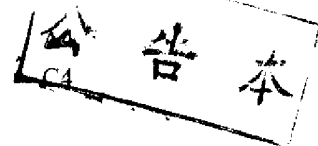


89年9月修正/更正/補充

附件一：第 86106669 號專利申請案中文說明書(含申請專利範圍)修正本

民國 89 年 9 月呈

申請日期	86 年 5 月 19 日
案 號	86106669
類 別	01.1 2.6 2.2



(以上各欄由本局填註)

煩請委員明示，本案修正後是否變更原實質內容

發明專利說明書 455618

一、發明 名稱	中 文	黃色顏料組成物及其製備方法
	英 文	Yellow pigment compositions and the process thereof
二、發明人 創作	姓 名	(1) 波昂·海斯 Hays, Byron G.
	國 籍	(1) 美國
	住、居所	(1) 美國俄亥俄州恰格瑞瀑布貓屋路一六八七一號 16871 Cats Den Road, Chagrin Falls, OH 44023, U.S.A.
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 恩格哈特有限公司 Engelhard Corporation
	國 籍	(1) 美國
	住、居所 (事務所)	(1) 美國新澤西州艾斯林第七七〇信箱木街一〇一號 101 Wood Avenue, P.O. Box 770, Iselin, NJ 08830-0770 USA
	代 表 人 姓 名	(1) 史帝芬·米勒 Miller, Stephen I.

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

455618

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 分類：

A6

B6

本案已向：

國(地區) 申請專利，申請日期： 案號： ☐有 ☐無主張優先權
美國 1996 年 5 月 30 日 08/672,386 ☒有主張優先權

有關微生物已寄存於： 寄存日期： 寄存號碼：

(請先閱讀面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明 (1)

發明背景

發明範圍

本發明係關於新穎的偶氮綠色色澤的黃色顏料、偶氮染料、其製備方法及含此種顏料的塗料、塑膠及油墨組成物。

相關技藝的說明

在過去半個世紀以來，使塑膠具有透明綠色色澤的黃色，通常都是使用二芳基偶氮黃色顏料例如 Color Index (C. I.) Pigment Yellow (P. Y.) 14 及 17，但是 R. Az et al 在 Dyes and Pigments, 15, 1 (1991) 報導二芳基黃色顏料在高於 200 °C 的塑膠加工下，會產生可能的致癌性副產物（例如 3,3'-二氯聯苯胺），該溫度低於大部分塑膠在加工時使用的溫度（例如 250 - 330 °C），基於這些考量，現在大部份塑膠加工者都使用 C. I. Pigment Yellow 62 : 1，其為二偶氮化 4-胺基-3-硝基苯-1-磺酸偶合至乙醯乙醯-2-甲基替苯胺之鈣鹽，雖然 C. I. P. Y. 62 : 1 可得到透明綠色色澤的黃色，其色彩強度只有 C. I. P. Y. 17 的約三分之一，且在較高的塑膠加工溫度下容易變黑，因此需要有較佳熱安定性的更強烈綠色色澤黃色顏料。

雖然經由偶合至 1-苯基-3-甲基-5-吡唑酮或其衍生物製備的偶氮黃色顏料為一般熟悉此項技藝者所熟知，此種顏料為紅色色澤的黃色顏料，因此不適於取代綠

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明(2)

色色澤的黃色顏料例如 C. I. P. Y. 62 : 1 及 C. I. P. Y. 17。

例如日本專利 JP 50 - 67841 (1975, Fuji Shikiso K. K.) 揭示紅色色澤的黃色顏料，其為偶氮化 2 - 胺基 - 4 - 氯 - 5 - 甲基苯 - 1 - 磺酸偶合至不同吡唑酮或其衍生物包括 1 - (4' - 氯苯基) - 3 - 甲基 - 5 - 吡唑酮及 1 - 苯基 - 3 - 乙氧羰基 - 5 - 吡唑酮之鹼金屬鹽類。

德國專利說明書 2616981 號揭示偶氮化 2 - 胺基 - 4, 5 - 二氯苯 - 1 - 磺酸偶合至 1 - (3' - 磺酸苯基) - 3 - 甲基 - 5 - 吡唑酮 (3 - 磺酸基 - PMP) 的鈣鹽 (C. I. Pigment Yellow 183)。

美國專利 4, 980, 458 揭示偶氮化 2 - 胺基 - 4, 5 - 二氯苯 - 1 - 磺酸偶合至 3 - 磺酸基 - PMP 的混合鈉、鉍或半鈣鹽，美國專利 4, 594, 411 揭示偶氮化 2 - 胺基 - 5 - 乙醯胺基苯 - 1 - 磺酸、2 - 胺基 - 5 - 甲氧基苯 - 1 - 磺酸、2 - 胺基 - 5 - 甲基苯 - 1 - 磺酸或 2 - 胺基 - 5 - 氯苯 - 1 - 磺酸偶合至 3 - 磺酸基 - PMP 的鈣鹽。

