(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第3786727号

(P3786727)

(45)発行日　平成18年6月14日(2006.6.14)　(24)登録日　平成18年3月31日(2006.3.31)

(51)Int.Cl.		F I		
C09B 67/20	(2006.01)	C09B	67/20	F
C08L 33/14	(2006.01)	C08L	33/14	
C08K 5/3415	(2006.01)	C08K	5/3415	
C08K 9/04	(2006.01)	C08K	9/04	

請求項の数 4　(全 11 頁)

(21)出願番号　特願平6-298183
(22)出願日　平成6年12月1日(1994.12.1)
(65)公開番号　特開平7-196884
(43)公開日　平成7年8月1日(1995.8.1)
審査請求日　平成13年11月27日(2001.11.27)
(31)優先権主張番号　03575/93-6
(32)優先日　平成5年12月1日(1993.12.1)
(33)優先権主張国　スイス(CH)

(73)特許権者　396023948
チバ　スペシャルティ　ケミカルズ　ホールディング　インコーポレーテッド
Ｃｉｂａ　Ｓｐｅｃｉａｌｔｙ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ　Ｈｏｌｄｉｎｇ　Ｉｎｃ．
スイス国，４０５７　バーゼル，クリベツクシュトラーセ　１４１
(74)代理人　100064447
弁理士　岡部　正夫
(74)代理人　100085176
弁理士　加藤　伸晃
(74)代理人　100106703
弁理士　産形　和央
(74)代理人　100096943
弁理士　臼井　伸一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】変性ジケトピロロピロールとアミノアルキルアクリレート樹脂との顔料組成物

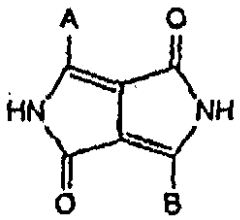
(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

下記成分（Ａ）と（Ｂ）とを含有する顔料組成物

（Ａ）下記式の１、４－ジケトピロロ［３，４－ｃ］ピロール顔料

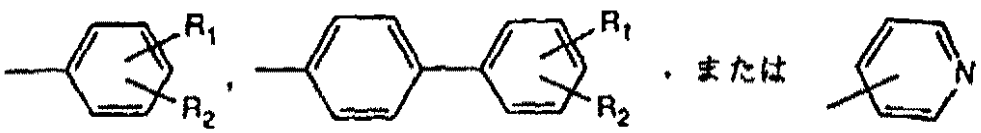
【化１】



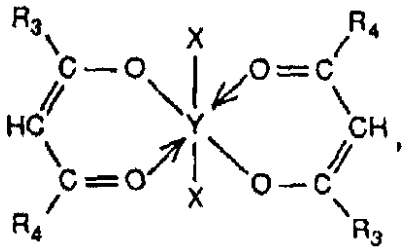
(I)

［式中、ＡとＢとは互いに独立的に、式

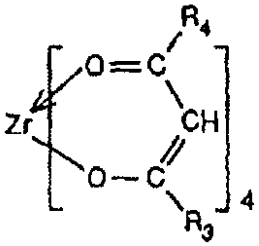
【化２】



（式中、R_1とR_2とは互いに独立的に水素、ハロゲン、C_1－C_{18}アルキルまたはＣＮである）の基である］，
上記顔料の粒子表面には、
式
【化３】



(II)

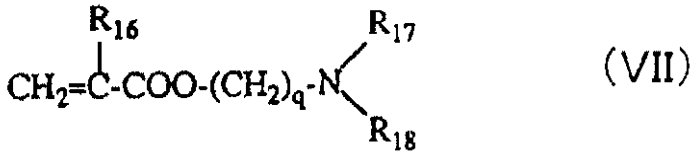


(III)

（式中、
R_3はメチルまたはエチルであり、
R_4はメチル、エチル、メトキシまたはエトキシであり、
ＸはハロゲンまたはC_1－C_4アルコキシであり、
ＹはＴｉまたはＳｎである）のキレート化合物、および式

$$Q(OR_5)_4 \qquad (IV)$$

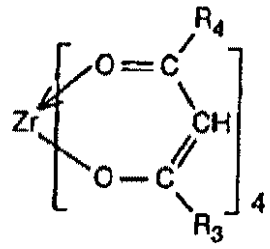
（式中、
ＱはＳｎ，Ｓｉ，Ｐｂ，Ｇｅ，ＴｉおよびＺｒからなる群より選択された金属であり、R_5はC_1－C_4アルキルである）のエステルからなる群より選択された部分加水分解された有機化合物の、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして、０．１乃至１０重量％が吸着されている；
および
（Ｂ）式
【化８】



