；ベンジルアルコール、グリコール酸、グリコール酸メチル、グリコール酸エチル、グリコール酸ブチル、乳酸、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸ブチル、メチロール尿素、メチロールメラミン、ジアセトンアルコール、２－ヒドロキシエチルアクリレート、２－ヒドロキシエチルメタクリレート等のアルコール系；ホルムアミドオキシム、アセトアミドオキシム、アセトオキシム、メチルエチルケトオキシム、ジアセチルモノオキシム、ベンゾフェノンオキシム、シクロヘキサンオキシム等のオキシム系；マロン酸ジメチル、マロン酸ジエチル、アセト酢酸エチル、アセト酢酸メチル、アセチルアセトン等の活性メチレン系；ブチルメルカプタン、ｔｅｒｔ－ブチルメルカプタン、ヘキシルメルカプタン、ｔｅｒｔ－ドデシルメルカプタン、２－メルカプトベンゾチアゾール、チオフェノール、メチルチオフェノール、エチルチオフェノール等のメルカプタン系；アセトアニリド、アセトアニシジド、アセトトルイド、アクリルアミド、メタクリルアミド、酢酸アミド、ステアリン酸アミド、ベンズアミド等の酸アミド系；コハク酸イミド、フタル酸イミド、マレイン酸イミド等のイミド系；ジフェニルアミン、フェニルナフチルアミン、キシリジン、Ｎ－フェニルキシリジン、カルバゾール、アニリン、ナフチルアミン、ブチルアミン、ジブチルアミン、ブチルフェニルアミン等のアミン系；イミダゾール、２－エチルイミダゾール等のイミダゾール系；尿素、チオ尿素、エチレン尿素、エチレンチオ尿素、ジフェニル尿素等の尿素系；Ｎ－フェニルカルバミン酸フェニル等のカルバミン酸エステル系；エチレンイミン、プロピレンイミン等のイミン系；重亜硫酸ソーダ、重亜硫酸カリ等の亜硫酸塩系；アゾール系の化合物等が挙げられる。上記アゾール系の化合物としては、ピラゾール、３，５－ジメチルピラゾール、３－メチルピラゾール、４－ベンジル－３，５－ジメチルピラゾール、４－ニトロ－３，５－ジメチルピラゾール、４－ブロモ－３，５－ジメチルピラゾール、３－メチル－５－フェニルピラゾール等のピラゾール又はピラゾール誘導体；イミダゾール、ベンズイミダゾール、２－メチルイミダゾール、２－エチルイミダゾール、２－フェニルイミダゾール等のイミダゾール又はイミダゾール誘導体；２－メチルイミダゾリン、２－フェニルイミダゾリン等のイミダゾリン誘導体等が挙げられる。

ブロック剤としては、なかでも、オキシム系のブロック剤、活性メチレン系のブロック剤、ピラゾール又はピラゾール誘導体が好適である。

【０１２４】

また、上記ブロック剤として、１個以上のヒドロキシル基と１個以上のカルボキシル基を有するヒドロキシカルボン酸、例えば、ヒドロキシピバリン酸、ジメチロールプロピオン酸等を使用することもできる。

【０１２５】

本発明の塗料組成物が水性塗料の場合、上記ヒドロキシカルボン酸を用いてイソシアネート基をブロックした後、該ヒドロキシカルボン酸のカルボキシル基を中和して水分散性を付与したブロック化ポリイソシアネート化合物を好適に用いることができる。

【０１２６】

また、水酸基含有樹脂（Ａ１）及び／又は水酸基不含樹脂（Ａ２）が、カルボキシル基、エポキシ基等の架橋性官能基を有する場合、硬化剤（Ａ３）として、該官能基と反応し得る架橋性官能基を有する硬化剤を使用することができる。

【０１２７】

このような硬化剤としては、例えば、上記架橋性官能基と反応し得る、エポキシ基含有化合物、カルボキシル基含有化合物、カルボジイミド基含有化合物等が挙げられ、なかでも、カルボキシル基と反応し得るポリカルボジイミド化合物が好ましい。

【０１２８】

ポリカルボジイミド化合物は、１分子中に少なくとも２個のカルボジイミド基を有する化合物であり、例えば、イソシアネート基含有化合物のイソシアネート基同士を脱二酸化炭素反応せしめたものを使用することができる。

【０１２９】

本発明の塗料組成物が水性塗料の場合、得られる塗膜の平滑性等の観点から、上記ポリカルボジイミド化合物としては、水溶性又は水分散性のポリカルボジイミド化合物を使用することが好ましい。該水溶性又は水分散性のポリカルボジイミド化合物としては、水性媒体中に安定に溶解又は分散し得るポリカルボジイミド化合物であれば、特に制限なく使用することができる。

【０１３０】

上記水溶性ポリカルボジイミド化合物としては、具体的には、例えば、「カルボジライトＳＶ－０２」、「カルボジライトＶ－０２」、「カルボジライトＶ－０２－Ｌ２」「カルボジライトＶ－０４」（商品名、いずれも日清紡社製）等の市販品を使用することができる。また、上記水分散性ポリカルボジイミド化合物としては、例えば、「カルボジライトＥ－０１」、「カルボジライトＥ－０２」（商品名、いずれも日清紡社製）等の市販品を使用することができる。

上記ポリカルボジイミド化合物は、それぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。

【０１３１】

本発明の塗料組成物における水酸基含有樹脂（Ａ１）と硬化剤（Ａ３）との使用割合は、塗膜の付着性及び耐チッピング性の向上の観点から、両者の合計量に基づいて、水酸基含有樹脂（Ａ１）は一般に３０～９５質量％、特に５０～９０質量％、さらに特に６０～８０質量％の範囲内、そして硬化剤（Ａ３）は一般に５～７０質量％、特に１０～５０質量％、さらに特に２０～４０質量％の範囲内であることが好ましい。

【０１３２】

水酸基含有樹脂（Ａ１）がその少なくとも一部分として水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）を含有する場合、本発明の塗料組成物における水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）の含有量は、水酸基含有樹脂（Ａ１）及び硬化剤（Ａ３）の合計量に基づいて、一般に２～８０質量％、特に１０～６０質量％、さらに特に２０～５０質量％の範囲内であることが好ましい。

【０１３３】

水酸基含有樹脂（Ａ１）がその少なくとも一部分として水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）を含有する場合、本発明の塗料組成物における水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）の含有量は、水酸基含有樹脂（Ａ１）及び硬化剤（Ａ３）の合計量に基づいて、一般に２～８０質量％、特に５～６０質量％、さらに特に１０～５０質量％の範囲内であることが好ましい。

【０１３４】

水酸基含有樹脂（Ａ１）がその少なくとも一部分として水酸基含有ポリウレタン樹脂（

Ａ１－３）を含有する場合、本発明の塗料組成物における水酸基含有ポリウレタン樹脂（Ａ１－３）の含有量は、水酸基含有樹脂（Ａ１）及び硬化剤（Ａ３）の合計量に基づいて、一般に１～８０質量％、特に３～６０質量％、さらに特に５～４０質量％の範囲内であることが好ましい。

【０１３５】

〔鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）〕

本発明で用いる鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）は、平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内の鱗片状アルミニウム顔料である。平均粒子径（ｄ５０）が１８μｍ以上であると、粒子感が高い塗膜が形成され、平均粒子径（ｄ５０）が２５μｍ以下であると、メタリックムラの発生が抑制され、鮮映性に優れた塗膜が形成されるからである。

【０１３６】

また、形成される塗膜の粒子感、メタリックムラの発生抑制及び鮮映性の観点から、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均粒子径（ｄ５０）は、好ましくは１８～２３μｍ、より好ましくは１９～２１μｍの範囲内である。

【０１３７】

なお、平均粒子径（ｄ５０）は、マイクロトラック粒度分布測定装置　ＭＴ３３００（商品名、日機装社製）を用いてレーザー回折散乱法によって測定した体積基準粒度分布のメジアン径を意味する。

【０１３８】

また、上記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）として、２種以上の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用する場合、該鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均粒子径（ｄ５０）は、下記式により算出される値である。

ｄ５０＝Ｗ１×ｄ１＋Ｗ２×ｄ２＋・・・Ｗｎ×ｄｎ

式中、Ｗ１、Ｗ２、・・・Ｗｎは各鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の質量分率であり、ｄ１、ｄ２・・・ｄｎは各鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均粒子径（ｄ５０）である。

【０１３９】

本発明で用いる鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）としては、例えば、アルミニウムをボールミル又はアトライターミル中で粉砕媒液の存在下、粉砕助剤を用いて粉砕、摩砕して製造されるミリングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）が挙げられる。

【０１４０】

ミリングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の製造工程における粉砕助剤としては、オレイン酸、ステアリン酸、イソステアリン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ミリスチン酸等の高級脂肪酸のほか、脂肪族アミン、脂肪族アミド、脂肪族アルコールが使用される。粉砕媒液としてはミネラルスピリットなどの脂肪族系炭化水素が使用される。

【０１４１】

また、ミリングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）は、粉砕助剤の種類によって、リーフィングタイプとノンリーフィングタイプに大別することができる。

リーフィングタイプは、塗料組成物に配合すると塗装して得られた塗膜の表面に配列（リーフィング）し、金属感の強い仕上がりが得られ、熱反射作用を有し、防錆力を発揮するものであるため、タンク・ダクト・配管類、屋上ルーフィング等の工場設備、各種建築材料などに利用されることが多い。

【０１４２】

本発明に用いる鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）としては、リーフィングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用可能であるが、その場合には、その配合量にもよるが、塗膜形成過程において、粉砕助剤の表面張力の効果によって、塗膜表面に配向するため、上層のクリヤー塗膜との付着性に注意が必要である。

この点から、ノンリーフィングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用することが好ましい。

【０１４３】

ノンリーフィングタイプの鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）としては、表面を特に処理していないものも使用できるが、表面を樹脂で被覆せしめたもの、シリカ処理を施したもの及びリン酸やモリブデン酸、タングステン酸、シランカップリング剤等で表面を処理したものを使用することができる。以上の各種表面処理の中から一種の処理をせしめたものを使用することができるが、複数種類の処理をせしめたものを使用してもよい。

【０１４４】

また、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）としては、鱗片状着色アルミニウム顔料を使用してもよい。該鱗片状着色アルミニウム顔料としては、例えば、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）表面に着色顔料を被覆してさらに樹脂被覆せしめたものや、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）表面に酸化鉄等の金属酸化物を被覆したもの等が挙げられる。

【０１４５】

本発明において、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）としては、形成される塗膜のフリップフロップ性向上及び粒子感向上の観点から、未着色の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ１）を含有することが好ましい。

【０１４６】

鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）として、上記未着色の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ１）を使用する場合、該未着色の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ１）の含有割合は、本塗料組成物中の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を基準として、６０～１００質量％、好ましくは８０～１００質量％、より好ましくは９０～１００質量％の範囲内であることが好適である。

【０１４７】

鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さは０．１０～０．８０μｍの範囲内であることが好ましく、より好ましくは０．２０～０．７５μｍ、さらに好ましくは０．３０～０．７０μｍの範囲内である。

鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さが０．１０μｍ以上であると、塗料撹拌時に該鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の変形及び破損が生じにくく、当該平均厚さが０．８０μｍ以下であると、フリップフロップ性に優れた塗膜が形成されるため好ましい。

【０１４８】

なお、上記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さは、水面拡散面積法（水面拡散面積＝Ｓｃｍ^2／ｇとすると、平均厚さ＝４０００／Ｓμｍ）により測定することができる。

【０１４９】

また、上記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）として、２種以上の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用する場合、該鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さは、下記式により算出される値である。

平均厚さ＝Ｗ１×ｔ１＋Ｗ２×ｔ２＋・・・Ｗｎ×ｔｎ

式中、Ｗ１、Ｗ２、・・・Ｗｎは各鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の質量分率であり、ｔ１、ｔ２・・・ｔｎは各鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の平均厚さである。

【０１５０】

鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の含有量は、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、１０～５０質量部の範囲内である。含有量が１０質量部以上であると、メタリックムラの発生が抑制され、フリップフロップ性に優れた塗膜が形成され、含有量が５０質量部以下であると、メタリックムラの発生が抑制され、鮮映性に優れた塗膜が形成されるからである。

【０１５１】

また、形成される塗膜の粒子感、フリップフロップ性、メタリックムラの発生抑制及び鮮映性の観点から、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）の含有量は、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、好ましくは１２～４０質量部、より好ましくは１５～３０質量部の範囲内である。

【０１５２】

〔鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）〕

本発明で用いる鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）は、平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内である、鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料である。平均粒子径（ｄ５０）が８μｍ以上であると、メタリックムラの発生が抑制された塗膜が形成され、平均粒子径（ｄ５０）が３０μｍ以下であると、メタリックムラの発生が抑制され、鮮映性に優れた塗膜が形成されるからである。

【０１５３】

また、形成される塗膜のメタリックムラの発生抑制及び鮮映性向上の観点から、鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均粒子径（ｄ５０）は、好ましくは１０～２７μｍ、より好ましくは１２～２４μｍの範囲内である。

なお、平均粒子径（ｄ５０）は、マイクロトラック粒度分布測定装置　ＭＴ３３００（商品名、日機装社製）を用いてレーザー回折散乱法によって測定した体積基準粒度分布のメジアン径を意味する。

【０１５４】

また、上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）として、２種以上の鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を使用する場合、該鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均粒子径（ｄ５０）は、上述した２種以上の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用する場合の平均粒子径（ｄ５０）の算出方法に準じて算出することができる。

【０１５５】

上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）としては、例えば、天然雲母、合成雲母、ガラス、酸化鉄、酸化アルミニウムや各種金属酸化物等の透明又は半透明な鱗片状基材の表面に、該基材とは屈折率が異なる金属酸化物が被覆された鱗片状顔料を使用することができる。上記金属酸化物としては、酸化チタンや酸化鉄等を挙げることができる。

【０１５６】

該鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）としては具体的には、下記に示す金属酸化物被覆雲母顔料、金属酸化物被覆酸化アルミニウム顔料、金属酸化物被覆シリカフレーク顔料等を挙げることができる。