美國專利 5, 047, 517 揭示偶氮化 2 - 胺基 - 4 - 氯 - 5 - 甲基苯 - 1 - 磺酸偶合至 3 - 磺酸基 - PMP 的鈣鹽 (C. I. Pigment Yellow 191)，德國專利說明書 4111348 號揭示偶氮化 2 - 胺基 - 4 - 氯 - 5 - 甲基苯 - 1 - 磺酸偶合至 3 - 磺酸基 - PMP 的鉍鹽。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂
線

五、發明說明(3)

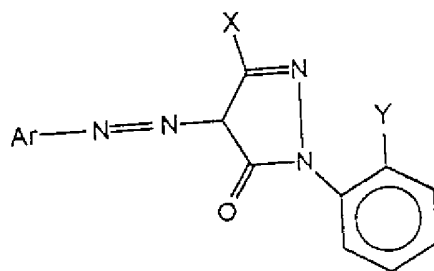
同樣地，從偶氮化 3,3'-二氯聯苯胺偶合至 1-(4'-甲基苯基)-3-甲基-5-吡唑酮 (PTMP) 的顏料稱為 C. I. Pigment Orange 34。

但是在上述專利文件中揭示的顏料為中度色澤至紅色色澤的黃色顏料，因此仍然需要綠色色澤的黃色顏料，其可顯示改進的性質例如顏色強度及熱安定性。

發明概述

本發明係關於適合作為染劑使用的綠色色澤黃色顏料，適合在製備此種顏料中使用的染料組成物及其製備方法。

在一具體實施例中，本發明係關於含下式特徵的一或多種化合物之組成物：



其中 X 為烴基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸醯胺基或磺酸醯胺基；Y 為烴基、鹵素或烴氧基；Ar 為下式特徵的芳族基團：

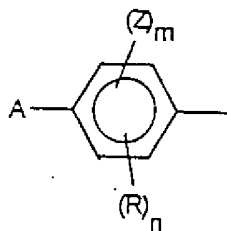
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

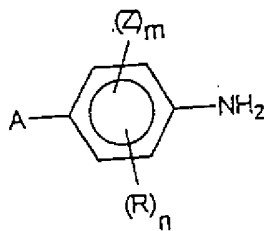
線

五、發明說明(4)



其中 A 爲鹵素基；各 Z 彼此獨立地爲 $-COOH$ 或 $-SO_3H$ 基，或各基團的鹽類；m 爲 1 或 2；各 R 彼此獨立地爲鹵素、烴基、烴氧基、羧酸酯基、磷酸酯基、羧酸鹽胺基、咪唑酮基、磷酸鹽胺基、硝基；且 n 爲 0、1 或 2。

在另一具體實施例中，本發明係關於製備偶氮染料的方法，其中包括偶合 (i) 下式特徵的一或多種芳族胺類之至少一種偶氮成份：



其中 A 爲鹵素基；各 R 彼此獨立地爲鹵素、烴基、烴氧基、羧酸酯基、磷酸酯基、羧酸鹽胺基、咪唑酮基、磷酸鹽胺基或硝基；n 等於 0、1 或 2；各 Z 彼此獨立地爲 $-COOH$ 或 $-SO_3H$ 基，或各基團的鹽類；且 m 等於 1 或 2；與 (ii) 下式特徵的至少一種偶合成份：

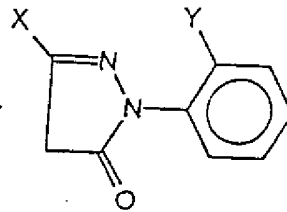
(請先閱讀背面之注意事項，填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (5)



其中 X 為烴基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸鹽胺基或磺酸鹽胺基；且 Y 為烴基、鹵素或氫二價碳氧基。

在再一具體實施例中，本發明係關於用前述方法製備的偶氮染料組成物，及將這些染料金屬化而製備的偶氮顏料。

在又一具體實施例中，本發明係關於含本發明偶氮顏料組成物的塗料、塑膠及油墨組成物。

較佳具體實施例的說明

如先前的說明，本發明提供偶氮顏料、偶氮染料及其製備方法，製備本發明的偶氮染料最初是將含至少一個酸基且適合在本發明中使用的一或多種芳族胺類或其鹼金屬或銨鹽偶氮化，因而形成偶氮成份，然後偶合此偶氮成份與含吡唑酮偶合劑且適合在本發明中使用的偶合成份而形成所需的染料。

適合供本發明目的之芳族胺類具有下列的特徵化學式：

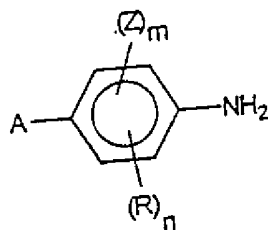
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(6)



其中 A 為鹵素基；各 R 彼此獨立地為鹵素、烴基、烴氧基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸鹽胺基、咪唑酮基、磺酸鹽胺基或硝基；n 等於 0、1 或 2；各 Z 彼此獨立地為 $-COOH$ 或 $-SO_3H$ 基，或各基團的鹽類；且 m 等於 1 或 2。

