(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3831149号
(P3831149)
(45)発行日　平成18年10月11日(2006.10.11)　(24)登録日　平成18年7月21日(2006.7.21)

(51)Int.Cl.		F I		
C08G 18/00	(2006.01)	C08G	18/00	H
B29C 45/00	(2006.01)	B29C	45/00	
C08J 9/12	(2006.01)	C08J	9/12	CFF
B29K 75/00	(2006.01)	B29K	75:00	
B29K 105/04	(2006.01)	B29K	105:04	

請求項の数 1　(全 12 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願平11-148205
(22)出願日　平成11年5月27日(1999.5.27)
(65)公開番号　特開2000-336138(P2000-336138A)
(43)公開日　平成12年12月5日(2000.12.5)
審査請求日　平成17年11月10日(2005.11.10)

(73)特許権者　000183299
住化バイエルウレタン株式会社
兵庫県尼崎市久々知３丁目１３番２６号
(74)代理人　100062144
弁理士　青山　葆
(74)代理人　100083356
弁理士　柴田　康夫
(72)発明者　西川　新治
兵庫県尼崎市久々知３丁目１３番２６号
住友バイエルウレタン株式会社内
(72)発明者　横田　浩
兵庫県尼崎市久々知３丁目１３番２６号
住友バイエルウレタン株式会社内

審査官　松浦　新司

最終頁に続く

(54)【発明の名称】ポリウレタン反応射出成形発泡体の製造法

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
（ｉ）ポリイソシアネートと、（ｉｉ）ポリオール、触媒、必要に応じて、鎖延長剤、補強材及びその他の助剤を含んでなるポリオール混合物から、反応射出成形法によって、インテグラルスキン構造を有する密度が０．２～０．８ｇ／ｃｍ^{3}のポリウレタン発泡体を製造する方法であって、
a) ポリイソシアネートおよびポリオール混合物の少なくとも一方が発泡剤を含んでなり、発泡剤が、ポリイソシアネートおよびポリオール混合物の重量合計に基づいて０．０５～１．０重量％に相当する炭酸ガスを含んでなり、炭酸ガスがポリイソシアネートおよび／またはポリオール混合物に溶解されており、
b)ポリイソシアネートとポリオール混合物の反応性が、フォームの反応立ち上がりが終了する時間が４０秒以下になるように調整されていることを特徴とするポリウレタン発泡体の製造法。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】
本発明は、インテグラルスキン構造を有する密度が０．２～０．８ｇ／ｃｍ^{3}のポリウレタン発泡体を製造する方法に関する。インテグラルスキン構造を有するポリウレタン発泡体は、優れた触感、弾性感を持ち、自動車の内装品、例えば、アームレスト、ハンドル、チェンジノブなどに用いられる。