(VII)

（式中、
R_{16}は水素またはメチルであり、
R_{17}とR_{18}は互いに独立的に水素、メチル、またはエチルであり、
ｑは１乃至６の整数である）のモノマーの単独重合によって、または該モノマーと共重合可能なモノマーと該モノマーとの共重合によって得られるアクリル樹脂を式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして０．１乃至２０重量％。
【請求項２】
式（ＩＩ）または（ＩＩＩ）の成分が、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして０．５乃至５重量％の量で使用されている請求項１記載の顔料組成物。
【請求項３】
式Ｉの顔料組成物の粒子表面に、下記式の部分加水分解化合物が吸着されている請求項１記載の顔料組成物

【化９】



(III)

（式中、
R_3 はメチルまたはエチルであり、
R_4 はメチル、エチル、メトキシまたはエトキシである）。

【請求項４】
　請求項１記載の顔料組成物によって着色された高分子有機材料。

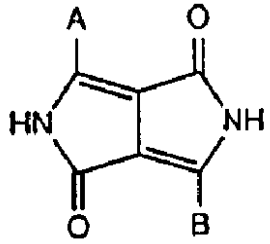
【発明の詳細な説明】

【０００１】
本発明は、その粒子表面に有機金属化合物または変性ジケトピロロピロールが吸着されたジケトピロロピロールと、アミノアルキルアクリレートとを含有する顔料組成物、ならびにその顔料組成物を高分子有機材料の着色に使用する方法に関する。

【０００２】
ジケトピロロピロールをも含めた顔料の特性が、類似のわずかに変性された生成物および／または樹脂を用いて処理することによって向上されることが各種の刊行物に教示されている。特に、米国特許第４７９１２０４号は、ジケトピロロピロールとスルホン化ジケトピロロピロールの金属塩またはアンモニウム塩とを含有する顔料組成物を開示している。この組成物は、卓越したレオロジー特性を有し、そしてこの組成物を使用して得られた着色物は高い光沢度を示す。同様の結果が、米国特許第５２００５２８号においては、ジケトピロロピロール顔料と、少なくとも１種のアミノアルコキシ基を含有するジケトピロロピロールとを含有する顔料組成物を使用して得られている。また、米国特許第４８８０４７２号は、その粒子にヒドロキシル基を有する中間層によって固定された金属酸化物の粘り強いコーティングが施されているジケトピロロピロール顔料を含有する有機顔料を開示しており、この顔料も、非常に優れたレオロジー特性を示す。これらの顔料組成物は、ポリオレフィン類のいわゆるそり（ワープ）を伴わない着色のためにも極めて好適である。欧州特許第４６６６４６号は、たとえばジケトピロロピロールのごとき顔料粒子の表面を、直接または間接に、極性ポリマーたとえばアクリル酸、メタクリル酸および／またはそれらのアルキルエステルをベースとしたアクリル系ポリマーの層を用いてコーティングすることを含む、ポリオレフィン類をそりを伴わずに着色する方法を開示している。この方法においては、そのアクリルポリマー層は、好ましくはシラン層の上に施されており、そのシラン層は、顔料粒子をコーティングしている加水分解されたジルコニウムアセチルアセトナートの層の上に吸着されている。米国特許第４７３４１３７号は、良好なレオロジー特性と優れた光沢とを有するアゾ、チオインジゴおよび特にキナクリドン顔料の製造方法を開示している。その方法は、これら顔料の１つを、アルカリ金属水酸化物と水との存在下において非プロトン極性溶媒に溶解し、次にアミノアルキルアクリレート樹脂の酸性水溶液を添加して顔料製剤を沈殿させることを特徴とする。常用方法によって単離した後、この顔料製剤は所望の特性を示す。陰イオン界面活性剤を含有する同様な顔料製剤が、特開昭５８－２１５４６１号明細書に開示されている。