在本專利說明及申請專利範圍中所使用的“烴基”稱呼係指包括烴基，其中可含實質上不會影響烴基特性的取代基例如醚、酯、硝基或鹵素。

適合在本發明中使用的芳族胺類含有對位取代的鹵素基且可含 0、1 或 2 個 R 基，其彼此獨立地為鹵素、烴基、烴氧基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸鹽胺基、咪唑酮基、磺酸鹽胺基或硝基，此鹵素基可為任何的鹵素，雖然通常使用氯及溴，以氯為最佳的鹵素取代基，烴基可彼此獨立地為烷基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，例如當 R 為未經取代的芳基時，此芳族胺為聯苯胺，當 R 為烷基時，此烷基通常含 1 至 4 個碳原子，在本文中使用的“低碳烷基”係指含 1 至 4 個碳原子的烷基，當 R 為烴氧基時，烴基部份可為上述討論的任何烴基，雖然烴氧基通常為含 1 至約 4 或更多碳原子的烷氧基，較佳的 R

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(7)

基為甲基、乙基及氨基。

適合在本發明中使用的芳族胺類也可含一或兩個 $-COOH$ 及 $-SO_3H$ 的酸基或其鹽類，在一較佳具體實施例中，芳族胺含一個 $-SO_3H$ 基或其鹽類，這些酸基較宜在胺基旁（相鄰）。

其中 Z 為磺酸基且 m 為 1 的芳族胺類實例包括 2-胺基-5-氯-4-乙基苯-1-磺酸、2-胺基-5-氯-4-甲基苯-1-磺酸、2-胺基-5-氯苯-1-磺酸、2-胺基-4,5-二氯苯-1-磺酸、2-胺基-5-溴-4-乙基苯-1-磺酸等。

其中 Z 為羧酸基且 m 為 1 的芳族胺類實例包括 2-胺基-5-氯-4-甲氧基苯甲酸、2-胺基-5-氯-4-甲基苯甲酸等，磺酸及羧酸取代的芳族胺類可當場使用或作為其鹽類，較佳的鹽類實例包括鹼金屬鹽類例如鈉及鉀鹽。

兩種或多種任何芳族胺類的混合物也包含在本發明的範圍內。

芳族胺類的偶氮化反應可用熟悉此項技藝者習知的方法進行，使用鹼金屬亞硝酸鹽或亞硝酸低烷基酯以及適當強度的酸例如無機酸，可以使用的無機酸實例包括氫氯酸及硫酸，也可使用亞硝酸鹽基硫酸，偶氮化反應可在 -20 至 $+30^\circ C$ 的溫度範圍進行，以 0 至 $20^\circ C$ 較佳，雖然並非必要，在有些偶氮化反應（及隨後的偶合反應）中可含表面活性劑例如非離子性、陰離子性或陽離子性表

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

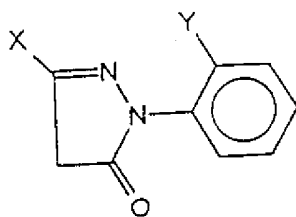
訂

線

五、發明說明(8)

面活性劑，且視需要使用適當的有機溶劑例如冰醋酸、低碳烷醇類、二噁烷、甲醯胺、二甲基甲醯胺、二甲亞砜、吡啶或N-甲基吡咯啉酮。

供本發明目的使用之吡唑酮偶合劑可用下式代表：



其中X為烴基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸醯胺基或磺酸醯胺基；Y為烴基、鹵素或烴氧基，烴氧基通常含1至約4個碳原子，通常X為含1或2個碳原子的低碳烷基且較宜為乙基，可用的X基也可為含1或2個碳原子的醇之羧酸酯基且較宜為乙酯基，另一個可用的X基也可為芳基，以苯基較佳。

通常Y為低碳烷基或鹵素基，此鹵素基可為任何的鹵素，雖然通常使用氯及溴，以氯為最佳的鹵素取代基，通常低碳烷基含1或2個碳原子且以甲基為較佳的取代基，最佳的具體實施例是當Y為甲基。

可供本發明目的使用之吡唑酮實例包括

1-(2'-甲基苯基)-3-甲基-5-吡唑酮，

1-(2'-氯苯基)-3-甲基-5-吡唑酮，

1-(2'-甲氧基苯基)-3-甲基-5-吡唑酮

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝 訂 線

五、發明說明(9)

1 - (2 - 甲基苯基) - 3 - 乙氧羰基 - 5 - 吡唑酮等。

兩種或多種任何吡唑酮成份的混合物，係包含在本發明的範圍內。

進行供本發明目的使用之偶合反應時，較宜將偶氮成份添加至耦合成份中，但是也可將耦合成份添加至偶氮成份中，偶合反應通常在約 - 20 至約 80 °C 的溫度下進行，以約 20 至約 65 °C 較佳，如同在偶氮反應中，偶合反應可在適當的表面活性劑或有機溶劑存在下進行，例如在偶氮反應中所敘述的全部。

在一具體實施例中，將耦合成份溶解在鹼性溶液例如鹼金屬氫氧化物水溶液中，並用稀釋酸例如醋酸再沈澱。

在另一具體實施例中，通常使偶氮成份與稍微過量化學計量的耦合成份偶合，也就是說一當量的偶氮成份與稍微大於一當量的耦合成份偶合。

在本發明的又一具體實施例中，本發明顏料的分散性可在偶合反應完成前、中或後，或在下文討論的金屬化後，經由添加鹼溶性類似樹脂的產物而改進，多種類似樹脂的物質可添加作為此目的使用，且這些包括例如松香樹脂、聚合松香脂、樹脂皂、化學改良的松香樹脂例如松香 - 馬來酸酯樹脂、醇酸樹脂、及含較高酸值的其他合成烴類樹脂、或這些樹脂的混合物，此樹脂可存在於可形成鹽類的含自由態羧基之產物中，或可部份或完全以鹽類的形式，例如與鹼金屬離子。也較宜在微細分粒的不溶解物質中