【０１５７】

金属酸化物被覆雲母顔料は、天然雲母又は合成雲母を基材とし、該基材表面を金属酸化物が被覆した顔料である。天然雲母とは、鉱石の雲母を粉砕した鱗片状基材である。合成雲母とは、SiO_2、MgO、Al_2O_3、K_2SiF_6、Na_2SiF_6等の工業原料を加熱し、約１５００℃の高温で熔融し、冷却して結晶化させて合成したものであり、天然の雲母と比較した場合において、不純物が少なく、大きさや厚さが均一であり、白色度が高いものである。合成雲母の基材としては具体的には、フッ素金雲母（$KMg_3AlSi_3O_{10}F_2$）、カリウム四ケイ素雲母（$KMg_{2.5}AlSi_4O_{10}F_2$）、ナトリウム四ケイ素雲母（$NaMg_{2.5}AlSi_4O_{10}F_2$）、Ｎａテニオライト（$NaMg_2LiSi_4O_{10}F$）、ＬｉＮａテニオライト（$LiMg_2LiSi_4O_{10}F_2$）等が知られている。上記金属酸化物被覆雲母顔料としては、基材として合成雲母を用いる金属酸化物被覆合成雲母顔料を使用することが好ましい。

【０１５８】

金属酸化物被覆雲母顔料としては、例えば、酸化チタン被覆雲母顔料、酸化鉄被覆雲母顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料、低次酸化チタン被覆雲母顔料等が挙げられる。なお、本明細書において、低次酸化チタンとは、一般式TiO_x（ｘ＝１～１．９９）で表されるものである。

【０１５９】

上記金属酸化物被覆雲母顔料としては、市販品を使用することができる。該金属酸化物被覆雲母顔料のうち、前記酸化チタン被覆雲母顔料の市販品としては、例えば、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＡ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ」、「ＴＷＩ

ＮＣＬＥ ＰＥＡＲＬ ＳＸＤ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ ＰＥＡＲＬ ＳＸＣ－ＳＯ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ ＰＥＡＲＬ ＳＸＢ－ＳＯ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ ＰＥＡＲＬ ＳＸＤ－ＳＯ」（以上、日本光研工業社製）、「Ｌｕｍｉｎａ Ｅｘｔｅｒｉｏｒ Ｐｅａｒｌ Ｒａｄｉａｎｃｅ １３０３Ｄ」、「Ｌｕｍｉｎａ Ｐｅａｒｌ Ｒａｄｉａｎｃｅ １３０３Ｄ ＭＮＤ」、「Ｍａｇｎａｐｅａｒｌ Ｅｘｔｅｒｉｏｒ ＣＦＳ １１０３」（以上、ＢＡＳＦ社製）、「ＩＲＩＯＤＩＮ １１１ＷＮＴ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６０】

また、前記酸化鉄被覆雲母顔料の市販品としては、例えば、「ＩＲＩＯＤＩＮ ５０４ ＷＮＴ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６１】

また、前記酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料の市販品としては、例えば、「ＩＲＩＯＤＩＮ ６０２ＷＮＴ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６２】

金属酸化物被覆酸化アルミニウム顔料は、酸化アルミニウムを基材とし、基材表面を金属酸化物が被覆した顔料である。なお、酸化アルミニウムは、他の金属の酸化物を含有するものであってもよい。

【０１６３】

金属酸化物被覆酸化アルミニウム顔料としては、例えば、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料、酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料等が挙げられる。

【０１６４】

上記金属酸化物被覆酸化アルミニウム顔料としては、市販品を使用することができる。該金属酸化物被覆酸化アルミニウム顔料のうち、前記酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料の市販品としては、例えば、「Ｘｉｒａｌｌｉｃ Ｔ６０－１０ ＳＷ Ｃｒｙｓｔａｌ Ｓｉｌｖｅｒ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６５】

また、前記酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料の市販品としては、例えば、「Ｘｉｒａｌｌｉｃ Ｆ６０－５０ ＳＷ Ｆｉｒｅｓｉｄｅ Ｃｏｐｐｅｒ」、「Ｘｉｒａｌｌｉｃ Ｆ６０－５１ ＳＷ Ｒａｄｉａｎｔ Ｒｅｄ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６６】

また、前記酸化チタン及び酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料の市販品としては、例えば、「Ｘｉｒａｌｌｉｃ ＮＸＴ Ｍ２６０－６０ ＷＮＴ Ｐａｎｔｈｅｒａ Ｓｉｌｖｅｒ」（ＭＥＲＣＫ社製）等が挙げられる。

【０１６７】

金属酸化物被覆シリカフレーク顔料は、鱗片状シリカを金属酸化物が被覆した顔料である。

金属酸化物被覆シリカフレーク顔料としては、例えば、酸化チタン被覆シリカフレーク顔料、酸化鉄被覆シリカフレーク顔料等が挙げられる。

【０１６８】

これらの中でも、メタリックムラの発生を抑制する観点から、酸化チタン被覆雲母顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料、酸化チタン及び酸化鉄被覆酸化アルミニウム顔料が好ましく、酸化チタン被覆雲母顔料、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料がより好ましく、酸化チタン被覆雲母顔料が特に好ましい。

【０１６９】

本発明において、上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）としては、形成される塗膜のメタリックムラの発生抑制の観点から、銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）を含有することが好ましい。該銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）は、例えば、前記鱗片状基材の表面に被覆される、該基材とは屈折率が異なる金属酸化物の厚さを調整することにより得るこ

とができる。

【０１７０】

なかでも、形成される塗膜のフリップフロップ性及び粒子感の向上ならびにメタリックムラの発生抑制の観点から、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）として、前記未着色の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ１）を使用し、かつ、上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）として、上記銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）を使用することが好ましい。

【０１７１】

上記銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）としては市販品を使用することができる。該市販品としては、例えば、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＡ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＤ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＣ－ＳＯ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ－ＳＯ」、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＤ－ＳＯ」（以上、日本光研工業社製）、「Ｌｕｍｉｎａ　Ｅｘｔｅｒｉｏｒ　Ｐｅａｒｌ　Ｒａｄｉａｎｃｅ　１３０３Ｄ」、「Ｌｕｍｉｎａ　Ｐｅａｒｌ　Ｒａｄｉａｎｃｅ　１３０３Ｄ　ＭＮＤ」、「Ｍａｇｎａｐｅａｒｌ　Ｅｘｔｅｒｉｏｒ　ＣＦＳ　１１０３」（以上、ＢＡＳＦ社製）、「ＩＲＩＯＤＩＮ　１１１ＷＮＴ」（ＭＥＲＣＫ社製）等の酸化チタン被覆雲母顔料；「Ｘｉｒａｌｌｉｃ　Ｔ６０－１０　ＳＷ　Ｃｒｙｓｔａｌ　Ｓｉｌｖｅｒ」（ＭＥＲＣＫ社製）等の酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料等が挙げられる。

【０１７２】

鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）として、上記銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）を使用する場合、該銀色の干渉色を有する鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ１）の含有割合は、本塗料組成物中の鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を基準として、６０～１００質量％、好ましくは８０～１００質量％、より好ましくは９０～１００質量％の範囲内であることが好適である。

【０１７３】

上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）は、分散性や耐水性、耐薬品性、耐候性等を向上させるための表面処理が施されたものであってもよい。

【０１７４】

鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均厚さは０．２０～０．６０μｍの範囲内のものを使用することが好ましく、より好ましくは０．２５～０．５０μｍ、さらに好ましくは０．２７～０．４５μｍの範囲内である。

鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均厚さが０．２０μｍ以上であると、塗料撹拌時に該鱗片状顔料（Ｃ）の変形及び破損が生じにくく、当該平均厚さが０．６０μｍ以下であると、形成される塗膜のメタリックムラの発生が抑制されるため好ましい。

【０１７５】

なお、平均厚さは、該鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を含む塗膜断面を顕微鏡にて観察して厚さを画像処理ソフトを使用して測定し、１００個以上の測定値の平均値として定義するものとする。

【０１７６】

また、上記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）として、２種以上の鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を使用する場合、該鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の平均厚さは、上述した２種以上の鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を使用する場合の平均厚さの算出方法に準じて算出することができる。

【０１７７】

鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有量は、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、０．５～１０質量部の範囲内である。含有量が０．５質量部以上であると、形成される塗膜のメタリックムラの発生が抑制され、含有量が１０質量

部以下であると、フリップフロップ性及び鮮映性に優れた塗膜が形成されるからである。
【０１７８】
また、形成される塗膜のメタリックムラの発生抑制ならびにフリップフロップ性及び鮮映性向上の観点から、鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有量は、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、好ましくは１．０～８．０質量部、より好ましくは１．５～６．０質量部の範囲内である。
【０１７９】
また、鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有割合（Ｂ）／（Ｃ）は、固形分質量比で２．０／１～５０．０／１の範囲内である。
該固形分質量比が２．０／１以上であると、形成される塗膜のフリップフロップ性が高くなり、該固形分質量比が５０．０／１以下であると、形成される塗膜のメタリックムラの発生が抑制されるからである。
【０１８０】
該質量比は、形成される塗膜のフリップフロップ性向上及びメタリックムラの発生抑制の観点から、好ましくは３．０／１～２０．０／１、より好ましくは４．０／１～１５．０／１、さらに特に好ましくは５．１／１～１０．０／１である。
【０１８１】
〔その他の成分（Ｄ）〕
本発明の塗料組成物は、得られる塗膜の平滑性向上の観点から、さらに、疎水性溶媒を含有することが好ましい。
【０１８２】
疎水性溶媒としては、２０℃における１００ｇの水に対する溶解質量が１０ｇ以下、好ましくは５ｇ以下、より好ましくは１ｇ以下の有機溶媒を用いることが望ましい。かかる有機溶媒としては、例えば、ゴム揮発油、ミネラルスピリット、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ等の炭化水素系溶媒；１－ヘキサノール、１－オクタノール、２－オクタノール、２－エチル－１－ヘキサノール、１－デカノール、ベンジルアルコール、エチレングリコールモノ２－エチルヘキシルエーテル、プロピレングリコールモノｎ－ブチルエーテル、ジプロピレングリコールモノｎ－ブチルエーテル、トリプロピレングリコールモノｎ－ブチルエーテル、プロピレングリコールモノ２－エチルヘキシルエーテル、プロピレングリコールモノフェニルエーテル等のアルコール系溶媒；酢酸ｎ－ブチル、酢酸イソブチル、酢酸イソアミル、酢酸メチルアミル、酢酸エチレングリコールモノブチルエーテル等のエステル系溶媒；メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン、エチルｎ－アミルケトン、ジイソブチルケトン等のケトン系溶媒を挙げることができる。これらはそれぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて使用することができる。
【０１８３】
疎水性溶媒としては、得られる塗膜の平滑性の観点から、アルコール系疎水性溶媒を用いることが好ましい。なかでも、炭素数７～１４のアルコール系疎水性溶媒が好ましく、１－オクタノール、２－オクタノール、２－エチル－１－ヘキサノール、エチレングリコールモノ２－エチルヘキシルエーテル、プロピレングリコールモノｎ－ブチルエーテル、ジプロピレングリコールモノｎ－ブチルエーテルからなる群より選ばれる少なくとも１種のアルコール系疎水性溶媒がさらに好ましい。
【０１８４】
本発明の塗料組成物が疎水性溶媒を含有する場合、疎水性溶媒の含有量は、バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、通常１０～１００質量部であり、特に２０～８０質量部、さらに特に３０～６０質量部の範囲内であることが好適である。
【０１８５】
本発明の塗料組成物は、さらに必要に応じて、着色顔料、体質顔料、増粘剤、硬化触媒、紫外線吸収剤、光安定剤、消泡剤、可塑剤、有機溶剤、表面調整剤、沈降防止剤等の通常の塗料用添加剤を、それぞれ単独でもしくは２種以上組み合わせて含有することができ

る。

【０１８６】

着色顔料としては、例えば、酸化チタン、亜鉛華、カーボンブラック、モリブデンレッド、プルシアンブルー、コバルトブルー、アゾ系顔料、フタロシアニン系顔料、キナクリドン系顔料、イソインドリン系顔料、スレン系顔料、ペリレン系顔料、ジオキサジン系顔料、ジケトピロロピロール系顔料等が挙げられる。

体質顔料としては、例えば、タルク、クレー、カオリン、硫酸バリウム、炭酸バリウム、炭酸カルシウム、等が挙げられる。

【０１８７】

増粘剤としては、例えば、ケイ酸塩、金属ケイ酸塩、モンモリロナイト、コロイド状アルミナ等の無機系増粘剤；（メタ）アクリル酸と（メタ）アクリル酸エステルとの共重合体、ポリアクリル酸ソーダ等のポリアクリル酸系増粘剤；１分子中に親水性部分と疎水性部分を有し、水性媒体中において、該疎水性部分が塗料中の顔料やエマルション粒子の表面に吸着したり、該疎水性部分同士が会合したりすることにより効果的に増粘作用を示す会合型増粘剤；カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、セルロースナノファイバー、セルロースナノクリスタル等の繊維素誘導体系増粘剤；カゼイン、カゼイン酸ソーダ、カゼイン酸アンモニウム等のタンパク質系増粘剤；アルギン酸ソーダ等のアルギン酸系増粘剤；ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリビニルベンジルエーテル共重合体等のポリビニル系増粘剤；プルロニックポリエーテル、ポリエーテルジアルキルエステル、ポリエーテルジアルキルエーテル、ポリエーテルエポキシ変性物等のポリエーテル系増粘剤；ビニルメチルエーテル－無水マレイン酸共重合体の部分エステル等の無水マレイン酸共重合体系増粘剤；ポリアマイドアミン塩等のポリアマイド系増粘剤等が挙げられる。

これらの増粘剤はそれぞれ単独で又は２種以上組み合わせて使用することができる。

上記増粘剤としては、特にポリアクリル酸系増粘剤及び／又は会合型増粘剤が好適である。

【０１８８】

硬化触媒としては、例えば、有機金属化合物、酸化合物、塩基化合物等を挙げることができる。

該有機金属化合物としては、例えば、テトライソプロピルチタネート、テトラブチルチタネート、酢酸リチウム、アセチルアセトン鉄（ＩＩＩ）、２－エチルヘキサン酸亜鉛、酢酸銅、三塩化バナジウム、オクチル酸錫、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジオクトエート、ジブチル錫ジラウレート、ジブチル錫ジマレート、テトラブチル錫、ジブチル錫オキシド、テトラ－ｎ－ブチル－１，３－ジアセチルオキシジスタノキサン、テトラ－ｎ－プロピル－１，３－ジアセチルオキシジスタノキサン、テトラ－ｎ－ブチル－１，３－ジラウリルオキシジスタノキサン等の金属触媒を挙げることができ、特に、オクチル酸錫、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジラウレート、ジスタノキサン類等の有機錫系化合物が好ましい。さらに、低温焼き付けが要求される場合には、ジブチル錫ジアセテートが好適に用いられる。