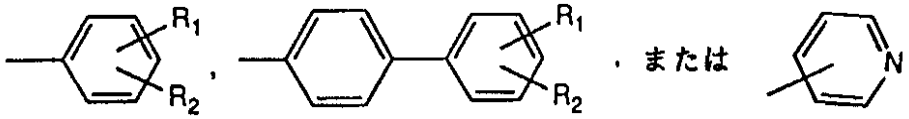
【０００３】
今回、その粒子表面に有機金属化合物または変性ジケトピロロピロールが吸着され、そして付加的にアミノアルキルアクリレート樹脂を用いて処理された特定のジケトピロロピロール顔料が、特に光沢とレオロジー特性との点において、予期されなかたような優れた特性を有することが見いだされた。

【０００４】
本発明は、下記成分（Ａ）と（Ｂ）とを含有する顔料組成物に関する。
（Ａ）下記式の１、４－ジケトピロロ［３，４－ｃ］ピロール顔料
【化１１】

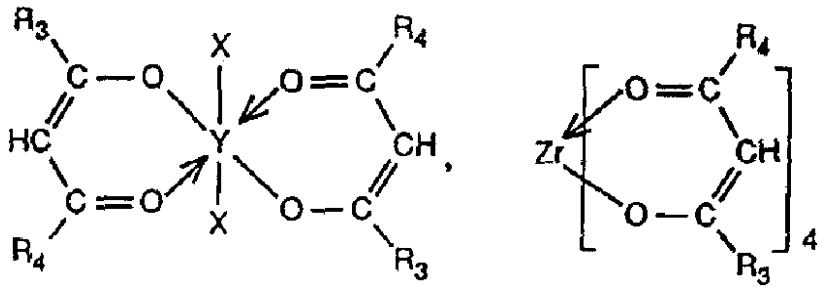


(I)

［式中、ＡとＢとは互いに独立的に式
【化１２】



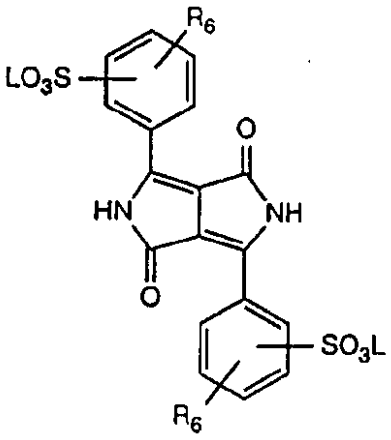
（式中、R_1 とR_2 とは互いに独立的に水素、ハロゲン、C_1-C_{18} アルキルまたはＣＮである）の基である］，
上記顔料の粒子表面には、次の物質が吸着されている：
（ｉ）式
【化１３】



(II)

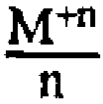
(III)

（式中、
R_3 はメチルまたはエチルであり、
R_4 はメチル、エチル、メトキシまたはエトキシであり、
ＸはハロゲンまたはC_1-C_4 アルコキシであり、
ＹはＴｉまたはＳｎである）のキレート化合物、および式
$Q(OR_5)_4$ （ＩＶ）
（式中、
ＱはＳｎ，Ｓｉ，Ｐｂ，Ｇｅ，ＴｉおよびＺｒからなる群より選択された金属であり、
R_5 はC_1-C_4 アルキルである）のエステルからなる群より選択された部分加水分解された有機化合物を、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして、０．１乃至１０重量％、または
（ｉｉ）式
【化１４】

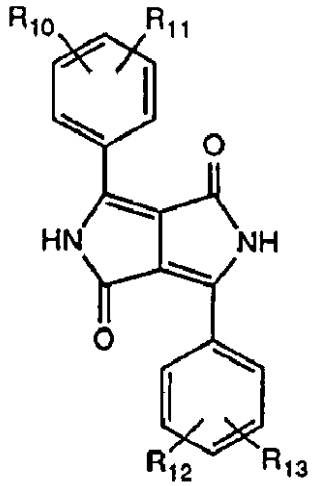


(V)

［式中、
R_6は水素、ハロゲン、C_1-C_4 アルキルまたはフェニルであり、
Ｌは水素、式
【化１５】



（式中、
ＭはＮａ、Ｋ、Ｍｇ、Ｃａ、Ｓｒ、Ｂａ およびＡｌ からなる群より選択された金属であり、
ｎは１、２または３である）の基、または
Ｌは基N^+ Ｈ（R_7）(R_8)(R_9)（ここにおいて、R_7、R_8 およびR_9は互いに独立的に水素、C_1-C_4 アルキル、C_5-C_6 シクロアルキル、置換されていないかまたはC_1-C_4 アルキル置換フェニルまたはベンジルである）である］のジケトピロロピロールを、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして、０．１乃至１０重量％、または
（iii）式
【化１６】