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(10)

進行偶合反應，例如鹼土金屬硫酸鹽及碳酸鹽、二氧化鈦或黏土物質或非常微細分粒的有機塑膠物質。

用上述偶合反應製備的偶氮染料組成物可用二價金屬鹽金屬化而形成磺酸鹽或羧酸鹽，此也稱為色澱並形成偶氮顏料，此金屬鹽可為鹼土金屬如鎂、鎳或鋅或兩種或多種這些金屬混合物之鹽類，鹼土金屬鹽類例如 SrCl_2 及 CaCl_2 特別適用於此目的，進行金屬化時較宜在全部存在的偶氮成份完成偶合後，將金屬鹽添加至染料中，或在偶氮成份中包含金屬鹽，使染料形成時進行金屬化。

在最普遍的應用情形下，為了達到充分的亮度及色彩強度，需要將偶氮顏料加熱，例如金屬化後的產物可加熱至迴流溫度約 1 至 3 小時，或減壓下在高於 100°C 及上述樹脂皂或其他可溶性樹脂存在下。

完成金屬化後，用過濾法從水基質的反應稠漿中回收偶氮顏料，形成顏料的餅塊，用熱水（例如 $40-60^\circ\text{C}$ ）清洗使去除過剩的酸類、鹼類及偶合反應中形成的鹽類，餅塊通常用約 10 至 20 倍其體積的熱水清洗，過濾的餅塊通常清洗至過濾液中只得到稍微正面結果的氯離子測試，清洗後的餅塊可乾燥、研磨並以粗糙或微細分徑粒子的形式使用，或者是可將本發明的偶氮顏料分散在含油樹脂的媒劑中而製備成膠狀基質，或分散在水性媒劑中而製備成水性分散液。

本發明的顏料組成物提供改進的顏色強度及熱安定性，適於在塑膠、塗料及油墨中作為染色劑使用。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明(11)

本發明因此也關於塗料、油墨及塑膠組成物，其中含大量的塗料媒劑、油墨媒劑或塑膠及少量的本發明組成物。

此塗料、油墨及塑膠組成物其中有用的本發明組成物為一般熟悉此項技藝者所熟知，實例包括印刷油墨、清漆、熱塑性及熱固性物質、天然樹脂及合成樹脂、聚苯乙烯及其混合的聚合物、聚烯烴尤其是聚乙烯及聚丙烯、聚丙烯酸化合物、聚乙烯化合物例如聚氯乙烯及聚醋酸乙烯酯、聚酯類及橡膠、以及黏膠與纖維素醚類、纖維素酯類、聚醯胺類、聚胺基甲酸乙酯、聚酯類例如聚對酞酸乙二醇酯及聚丙烯腈製成的纖維絲，也可用於顏料印化及整體的紙染色。

由於其極佳的耐熱性，此顏料特別適於整體的塑膠染色，舉例而言例如聚苯乙烯及其混合的聚合物、聚烯烴尤其是聚乙烯及聚丙烯及相對應的混合聚合物、聚氯乙烯及聚酯類尤其是聚對酞酸乙二醇酯及聚對酞酸丁烯酯及相對應的以聚酯類為基質之混合縮合產物。

關於油墨可參見例如：R. H. Leach，編輯，The Printing Ink Manual，Fourth Edition，Van Nostrand Reinhold (International) Co. Ltd.，London (1988)，尤其是282-591頁；關於塗料：C. H. Hare，Protective Coatings，Technology Publishing Co.，Pittsburgh (1994)，尤其是63-288頁；及關於塑膠：T. G. Webber，Coloring

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (12)

of Plastics, John Wiley & Sons, New York (

1979), 尤其是 79-204 頁, 上述文獻併於本文供參考, 包括其中油墨、塗料及塑膠組成物之揭示、本發明組成物可以使用的調配物及媒劑包括染料的量, 例如在平版膠印油墨中可使用 10 至 15% 的量, 其餘部份為含膠化及非膠化烴類樹脂、醇酸樹脂、蠟化合物及脂族溶劑的媒劑, 在室內塗料調配物中也可使用例如 1 至 10% 的此顏料以及其他顏料其中包括二氧化鈦、丙烯酸乳酸、聚結劑、水或溶劑, 在聚乙烯的塑膠顏色濃縮劑中也可使用例如 20 至 30% 的顏料。

下列實例說明本發明之組成物及其製備方法, 除非在下列實例及發明說明與申請專利範圍中另外說明, 全部的組份及百分比是以重量為基準, 溫度為攝氏溫度且壓力為大氣壓或接近大氣壓。