【０００２】
【従来の技術および発明が解決しようとする課題】
従来発泡剤としては、クロロフルオロカーボン、なかでもトリクロロフルオロメタン（ＣＦＣ－１１）が主として使われてきたが、大気中のオゾン層を破壊することが判り、使用が禁止されている。近年、コストおよび環境の面から、水を使って発泡させる水発泡が主として使われている。
【０００３】
ところが、水発泡で密度が０．２～０．８ｇ／ｃｍ^{3}のポリウレタン発泡体を成形する場合インテグラルスキンを形成することは、非常に困難である（Urethane Technology ｐ３２:Oct./Nov. １９９４）。水とイソシアネートの反応をコントロールするために水を水和塩の形で加える技術（特開平６－１８２０号公報他）、反応原料の粘度を高くした上で触媒や架橋剤を多量に用いて、反応性を高める技術（特開平５－５９１４６号公報他）などが報告されている。ところが、反応性を高めることで流れ性が低下し、密度が高くなりすぎたり、肉厚部にふくれが生じ脱型時間を長くする必要があるなど、未だに満足できる状況に至っていない。
【０００４】
従来インテグラルスキンフォームのスキン形成は、成形品の成形時に型に接する表面層と内部コア部の温度差に起因する発泡反応の差によって、行われると考えられており（プラスチックス：Vol.24, No８, P-１１８）、泡状の液を注入するフロス発泡は、スキン形成には不利と考えられていた。
【０００５】
【課題を解決するための手段】
かかる課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、従来の水とイソシアネートの反応から発生する炭酸ガスではなく（特開平５－３３９３３８号公報他）、ポリイソシアネートあるいはポリオール混合物に前もって炭酸ガスを比較的高圧下で物理的に溶解させておき、その溶解した炭酸ガスを発泡剤として使用することによって、スキン層を持った成形品を一度の成形で得ることが出来る、いわゆるインテグラルスキン成形が可能な事を見いだした。本発明において、いわゆる高圧ポリウレタン発泡機から反応混合液が型内に吐出される際、その炭酸ガスが反応混合液から開放され反応混合液は泡状に吐出される。
【０００６】
本発明の結果、溶解した炭酸ガスを発泡剤として使用することによって、スキン層を持った成形品を一度の成形で得ることが出来るのみならず、インテグラルスキン構造を有するポリウレタン発泡体を６０秒以下の非常に短時間で脱型しても、従来の水発泡に比べ成形品が膨れにくい特徴があり、この種の成形品の生産性を大きく改善できる。
【０００７】
炭酸ガスはイソシアネートおよびポリオール混合物のどちらに対して応用しても効果は同様である。泡状の液を注入する本発明において、１重量％を超える多量の炭酸ガスを原料に溶かす事は不安定な未反応の反応混合液の泡を型に注入する事になり、型の内部で泡の崩壊がおこり、その結果成形不良に通じるボイドトラブルが発生する。またこのトラブルを避ける為およびスキン形成を確実に行う為には、この反応混合液の反応性が、フォームの反応立ち上がりが終了する時間、いわゆるライズタイムで４０秒以下になるように比較的速い反応性を持つように調整されている必要が有る。
【０００８】
本発明は、（ｉ）ポリイソシアネートと、（ｉｉ）ポリオール、触媒、必要に応じて、鎖延長剤、補強材及びその他の助剤を含んでなるポリオール混合物から、反応射出成形法によって、インテグラルスキン構造を有する密度が０．２～０．８ｇ／ｃｍ^{3}のポリウレタン発泡体を製造する方法であって、
a) ポリイソシアネートおよびポリオール混合物の少なくとも一方が発泡剤を含んでなり、発泡剤が、ポリイソシアネートおよびポリオール混合物の重量合計に基づいて０．０５～１．０重量％に相当する炭酸ガスを含んでなり、

b)ポリイソシアネートとポリオール混合物の反応性が、フォームの反応立ち上がりが終了する時間が４０秒以下になるように調整されていることを特徴とするポリウレタン発泡体の製造法を提供する。

【０００９】

本発明に用いられるポリイソシアネートとしては、ジフェニルメタンジイソシアネート、ポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート、トルエンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、イソホロンジイソシアネート、これらのポリイソシアネートをウレタン変性したり、アロファネート変性、カルボジイミド変性、イソシアヌレート変性した変性ポリイソシアネート、これらの混合物などがある。

【００１０】

ポリオールとしては、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ソルビトール、蔗糖などの水酸基含有化合物、トリエタノールアミン、ジエタノールアミンなどのアミノ基や水酸基を含有する化合物、あるいはエチレンジアミン、ジアミノトルエンなどのアミノ基含有化合物にエチレンオキシド、プロピレンオキシドなどのアルキレンオキシドを付加した分子中に２～６個の水酸基を含有し、平均水酸基当量が１００～３０００のポリエーテルポリオール、あるいはこれらのポリエーテルポリオールにビニル化合物を付加重合したポリマーポリオールなどが用いられる。

【００１１】

また、ポリカルボン酸と低分子量の水酸基含有化合物から得られるポリエステルポリオール、カプロラクトンを開環重合して得られるポリカーボネートポリオール、ポリエーテルポリオールの水酸基をアミノ化し、あるいはポリエーテルポリオールのイソシアネートプレポリマーを加水分解して得られるポリエーテルポリアミンであって、平均活性水素当量が１００～３０００のものも併用できる。