【０１８９】

該酸化合物としては、例えば、パラトルエンスルホン酸、ドデシルベンゼンスルホン酸、ジノニルナフタレンスルホン酸、ジノニルナフタレンジスルホン酸、ブチルリン酸、オクチルリン酸などを挙げることができ、これらの酸のアミン中和物なども好適に用いられる。

該塩基化合物としては、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、ジメチルシクロヘキシルアミン、Ｎ－テトラメチルヘキサン－１，６－ジアミン、Ｎ－ペンタメチルジエチレントリアミン、２－メチル－１，４－ジアザビシクロ〔２，２，２〕オクタン等の化合物を挙げることができる。

【０１９０】

紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系吸収剤、トリアジン系吸収剤、

サリチル酸誘導体系吸収剤、ベンゾフェノン系吸収剤等を挙げることができる。
光安定剤としては、例えば、ヒンダードアミン系光安定剤を挙げることができる。
【０１９１】
なお、本発明の塗料組成物は、一般に１～５０質量％、好ましくは５～４０質量％、さらに好ましくは１５～３５質量％、さらに特に好ましくは２０～３０質量％の範囲内の固形分を有することが好適である。
【０１９２】
［塗料組成物の製造方法］
本発明の塗料組成物は、以上に述べた各種成分を、通常の塗料化手段により、溶媒中に混合することにより調製することができる。上記溶媒としては、例えば、有機溶剤、水等を使用することができる。
有機溶剤としては、例えば、ヘプタン、トルエン、キシレン、オクタン、ミネラルスピリット等の炭化水素系溶剤；酢酸エチル、酢酸ｎ－ブチル、酢酸イソブチル、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート等のエステル系溶剤；メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤；メタノール、エタノール、イソプロパノール、ｎ－ブタノール、ｓｅｃ－ブタノール、イソブタノール等のアルコール系溶剤；ｎ－ブチルエーテル、ジオキサン、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル等のエーテル系溶剤；コスモ石油社製のスワゾール３１０、スワゾール１０００、スワゾール１５００等の芳香族石油系溶剤等を挙げることができる。
【０１９３】
［塗装物品］
本発明の塗装物品は、本発明の塗料組成物を硬化させた硬化塗膜を被塗物上に有することを特徴とする。
該硬化塗膜は、本発明の塗料組成物を被塗物に塗装することによりウェット塗膜（未硬化の塗膜）を形成した後、該ウェット塗膜を硬化させることにより得ることができる。
【０１９４】
被塗物としては、特に限定されるものではなく、例えば、乗用車、トラック、オートバイ、バスなどの自動車車体の外板部；自動車部品；携帯電話、オーディオ機器などの家庭電気製品の外板部などを挙げることができる。これらのうち、自動車車体の外板部及び自動車部品が好ましい。
【０１９５】
これらの被塗物の材質としては、特に限定されるものではなく、例えば、鉄、アルミニウム、真鍮、銅、ブリキ、ステンレス鋼、亜鉛メッキ鋼、合金化亜鉛（Ｚｎ－Ａｌ、Ｚｎ－Ｎｉ、Ｚｎ－Ｆｅ等）メッキ鋼などの金属材料；ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン（ＡＢＳ）樹脂、ポリアミド樹脂、アクリル樹脂、塩化ビニリデン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリウレタン樹脂、エポキシ樹脂などの樹脂類や各種のＦＲＰなどのプラスチック材料；ガラス、セメント、コンクリートなどの無機材料；木材；紙、布等の繊維材料等を挙げることができる。これらのうち、金属材料及びプラスチック材料が好ましい。
【０１９６】
上記被塗物は、上記金属材料やそれから成形された車体等の金属表面に、リン酸塩処理、クロメート処理、複合酸化物処理などの表面処理が施されたものであってもよい。さらに、該被塗物は、該金属表面に、各種電着塗料等の下塗り塗膜及び／又は中塗り塗膜が形成されたものであってもよい。
【０１９７】
本発明の塗料組成物の塗装方法としては、特に限定されず、例えば、エアスプレー塗装、エアレススプレー塗装、回転霧化塗装、カーテンコート塗装などが挙げられ、これらの塗装方法でウェット塗膜を形成することができる。これらのうち、エアスプレー塗装、回転霧化塗装等の方法が好ましい。塗装に際して、必要に応じて、静電印加してもよい。

【０１９８】
本発明の塗料組成物の塗布量は、硬化膜厚として、通常、０．５～５０μｍ程度、好ましくは２～４０μｍ程度、さらに好ましくは５～３０μｍ程度、さらに特に好ましくは８～１８μｍ程度となる量であることが好ましい。
【０１９９】
ウェット塗膜の硬化は、被塗物に本発明の塗料組成物を塗装後、加熱することにより行うことができる。加熱は、公知の加熱手段により行うことができる。例えば、熱風炉、電気炉、赤外線誘導加熱炉等の乾燥炉を使用することができる。加熱温度は、６０～１８０℃程度が好ましく、９０～１７０℃程度がより好ましく、１１０～１６０℃程度が更に好ましい。加熱時間は、特に制限されるものではないが、通常、１０～６０分間程度が好ましく、２０～４０分間程度がより好ましい。
【０２００】
本発明の塗料組成物の塗装後、上記加熱硬化を行なう前に、ワキ等の塗膜欠陥の発生を防止する観点から、塗膜が実質的に硬化しない加熱条件でプレヒート、エアブロー等を行うことが好ましい。プレヒートの温度は、４０～１００℃程度が好ましく、５０～９０℃程度がより好ましく、６０～８０℃程度が更に好ましい。プレヒートの時間は、３０秒間～１５分間程度が好ましく、１～１０分間程度がより好ましく、２～５分間程度が更に好ましい。また、上記エアブローは、通常、被塗物の塗装面に、常温又は２５℃～８０℃程度の温度に加熱された空気を、３０秒間～１５分間程度吹き付けることにより行うことができる。
【０２０１】
また、本発明の塗料組成物は、上述のとおり、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として１０～５０質量部含有する。
すなわち、本発明の塗料組成物は、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を比較的多量に含有し、かつ該鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）を主たる顔料成分とするため、フリップフロップ性が高く光輝感に優れた塗膜を形成することができる。
【０２０２】
本発明の塗料組成物によって形成される硬化塗膜の膜厚１５μｍにおけるフリップフロップ値は、２．０～３０．０の範囲内であることが好ましい。
当該フリップフロップ値は、２．５以上がより好ましく、３．５以上がさらに好ましく、４．０以上が特に好ましい。また、当該フリップフロップ値は、１５．０以下がより好ましく、１１．０以下がさらに好ましく、６．０以下が特に好ましい。
【０２０３】
なお、本明細書において、フリップフロップ値（以下、ＦＦ値と称することがある。）とは、観察角度（受光角度）が変化した時の反射光強度の変化度合をいう。ＦＦ値は、多角度分光光度計（商品名「ＭＡ－６８ＩＩ」、ｘ－Ｒｉｔｅ社製）を使用して、受光角１５度のＬ＊値（Ｌ＊１５値）及び受光角７５度のＬ＊値（Ｌ＊７５値）を測定し、下記式によって算出される。なお、上記受光角１５度のＬ＊値（Ｌ＊１５値）は、具体的には、測定対象面に垂直な軸に対し４５°の角度から測定光を照射し、正反射角から測定光の方向に１５°の角度で受光した光についてのＬ＊値であり、上記受光角７５度のＬ＊値（Ｌ＊７５値）は、同様に測定光を照射し、正反射角から測定光の方向に７５°の角度で受光した光についてのＬ＊値である。
ＦＦ値＝Ｌ＊１５値／Ｌ＊７５値
ＦＦ値が大きいほど、観察角度（受光角）によるＬ＊値（明度）の変化が大きく、フリップフロップ性に優れていることを示す。
【０２０４】
また、前記硬化塗膜の膜厚１５μｍにおける粒状性値（Ｇ値）（ＢＹＫガードナー社製、ＢＹＫ－ｍａｃにて測定）は、５．０以上であることが好ましく、より好ましくは５．０～１０．０であり、さらに好ましくは６．０～１０．０であり、さらに特に好ましくは７．０～１０．０である。

粒状性値（Ｇ値）が５．０以上であると粒子感が高く、粒状性値（Ｇ値）が１０．０以下であるとメタリックムラの発生が抑制され、鮮映性に優れるため好ましい。

【０２０５】

［複層塗膜形成方法］

本発明の塗料組成物は、ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜からなる複層塗膜を、２コート１ベーク方式で前述の被塗物に形成する場合に、該ベースコート塗膜形成用として用いることができる。この場合の塗膜形成方法は、下記方法Ｉに従って、行うことができる。

【０２０６】

＜方法Ｉ＞

（１）被塗物に、本発明の塗料組成物を塗装して未硬化のベースコート塗膜を形成する工程、

（２）前記未硬化のベースコート塗膜上に、クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）を塗装して未硬化のクリヤーコート塗膜を形成する工程、並びに

（３）前記未硬化のベースコート塗膜及び前記未硬化のクリヤーコート塗膜を加熱して、両塗膜を同時に硬化させる工程

を含む複層塗膜形成方法。

【０２０７】

上記方法Ｉにおける被塗物は、下塗り塗膜及び／又は中塗り塗膜が形成されている自動車車体等が好ましい。また、上記未硬化の塗膜には、指触乾燥状態の塗膜及び半硬化乾燥状態の塗膜が含まれる。

【０２０８】

本発明の塗料組成物を、方法Ｉの２コート１ベーク方式で塗装する場合、その塗装膜厚は、硬化膜厚として、０．５～５０μｍ程度、好ましくは２～４０μｍ程度、さらに好ましくは５～３０μｍ程度、さらに特に好ましくは８～１８μｍ程度である。

【０２０９】

また、上記未硬化のベースコート塗膜は、通常１種類のベースコート塗料組成物を使用して形成するが、２種以上のベースコート塗料組成物を使用して形成することもできる。その場合、少なくとも最上層のベースコート塗膜を形成するベースコート塗料組成物として本発明の塗料組成物を使用することができる。

なお、２種以上のベースコート塗料組成物を使用する場合は、２種のベースコート塗料組成物を使用することが好ましい。

【０２１０】

具体的には、例えば、本発明の塗料組成物を用いてもよい第１ベースコート塗料を被塗物に塗装して第１ベースコート塗膜を形成した後、該第１ベースコート塗膜上に本発明の塗料組成物を用いた第２ベースコート塗料を塗装して第２ベースコート塗膜を形成することができる。

【０２１１】

この場合、形成される塗膜のフリップフロップ性の観点から、上記第１ベースコート塗膜は、硬化膜厚として、５～１５μｍ、好ましくは７～１３μｍであることが好適であり、また、上記第２ベースコート塗膜は、硬化膜厚として、０．５～８μｍ、好ましくは１～８μｍ、より好ましくは２～６μｍの範囲内であることが好適である。

【０２１２】

また、上記クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）の塗装膜厚は、硬化膜厚として、１０～８０μｍ程度が好ましく、１５～６０μｍ程度がより好ましい。

【０２１３】

また、方法Ｉにおいて、本発明の塗料組成物の塗装後は、ワキ等の塗膜欠陥の発生を防止する観点から、塗膜が実質的に硬化しない加熱条件でプレヒート、エアブロー等を行うことが好ましい。プレヒートの温度は、４０～１００℃程度が好ましく、５０～９０℃程度がより好ましく、６０～８０℃程度が更に好ましい。プレヒートの時間は、３０秒間～

１５分間程度が好ましく、１～１０分間程度がより好ましく、２～５分間程度が更に好ましい。また、上記エアブローは、通常、被塗物の塗装面に、常温又は２５℃～８０℃程度の温度に加熱された空気を、３０秒間～１５分間程度吹き付けることにより行うことができる。また、上記クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）の塗装後は、必要に応じて、室温で１～６０分間程度のインターバルをおいたり、４０～８０℃程度で１～６０分間程度プレヒートしたりすることができる。

【０２１４】

塗膜の硬化は、前述の公知の加熱手段により行うことができる。加熱温度は、６０～１８０℃程度が好ましく、９０～１７０℃程度がより好ましく、１１０～１６０℃程度が更に好ましい。また、加熱時間は、１０～６０分間程度が好ましく、２０～４０分間程度がより好ましい。この加熱により、ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜の両塗膜を同時に硬化させることできる。

【０２１５】

また、本発明の塗料組成物は、中塗り塗膜、ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜からなる複層塗膜を、３コート１ベーク方式で自動車車体等の被塗物に形成する場合に、該ベースコート形成用として、好適に用いることができる。この場合の塗膜形成方法は、下記方法ＩＩに従って、行うことができる。

【０２１６】

＜方法ＩＩ＞

（１）被塗物に、中塗り塗料組成物を塗装して未硬化の中塗り塗膜を形成する工程、
（２）前記未硬化の中塗り塗膜上に、本発明の塗料組成物を塗装して未硬化のベースコート塗膜を形成する工程、
（３）前記未硬化のベースコート塗膜上に、クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）を塗装して未硬化のクリヤーコート塗膜を形成する工程、並びに
（４）前記未硬化の中塗り塗膜、未硬化のベースコート塗膜及び未硬化のクリヤーコート塗膜を加熱して、同時に硬化させる工程
を含む複層塗膜形成方法。

【０２１７】

上記方法ＩＩは、未硬化の中塗り塗膜上に、前記方法Ｉの塗膜形成方法を行うものである。方法ＩＩにおける被塗物としては、下塗り塗膜を形成した自動車車体等が好ましい。上記下塗り塗膜は電着塗料によって形成されることが好ましく、カチオン電着塗料によって形成されることがさらに好ましい。

【０２１８】

方法ＩＩにおいて、中塗り塗料組成物の塗装膜厚は、通常、硬化膜厚で１０～６０μｍ程度が好ましく、２０～４０μｍ程度とするのがより好ましい。また、本発明の塗料組成物の塗装膜厚は、硬化膜厚として、０．５～５０μｍ程度、好ましくは２～４０μｍ程度、さらに好ましくは５～３０μｍ程度、さらに特に好ましくは８～１８μｍ程度が更に好ましい。また、クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）の塗装膜厚は、通常、硬化膜厚で１０～８０μｍ程度が好ましく、１５～６０μｍ程度とするのがより好ましい。