實例 1

偶氮稠漿的製備是將 22.2 組份 2-胺基-5-氯-4-甲基苯-1-磺酸 (C Amine) 溶解在含 4 組份氫氧化鈉的 370 組份熱 ($\sim 60^{\circ}\text{C}$) 水中, 用 26.0 組份 20° Baume 氫氯酸使 C Amine 再沈澱, 加冰製成 0°C 的稠漿, 加入溶解在 21 組份水的 7.0 組份亞硝酸鈉, 並在 $0-10^{\circ}\text{C}$ 下攪拌稠漿 60 分鐘。

偶合劑稠漿的製備是將 23.0 組份 1-(2'-氯苯基)-3-甲基-5-吡唑酮 (O C P M P) 溶解在含

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(13)

4.5組份氫氧化鈉的300組份水中，用67.5組份10%醋酸使OCPMP再沈澱，調整pH成6.5並將稠漿加熱至65℃。

將偶氮稠漿偶合至偶合劑稠漿歷時20分鐘，同時經由添加10%氫氧化鈉使pH保持在6.0-6.5，並使溫度保持在60-65℃，將稠漿攪拌1小時，然後分成4等分的稠漿1。

實例 1 - 1

一份(525組份)的稠漿1中，在40-45℃下加入12.3組份30%氯化鈣二水合物溶液，然後將稠漿加熱，沸騰30分鐘，冷卻至低於40℃並過濾，清洗濾餅，在70℃下乾燥過夜並在Osterizer中碾磨，得到實例1-1的細粉顏料。

實例 1 - 2

重複實例1-1的步驟，但是使用17.6組份30%硝酸鋇溶液代替氯化鈣溶液，得到實例1-2的顏料。

實例 1 - 3

重複實例1-1的步驟，但是使用42.5組份10%硫酸錳單水合物溶液代替氯化鈣溶液，得到實例1-3的顏料。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (14)

實例 1 - 4

重複實例 1 - 1 的步驟，但是使用 24.0 組份 30 % 硫酸鋅七水合物溶液代替氯化鈣溶液，得到實例 1 - 4 的顏料。

實例 2

重複實例 1 - 1 的步驟，但是使用含 2.2 組份的 N - 脂烷基丙二胺溶解在熱 10 % 醋酸的 O C P M P 稠漿，偶合時 pH 保持在 5.0 - 5.2 且溫度保持在 27 - 25 °C，在 25 °C 下加入氯化鈣溶液，加熱顏料稠漿並保持在 60 - 65 °C 歷時 10 分鐘，得到實例 2 的顏料。

實例 3

重複實例 1 - 1 的步驟，但是偶合時 pH 保持在 5.0 - 5.2 且溫度保持在 27 - 25 °C，偶合後 pH 提高至 7.1，加入 4.8 組份 S taybelite 樹脂溶解在熱 10 % 氫氧化鈉的溶液，在 27 °C 下加入氯化鈣溶液，加熱顏料稠漿並保持在 60 - 65 °C 歷時 10 分鐘，得到實例 3 的顏料。

實例 4

重複實例 1 - 1 的步驟，但是 O C P M P 沒有溶解及再沈澱且其稠漿含 4.6 組份硫酸化蓖麻油之鈉鹽及 9.6 組份醋酸鈉，並在 65 °C 下加入氯化鈣溶液，得到

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (15)

實例 4 的顏料。

實例 5

重複實例 1 - 1 的步驟，但是使用 23.7 組份的 2 - 胺基 - 5 - 氯 - 4 - 乙基苯 - 1 - 磺酸 (Ethyl C Amine) 代替 C Amine 製備偶氮，OCPMP 沒有溶解及再沈澱且其稠漿含 2.3 組份硫酸化蓖麻油之鈉鹽及 9.6 組份醋酸鈉，並在 65 °C 下加入氯化鈣溶液，得到實例 5 的顏料。

實例 6

重複實例 1 - 1 的步驟，但是使用 23.7 組份的 2 - 胺基 - 5 - 氯 - 4 - 乙基苯 - 1 - 磺酸 (Ethyl C Amine) 代替 C Amine 製備偶氮，OCPMP 稠漿含 2.2 組份溶解在熱 (~ 50 °C) 10 % 醋酸中的 N - 脂烷基丙二胺，偶合時 pH 保持在 5.0 - 5.2 且溫度保持在 25 - 22 °C，偶合後 pH 提高至 9.2，在 23 °C 下加入氯化鈣溶液並使顏料稠漿沸騰 15 分鐘，得到實例 6 的顏料。

實例 7

重複實例 1 - 1 的步驟，但是偶合劑是用 21.1 組份 1 - (2 - 甲基苯基) - 3 - 甲基 - 5 - 吡唑酮製成且在 47 °C 下加入氯化鈣溶液，得到實例 7 的顏料。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (16)

實例比較 1

重複實例 1 - 1 的步驟，但是偶合劑是用 23.0 組份 1 - (4'-氯苯基) - 3 - 甲基 - 5 - 吡唑酮及 2.2 組份溶解在熱 ($\sim 50^{\circ}\text{C}$) 10% 醋酸中的 N - 脂烷基丙二胺製成並調整成 pH 5.2，偶合時 pH 保持在 5.0 - 5.2，在 100°C 下加入氯化鈣溶液並使稠漿沸騰 10 分鐘，得到實例比較 1。