【００１２】

ポリオールの水酸基価は５６１～２２ｍｇＫＯＨ／ｇ、例えば１１２～２８ｍｇＫＯＨ／ｇであってよい。

【００１３】

触媒としては、トリエチレンジアミン、ペンタメチルジエチレントリアミン、１，８ジアザビシクロ－５，４，０－ウンデセン－７、ジメチルアミノエタノール、テトラメチルエチレンジアミン、ジメチルベンジルアミン、テトラメチルヘキサメチレンジアミン、ビス(２－ジメチルアミノエチル)エーテルなどの第３級アミンやジブチル錫ジラウレート、オクタン酸錫、ジブチル錫ジアセテートなどの有機金属化合物などが用いられる。

【００１４】

この触媒量および触媒の種類を変更する事で、ポリイソシアネートとポリオール混合物の反応性が、フォームの反応立ち上がりが終了する時間、いわゆるライズタイムで４０秒以下、例えば１０～４０秒になるように調整されていることが必要である。

【００１５】

発泡剤は、ポリイソシアネートおよび／またはポリオール混合物に炭酸ガス（例えば、液化炭酸ガス）を溶解させ、その溶解量は、ポリイソシアネートおよびポリオール混合物の重量合計に基づいて０．０５～１．０重量％である。０．０５％より少ないと、発泡が不十分となり、１％より多いと、過剰の炭酸ガスでボイドが多くなり、発泡体表面にも影響を及ぼすことになる。また、アミン化合物の炭酸塩あるいは、蟻酸などの有機酸を補助発泡剤として併用してもよい。ポリイソシアネートおよび／またはポリオール混合物に炭酸ガスを溶解させるためには、１～５ｋｇ／ｃｍ^2、例えば２～５ｋｇ／ｃｍ^{2}の炭酸ガス圧力下で２～５０時間、例えば５～２０時間原料を攪拌しながら保存すればよい。

【００１６】

また液体炭酸ガスをポンプで計量しながら直接成形機の高圧ラインに投入する事でも可能である。この種の成形で最近よく使われる水を、発泡剤として使う事はスキン形成を目的とした本発明では望ましくない。ポリオール混合物中の水分量が０．３％を超えるとスキ

ン形成度合いが著しく損なわれる。ポリオール混合物中には水を実質的に含まないことが好ましい。

【００１７】

鎖延長剤としては、分子量が６２～３００の２価アルコール、例えばエチレングリコール、プロピレングリコール、ブタンジオール、ヘキサンジオール、ネオペンチルグリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコールや、２価アミン、例えばジエチルトルエンジアミン、ｔ－ブチルトルエンジアミン、ジエチルジアミノベンゼン、トリエチルジアミノベンゼン、テトラエチルジアミノジフェニルメタンなどが必要に応じて用いられ、これらにアルキレンオキシドを付加したポリエーテルポリオールなども用いられる。鎖延長剤の例は、特公昭５４－１７３５９号公報、特開昭５７－７４３２５号公報、特公昭６３－４７７２６号公報、特公平１－３４５２７号公報などに記載されている。

鎖延長剤の量は、ポリオール１００重量部に対して、３～１０重量部、例えば４～７重量部であってよい。

【００１８】

補強材は、ガラス質、無機質、鉱物質などのファイバー、例えばミルドグラスファイバー、ワラストナイトファイバー、プロセストミネラルファイバーあるいはフレーク、例えばマイカ、ガラスフレークなどがあり、必要に応じて用いられる。またガラスマット、ガラスクロスなどを、あらかじめ型内にセットしておき、そのうえでポリウレタン原料を注入して発泡体を得ることも可能である。

補強材の量は、ポリオール１００重量部に対して、２０重量部以下、例えば５～１０重量部であってよい。

【００１９】

その他の助剤として、気泡安定剤、例えばシリコーン系整泡剤、界面活性剤、耐候剤、例えば酸化防止剤、紫外線吸収剤、安定剤、例えば２，６－ジ－ｔ－ブチル－４－メチルフェノール、テトラキス［メチレン－３－（３’，５’－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン、着色剤などが必要に応じて用いられる。本発明においては、反応混合液の初期の泡を安定に保つ為に気泡安定剤を使用する事が望ましい。