【０２１９】

また、方法ＩＩにおいて、中塗り塗料組成物として塗料を用いた場合には、該塗料塗装後に、プレヒートを行うことが好ましい。プレヒートの温度は、室温～１００℃程度が好ましく、４０～９０℃程度がより好ましく、６０～８０℃程度が更に好ましい。プレヒートの時間は、３０秒間～１５分間程度が好ましく、１～１０分間程度がより好ましく、２～５分間程度が更に好ましい。

【０２２０】

また、本発明の塗料組成物塗装後に、プレヒートを行うことが好ましい。プレヒートの温度は、室温～１００℃程度が好ましく、４０～９０℃程度がより好ましく、６０～８０℃程度が更に好ましい。プレヒートの時間は、３０秒間～１５分間程度が好ましく、１～１０分間程度がより好ましく、２～５分間程度が更に好ましい。

【０２２１】
また、方法ＩＩにおいても、上記未硬化のベースコート塗膜は、通常１種類のベースコート塗料組成物を使用して形成するが、２種以上のベースコート塗料組成物を使用して形成することもできる。その場合、少なくとも最上層のベースコート塗膜を形成するベースコート塗料組成物として本発明の塗料組成物を使用することができる。
なお、２種以上のベースコート塗料組成物を使用する場合は、２種のベースコート塗料組成物を使用することが好ましい。
【０２２２】
上記クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）の塗装後は、必要に応じて、室温で１～６０分間程度のインターバルをおいたり、４０～８０℃程度で１～６０分間程度プレヒートしたりすることができる。
【０２２３】
未硬化の中塗り塗膜、未硬化のベースコート塗膜及び未硬化のクリヤーコート塗膜の３層塗膜の硬化は、前述の公知の加熱手段により行うことができる。加熱温度は、６０～１８０℃程度が好ましく、９０～１７０℃程度がより好ましく、１１０～１６０℃程度が更に好ましい。また、加熱時間は、１０～６０分間程度が好ましく、２０～４０分間程度がより好ましい。この加熱により、中塗り塗膜、ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜の三層塗膜を同時に硬化させることできる。
【０２２４】
上記方法Ｉ及びＩＩで用いられるクリヤーコート塗料組成物（Ｙ）としては、自動車車体等の塗装用として公知の熱硬化性クリヤーコート塗料組成物をいずれも使用できる。例えば、架橋性官能基を有する基体樹脂や、架橋剤を含有する有機溶剤型熱硬化性塗料組成物、水性熱硬化性塗料組成物、粉体熱硬化性塗料組成物等を挙げることができる。
【０２２５】
上記基体樹脂が有する架橋性官能基としては、例えば、カルボキシル基、水酸基、エポキシ基、シラノール基等を挙げることができる。基体樹脂の種類としては、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ウレタン樹脂、エポキシ樹脂、フッ素樹脂などを挙げることができる。架橋剤としては、例えば、ポリイソシアネート化合物、ブロック化ポリイソシアネート化合物、メラミン樹脂、尿素樹脂、カルボキシル基含有化合物、カルボキシル基含有樹脂、エポキシ基含有樹脂、エポキシ基含有化合物などを挙げることができる。
【０２２６】
また、上記クリヤーコート塗料としては、一液型塗料であってもよいし、二液型ウレタン樹脂塗料等の多液型塗料であってもよい。
【０２２７】
また、上記クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）には、必要に応じて、透明性を阻害しない程度に着色顔料、光輝性顔料、染料等を含有させることができ、さらに、体質顔料、紫外線吸収剤、光安定剤、消泡剤、増粘剤、防錆剤、表面調整剤等を適宜含有せしめることができる。
【０２２８】
クリヤーコート塗料組成物（Ｙ）の基体樹脂／架橋剤の組み合わせとしては、カルボキシル基含有樹脂／エポキシ基含有樹脂、水酸基含有樹脂／ポリイソシアネート化合物、水酸基含有樹脂／ブロック化ポリイソシアネート化合物、水酸基含有樹脂／メラミン樹脂等が好ましい。なかでも、形成される塗膜の粒子感の観点から、水酸基含有樹脂／ポリイソシアネート化合物の組み合わせが好ましい。
【０２２９】
上記方法ＩＩで用いられる中塗り塗料組成物としては、公知の熱硬化性中塗り塗料組成物をいずれも使用できる。例えば、架橋性官能基を有する基体樹脂、架橋剤、着色顔料及び体質顔料を含有する熱硬化性塗料組成物を、好適に使用できる。
【０２３０】

上記基体樹脂が有する架橋性官能基としては、例えば、カルボキシル基、水酸基、エポキシ基等を挙げることができる。基体樹脂の種類としては、例えば、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、ウレタン樹脂などを挙げることができる。架橋剤としては、例えば、メラミン樹脂、ポリイソシアネート化合物、ブロック化ポリイソシアネート化合物などを挙げることができる。

中塗り塗料組成物としては、有機溶剤型塗料組成物、水性塗料組成物、粉体塗料組成物のいずれを用いてもよい。これらのうち、水性塗料組成物を用いるのが好ましい。

【０２３１】

上記方法Ｉ及びＩＩにおいて塗装は、公知の方法、例えば、エアスプレー塗装、エアレススプレー塗装、回転霧化塗装等の方法によって塗装することができる。

【実施例】

【０２３２】

以下に実施例を挙げ、本発明を具体的に説明するが、本発明は何らこれらに限定されるものではない。

なお、例中、「部」、「％」とあるのは、特に断りのない限り、質量基準を意味する。

【０２３３】

各例で使用した成分は以下のとおりである。

【０２３４】

〔バインダー成分（Ａ）〕

＜水酸基含有樹脂（Ａ１）＞

（水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１）の製造）

製造例１

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反応容器に脱イオン水１２８．０部、「アデカリアソープＳＲ－１０２５」（商品名、ＡＤＥＫＡ製、乳化剤、有効成分２５％）２．０部を仕込み、窒素気流中で撹拌混合し、８０℃に昇温させた。

【０２３５】

次いで下記コア部用モノマー乳化物の全量のうちの１％量及び６％過硫酸アンモニウム水溶液５．３部を反応容器内に導入し８０℃で１５分間保持した。その後、コア部用モノマー乳化物の残部を３時間かけて、同温度に保持した反応容器内に滴下し、滴下終了後１時間熟成を行なった。次に、下記シェル部用モノマー乳化物を１時間かけて滴下し、１時間熟成した後、５％２－（ジメチルアミノ）エタノール水溶液４０．０部を反応容器に徐々に加えながら３０℃まで冷却し、１００メッシュのナイロンクロスで濾過しながら排出し、平均粒子径１００ｎｍ、固形分３０％の水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）分散液を得た。得られた水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）は、酸価３３ｍｇＫＯＨ／ｇ、水酸基価２５ｍｇＫＯＨ／ｇであった。

【０２３６】

コア部用モノマー乳化物：脱イオン水４０．０部、「アデカリアソープＳＲ－１０２５」２．８部、メチレンビスアクリルアミド２．１部、スチレン２．８部、メチルメタクリレート１６．１部、エチルアクリレート２８．０部及びｎ－ブチルアクリレート２１．０部を混合撹拌することにより、コア部用モノマー乳化物を得た。

【０２３７】

シェル部用モノマー乳化物：脱イオン水１７．０部、「アデカリアソープＳＲ－１０２５」１．２部、過硫酸アンモニウム０．０３部、スチレン３．０部、２－ヒドロキシエチルアクリレート５．１部、メタクリル酸５．１部、メチルメタクリレート６．０部、エチルアクリレート１．８部及びｎ－ブチルアクリレート９．０部を混合撹拌することにより、シェル部用モノマー乳化物を得た。

【０２３８】

製造例２

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反

応容器にプロピレングリコールモノプロピルエーテル３５．０部を仕込み８５℃に昇温後、メチルメタクリレート３０．０部、２－エチルヘキシルアクリレート２０．０部、ｎ－ブチルアクリレート２９．０部、２－ヒドロキシエチルアクリレート１５．０部、アクリル酸６．０部、プロピレングリコールモノプロピルエーテル１５．０部及び２，２'－アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）２．３部の混合物を４時間かけて、同温度に保持した反応容器内に滴下し、滴下終了後１時間熟成した。その後さらにプロピレングリコールモノプロピルエーテル１０．０部及び２，２'－アゾビス（２，４－ジメチルバレロニトリル）１．０部の混合物を１時間かけて、同温度に保持した反応容器内に滴下し、滴下終了後１時間熟成した。さらにジエタノールアミン７．４部及びプロピレングリコールモノプロピルエーテル１３．０部を加え、固形分５５％の水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液を得た。得られた水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）は酸価が４７ｍｇＫＯＨ/ｇ、水酸基価が７２ｍｇＫＯＨ/ｇ、重量平均分子量が５８，０００であった。

【０２３９】

製造例３

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反応容器にメトキシプロパノール２７．５部、イソブタノール２７．５部の混合溶剤を入れ、１１０℃に加熱し、スチレン２５．０部、ｎ－ブチルメタクリレート２７．５部、「イソステアリルアクリレート」（商品名、大阪有機化学工業社製、分岐高級アルキルアクリレート）２０．０部、４－ヒドロキシブチルアクリレート７．５部、下記リン酸基含有重合性モノマー１５．０部、２－メタクリロイルオキシエチルアシッドホスフェート１２．５部、イソブタノール１０．０部、ｔ－ブチルパーオキシオクタノエート４．０部からなる混合物１２１．５部を４時間かけて上記混合溶剤に加え、さらにｔ－ブチルパーオキシオクタノエート０．５部とイソプロパノール２０．０部からなる混合物を１時間滴下した。その後、１時間撹拌熟成して固形分５０％の水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１－３）溶液を得た。得られた水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１－３）は酸価が８３ｍｇＫＯＨ／ｇ、水酸基価が２９ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平均分子量が１０，０００であった。

【０２４０】

リン酸基含有重合性モノマー：温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反応容器にモノブチルリン酸５７．５部、イソブタノール４１．０部を入れ、９０℃まで昇温後、グリシジルメタクリレート４２．５部を２時間かけて滴下した後、さらに１時間撹拌熟成した。その後、イソプロパノール５９．０部を加えて、固形分濃度５０％のリン酸基含有重合性モノマー溶液を得た。得られたモノマーの酸価は２８５ｍｇＫＯＨ／ｇであった。

【０２４１】

（水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２）の製造）

製造例４

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器及び水分離器を備えた反応容器に、トリメチロールプロパン１０９．０部、１，６－ヘキサンジオール１４１．０部、１，２－シクロヘキサンジカルボン酸無水物１２６．０部及びアジピン酸１２０．０部を仕込み、１６０℃から２３０℃まで３時間かけて昇温させた後、生成した縮合水を水分離器により留去させながら２３０℃で４時間縮合反応させた。次いで、得られた縮合反応生成物にカルボキシル基を付加するために、さらに無水トリメリット酸３８．３部を加え、１７０℃で３０分間反応させた後、２－エチル－１－ヘキサノールで希釈し、固形分７０％である水酸基含有ポリエステル樹脂（Ａ１－２－１）溶液を得た。得られたポリエステル樹脂は、酸価が４６ｍｇＫＯＨ／ｇ、水酸基価が１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ、数平均分子量が１，４００であった。

【０２４２】

＜硬化剤（Ａ３）＞

メラミン樹脂：「サイメル３２５」（オルネクスジャパン社製、固形分８０％）

【０２４３】

〔平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）〕

〔平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）〕

（鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び鱗片状顔料（Ｃ）を含有する顔料分散液の製造）

製造例５

撹拌混合容器内において、「アルペースト　ＭＧ６００」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２５μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量６５％）２６．２部（固形分１７．０部）、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ－ＳＯ」（商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１３μｍ、干渉色：銀色）４．０部、２－エチル－１－ヘキサノール３５．０部並びに製造例３で得た水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１－３）溶液１０．５部（固形分５．３部）を均一に混合して、顔料分散液（Ｐ－１）を得た。

【０２４４】

製造例６～３２

製造例５において、配合組成を後記の表１に示すものとする以外は、製造例５と同様にして、顔料分散液（Ｐ－２）～（Ｐ－２８）を得た。

【０２４５】

【表１】

表１

配合量の単位は質量部

		製造例								
		5	6	7	8	9	10	11	12	13
顔料分散液		P-1	P-2	P-3	P-4	P-5	P-6	P-7	P-8	P-9
鱗片状アルミニウム顔料（B）	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ MG600」 平均粒子径（d50）：25μm 平均厚さ：0.40μm	26.2	–	–	–	–	–	–	–	–
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ TCR2020」（注1） 平均粒子径（d50）：22μm 平均厚さ：0.67μm	–	21.8	–	15.4	7.7	15.4	32.1	44.9	57.7
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ TCR2060」（注2） 平均粒子径（d50）：18μm 平均厚さ：0.40μm	–	–	22.7	6.7	13.3	–	–	–	–
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ MG2020」（注3） 平均粒子径（d50）：29μm 平均厚さ：0.47μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ 7675NS」（注4） 平均粒子径（d50）：16μm 平均厚さ：0.21μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
鱗片状顔料（C）	TWINCLE PEARL SXC-SO（注5） 平均粒子径（d50）：22μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	TWINCLE PEARL SXB-SO 平均粒子径（d50）：13μm	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
	TWINCLE PEARL SXA（注6） 平均粒子径（d50）：9μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	Magnapearl Exterior CFS 1103（注7） 平均粒子径（d50）：18μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	Xirallic T60-10 SW Crystal Silver（注8） 平均粒子径（d50）：19μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	IRIODIN 602WNT（注9） 平均粒子径（d50）：21μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	TWINCLE PEARL SXE（注10） 平均粒子径（d50）：37μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
	GRAPHITAN 7525（注11） 平均粒子径（d50）：4μm	–	–	–	–	–	–	–	–	–
有機溶剤	2-ｴﾁﾙ-1-ﾍｷｻﾉｰﾙ	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	40.0	40.0
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）	A1-1-3	10.5	10.5	10.5	10.5	10.0	8.0	14.5	20.0	24.0