(VI)

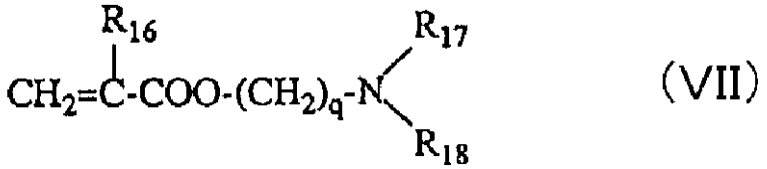
［式中、R_{10}、R_{11}、R_{12} およびR_{13} は互いに独立的に水素、Ｃｌ，Ｂｒ，CH_3，OCH_3，ＣＮまたはフェニルであり、そしてR_{10}、R_{11}、R_{12} およびR_{13} のうちの少なくとも１つは下記の基
【化１７】

$$-O(CH_2)_m-Z \quad \cdot \quad -O(CH_2CH_2O)_pCH_2CH_2Z$$

{式中、
mは２乃至６の整数であり、
ｐは１または２であり、そして
Ｚはイミダゾリル、ピラゾリル、モルホリニル、ピペリジニル、ピロリジニルおよびトリアゾリルからなる群より選択された複素環式基、または $-NR_{14}R_{15}$ の基である（ここにおいてR_{14} とR_{15} とは互いに独立的に水素、メチルまたはエチルである）} である］のジケトピロロピロールを、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして、０．１乃至１０重量％、および

（Ｂ）式

【化１８】



(VII)

（式中、
R_{16} は水素またはメチルであり、
R_{17} とR_{18} とは互いに独立的に水素、メチルまたはエチルであり、
ｑは１乃至６の整数である）のモノマーの単独重合によって、または該モノマーと共重合可能なモノマーと該モノマーとの共重合によって得られるアクリル樹脂を式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして０．１乃至２０重量％。

【０００５】

C_1-C_4 アルキルとして定義されている置換基の例は、メチル、エチル、ｎ－プロピル、イソプロピル、ｎ－ブチル、ｓｅｃ－ブチルまたはｔｅｒｔ－ブチルである。C_1-C_{18}アルキルの例には、さらにはｎ－アミル、ｔｅｒｔ－アミル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、２－エチルヘキシル、ノニル、デシル、ドデシル、テトラデシル、ヘキサデシル、オクタデシルがあげられる。

C_1-C_4 アルコキシの例は、メトキシ、エトキシ、ｎ－プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、ｔｅｒｔ－ブトキシである。

ハロゲンは、ヨウ素、フッ素、好ましくは臭素、そして最も好ましくは塩素である。

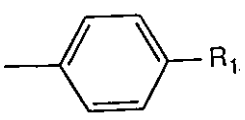
C_5-C_6 シクロアルキルの例は、シクロペンチル、そして好ましくはシクロヘキシルである。

好ましくは、成分ｉ），ｉｉ）およびiii)は、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして０．５乃至５重量％の量で使用される。

【０００６】

式Ｉのジケトピロロピロール顔料において、ＡとＢとは好ましくは同種であり、そして、好ましくは下記式の基である。

【化２１】

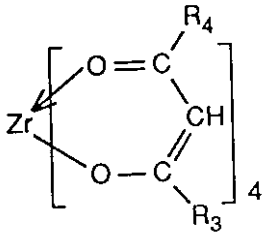


（式中、R_1はメチルまたはｔｅｒｔ－ブチルである）。

式Ｉの顔料の粒子表面に成分ｉ）が、好ましくは、特に下記式の部分加水分解化合物が吸

着されている顔料組成物が重要である。

【化２２】



(III)