その他の助剤の量は、ポリオール１００重量部に対して１５重量部以下、例えば２～１０重量部であってよい。

【００２０】

反応射出成型法（ＲＩＭ法）によるポリウレタン発泡体の製造には、Ｈｅｎｎｅｃｋｅ社製の高圧ポリウレタン発泡機、ポリウレタンエンジニアリング社製のＲ－ＲＩＭ用高圧ポリウレタン発泡機などの反応射出成形機が用いられる。

【００２１】

本発明において、イソシアネートインデックス［（ポリイソシアネートのイソシアネート基の当量とポリオール混合物中の活性水素の当量との比）×１００］は、９０～１２０、特に１００～１１０であってよい。

【００２２】

本発明によって、発泡剤としてクロロフルオロカーボンを用いることなく、インテグラルスキン構造を有する密度０．２～０．８ｇ／ｃｍ^3、例えば０．４～０．８ｇ／ｃｍ^{3}ポリウレタン発泡体を製造することができる。

【００２３】

以下、実施例および比較例を示し、本発明を具体的に説明する。なお、部および％は重量部および重量％である。

【００２４】

物性を以下のようにして測定した。

ライズタイム（フォームの立ち上がりが終了する時間）

高圧ポリウレタン発泡機の注入ヘッドより、２００ｇ／ｓで１秒間吐出した混合液を１Ｌのポリエチレン製カップに出し、ライズタイムを測定する。

【００２５】
３０秒脱型時の膨れ
３０秒脱型品の１日後のアーム間寸法を測定し、基準寸法（型キャビティー寸法）との比較において、評価する。
５：基準寸法より－１％超
４：基準寸法より－０．５～１％
３：基準寸法より０～－０．５％
２：基準寸法より＋０．５～０％
１：基準寸法より＋０．５％超
【００２６】
流れ性
吐出量２００ｇ／ｓで２秒注入し、４００ｇの成形品を得たが、その成形品の端末の欠肉の有無とバリ量で評価する。
５：欠肉がなく、バリ量が１００ｇ超
４：欠肉がなく、バリ量が５０～１００ｇ
３：欠肉がなく、バリ量が２０～５０ｇ
２：端末に小さな欠肉（１～５ｍｍ）があり、バリ量が２０ｇ未満
１：端末に大きな欠肉（５ｍｍ以上）があり、バリ量が２０ｇ未満
【００２７】
ボイド
ボイドの有無と直径で評価する。
５：まったくなし
４：表面にはなし
３：直径１ｍｍ未満のボイドがある
２：直径１～３ｍｍのボイドがある
１：直径３ｍｍ超のボイドがある
【００２８】
ピンホール
ピンホールの有無と面積で評価する。
５：まったくなし
４：肉眼では見られない
３：特定の部分（１ｃｍ^{2}以内）にわずかに発生する
２：特定の部分（１～４ｃｍ^2）に少し発生する
１：広い領域にわたって数ヶ所に発生する
【００２９】
ＰＬ部のＷライン
型開き時に成形品が膨張する傾向がある場合、型のエッジが接触し、パーティングライン（ＰＬ）に沿って、ハンドル成形品にラインがでる事がある。このラインの発生の有無・程度を評価する。
５：２０～２５秒で脱型してもＷラインが発生しない
４：３０秒で脱型してもＷラインが発生しない
３：３０秒で脱型すると、１ヶ所で長さ１００ｍｍ以下にＷラインが発生する
２：３０秒で脱型すると、ハンドル円周の半分未満にＷラインが発生する
１：３０秒で脱型すると、ハンドル円周の半分以上にＷラインが発生する
【００３０】
スキン形成
非発泡のインテグラルスキン層の厚みを測定し、評価する。
５：厚さ０．５ｍｍ超
４：厚さ０．３～０．５ｍｍ
３：厚さ０．１～０．３ｍｍ