【０２４６】

【表２】

表２

配合量の単位は質量部

		製造例								
		14	15	16	17	18	19	20	21	22
顔料分散液		P-10	P-11	P-12	P-13	P-14	P-15	P-16	P-17	P-18
鱗片状アルミニウム顔料（B）	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ MG600」 平均粒子径（d50）：25μm 平均厚さ：0.40μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ TCR2020」（注1） 平均粒子径（d50）：22μm 平均厚さ：0.67μm	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ TCR2060」（注2） 平均粒子径（d50）：18μm 平均厚さ：0.40μm	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ MG2020」（注3） 平均粒子径（d50）：29μm 平均厚さ：0.47μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	「ｱﾙﾍﾟｰｽﾄ 7675NS」（注4） 平均粒子径（d50）：16μm 平均厚さ：0.21μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−
鱗片状顔料（C）	TWINCLE PEARL SXC-SO（注5） 平均粒子径（d50）：22μm	4.0	−	−	−	−	−	−	−	−
	TWINCLE PEARL SXB-SO 平均粒子径（d50）：13μm	−	−	−	−	−	0.8	1.2	2.0	6.0
	TWINCLE PEARL SXA（注6） 平均粒子径（d50）：9μm	−	4.0	−	−	−	−	−	−	−
	Magnapearl Exterior CFS 1103（注7） 平均粒子径（d50）：18μm	−	−	4.0	−	−	−	−	−	−
	Xirallic T60-10 SW Crystal Silver（注8） 平均粒子径（d50）：19μm	−	−		4.0	−	−	−	−	−
	IRIODIN 602WNT（注9） 平均粒子径（d50）：21μm	−	−	−	−	4.0	−	−	−	−
	TWINCLE PEARL SXE（注10） 平均粒子径（d50）：37μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	GRAPHITAN 7525（注11） 平均粒子径（d50）：4μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−
有機溶剤	2-ｴﾁﾙ-1-ﾍｷｻﾉｰﾙ	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）	A1-1-3	10.5	10.5	10.5	10.5	10.5	8.9	9.1	9.5	11.5

【０２４７】

【表３】

表3　　配合量の単位は質量部

		製造例									
		23	24	25	26	27	28	29	30	31	32
顔料分散液		P-19	P-20	P-21	P-22	P-23	P-24	P-25	P-26	P-27	P-28
鱗片状アルミニウム顔料（B）	「アルペースト MG600」 平均粒子径（d50）：25μm 平均厚さ：0.40μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	「アルペースト TCR2020」（注1） 平均粒子径（d50）：22μm 平均厚さ：0.67μm	15.4	−	−	10.3	70.5	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4
	「アルペースト TCR2060」（注2） 平均粒子径（d50）：18μm 平均厚さ：0.40μm	6.7	−	−	−	−	6.7	6.7	6.7	6.7	6.7
	「アルペースト MG2020」（注3） 平均粒子径（d50）：29μm 平均厚さ：0.47μm	−	25.4	−	−	−	−	−	−	−	−
	「アルペースト 7675NS」（注4） 平均粒子径（d50）：16μm 平均厚さ：0.21μm	−	−	26.2	−	−	−	−	−	−	−
鱗片状顔料（C）	TWINCLE PEARL SXC-SO（注5） 平均粒子径（d50）：22μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	TWINCLE PEARL SXB-SO 平均粒子径（d50）：13μm	8.0	4.0	4.0	4.0	4.0	−	−	−	0.3	12.0
	TWINCLE PEARL SXA（注6） 平均粒子径（d50）：9μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	Magnapearl Exterior CFS 1103（注7） 平均粒子径（d50）：18μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	Xirallic T60-10 SW Crystal Silver（注8） 平均粒子径（d50）：19μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	IRIODIN 602WNT（注9） 平均粒子径（d50）：21μm	−	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	TWINCLE PEARL SXE（注10） 平均粒子径（d50）：37μm	−	−	−	−	−	−	4.0	−	−	−
	GRAPHITAN 7525（注11） 平均粒子径（d50）：4μm	−	−	−	−	−	−	−	4.0	−	−
有機溶剤	2-エチル-1-ヘキサノール	35.0	35.0	35.0	35.0	40.0	35.0	35.0	35.0	35.0	35.0
バインダー成分（A）	A1-1-3	12.5	10.5	10.5	6.0	28.0	8.5	10.5	10.5	8.7	14.5

【０２４８】

なお、表１～３中の（注１）～（注１１）の顔料は、以下のものを用いた。

（注１）「アルペースト　ＴＣＲ２０２０」：商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２２μｍ、平均厚さ０．６７μｍ、アルミニウム含有量７８％

（注２）「アルペースト　ＴＣＲ２０６０」：商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）１８μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量７５％

【０２４９】

（注３）「アルペースト　ＭＧ－２０２０」：商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２９μｍ、平均厚さ０．４７μｍ、アルミニウム含有量６７％

（注４）「アルペースト　７６７５ＮＳ」：商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）１６μｍ、平均厚さ０．２１μｍ、アルミニウム含有量６５％

【０２５０】

（注５）「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＣ－ＳＯ」：商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：２２μｍ、干渉色：銀色

（注６）「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＡ」：商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：９μｍ、干渉色：銀色

（注７）「Ｍａｇｎａｐｅａｒｌ　Ｅｘｔｅｒｉｏｒ　ＣＦＳ　１１０３」：商品名、ＢＡＳＦ製、酸化チタン被覆天然雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１８μｍ、干渉色：銀色

（注８）「Ｘｉｒａｌｌｉｃ　Ｔ６０－１０　ＳＷ　Ｃｒｙｓｔａｌ　Ｓｉｌｖｅｒ」：商品名、メルク社製、酸化チタン被覆酸化アルミニウム顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１

９μｍ、干渉色：銀色
（注９）「ＩＲＩＯＤＩＮ　６０２ＷＮＴ」：商品名、メルク社製、酸化チタン及び酸化鉄被覆雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：２１μｍ、干渉色：グレー
【０２５１】
（注１０）「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＥ」：商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：３７μｍ、干渉色：銀色
（注１１）「ＧＲＡＰＨＩＴＡＮ　７５２５」：商品名、ＢＡＳＦ社製、グラファイトフレーク顔料、平均粒子径（ｄ５０）：４μｍ
【０２５２】
〔その他の成分（Ｄ）〕
（顔料分散液の製造）
製造例３３
撹拌混合容器に、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液１８．２部（固形分１０．０部）、「ＪＲ－８０６」（商品名、テイカ社製、ルチル型二酸化チタン）５０．０部及び脱イオン水３０．０部を入れ、均一に混合し、更に、２－（ジメチルアミノ）エタノールを添加して、ｐＨ８．０に調整した。次いで、得られた混合液を容量２２５ｍＬの広口ガラスビン中に入れ、分散メジアとして直径約１．３ｍｍφのガラスビーズを加えて密封し、ペイントシェイカーにて４時間分散して、顔料分散液（Ｄ１）を得た。
【０２５３】
［実施例１］
撹拌混合容器に、製造例１で得た水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）水分散液１００．０部（固形分３０．０部）、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液１７．７部（固形分９．７部）、製造例４で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－１）３５．７部（固形分２５．０部）、メラミン樹脂（商品名「サイメル３２５」、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０．０部）、製造例５で得た顔料分散液（Ｐ－１）７５．７部及び製造例３３で得た顔料分散液（Ｄ１）０．３部を均一に混合し、更に、ポリアクリル酸系増粘剤（商品名「プライマルＡＳＥ－６０」ロームアンドハース社製）、２－（ジメチルアミノ）エタノール及び脱イオン水を加えてｐＨ８．０、塗料固形分２５％、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４によって測定される粘度が４０秒の塗料組成物（Ｘ１）を得た。
【０２５４】
〔試験用塗装板の作製〕
（試験用被塗物の作製）
リン酸亜鉛処理された冷延鋼板に、熱硬化性エポキシ樹脂系カチオン電着塗料組成物（商品名「エレクロンＧＴ－１０」、関西ペイント社製）を膜厚２０μｍになるように電着塗装し、１７０℃で３０分加熱して硬化させた。次いで、この電着塗膜上に中塗り塗料組成物（商品名「ＴＰ－６５－２」、関西ペイント社製、ポリエステル樹脂・アミノ樹脂系有機溶剤型塗料組成物）を膜厚３５μｍになるように塗装し、１４０℃で３０分間加熱して硬化させた。かくして、鋼板上に電着塗膜及び中塗り塗膜を形成してなる試験用被塗物（１）を作製した。
【０２５５】
（塗膜形成）
塗料組成物（Ｘ１）を、前記塗膜形成方法Ｉの２コート１ベーク方式におけるベースコート形成用塗料として使用して、上記で得た試験用被塗物（１）上にベースコート及びクリヤーコートからなる複層塗膜を形成した。
【０２５６】
すなわち、上記で得た試験用被塗物（１）に、塗料組成物（Ｘ１）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚７．５μｍとなるように静電塗装し、第１ベースコート塗膜を形成した。

１分間放置後、該第１ベースコート塗膜上に塗料組成物（Ｘ１）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚７．５μｍとなるように静電塗装し、第２ベースコート塗膜を形成した。

【０２５７】

３分間放置後、８０℃で３分間プレヒートを行なった後、第２ベースコート塗膜上にアクリル樹脂系有機溶剤型上塗りクリヤー塗料組成物（Ｙ１）（商品名「マジクロンＫＩＮＯ－１２１０」、関西ペイント社製、基体樹脂／架橋剤がカルボキシル基含有樹脂／エポキシ基含有樹脂の組み合わせ）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、硬化膜厚３５μｍとなるように静電塗装し、クリヤーコート塗膜を形成した。７分間放置後、１４０℃で３０分間加熱して、上記ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜を同時に硬化させることにより試験用塗装板を作製した。

得られた試験用塗装板を用いて、下記の評価試験を行った。結果を表４に示す。

【０２５８】

[実施例２～７、実施例１０～２０、比較例１～３、比較例５～９]

実施例１において、塗料組成物（Ｘ１）を表４～６の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ２）～（Ｘ７）、（Ｘ１０）～（Ｘ２０）、（Ｘ２１）～（Ｘ２３）、（Ｘ２５）～（Ｘ２９）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表４～６に示す。

【０２５９】

[実施例８]

実施例１で得た試験用被塗物（１）に、下記製造例３４で得られた塗料組成物（Ｘ３０）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚１０μｍとなるように静電塗装し、第１ベースコート塗膜を形成した。

１分間放置後、該第１ベースコート塗膜上に表４の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ８）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚５μｍとなるように静電塗装し、第２ベースコート塗膜を形成した。

【０２６０】

３分間放置後、８０℃で３分間プレヒートを行なった後、第２ベースコート塗膜上にアクリル樹脂系有機溶剤型上塗りクリヤー塗料組成物（Ｙ１）（商品名「マジクロンＫＩＮＯ－１２１０」、関西ペイント社製）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、硬化膜厚３５μｍとなるように静電塗装し、クリヤーコート塗膜を形成した。７分間放置後、１４０℃で３０分間加熱して、上記ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜を同時に硬化させることにより試験用塗装板を作製した。

得られた試験用塗装板を用いて、下記の評価試験を行った。結果を表４に示す。

【０２６１】

製造例３４

撹拌混合容器内において、「アルペースト　ＴＣＲ２０２０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２２μｍ、平均厚さ０．６７μｍ、アルミニウム含有量７８％）１２．８部（固形分１０．０部）、２－エチル－１－ヘキサノール３５．０部並びに製造例３で得た水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１－３）溶液５．０部（固形分２．５部）を均一に混合して、アルミニウム顔料分散液（Ｐ－２９）を得た。

【０２６２】

次に、他の撹拌混合容器において、製造例１で得た水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）水分散液１００．０部（固形分３０．０部）、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液２２．７部（固形分１２．５部）、製造例４で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－１）３５．７部（固形分２５．０部）、メラミン樹脂（商品名「サイメル３２５」、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０．０部）、上記鱗片状アルミニウム顔料分散液（Ｐ－２９）５２．８部及び製造例３３で得た顔料分散液（Ｄ１）０．３部を均一に混合し、更に、ポリアクリル

酸系増粘剤（商品名「プライマルＡＳＥ－６０」ロームアンドハース社製）、２－（ジメチルアミノ）エタノール及び脱イオン水を加えてｐＨ８．０、塗料固形分３０％、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４によって測定される粘度が４０秒の塗料組成物（Ｘ３０）を得た。

【０２６３】

[実施例９]

実施例８において、塗料組成物（Ｘ８）を表４の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ９）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表４に示す。

【０２６４】

[比較例４]

実施例８において、塗料組成物（Ｘ８）を表６の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ２４）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表６に示す。

なお、塗料組成物（Ｘ２）～（Ｘ２９）の、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４によって測定される粘度は４０秒であった。

【０２６５】

［実施例２１］

実施例１において、塗料組成物（Ｘ１）を下記製造例３５で得られた塗料組成物（Ｘ３１）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表７に示す。

【０２６６】

製造例３５

撹拌混合容器に、製造例１で得た水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）水分散液１００．０部（固形分３０．０部）、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液１７．７部（固形分９．７部）、製造例４で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－１）３５．７部（固形分２５．０部）、メラミン樹脂（商品名「サイメル３２５」、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０．０部）、製造例５で得た顔料分散液（Ｐ－１）７５．７部、製造例３３で得た顔料分散液（Ｄ１）０．３部及び下記製造例３６で得られた顔料分散液（Ｄ２）１０．０部（固形分１部）を均一に混合し、更に、ポリアクリル酸系増粘剤（商品名「プライマルＡＳＥ－６０」ロームアンドハース社製）、２－（ジメチルアミノ）エタノール及び脱イオン水を加えてｐＨ８．０、塗料固形分２５％、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４によって測定される粘度が４０秒の塗料組成物（Ｘ３１）を得た。

【０２６７】

製造例３６

「ＡＣＥＭＡＴＴ　ＯＫ６０７」（商品名、Ｅｖｏｎｉｃ社製、シリカ）１部及び脱イオン水９部を均一に混合して、顔料分散液（Ｄ２）を得た。

【０２６８】

[実施例２２～２３]

実施例２１において、塗料組成物（Ｘ３１）を表７の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ３２）～（Ｘ３３）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表７に示す。

【０２６９】

[実施例２４]

実施例１０において、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を下記製造例３７で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ２）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１２０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表７に示す。