實例比較 2

重複實例 1 - 1 的步驟，但是使用 22.2 組份的 2 - 胺基 - 4 - 氯 - 5 - 甲基苯 - 1 - 磺酸 (2B Acid) 製備偶氮，偶合劑是用 23.0 組份 1 - (4'-氯苯基) - 3 - 甲基 - 5 - 吡唑酮及 2.2 組份溶解在熱 ($\sim 50^{\circ}\text{C}$) 10% 醋酸中的 N - 脂烷基丙二胺製成並調整成 pH 5.2 及 25°C ，偶合時 pH 保持在 5.0 - 5.2 且溫度保持在 $25 - 21^{\circ}\text{C}$ ，稠漿沸騰 30 分鐘後加入氯化鈣溶液，然後再度沸騰 10 分鐘而得到實例比較 2。

顏料的測試

對於色度，在高強度聚乙烯注射模製薄片上以 1 : 19 (顏料：二氧化鈦) 的淡色測試顏料如下：將 0.125 組份顏料、2.375 組份二氧化鈦及 500 組份高強度聚乙烯 (Solvay T50 - 2000 - G) 的混合物在塗料振盪機內振盪至均勻，然後在 232°C 的 30

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (17)

噸 Battenfeld 機器上注射模製，用 Macbeth Color-Eye (包括鏡子元件，大面積) 測量模製薄片的分光光度值，得到對 Ciba Irgalite Yellow WSR (C. I. P. Y. 62:1) 及在 Illuminant D 下 CIE L*C*h 色相角 10 度的視強度，如表 I 所示。

對於熱安定性，在高強度聚乙烯注射模製薄片上以 0.1 phr 主色的顏料測試如下：將 0.50 組份顏料及 500 組份高強度聚乙烯 (Solvay T50-2000-G) 的混合物在塗料振盪機內振盪至均勻，然後在不同溫度保持下 90 分鐘的 30 噸 Battenfeld 機器上注射模製，用 Macbeth Color-Eye (包括鏡子元件，大面積) 對在 232 °C 下模製的薄片測量模製薄片的分光光度值，得到 Hunter CIELabdelta E、Delta L 及 Deltab 值，如表 II 所示。

(請先閱讀背面之注意事項，填寫本頁)

裝

訂

線

A7

B7

五、發明說明(18)

表 1

表 I

顏料	視強度	色相角
Yellow WSR (P.Y. 62)	標準 (K/S=2.6464)	92.5°
實例 1-1	+76%	92.5°
實例 1-2	+64%	92.4°
實例 1-3	+69%	92.9°
實例 1-4	+44%	93.3°
實例 2	+62%	92.1°
實例 3	+18%	93.5°
實例 4	+77%	92.6°
實例 5	+78%	92.5°
實例 6	+65%	93.2°
實例 7	+68%	90.6°
實例比較 1	+51%	87.8°
實例比較 2	+62%	84.2°
Yellow HGR (P.Y. 191)	+32%	86.4°
Yellow K2270 (P.Y. 183)	+27%	84.6°

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明(19)

從表 I 可看出，本發明實例的顏料顯現高綠色色澤的色相角且比 P . Y . 6 2 高出很多（通常為 6 0 - 8 0 %），且通常比實例比較 P . Y . 1 9 1 及 P . Y . 1 8 3 顯示明顯更高的顏色強度，相反地，實例比較顏料的色相類似於中度／紅色色澤的 P . Y . 1 9 1 及 P . Y . 1 8 3，而不像本發明綠色色澤的實例，本發明實例的黃色顏料出乎預料地顯示 P . Y . 6 2 的綠色色澤，而實例比較的顏料為先前技藝吡唑酮顏料預期的中度色澤／紅色色澤。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

五、發明說明 (20)

表 2

表 II

<u>溫 度</u>	<u>Delta E</u>		<u>Delta L</u>		<u>Delta b</u>	
	<u>WSR</u>	<u>實 例 2</u>	<u>WSR</u>	<u>實 例 2</u>	<u>WSR</u>	<u>實 例 2</u>
246°C	2.14	0.29	0.76	-0.18	0.14	0.10
260°C	4.62	1.90	1.54	-0.82	0.13	-0.23
274°C	7.99	2.34	2.70	-0.88	0.05	-0.21
288°C	8.04	2.58	2.58	-0.92	-0.24	-0.13
316°C	7.85	1.62	-3.89	-0.52	-5.23	-0.13

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (21)

從表 II 可看出，實例 2 的顏料在 246 °C 顯現不明顯的 Delta E，且在 260 至 316 °C 顯現小 (1.6 - 2.6) 但相當固定的 Delta E，相反地，P. Y. 62 (WSR) 在 246 °C 顯現小的 Delta E，在 260 至 316 °C 顯現大的 Delta E，此較低的 Delta E 說明本發明的熱安定性有明顯且出乎意料的改進。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