２：厚さ０．１ｍｍ未満
１：厚さ０．１ｍｍ未満でスキン層が発泡している
【００３１】
参考例１
グリセリンにプロピレンオキシドとエチレンオキシド（プロピレンオキシドとエチレンオキシドの重量比８２：１８）を付加した水酸基価２８ｍｇＫＯＨ／ｇのポリエーテルポリオール９０部とエチレングリコール６部、トリエチレンジアミンの３３％エチレングリコール溶液１．２部、ジブチル錫ジラウレート０．０２部、シリコーン整泡剤０．２部、耐候剤１．０部および着色剤１．８部を混合して、ポリオール混合物１０ｋｇを得た。
【００３２】
このポリオール混合物を高圧ポリウレタン発泡機（Ｈｅｎｎｅｃｋｅ社製：ＨＫ－１６５）のタンクに入れ、減圧弁のついた液化炭酸ガスボンベをつなぎ、攪拌をしながら１～３気圧に調圧した炭酸ガスを供給した。４時間後、８時間後および、１８時間後にポリオール混合物を抜き取り比重を測定して、ポリオール混合物の重量に基づいた炭酸ガスの溶解量（％）を調べた。その結果を表１に示す。
【００３３】
参考例２
変性ジフェニルメタンジイソシアネート（スミジュールＰＣ（住友バイエルウレタン社製：変性ピュアーMDI））を、高圧ポリウレタン発泡機のタンクに入れ、減圧弁のついた液化炭酸ガスボンベをつなぎ、攪拌をしながら１～３気圧に減圧した炭酸ガスを供給した。イソシアネートの重量に基づいたCO_2溶解量（％）を調べた。その結果を表１に示す。
【００３４】
【表１】

	圧力 (kg/cm^2)	時間 (hr)	密度 (g/cm^3)	CO_2溶解量 (%)
ポリオール混合物（参考例１）	１	４	０．５５	０．１６
	１	８	０．４４	０．２５
	１	１８	０．４４	０．２５
	２	４	０．２８	０．５０
	２	８	０．２６	０．５５
	２	１８	０．２６	０．５５
	３	４	０．１９	０．８６
	３	８	０．１９	０．８６
	３	１８	０．１９	０．８６
イソシアネート（参考例２）	１	４	－	－
	１	８	－	－
	１	１８	０．９３	０．０５
	２	４	－	－
	２	８	－	－
	２	１８	０．５４	０．２４
	３	４	０．３７	０．４４
	３	８	０．３４	０．５０
	３	１８	０．３４	０．５０

【００３５】
実施例１～３
参考例１と同様に調製し、３０℃に加温したそれぞれのポリオール混合物（炭酸ガス１８時間供給：実施例１（圧力１ｋｇ／ｃｍ^2）、実施例２（圧力２ｋｇ／ｃｍ^2）、実施例３（圧力３ｋｇ／ｃｍ^2））１００部と、イソシアネート（スミジュールＰＣ（住友バイエルウレタン社製：変性ピュアーMDI））４４．２部を高圧ポリウレタン発泡機（Ｈｅｎｎｅｃｋｅ社製：ＨＫ－１６５）のタンクに入れ、ＮＣＯインデックス１０５、吐出量２００ｇ／秒、混合圧力１６０ｋｇ／ｃｍ^{2}で、６０℃に加温したハンドル形状のスチール製型に、ポリウレタン原料を注入した。型に原料を注入してから３０秒後に脱型し、ハンドル成形品を得た。成形条件を表２に示す。得られた成形品の物性を表３に示す。
【００３６】
実施例４～５
参考例１に示したポリオール混合物１００部に、炭酸ガスを溶解させることなく、３気圧の乾燥空気でタンクシールし、３０℃に加温し、参考例２のそれぞれのイソシアネート（

炭素ガス１８時間供給：実施例４（圧力２ｋｇ／ｃｍ^2）、実施例５（圧力３ｋｇ／ｃｍ^2））４４．２部を実施例１と同様にハンドル成形品を得た。成形条件を表２に示す。得られた成形品の評価結果を表３に示す。