【０２７０】

製造例３７

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反応容器に、「スワゾール１０００」（商品名、コスモ石油社製、芳香族系有機溶剤）２７部及びプロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート５部を仕込み、窒素ガスを吹き込みながら１５０℃で撹拌し、この中にスチレン２０部、２－ヒドロキシプロピルアクリレート３２．５部、イソブチルメタクリレート４６．８部、アクリル酸０．７部及びジターシャリアミルパーオキサイド（重合開始剤）６．０部からなるモノマー混合物を４時間かけて均一速度で滴下した。その後、１５０℃で１時間熟成させた後冷却し、さらに酢酸イソブチルを２１部加えて希釈し、固形分濃度６５質量％の水酸基含有アクリル樹脂（ｙ－１）溶液を得た。得られた水酸基含有アクリル樹脂（ｙ－１）の水酸基価は１３９ｍｇＫＯＨ／ｇ、酸価は５．５ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平均分子量は５，５００、ガラス転移温度３８℃であった。

【０２７１】

上記で得た水酸基含有アクリル樹脂（ｙ－１）溶液１００部（固形分６５部）及び「ＢＹＫ－３００」（商品名、ビックケミー社製、表面調整剤、有効成分５２％）０．４部（固形分０．２部）を均一に混合した主剤と、架橋剤「スミジュールＮ３３００」（商品名、住化コベストロウレタン社製、ヘキサメチレンジイソシアネートのイソシアヌレート体、固形分含有率１００％）３５部を塗装直前に均一に混合し、さらに、酢酸ブチルを加えて、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４による粘度が３０秒となるように調整してクリヤー塗料組成物（Ｙ２）を得た。

【０２７２】

[実施例２５～２７]

実施例２４において、塗料組成物（Ｘ１０）を表７の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ３１）～（Ｘ３３）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表７に示す。

【０２７３】

製造例３８

温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器、窒素導入管及び滴下装置を備えた反応容器にエチル－３－エトキシプロピオネート１５部及びｎ－ブチルプロピオネート１５部を仕込み、１５５℃に昇温後、スチレン１０部、メチルメタクリレート２０部、イソボルニルアクリレート３０部、２－エチルヘキシルアクリレート２０部、２－ヒドロキシエチルアクリレート２０部及び２，２－ジ（ｔ－アミルパーオキシ）ブタン（重合開始剤）４．５部からなるモノマー混合物を５時間かけて滴下し、滴下終了後２時間熟成し、固形分７５％の水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－４）溶液を得た。得られた水酸基含有アクリル樹脂は水酸基価が９７ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平均分子量が５，５００であった。

【０２７４】

製造例３９

製造例３８で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－４）溶液２６．６部（樹脂固形分２０部）、「ＪＲ－８０６」（商品名、テイカ社製、ルチル型二酸化チタン）４０部及びキシレン１５部を広口ガラスビン中に入れ、ガラスビーズを加えて密封し、ペイントシェーカーで３０分間分散した後、ガラスビーズを除去して、顔料分散液（Ｄ３）を得た。

【０２７５】

製造例４０

「ＡＣＥＭＡＴＴ　ＯＫ６０７」（商品名、Ｅｖｏｎｉｃ社製、シリカ）１部及びトルエン９部を均一に混合して、顔料分散液（Ｄ４）を得た。

【０２７６】

［実施例２８］

実施例２４において、塗料組成物（Ｘ１０）を下記製造例４１で得られた塗料組成物（Ｘ３５）とし、第２ベースコート塗膜形成後の放置時間を５分間とし、プレヒートを行わなかった以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表８に示す。

【０２７７】
製造例４１
製造例３８で得た水酸基含有アクリル樹脂溶液（Ａ１－１－４）９３．３部（樹脂固形分７０部）、「サイメル３２５」（メラミン樹脂、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０部）、「アルペースト　ＭＧ６００」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２５μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量６５％）２６．２部（固形分１７．０部）、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ－ＳＯ」（商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１３μｍ、干渉色：銀色）４．０部、製造例３９で得た顔料分散液（Ｄ３）０.３部及び製造例４０で得た顔料分散液（Ｄ４）１０．０部（固形分１部）を均一に混合した。次いで、キシレン／スワゾール１０００（商品名、コスモ石油社製、石油系芳香族炭化水素系溶剤）＝５０／５０（質量比）の混合溶剤を添加することにより、２０℃におけるフォードカップＮｏ．３による粘度が１７秒の塗料組成物（Ｘ３５）を得た。
【０２７８】
［実施例２９］
実施例２８において、塗料組成物（Ｘ３５）を下記製造例４２で得られた塗料組成物（Ｘ３６）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表８に示す。
【０２７９】
製造例４２
製造例３８で得た水酸基含有アクリル樹脂溶液（Ａ１－１－４）９３．３部（樹脂固形分７０部）、「サイメル３２５」（メラミン樹脂、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０部）、「アルペースト　ＴＣＲ２０６０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）１８μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量７５％）２２．７部（固形分１７．０部）、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ－ＳＯ」（商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１３μｍ、干渉色：銀色）４．０部、製造例３９で得た顔料分散液（Ｄ３）０.３部及び製造例４０で得た顔料分散液（Ｄ４）１０．０部（固形分１部）を均一に混合した。次いで、キシレン／スワゾール１０００（商品名、コスモ石油社製、石油系芳香族炭化水素系溶剤）＝５０／５０（質量比）の混合溶剤を添加することにより、２０℃におけるフォードカップＮｏ．３による粘度が１７秒の塗料組成物（Ｘ３６）を得た。
【０２８０】
［実施例３０］
実施例２８において、塗料組成物（Ｘ３５）を下記製造例４３で得られた塗料組成物（Ｘ３７）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表８に示す。
【０２８１】
製造例４３
製造例３８で得た水酸基含有アクリル樹脂溶液（Ａ１－１－４）９３．３部（樹脂固形分７０部）、「サイメル３２５」（メラミン樹脂、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０部）、「アルペースト　ＴＣＲ２０２０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２２μｍ、平均厚さ０．６７μｍ、アルミニウム含有量７８％）１５．４部（固形分１２．０部）、「アルペースト　ＴＣＲ２０６０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）１８μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量７５％）６．７部（固形分５．０部）、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＣ－ＳＯ」（商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：２２μｍ、干渉色：銀色）４．０部、製造例３９で得た顔料分散液（Ｄ３）０.３部及び製造例４０

で得た顔料分散液（Ｄ４）１０．０部（固形分１部）を均一に混合した。次いで、キシレン／スワゾール１０００（商品名、コスモ石油社製、石油系芳香族炭化水素系溶剤）＝５０／５０（質量比）の混合溶剤を添加することにより、２０℃におけるフォードカップＮｏ．３による粘度が１７秒の塗料組成物（Ｘ３７）を得た。

【０２８２】

［実施例３１～３３］

実施例２８～３０において、クリヤー塗料組成物（Ｙ２）をクリヤー塗料組成物（Ｙ１）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１４０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表８に示す。

【０２８３】

［実施例３４～３６］

実施例３１～３３において、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を下記製造例４４で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ３）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表８に示す。

【０２８４】

製造例４４

製造例３７で得た水酸基含有アクリル樹脂（ｙ－１）溶液１００部（固形分６５部）、「ユーバン２０ＳＥ６０」（商品名、三井化学社製、メラミン樹脂、固形分含有率６０％）５８部（固形分３５部）及び「ＢＹＫ－３００」０．４部（固形分０．２部）を均一に混合し、さらに、酢酸ブチルを加えて、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４による粘度が３０秒となるように調整してクリヤー塗料組成物（Ｙ３）を得た。

【０２８５】

［比較例１０］

比較例５において、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を製造例３７で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ２）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１２０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表９に示す。

【０２８６】

［比較例１１］

実施例２８において、塗料組成物（Ｘ３５）を下記製造例４５で得られた塗料組成物（Ｘ３８）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表９に示す。

【０２８７】

製造例４５

製造例３８で得た水酸基含有アクリル樹脂溶液（Ａ１－１－４）９３．３部（樹脂固形分７０部）、「サイメル３２５」（メラミン樹脂、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０部）、「アルペースト　ＴＣＲ２０２０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２２μｍ、平均厚さ０．６７μｍ、アルミニウム含有量７８％）１５．４部（固形分１２．０部）、「アルペースト　ＴＣＲ２０６０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）１８μｍ、平均厚さ０．４０μｍ、アルミニウム含有量７５％）６．７部（固形分５．０部）、製造例３９で得た顔料分散液（Ｄ３）０．３部及び製造例４０で得た顔料分散液（Ｄ４）１０．０部（固形分１部）を均一に混合した。次いで、キシレン／スワゾール１０００（商品名、コスモ石油社製、石油系芳香族炭化水素系溶剤）＝５０／５０（質量比）の混合溶剤を添加することにより、２０℃におけるフォードカップＮｏ．３による粘度が１７秒の塗料組成物（Ｘ３８）を得た。

【０２８８】

［比較例１２］

比較例１１において、クリヤー塗料組成物（Ｙ２）をクリヤー塗料組成物（Ｙ１）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１４０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表９に示す。

【０２８９】
［比較例１３］
比較例１２において、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）をクリヤー塗料組成物（Ｙ３）とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表９に示す。
【０２９０】
［実施例３７］
実施例１と同様にして塗料組成物（Ｘ１）を得た。
【０２９１】
〔試験用塗装板の作製〕
（試験用被塗物の作製）
リン酸亜鉛処理された冷延鋼板に、熱硬化性エポキシ樹脂系カチオン電着塗料組成物（商品名「エレクロンＧＴ－１０」、関西ペイント社製）を膜厚２０μｍになるように電着塗装し、１７０℃で３０分加熱して硬化させた。次いで、この電着塗膜上に下記製造例４６で得た水性中塗り塗料組成物αを膜厚２０μｍになるように塗装し、２分間放置後、８０℃で３分間プレヒートを行なった。かくして、鋼板上に硬化した電着塗膜及び未硬化の中塗り塗膜を形成してなる試験用被塗物（２）を作製した。
【０２９２】
（塗膜形成）
塗料組成物（Ｘ１）を、前記塗膜形成方法ＩＩの３コート１ベーク方式におけるベースコート形成用塗料として使用して、上記で得た試験用被塗物（２）上にベースコート及びクリヤーコートからなる複層塗膜を形成した。
【０２９３】
すなわち、上記で得た試験用被塗物（２）に、塗料組成物（Ｘ１）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚７．５μｍとなるように静電塗装し、第１ベースコート塗膜を形成した。
１分間放置後、該第１ベースコート塗膜上に塗料組成物（Ｘ１）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚７．５μｍとなるように静電塗装し、第２ベースコート塗膜を形成した。
【０２９４】
３分間放置後、８０℃で３分間プレヒートを行なった後、第２ベースコート塗膜上にアクリル樹脂系有機溶剤型上塗りクリヤー塗料組成物（Ｙ１）（商品名「マジクロンＫＩＮＯ－１２１０」、関西ペイント社製）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、硬化膜厚３５μｍとなるように静電塗装し、クリヤーコート塗膜を形成した。７分間放置後、１４０℃で３０分間加熱して、上記ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜を同時に硬化させることにより試験用塗装板を作製した。
得られた試験用塗装板を用いて、下記の評価試験を行った。結果を表１０に示す。
【０２９５】
製造例４６
温度計、サーモスタット、撹拌装置、還流冷却器及び水分離器を備えた反応容器に、トリメチロールプロパン１７４部、ネオペンチルグリコール３２７部、アジピン酸３５２部、イソフタル酸１０９部及び１，２－シクロヘキサンジカルボン酸無水物１０１部を仕込み、１６０℃から２３０℃まで３時間かけて昇温させた後、生成した縮合水を水分離器により留去させながら２３０℃で保持し、酸価が３ｍｇＫＯＨ／ｇ以下となるまで反応させた。この反応生成物に、無水トリメリット酸５９部を添加し、１７０℃で３０分間付加反応を行った後、５０℃以下に冷却し、２－（ジメチルアミノ）エタノールを酸基に対して当量添加し中和してから、脱イオン水を徐々に添加することにより、固形分濃度４５％、ｐＨ７．２の水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－２）を得た。得られた水酸基含有ポリエステル樹脂は、酸価が３５ｍｇＫＯＨ／ｇ、水酸基価が１２８ｍｇＫＯＨ／ｇ、重量平均分子量が１３０００であった。
【０２９６】

撹拌混合容器に、上記で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－２）５６部（樹脂固形分２５部）、「ＪＲ－８０６」（テイカ社製、商品名、ルチル型二酸化チタン）９０部及び脱イオン水５部を入れ、更に、２－（ジメチルアミノ）エタノールを添加して、ｐＨ８．０に調整した。次いで、得られた混合液を広口ガラスビン中に入れ、分散メジアとして直径約１．３ｍｍφのガラスビーズを加えて密封し、ペイントシェイカーにて３０分間分散して、白色顔料分散液（Ｐ－１００）を得た。

【０２９７】

次に、上記で得た白色顔料分散液（Ｐ－１００）１５１部、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂溶液（Ａ１－１－２）２７部（樹脂固形分１５部）、製造例４で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－１）１１部（樹脂固形分５部）、「ユーコートＵＸ－８１００」（商品名、三洋化成工業社製、ウレタンエマルション、固形分３５％）４３部（樹脂固形分１５部）、「サイメル３２５」（商品名、オルネクス社製、メラミン樹脂、固形分８０％）３７．５部（樹脂固形分３０部）及び「バイヒジュールＶＰＬＳ２３１０」（商品名、住化バイエルウレタン社製、ブロック化ポリイソシアネート化合物、固形分３８％）２６部（樹脂固形分１０部）を均一に混合した。

【０２９８】

次いで、得られた混合物に、「プライマル　ＡＳＥ－６０」（商品名、ダウケミカル社製、増粘剤）、２－（ジメチルアミノ）エタノール及び脱イオン水を添加し、ｐＨ８．０、塗料固形分４８％、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４による粘度が３０秒の水性中塗り塗料αを得た

【０２９９】

［実施例３８～４３、４６～５９、比較例１４］

実施例３７において、塗料組成物（Ｘ１）を表１０～１２、１４に記載の塗料組成物とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表１０～１２、１４に示す。

【０３００】

［実施例４４］

実施例３７で得た試験用被塗物（２）に、製造例３４で得られた塗料組成物（Ｘ３０）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚１０μｍとなるように静電塗装し、第１ベースコート塗膜を形成した。

１分間放置後、該第１ベースコート塗膜上に表４の配合組成によって作製した塗料組成物（Ｘ８）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、膜厚５μｍとなるように静電塗装し、第２ベースコート塗膜を形成した。