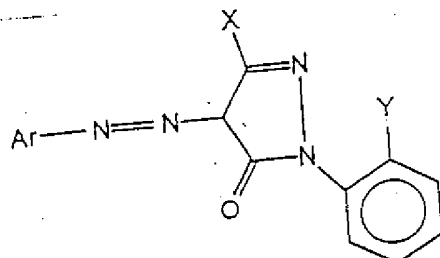
裝

訂

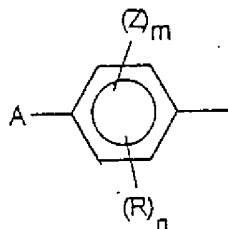
線

四、中文發明摘要(發明之名稱：

黃色顏料組成物及其製備方法
揭示含下式特徵的一或多種化合物之組成物：



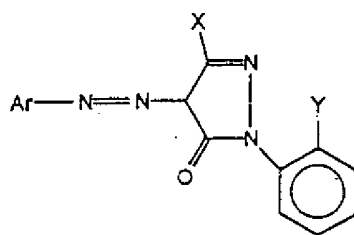
其中 X 為烴基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸醯胺基或磺酸醯胺基；Y 為烴基、鹵素或烴氧基；Ar 為下式特徵的芳族基團：



其中 A 為鹵素基；各 Z 彼此獨立地為 $-COOH$ 或 $-SO_3H$ 基，或各基團的鹽類；m 為 1 或 2；各 R 彼此

英文發明摘要(發明之名稱：Yellow pigment compositions and the process thereof)

Disclosed are compositions comprising one or more compounds characterized by the formula:



wherein X is a hydrocarbyl, carboxylic acid ester, sulfonic acid ester, carboxylic acid amide or sulfonic acid amide group; Y is a hydrocarbyl, halogen or hydrocarbyloxy group; Ar is an aromatic moiety characterized by the formula:

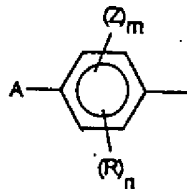
四、中文發明摘要(發明之名稱:)

獨立地為鹵素、烴基、烴氧基、羧酸酯基、磺酸酯基、羧酸醯胺基、咪唑酮基、磺酸醯胺基、硝基；且 n 為 0、1 或 2。

同時也揭示一種製備偶氮染料的方法，用此方法製備的染料組成物，以及從這種染料衍生的偶氮顏料。

並揭示含上述顏料組成物的塗料、油墨及塑膠組成物。

英文發明摘要(發明之名稱:)



wherein A is a halogen group; each Z is independently a -COOH or -SO₃H group, or salts of such groups; m is 1 or 2; each R is independently a halogen, hydrocarbyl, hydrocarbyloxy, carboxylic acid ester, sulfonic acid ester, carboxylic amide, imidazolone, sulfonic acid amide, nitro group; and n is 0, 1 or 2.

A process for preparing azo dyes, the dye compositions prepared by this process and the azo pigments derived from such dyes are also disclosed.

Paint, ink and plastic compositions containing the foregoing pigments compositions are disclosed.

(請先閱讀背面之注意事項再填，本頁各欄)

裝

訂

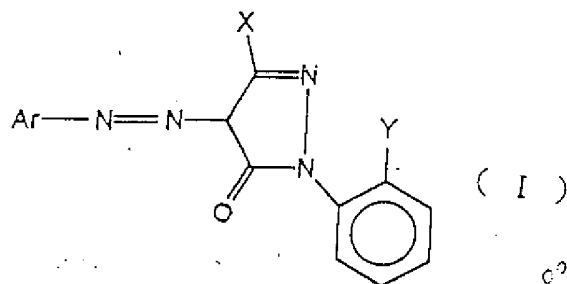
線

88 (月) (日) 更正/補充

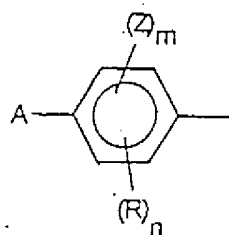
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

1. 一種綠色色澤的黃色顏料組成物，係包括式 (I)
- (I) 化合物特徵的一或多種化合物：



其中 X 為烴基；Y 為烴基或鹵素；Ar 為下式特徵的芳族基團：



其中 A 為鹵素基；各 Z 彼此獨立地為 $-SO_3H$ 基，或此基團的鹽類；m 為 1 或 2；各 R 彼此獨立地為鹵素或烴基；且 n 為 0、1 或 2。

2. 如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 X 為低碳烴基。

3. 如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 Ar 為下式的基團：

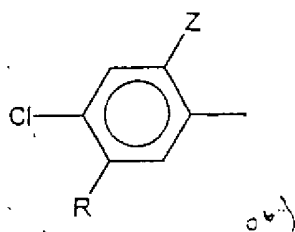
(請先閱讀背面之注意事項再為本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍



R 爲鹵素或烴基；且 Z 爲 $-SO_3H$ 基，或其鹽類。

4．如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 X 爲低碳烷基且 Y 爲低碳烷基或氨基。

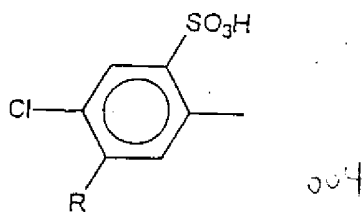
5．如申請專利範圍第 4 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 X 爲甲基且 Y 爲氨基。

6．如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 n 等於 1；R 爲乙基；Z 爲 $-SO_3H$ 基，或其鹽類；且 m 等於 1。