（式中、

R_3はメチルまたはエチルであり、

R_4はメチル、エチル、メトキシまたはエトキシである）。

上記式(III) 中のR_3とR_4とは好ましくはメチルである。

【０００７】

さらに興味ある顔料組成物は、式Ｉの顔料の粒子表面に成分（ii）が吸着されており、そして式Ｖのジケトピロロピロール中において、

Ｌが下記式の基

【化２３】

$$\frac{M^{+n}}{n}$$

（式中、ＭはＮａ、Ｋ、Ｍｇ、Ｃａ、ＳｒまたはＢａであり、ｎは１または２である）、かつ

R_6が水素である顔料組成物、

ならびに式Ｉの顔料の粒子表面に成分（iii)が吸着されており、そして式ＶＩのジケトピロロピロール中において、

R_{10}、R_{11}、R_{12}およびR_{13}のうちの少なくとも１つが下記のいずれかの基

【化２４】

$$-O(CH_2)_mNR_{14}R_{15} \quad , \quad -O(CH_2)_mZ,$$

（式中、

ｍは２乃至４の整数であり、

R_{14}とR_{15}とは同じであって、水素、メチルまたはエチルであり、

Ｚはモルホリノ、ピペリジニルまたはピロリジニルである）である顔料組成物である。

本発明の特に好ましい顔料組成物は、式ＶII（式中、R_{16}、R_{17}およびR_{18}はメチルであり、そしてｑは１または２である）のモノマーの単独重合によって得られたアクリル樹脂Ｂを、式Ｉのジケトピロロピロールを基準にして、４乃至１０重量％の量で含有している顔料組成物である。

【０００８】

本発明の顔料組成物は、簡単な方法で製造することができる。典型的には、水性懸濁物中において予備処理された顔料Ａｉ）、Ａii）またはＡiii)を撹拌しながらアクリル樹脂を用いて処理することによって製造される。予備処理された乾燥顔料粉末から、濾過ケーキから、あるいは処理から得られた懸濁物から出発することができる。アクリル樹脂は、前もって水に溶解しておくこともできるし、また顔料懸濁物へ固体の形状で添加することもできる。

必要な場合には、懸濁物を常用方法によって、たとえば高圧ホモゲナイザーまたは高速イ

ンペラーを使用して分散させることができる。通常は、このような分散作業は必要ではない。なぜならば、アクリル系樹脂は非常に良好な湿潤性を有しているからである。懸濁物中の顔料［予備処理された顔料Ａｉ）、Ａii) またはＡiii)］の濃度は広い範囲にわたって選択でき、４０重量％まで可能である。顔料濃度が５乃至２０重量％である懸濁物を使用するのが好都合である。アクリル樹脂（Ｂ）を用いる顔料の後処理は、室温において実施することができる。しかし、場合によっては、約８０℃までの高められた温度において実施することもできる。撹拌時間は１乃至２０時間でありうる。処理された顔料の濾過を容易にするために、濾過助剤、たとえば８乃至２２個の炭素原子を有する脂肪族１、２－ジヒドロキシ化合物を０．５乃至１５重量％、好ましくは１乃至５重量％使用することも可能である。ただし、それが本発明による顔料組成物の使用に悪影響を及ぼさないことを条件とする。同様に、生成物の分散性を向上させるために、類似の成分（たとえば常用の分散剤）を通常量で添加することもできる。

【０００９】

顔料製剤Ａｉ）、Ａii) またはＡiii)は公知であり、そして標準的方法で、都合よくは式Ｉの顔料の水性またはアルコール性懸濁物中へ粉末、溶液または懸濁物の形態で成分（ｉ）、（ii) または（iii)を添加することによって製造することができる。成分Ａ（ｉ）は米国特許第４８８０４７２号明細書、成分Ａ（ii) は米国特許第４７９１２０４号明細書に、そして成分Ａ（iii)は米国特許第５２００５２８号明細書に記載されている。

アクリル樹脂（Ｂ）も同じく公知であり、そして通常の方法、たとえば米国特許第４７３４１３７号明細書に記載されている方法によって製造することができる。

【００１０】

本発明の顔料組成物は、高分子有機材料を着色するための顔料として使用することができる。

本新規顔料組成物によって着色されうる高分子有機材料の例には次のものがある。セルロースエーテルおよびエステル類、たとえばエチルセルロース、ニトロセルロース、セルロースアセテート、セルロースブチラート、天然樹脂または合成樹脂類、たとえばアミノプラストのごとき重合樹脂または縮合樹脂、好ましくは尿素／ホルムアルデヒドおよびメラミン／ホルムアルデヒド樹脂、アルキド樹脂、フェノールプラスチック、ポリカーボネート類、ポリオレフィン類、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、ポリテトラフルオロエチレン、ポリアミド類、ポリウレタン類、ポリエステル類、ポリエーテルケトン類、ポリフェニレンオキシド類、ゴム、カゼイン、シリコーンおよびシリコーン樹脂。これらは単独または混合して使用しうる。