【０３０１】

３分間放置後、８０℃で３分間プレヒートを行なった後、第２ベースコート塗膜上にアクリル樹脂系有機溶剤型上塗りクリヤー塗料組成物（Ｙ１）（商品名「マジクロンＫＩＮＯ－１２１０」、関西ペイント社製）を、回転霧化型の静電塗装機を用いて、硬化膜厚３５μｍとなるように静電塗装し、クリヤーコート塗膜を形成した。７分間放置後、１４０℃で３０分間加熱して、上記ベースコート塗膜及びクリヤーコート塗膜を同時に硬化させることにより試験用塗装板を作製した。

得られた試験用塗装板を用いて、下記の評価試験を行った。結果を表１１に示す。

【０３０２】

［実施例４５］

実施例４４において、塗料組成物（Ｘ８）を表１１に記載の塗料組成物とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表１１に示す。

【０３０３】

［実施例６０～６１、６５～６８、比較例１５］

実施例３７において、塗料組成物（Ｘ１）を表１３、１４に記載の塗料組成物とし、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を製造例３７で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ２）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１２０℃とした以外は同様に試験用塗装板

を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表１３、１４に示す。

【０３０４】

［実施例６２］

実施例４４において、塗料組成物（Ｘ８）を下記製造例４７で得られた塗料組成物（Ｘ３４）とし、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を製造例３７で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ２）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１２０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表１３に示す。

【０３０５】

製造例４７

撹拌混合容器内において、「アルペースト　ＴＣＲ２０２０」（商品名、東洋アルミニウム社製、アルミニウム顔料ペースト、平均粒子径（ｄ５０）２２μｍ、平均厚さ０．６７μｍ、アルミニウム含有量７８％）２５．６部（固形分２０．０部）、「ＴＷＩＮＣＬＥ　ＰＥＡＲＬ　ＳＸＢ－ＳＯ」（商品名、日本光研工業社製、酸化チタン被覆合成雲母顔料、平均粒子径（ｄ５０）：１３μｍ、干渉色：銀色）４．０部、２－エチル－１－ヘキサノール４０．０部並びに製造例３で得た水酸基及びリン酸基を有するアクリル樹脂（Ａ１－１－３）溶液１２．０部（固形分６．０部）を均一に混合して、顔料分散液（Ｐ－２００）を得た。

【０３０６】

撹拌混合容器に、製造例１で得た水分散性水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－１）水分散液１００．０部（固形分３０．０部）、製造例２で得た水酸基含有アクリル樹脂（Ａ１－１－２）溶液１７．７部（固形分９．７部）、製造例４で得た水酸基含有ポリエステル樹脂溶液（Ａ１－２－１）３５．７部（固形分２５．０部）、メラミン樹脂（商品名「サイメル３２５」、オルネクスジャパン社製、固形分８０％）３７．５部（固形分３０．０部）、上記顔料分散液（Ｐ－２９）８１．６部及び製造例３３で得た顔料分散液（Ｄ１）０．３部を均一に混合し、更に、ポリアクリル酸系増粘剤（商品名「プライマルＡＳＥ－６０」ロームアンドハース社製）、２－（ジメチルアミノ）エタノール及び脱イオン水を加えてｐＨ８．０、塗料固形分１５％、２０℃におけるフォードカップＮｏ．４によって測定される粘度が４０秒の塗料組成物（Ｘ３４）を得た。

【０３０７】

［実施例６３～６４］

実施例４４～４５において、クリヤー塗料組成物（Ｙ１）を製造例３７で得られたクリヤー塗料組成物（Ｙ２）とし、クリヤーコート塗膜の７分間放置後の加熱温度を１２０℃とした以外は同様に試験用塗装板を作製し、下記の評価試験を行った。結果を表１３に示す。

【０３０８】

〔評価試験〕

（粒子感（目視））

得られた各試験用塗装板を目視にて観察し、下記基準にて評価した。評価は、色彩開発に３年以上従事するデザイナー２名と技術者３名の計５名が協議することによって行なった。Ａ及びＢが合格レベルである。

Ａ：粒子感が極めて高かった。

Ｂ：粒子感が高かった。

Ｃ：粒子感がやや低かった。

Ｄ：粒子感が低かった。

【０３０９】

（粒子感（Ｇ値））

得られた各試験用塗装板について、「ＢＹＫ－ｍａｃ」（商品名、ＢＹＫガードナー社製）を用いて粒状性値（Ｇ値）を測定した。なお、粒状性値（Ｇ値）が大きいほど、粒子感が高いことを示す。例えば、粒子感が高い塗膜を得る場合、粒状性値（Ｇ値）は５．０以上が好ましい。

【０３１０】
（メタリックムラ）
得られた各試験用塗装板を目視にて観察し、下記基準にて評価した。評価は、色彩開発に３年以上従事するデザイナー２名と技術者３名の計５名が協議することによって行なった。Ａ及びＢが合格レベルである。
Ａ：メタリックムラがほとんど認められず、極めて優れた塗膜外観を有していた。
Ｂ：メタリックムラがわずかに認められるが、優れた塗膜外観を有していた。
Ｃ：メタリックムラが認められ、塗膜外観がやや劣っていた。
Ｄ：メタリックムラが多く認められ、塗膜外観が劣っていた。
【０３１１】
（ＦＦ値）
多角度分光光度計（商品名「ＭＡ－６８ＩＩ」、ｘ－Ｒｉｔｅ社製）を使用して、得られた各試験用塗装板において受光角１５度のＬ＊値（Ｌ＊１５値）及び受光角７５度のＬ＊値（Ｌ＊７５値）を測定し、各試験用塗装板上の塗膜のＦＦ値を下記式によって算出し、下記基準にて評価した。Ａ、Ｂ及びＣが合格レベルである。
ＦＦ値＝Ｌ＊１５値／Ｌ＊７５値
Ａ：ＦＦ値が４．０以上であった。
Ｂ：ＦＦ値が２．５以上４．０未満であった。
Ｃ：ＦＦ値が２．０以上２．５未満であった。
Ｄ：ＦＦ値が１．５以上２．０未満であった。
Ｅ：ＦＦ値が１．５ 未満であった。
【０３１２】
（鮮映性）
得られた各試験用塗装板について、「Ｗａｖｅ Ｓｃａｎ」（商品名、ＢＹＫ Ｇａｒｄｎｅｒ社製）を用いてＳｈｏｒｔ Ｗａｖｅ（ＳＷ）値を測定し、下記基準にて評価した。ＳＷ値が小さいほど塗面の鮮映性が高いことを示す。Ａ、Ｂ及びＣが合格レベルである。
Ａ：ＳＷ値が５．０未満であった。
Ｂ：ＳＷ値が５．０以上７．０未満であった。
Ｃ：ＳＷ値が７．０以上９．０未満であった。
Ｄ：ＳＷ値が９．０以上１０．０未満であった。
Ｅ：ＳＷ値が１０．０以上であった。
【０３１３】

【表４】

表４

配合量の単位は質量部

				実施例									
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
ベースコート塗料組成物				X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7	X8	X9	X10
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有ｱｸﾘﾙ樹脂（A1-1）	(A1-1-1) 水分散液	100.0									
			(A1-1-2) 溶液	17.7	17.7	17.7	17.7	18.2	20.0	14.1	9.1	5.4	17.7
			(A1-1-4) 溶液	－	－	－	－	－	－	－	－	－	－
		水酸基含有ﾎﾟﾘｴｽﾃﾙ樹脂（A1-2）	(A1-2-1) 溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	ﾒﾗﾐﾝ樹脂「ｻｲﾒﾙ325」		37.5									
	ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）の合計固形分配合量			100.0									
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液			種類	P-1	P-2	P-3	P-4	P-5	P-6	P-7	P-8	P-9	P-10
			配合量	75.7	71.3	72.2	71.6	70.0	62.4	85.6	108.9	125.7	71.6
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	16.0	12.0	25.0	35.0	45.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		25	22	18	21	20	22	22	22	22	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径（d50）［μm］		13	13	13	13	13	13	13	13	13	22
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			4.3	4.3	4.3	4.3	4.0	3.0	6.3	8.8	11.3	4.3
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		(D1)	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			(D2)	－	－	－	－	－	－	－	－	－	－
			(D3)	－	－	－	－	－	－	－	－	－	－
			(D4)	－	－	－	－	－	－	－	－	－	－
塗料固形分［%］				25	25	25	25	25	25	25	15	15	25
第1ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7	X30	X30	X10
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	10.0	10.0	7.5
第2ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7	X8	X9	X10
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	5.0	5.0	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	9.3	8.4	8.0	8.3	8.1	8.2	8.5	8.8	9.0	9.0
	メタリックムラ			B	B	A	A	A	B	B	B	B	A
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	鮮映性			C	C	B	B	B	B	C	C	C	B

【０３１４】

【表５】

表５　　配合量の単位は質量部

				実施例									
				11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
ベースコート塗料組成物				X11	X12	X13	X14	X15	X16	X17	X18	X19	X20
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有ｱｸﾘﾙ樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0									
			（A1-1-2）溶液	17.7	17.7	17.7	17.7	19.2	19.0	18.6	16.8	15.9	17.7
			（A1-1-4）溶液	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		水酸基含有ﾎﾟﾘｴｽﾃﾙ樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	ﾒﾗﾐﾝ樹脂「ｻｲﾒﾙ325」		37.5									
	ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）の合計固形分配合量			100.0									
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液			種類	P-11	P-12	P-13	P-14	P-15	P-16	P-17	P-18	P-19	P-4
			配合量	71.6	71.6	71.6	71.6	66.8	67.4	68.6	74.6	77.6	71.6
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		21	21	21	21	21	21	21	21	21	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	0.8	1.2	2.0	6.0	8.0	4.0
		平均粒子径（d50）［μm］		9	18	19	21	13	13	13	13	13	13
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			4.3	4.3	4.3	4.3	21.3	14.2	8.5	2.8	2.1	4.3
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	—
			（D2）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
			（D3）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
			（D4）	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
塗料固形分［%］				25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
第1ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X11	X12	X13	X14	X15	X16	X17	X18	X19	X20
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X11	X12	X13	X14	X15	X16	X17	X18	X19	X20
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	7.0	8.4	8.5	8.0	6.8	7.0	8.3	8.0	7.9	8.5
	メタリックムラ			A	A	A	B	B	B	B	A	A	B
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	A	B	B	A
	鮮映性			B	B	B	C	B	B	B	C	C	B

【０３１５】

【表６】

表６

配合量の単位は質量部

				比較例								
				1	2	3	4	5	6	7	8	9
ベースコート塗料組成物				X21	X22	X23	X24	X25	X26	X27	X28	X29
バインダー成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有アクリル樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0								
			（A1-1-2）溶液	17.7	17.7	21.8	7.2	19.5	17.7	17.7	19.4	14.1
			（A1-1-4）溶液	－	－	－	－	－	－	－	－	－
		水酸基含有ポリエステル樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7	35.7	31.4	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5								
	バインダー成分（A）の合計固形分配合量			100.0								
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液			種類	P-20	P-21	P-22	P-23	P-24	P-25	P-26	P-27	P-28
			配合量	74.9	75.7	55.3	142.5	65.6	71.6	71.6	66.0	83.6
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状アルミニウム顔料（B）	固形分配合量		0.0	0.0	8.0	55.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		－	－	22	22	21	21	21	21	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	0.0	0.0	0.0	0.3	12.0
		平均粒子径（d50）［μm］		13	13	13	13	－	－	－	13	13
	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			0.0	0.0	2.0	13.8	－	－	－	56.7	1.4
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			（D2）	－	－	－	－	－	－	－	－	－
			（D3）	－	－	－	－	－	－	－	－	－
			（D4）	－	－	－	－	－	－	－	－	－
塗料固形分［%］				25	25	25	15	25	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X21	X22	X23	X30	X25	X26	X27	X28	X29
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	10.0	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X21	X22	X23	X24	X25	X26	X27	X28	X29
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	5.0	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	C	B	A	A	A	B	A	A
			G値	9.5	4.7	5.2	8.5	6.5	9.4	6.0	6.7	7.7
	メタリックムラ			D	A	C	C	D	B	C	D	B
	フリップフロップ性			A	B	C	A	A	A	A	A	B
	鮮映性			D	A	A	D	B	D	B	B	D

【０３１６】

【表７】

表７

配合量の単位は質量部

				実施例						
				21	22	23	24	25	26	27
ベースコート塗料組成物				X31	X32	X33	X10	X31	X32	X33
バインダー成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有アクリル樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0						
			（A1-1-2）溶液	17.7	17.7	17.7	17.7	17.7	17.7	17.7
			（A1-1-4）溶液	—	—	—	—	—	—	—
		水酸基含有ポリエステル樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5						
	バインダー成分（A）の合計固形分配合量			100						
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液		種類	P-1	P-3	P-10	P-10	P-1	P-3	P-10
			配合量	75.7	72.2	71.6	71.6	75.7	72.2	71.6
	鱗片状アルミニウム顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		25	18	21	21	25	18	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径（d50）［μm］		13	13	22	22	13	13	22
	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			（D2）	10.0	10.0	10.0	—	10.0	10.0	10.0
			（D3）	—	—	—	—	—	—	—
			（D4）	—	—	—	—	—	—	—
塗料固形分［%］				25	25	25	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X31	X32	X33	X10	X31	X32	X33
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X31	X32	X33	X10	X31	X32	X33
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y2	Y2	Y2	Y2
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A
			G値	9.8	8.5	9.5	9.2	9.9	8.7	9.7
	メタリックムラ			B	B	B	A	B	B	B
	フリップフロップ性			B	B	B	A	B	B	B
	鮮映性			C	C	C	B	C	C	C