【００３７】

【表２】

表２　成形条件

		実施例１	実施例２	実施例３	実施例４	実施例５
配合量	ポリオール混合物	100	100	100	100	100
(重量部)	イソシアネート	44.2	44.2	44.2	44.2	44.2
ＮＣＯ－Ｉｎｄｅｘ		105	105	105	105	105
CO_2供給圧力(ｋｇ/ｃｍ^2)		1	2	3	2	3
反応混合物中のCO_2量[1)] (%)		0.17	0.38	0.60	0.07	0.15
ポリオール混合物密度 (g/cm^3)		0.44	0.26	0.19	1.02	1.02
イソシアネート密度 (g/cm^3)		1.21	1.21	1.21	0.54	0.34
ライズタイム (sec)		13	15	16	12	13
モールド温度 (℃)		６０				
原料温度　OH/NCO (℃)		３０／３０				
吐出量(g/sec)		２００				
吐出圧力　OH/NCO (kg/cm^2)		１６０／１６０				
脱型時間 (sec)		３０				

[1)] CO_2溶解量は、反応混合物（イソシアネート＋ポリオール混合物の合計）の重量に基づく。

【００３８】

【表３】

表３　成形品の評価結果

	実施例１	実施例２	実施例３	実施例４	実施例５
成形品密度（g/cm^3）	0.6	0.5	0.4	0.8	0.7
３０秒脱型時の膨れ	5	4	3	5	5
流れ性	3	4	5	2	3
ボイド	3	2	2	4	3
ピンホール	3	2	2	4	3
ＰＬ部のWライン	5	5	5	5	5
スキン形成	3	5	4	3	4
スキン厚さ（mm）	0.3	0.5	0.4	0.3	0.4
スキン密度（g/cm^3）	0.93	1.05	1.02	1.02	1.05

【００３９】
比較例１
参考例１と同様のポリオール混合物に、炭酸ガスを溶解させることなく、代わりに水を０．５部添加した。実施例１と同様のイソシアネート（スミジュールＰＣ）に炭酸ガスを溶解させることなく、ポリオール混合物と反応させ、実施例１と同様にハンドル成形品を得た。成形条件は表４に示す。成形品の評価結果を表５に示す。
【００４０】
比較例２
参考例１と同様のポリオール混合物を高圧ポリウレタン発泡機のタンクに入れ、減圧弁のついた液化炭酸ガスボンベをつなぎ、攪拌をしながら５気圧に調圧した炭酸ガスを供給した。４時間後にポリオール混合物を抜き取り密度を測定すると０．０９g/cm^{3}で、炭酸ガスの溶解量はポリオール混合物の重量に基づいて２．０％であった。このポリオール混合物と、実施例１と同様のイソシアネート（スミジュールＰＣ）に炭酸ガスを溶解させることなく、反応させ、実施例１と同様にハンドル成形品を得た。成形条件を表４に示す。成形品の評価結果を表５に示す。
【００４１】
【表４】

表４　成形条件

		比較例１	比較例２
配合量（重量部）	ポリオール混合物	１００	１００
	イソシアネート	５６．８	４４．２
ＮＣＯ－Ｉｎｄｅｘ		１０５	１０５
反応混合物中のCO_2量（%）		０	１．３９
ポリオール密度（g/cm^3）		１．０２	０．０９
イソシアネート密度（g/cm^3）		１．２１	１．２１
ライズタイム（sec）		２５	２１
モールド温度（℃）		６０	
原料温度　ＯＨ/ＮＣＯ（℃）		３０／３０	
吐出量（g/sec）		２００	
吐出圧力　ＯＨ/ＮＣＯ（kg/cm^2）		160/160	
脱型時間（sec）		３０	

【００４２】
【表５】

表５　成形品の評価結果

	比較例１	比較例２
成形品密度（g/cm^3）	０．６	０．２
３０秒脱型時の膨れ	１	３
流れ性	２	５
ボイド	３	１
ピンホール	３	１
ＰＬ部のＷライン	１	３
スキン形成	１	１
スキン厚さ（mm）	０．０５	測定不可
スキン密度（g/cm^3）	０．６５	０．２２

【００４３】

【発明の効果】
本発明の製造法にしたがって得られたインテグラルスキン構造を有するポリウレタン発泡体は、短時間で脱型しても、成形品の膨れが非常に小さい。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
Ｂ２９Ｌ 31/58 (2006.01) Ｂ２９Ｌ 31:58

(56)参考文献 特開平０８－２２９９７３（ＪＰ，Ａ）
特表平１０－５０８６２６（ＪＰ，Ａ）
特開平０８－１７６２５１（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
C08G18/00～18/87
C08J9/12