上記高分子有機化合物は、単体または混合物の可塑性物質、溶融物、紡糸原液、塗料、コーティング材料または印刷インクの形態でありうる。最終用途によっては本発明の顔料組成物をトナーとしてまたは調合物の形で使用するのが好都合である。本発明の顔料組成物は、被着色高分子有機材料を基準にして、０．０１乃至３０重量％の量、好ましくは０．１乃至１０重量％の量で使用することができる。

【００１１】

塗料、コーティング材料および印刷インクを着色するためには、高分子有機材料と本発明の顔料組成物とを、場合によってはフィラー、他の顔料、乾燥剤または可塑剤などと共に、共通の有機溶剤または溶剤混合物中に微分散するかまたは溶解する。この場合、個々の成分を別々に、あるいはいくつかの成分を一緒にして、溶剤中に分散または溶解し、そしてそのあと全部の成分を混合するようにしてもよい。

プラスチック、繊維、塗料系または印刷インクに本発明の顔料組成物を使用して得られる着色物は、良好な全般的堅牢性、たとえば優れた色濃度、優秀な分散性、良好な上塗り堅牢性、マイグレーション堅牢性、耐熱、耐光および耐候堅牢性を有し、そして粘度が低い。

さらに、未変性のベース顔料と比較して、また従来技術によって処理された顔料と比較して、本新規顔料組成物は向上された使用性能を有している。たとえば、向上されたレオロジー特性と貯蔵寿命、低減された分離傾向、たとえば白色顔料と同時に使用した時の色浮

き、低減された凝集傾向、および予期されなかったような高い光沢を示す。本組成物はこのように良好なレオロジカル特性を有しているので、高濃度（high loading）のコーティング材料および塗料系を製造することも可能である。したがって、本発明による顔料組成物は塗料、特にメタリック仕上げ用塗料の着色に特に好適である。
以下、本発明を実施例によってさらに説明する。

【００１２】

実施例１

（ａ）水３０ｇ中のジメチルアミノエチルメタクリレートの１０ｇの溶液に、$K_2S_2O_8$（モノマーを基準にして開始剤１重量％）を添加する。この溶液を繰り返し脱ガスし、窒素で洗滌し、そして窒素雰囲気下において３０℃で５時間撹拌する。この後、溶液を４０mlの水で希釈する。最初、高粘度の物質が形成されるが、これは再び液状化する。

（ｂ）１、４－ジケト－３、６－ビス（４－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－ピロロ［３，４－ｃ］ピロールの４６．５％水性濾過ケーキの２１．６ｇを、Ｚｒ(IV)アセチルアセトネートの１．２ｇと共に、７８ｇの水の中において２時間分散する。この懸濁物を７５℃に加熱し、そして０．２規定ＮａＯＨ水溶液を用いてpHを８．５に調整する。さらに、この懸濁物を３時間撹拌する。pHは６．５に下がる。このあとポリマー溶液（ａ）３．８ｇを添加し、さらに３時間撹拌を続ける。この懸濁物を濾過し、その残留物を水で洗い、８０℃において乾燥し、粉末化する。

【００１３】

実施例２

１、４－ジケト－３、６－ビス（４－tert－ブチルフェニル）－ピロロ［３，４－ｃ］ピロールの代わりに等量の１、４－ジケト－３、６－ビス（４－ジフェニル）－ピロロ［３，４－ｃ］ピロールを使用して実施例１を繰り返した。

【００１４】

実施例３

１、４－ジケト－３、６－ビス（４－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル）－ピロロ［３，４－ｃ］ピロールの４６．５％水性濾過ケーキの２１．６ｇを、７８ｇの水の中に分散する。次に、この懸濁物に１、４－ジケト－３、６－ジフェニルピロロ［３，４－ｃ］ピロール－４’，４”－ジスルホン酸のナトリウム塩（米国特許第４７９１２０４号明細書の実施例５に記載された方法によって製造）０．１２ｇを添加し、これを７０℃に加熱する。このあと、$CaCl_2 \cdot 2H_2O$ の０．１３ｇをゆっくりと添加する。さらに、この懸濁物を３０分間撹拌し、濾過し、残留物を水洗する。この濾過ケーキを１００ｇの水に入れ、そして実施例１ａ）により製造されたポリマー溶液３．８ｇと共に分散する。この懸濁物を３時間撹拌し、濾過し、その残留物を水洗し、８０℃で乾燥して、粉末化する。