【０３１７】

【表８】

表８

配合量の単位は質量部

				実施例								
				28	29	30	31	32	33	34	35	36
ベースコート塗料組成物				X35	X36	X37	X35	X36	X37	X35	X36	X37
バインダー成分(A)	水酸基含有樹脂(A1)	水酸基含有アクリル樹脂(A1-1)	(A1-1-1)水分散液	−	−	−	−	−	−	−	−	−
			(A1-1-2)溶液	−	−	−	−	−	−	−	−	−
			(A1-1-4)溶液	93.3	93.3	93.3	93.3	93.3	93.3	93.3	93.3	93.3
		水酸基含有ポリエステル樹脂(A1-2)	(A1-2-1)溶液	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	硬化剤(A3)	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5								
	バインダー成分(A)の合計固形分配合量			100								
鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)	鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)を含有する顔料分散液		種類	−	−	−	−	−	−	−	−	−
			配合量	−	−	−	−	−	−	−	−	−
	鱗片状アルミニウム顔料(B)	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径(d50)[μm]		25	18	21	25	18	21	25	18	21
	鱗片状顔料(C)	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径(d50)[μm]		13	13	22	13	13	22	13	13	22
	鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)の含有割合((B)/(C))[質量比]			4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3
成分(D)	着色顔料(顔料分散液)		(D1)	−	−	−	−	−	−	−	−	−
			(D2)	−	−	−	−	−	−	−	−	−
			(D3)	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			(D4)	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
塗料固形分[%]				25	25	25	25	25	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X35	X36	X37	X35	X36	X37	X35	X36	X37
	膜厚[μm]			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X35	X36	X37	X35	X36	X37	X35	X36	X37
	膜厚[μm]			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y2	Y2	Y2	Y1	Y1	Y1	Y3	Y3	Y3
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	9.5	8.2	9.2	9.3	8.0	9.1	9.6	8.2	9.2
	メタリックムラ			B	B	B	B	B	B	B	B	B
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	B	B	B
	鮮映性			C	C	C	C	C	C	C	C	C

【０３１８】

【表９】

表９

配合量の単位は質量部

				比較例			
				10	11	12	13
ベースコート塗料組成物				X25	X38	X38	X38
バインダー成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有アクリル樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0	—	—	—
			（A1-1-2）溶液	19.5	—	—	—
			（A1-1-4）溶液	—	93.3	93.3	93.3
		水酸基含有ポリエステル樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	—	—	—
	硬化剤（A3）	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5			
	バインダー成分（A）の合計固形分配合量			100			
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液			種類	P-24	—	—	—
			配合量	65.6	—	—	—
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状アルミニウム顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		21	21	21	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		—	—	—	—
		平均粒子径（d50）［μm］		—	—	—	—
	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			—	—	—	—
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	—	—	—
			（D2）	—	—	—	—
			（D3）	—	0.3	0.3	0.3
			（D4）	—	10.0	10.0	10.0
塗料固形分［%］				25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X25	X38	X38	X38
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	10
第2ベースコート塗料	種類			X25	X38	X38	X38
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	5
クリヤーコート塗料組成物				Y2	Y2	Y1	Y3
評価	粒子感		目視	A	A	A	A
			G値	7.2	7.7	7.8	7.8
	メタリックムラ			D	D	D	D
	フリップフロップ性			A	A	A	B
	鮮映性			B	C	C	C

【０３１９】

【表１０】

表１０

配合量の単位は質量部

				実施例						
				37	38	39	40	41	42	43
ベースコート塗料組成物				X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7
バインダー成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有アクリル樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0						
			（A1-1-2）溶液	17.7	17.7	17.7	17.7	18.2	20.0	14.1
			（A1-1-4）溶液	－	－	－	－	－	－	－
		水酸基含有ポリエステル樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5						
	バインダー成分（A）の合計固形分配合量			100						
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液		種類	P-1	P-2	P-3	P-4	P-5	P-6	P-7
			配合量	75.7	71.3	72.2	71.6	70.0	62.4	85.6
	鱗片状アルミニウム顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	16.0	12.0	25.0
		平均粒子径（d50）［μm］		25	22	18	21	19.5	22	22
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径（d50）［μm］		13	13	13	13	13	13	13
	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			4.3	4.3	4.3	4.3	4.0	3.0	6.3
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			（D2）	－	－	－	－	－	－	－
			（D3）	－	－	－	－	－	－	－
			（D4）	－	－	－	－	－	－	－
塗料固形分［%］				25	25	25	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X1	X2	X3	X4	X5	X6	X7
	膜厚［μm］			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A
			G値	8.9	8.0	7.6	7.9	7.7	7.8	8.1
	メタリックムラ			B	B	A	A	A	B	B
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	A
	鮮映性			C	C	B	B	B	B	C

【０３２０】

【表１１】

表１１

配合量の単位は質量部

				実施例							
				44	45	46	47	48	49	50	51
ベースコート塗料組成物				X8	X9	X10	X11	X12	X13	X14	X15
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分(A)	水酸基含有樹脂(A1)	水酸基含有ｱｸﾘﾙ樹脂(A1-1)	(A1-1-1)水分散液	100.0							
			(A1-1-2)溶液	9.1	5.4	17.7	17.7	17.7	17.7	17.7	19.2
			(A1-1-4)溶液	—	—	—	—	—	—	—	—
		水酸基含有ﾎﾟﾘｴｽﾃﾙ樹脂(A1-2)	(A1-2-1)溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤(A3)	ﾒﾗﾐﾝ樹脂「ｻｲﾒﾙ325」		37.5							
	ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分(A)の合計固形分配合量			100							
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料(B)及び鱗片状顔料(C)	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料(B)及び鱗片状顔料(C)を含有する顔料分散液		種類	P-8	P-9	P-10	P-11	P-12	P-13	P-14	P-15
			配合量	108.9	125.7	71.6	71.6	71.6	71.6	71.6	66.8
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料(B)	固形分配合量		35.0	45.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径(d50)[μm]		22	22	21	21	21	21	21	21
	鱗片状顔料(C)	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	0.8
		平均粒子径(d50)[μm]		13	13	22	9	18	19	21	13
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料(B)及び鱗片状顔料(C)の含有割合((B)/(C)) [質量比]			8.8	11.3	4.3	4.3	4.3	4.3	4.3	21.3
成分(D)	着色顔料(顔料分散液)		(D1)	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			(D2)	—	—	—	—	—	—	—	—
			(D3)	—	—	—	—	—	—	—	—
			(D4)	—	—	—	—	—	—	—	—
塗料固形分[%]				15	15	25	25	25	25	25	25
第1ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X30	X30	X10	X11	X12	X13	X14	X15
	膜厚[μm]			10	10	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X8	X9	X10	X11	X12	X13	X14	X15
	膜厚[μm]			5	5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	8.6	8.8	8.6	6.6	8.0	8.1	7.6	6.3
	メタリックムラ			B	B	A	A	A	A	B	B
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	A	A
	鮮映性			C	C	B	B	B	B	C	B

【０３２１】

【表１２】

表１２　　配合量の単位は質量部

				実施例							
				52	53	54	55	56	57	58	59
ベースコート塗料組成物				X16	X17	X18	X19	X20	X21	X22	X23
バインダー成分(A)	水酸基含有樹脂(A1)	水酸基含有アクリル樹脂(A1-1)	(A1-1-1)水分散液	100.0							
			(A1-1-2)溶液	19.0	18.6	16.8	15.9	17.7	17.7	17.7	17.7
			(A1-1-4)溶液	—	—	—	—	—	—	—	—
		水酸基含有ポリエステル樹脂(A1-2)	(A1-2-1)溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤(A3)	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5							
	バインダー成分(A)の合計固形分配合量			100							
鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)	鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)を含有する顔料分散液		種類	P-16	P-17	P-18	P-19	P-4	P-1	P-3	P-10
			配合量	67.4	68.6	74.6	77.6	71.6	75.7	72.2	71.6
	鱗片状アルミニウム顔料(B)	固形分配合量		17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径(d50)[μm]		21	21	21	21	21	25	18	21
	鱗片状顔料(C)	固形分配合量		1.2	2.0	6.0	8.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径(d50)[μm]		13	13	13	13	13	13	13	22
	鱗片状アルミニウム顔料(B)及び鱗片状顔料(C)の含有割合((B)/(C))[質量比]			14.2	8.5	2.8	2.1	4.3	4.3	4.3	4.3
成分(D)	着色顔料(顔料分散液)		(D1)	0.3	0.3	0.3	0.3	—	0.3	0.3	0.3
			(D2)	—	—	—	—	—	10.0	10.0	10.0
			(D3)	—	—	—	—	—	—	—	—
			(D4)	—	—	—	—	—	—	—	—
塗料固形分[%]				25	25	25	25	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X16	X17	X18	X19	X20	X21	X22	X23
	膜厚[μm]			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X16	X17	X18	X19	X20	X21	X22	X23
	膜厚[μm]			7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1	Y1
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	6.5	7.8	7.7	7.6	8.2	9.3	8.2	9.4
	メタリックムラ			B	B	A	A	B	B	B	B
	フリップフロップ性			A	A	A	A	A	A	B	B
	鮮映性			B	B	C	C	B	C	C	C

【０３２２】

【表１３】

表１３　　配合量の単位は質量部

				実施例								
				60	61	62	63	64	65	66	67	68
ベースコート塗料組成物				X1	X3	X34	X8	X9	X10	X31	X32	X33
バインダー成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有アクリル樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0								
			（A1-1-2）溶液	17.7	17.7	16.3	9.1	5.4	17.7	17.7	17.7	17.7
			（A1-1-4）溶液	—	—	—	—	—	—	—	—	—
		水酸基含有ポリエステル樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	メラミン樹脂「サイメル325」		37.5								
	バインダー成分（A）の合計固形分配合量			100								
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液			種類	P-1	P-3	P-29	P-8	P-9	P-10	P-1	P-3	P-10
			配合量	75.7	72.2	81.6	108.9	125.7	71.6	75.7	72.2	71.6
鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状アルミニウム顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0	20.0	35.0	45.0	17.0	17.0	17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		25	18	22	22	22	21	25	18	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0	4.0
		平均粒子径（d50）［μm］		13	13	13	13	13	22	13	13	22
	鱗片状アルミニウム顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			4.3	4.3	5.0	8.8	11.3	4.3	4.3	4.3	4.3
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
			（D2）	—	—	—	—	—	—	10.0	10.0	10.0
			（D3）	—	—	—	—	—	—	—	—	—
			（D4）	—	—	—	—	—	—	—	—	—
塗料固形分［%］				25	25	15	15	15	25	25	25	25
第1ベースコート塗料	種類			X1	X3	X30	X30	X30	X10	X31	X32	X33
	膜厚［μm］			7.5	7.5	10	10	10	7.5	7.5	7.5	7.5
第2ベースコート塗料	種類			X1	X3	X34	X8	X9	X10	X31	X32	X33
	膜厚［μm］			7.5	7.5	5	5	5	7.5	7.5	7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y2	Y2	Y2	Y2	Y2	Y2	Y2	Y2	Y2
評価	粒子感		目視	A	A	A	A	A	A	A	A	A
			G値	9.9	8.6	9.0	9.2	9.4	9.6	9.9	8.6	9.6
	メタリックムラ			B	B	B	B	B	A	B	B	B
	フリップフロップ性			A	B	B	A	A	A	B	B	B
	鮮映性			C	C	C	C	C	B	C	C	C

【０３２３】

【表１４】

表１４　　配合量の単位は質量部

				比較例	
				14	15
ベースコート塗料組成物				X25	X25
ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）	水酸基含有樹脂（A1）	水酸基含有ｱｸﾘﾙ樹脂（A1-1）	（A1-1-1）水分散液	100.0	
			（A1-1-2）溶液	19.5	19.5
			（A1-1-4）溶液	—	—
		水酸基含有ﾎﾟﾘｴｽﾃﾙ樹脂（A1-2）	（A1-2-1）溶液	35.7	35.7
	硬化剤（A3）	ﾒﾗﾐﾝ樹脂「ｻｲﾒﾙ325」		37.5	
	ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ成分（A）の合計固形分配合量			100	
鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）を含有する顔料分散液		種類	P-24	P-24
			配合量	65.6	65.6
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）	固形分配合量		17.0	17.0
		平均粒子径（d50）［μm］		21	21
	鱗片状顔料（C）	固形分配合量		—	—
		平均粒子径（d50）［μm］		—	—
	鱗片状ｱﾙﾐﾆｳﾑ顔料（B）及び鱗片状顔料（C）の含有割合（（B）/（C））［質量比］			—	—
成分（D）	着色顔料（顔料分散液）		（D1）	0.3	0.3
			（D2）	—	—
			（D3）	—	—
			（D4）	—	—
塗料固形分［%］				25	25
第1ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X25	X25
	膜厚［μm］			7.5	7.5
第2ﾍﾞｰｽｺｰﾄ塗料	種類			X25	X25
	膜厚［μm］			7.5	7.5
クリヤーコート塗料組成物				Y1	Y2
評価	粒子感		目視	A	A
			G値	6.3	7.0
	メタリックムラ			D	D
	フリップフロップ性			A	A
	鮮映性			B	B

【０３２４】

以上の結果から、本発明の塗料組成物は、高い粒子感を持ち、メタリックムラの発生が抑制される塗膜を形成できることがわかった。

【要約】

【課題】高い粒子感を持ち、かつメタリックムラの発生が抑制された塗膜を形成することができる塗料組成物を提供すること。

【解決手段】バインダー成分（Ａ）、平均粒子径（ｄ５０）が１８～２５μｍの範囲内である鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び平均粒子径（ｄ５０）が８～３０μｍの範囲内で

ある鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）を含有する塗料組成物であって、前記バインダー成分（Ａ）１００質量部を基準として、前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の含有量が一定の範囲内であり、かつ前記鱗片状アルミニウム顔料（Ｂ）及び前記鱗片状アルミニウム顔料以外の鱗片状顔料（Ｃ）の質量比が一定の範囲内である、塗料組成物とする。
【選択図】なし

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			FI	
C09C	*1/64*	*(2006.01)*	C09C	1/64
C09C	*3/06*	*(2006.01)*	C09C	3/06

(56)参考文献 特表２００８－５２１５８５（ＪＰ，Ａ）
特開２００５－２３９８０１（ＪＰ，Ａ）
特開２００８－２３７９３９（ＪＰ，Ａ）
特開２０１２－０１７３６４（ＪＰ，Ａ）
国際公開第２０１６／０４２８２４（WO，Ａ１）
特開２００２－１２１４９２（ＪＰ，Ａ）
特開平１１－１１６８６１（ＪＰ，Ａ）
特開２００２－１５５２４２（ＪＰ，Ａ）
特開２００１－１６４１９１（ＪＰ，Ａ）
特開２０１１－２３１１９４（ＪＰ，Ａ）
特開２０１１－１６２７３２（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０９Ｄ １／００－２０１／１０
Ｂ０５Ｄ １／００－ ７／２６
Ｂ３２Ｂ １／００－ ４３／００
Ｃ０９Ｃ １／００－ ３／１２
Ｃ０９Ｄ１５／００－ １７／００