【００１５】

実施例４

１、４－ジケト－３、６－ビス（４－メチルフェニル)-ピロロ［３，４－ｃ］ピロールの３２％水性濾過ケーキ３１．４ｇを、Ｔｉ(IV)-ジ－（アセチルアセトネート）－ジ（イソプロピレート）１．２ｇと共に６９ｇの水の中において２時間分散する。この懸濁物を７５℃に加熱し、そして０．２規定ＮａＯＨ水溶液を用いてpHを８．５に調整する。さらに、この懸濁物を３時間撹拌する。pHは６．７に下がる。このあと実施例１ａ）によるポリマー溶液３．８ｇを添加し、さらに２時間撹拌を続ける。この懸濁物を濾過し、その残留物を水洗し、８０℃において乾燥して粉末化する。

【００１６】

実施例５

開始剤$K_2S_2O_8$の量を１％から４％に変更しただけで実施例１を繰り返した。

【００１７】

実施例６

実施例１ｂ）により得られた生成物２ｇと下記組成の焼付けラッカー塗料４８ｇとを常用方法によって混合した。

アルキド樹脂ALKYDAL （商標） F310(Bayer 社製品、キシレン中６０％)
５６ｇ
メラミン樹脂 CYMEL（商標） 327(Cyanamid 社製品、ブタノール中９０％)
１３ｇ
キシレン ２５ｇ
ブタノール ２５ｇ
１－メトキシ－２－プロパノール ２．５ｇ
シリコーン油（キシレン中１％） １ｇ

得られた着色レーキをガラス板に塗布してフィルムを形成した。このフィルムをガラス板を２５°傾斜して約３０分間放置することにより自然乾燥した後、空気循環炉中において焼付けた（１２０℃で３０分間）。
その塗膜の光沢値を、ドイツ工業規格ＤＩＮ67 530の規定にしたがって２０°の傾斜角度で光沢計〔Zehntner ZGM 1020 （商標）〕 を使用して測定した。
得られた上塗り塗膜の光沢値は、コーティング処理してない顔料を使用して得られた上塗り塗膜の光沢値をはるかに予想以上に上回っていた。
実施例１ｂ）の生成物の代わりに上記実施例２乃至５による各生成物を使用した場合にも同様な結果を得た。

【００１８】

実施例７

流れ特性を評価するために、実施例１乃至５の生成物ならびに対応する未処理顔料を、それぞれ常法によりアルキド塗料系〔SETAL （商標） 84、オランダ国のKunstharz-fabrick Synthesis BV社製品; 固形分７０重量%〕に配合した。
顔料１２重量%を含有し、全固形分が４２重量%であり、そして顔料／バインダー比が０．３である得られたミルベースの流れ特性を、HAAKE ROTOVISCO （商標） RV12 粘度計を使用して測定した（測定温度：２５℃；測定システム：ＳＶ－ＳＰ；剪断範囲：Ｄ＝０－１００［1/s]）。
未処理の顔料を用いて得られたミルベースと比較して、実施例１乃至５の生成物を使用して得られたミルベースは顕著に向上された流れ特性（粘度値）を示した。

フロントページの続き

(74)代理人 100091889
弁理士 藤野 育男
(74)代理人 100101498
弁理士 越智 隆夫
(74)代理人 100096688
弁理士 本宮 照久
(74)代理人 100102808
弁理士 高梨 憲通
(74)代理人 100104352
弁理士 朝日 伸光
(74)代理人 100107401
弁理士 高橋 誠一郎
(74)代理人 100106183
弁理士 吉澤 弘司
(72)発明者 フィリッペ ブグノン
スイス国, エッセルト １７２４, ラ シェナリエテ（番地なし）

審査官 松浦 新司

(56)参考文献 特開昭６３－０７７９７７（ＪＰ, Ａ）
特開平５８－２１５４６１（ＪＰ, Ａ）
特開平０５－１９４８７３（ＪＰ, Ａ）
特開昭６４－０１６８７１（ＪＰ, Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl., ＤＢ名)
C08L 1/00～101/14
C09D 7/12
C09D 11/10