7．如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中該酸式鹽類爲鹼金屬或銨鹽。

8．如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中該酸式鹽類爲鹼土金屬、錳、鎳或鋅鹽。

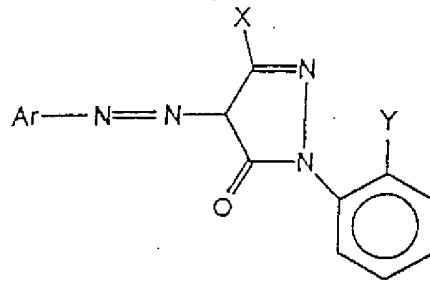
9．如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中其中 A_r 爲下式的基團：



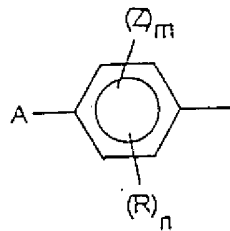
六、申請專利範圍

R 爲鹵素或低碳烷基。

10 . 一種偶氮顏料組成物其中含下式之一或多種化合物：



其中 X 爲烴基；Y 爲烴基或鹵素；且 Ar 爲下式特徵的芳族基團：



其中 A 爲鹵素基；各 Z 彼此獨立地爲 $-SO_3H$ 基，或其鹽類；m 爲 1 或 2；各 R 彼此獨立地爲鹵素或烴基；且 n 爲 0、1 或 2。

11 . 如申請專利範圍第 10 項之組成物，其中 Z 爲選自鹼土金屬、錳、鎳或鋅之二價金屬的酸式鹽。

12 . 如申請專利範圍第 10 項之組成物，其中 X 與 Y 各爲低碳烷基且 n 等於 1。

13 . 如申請專利範圍第 12 項之組成物，其中 X 與 Y 爲甲基。

(請先閱讀背面之注意事項再寫本頁)

裝

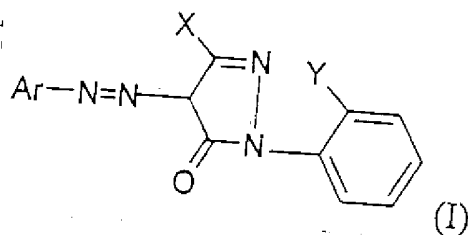
訂

線

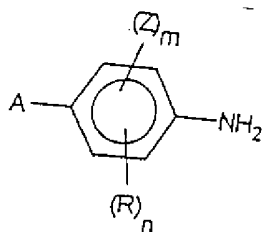
六、申請專利範圍

1 4 . 如申請專利範圍第 1 0 項之組成物，其中 n 等於 1； R 為乙基或氨基。

1 5 . 一種製備式 (I) 化合物的方法，



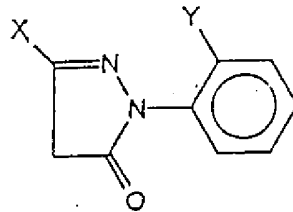
其包括偶合式 (I I) 特徵的一或多種芳族胺類之至少一種偶氮成份：



(I I)

其中 A 為鹵素基；各 R 彼此獨立地為鹵素或烴基； n 等於 0、1 或 2；各 Z 彼此獨立地為 $-SO_3H$ 基，或此基團的鹽類；且 m 等於 1 或 2，該偶氮成份係是在一適當強酸存在下用鹼金屬亞硝酸鹽或亞硝酸低烷基酯偶氮化式 (I I) 特徵的芳胺類化合物，而給予製得的；與式 (I I) 特徵的至少一種偶合成份：

六、申請專利範圍



(I I I)

其中 X 為烴基；且 Y 為烴基或鹵素。

16. 如申請專利範圍第 15 項之方法，其中 X 與 Y 各為低碳烴基且 n 等於 1。

17. 如申請專利範圍第 15 項之方法，其中 X 與 Y 為甲基；R 為乙基或氨基；n 等於 1；Z 為 $-SO_3H$ 基或其鹽類且 m 等於 1。

18. 如申請專利範圍第 15 項之方法，其中依據申請專利第 15 項所製得的偶氮染料進一步用一或多種的鹼土金屬、錳、鎳或鋅給予金屬化。

19. 一種塗料組成物，係包括塗料媒劑及如申請專利範圍第 10 項之組成物。

20. 一種塗料組成物，係包括塗料媒劑及如申請專利範圍第 1 項之組成物。

21. 一種油墨組成物，係包括主要量的油墨媒劑及如申請專利範圍第 10 項之組成物。

22. 一種油墨組成物，係包括油墨媒劑及如申請專利範圍第 1 項之組成物。

23. 一種塑膠組成物，係包括塑膠物質及如申請專

(請先閱讀背面之注意事項五
為本頁)

裝

訂

線

六、申請專利範圍

利範圍第 10 項之組成物。

24. 一種塑膠組成物，係包括含塑膠物質及如申請專利範圍第 1 項之組成物。

(請先閱讀背面之注意事項
為本頁)

裝

訂

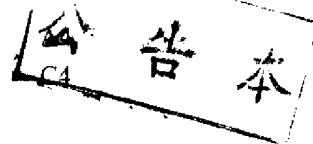
線

89年9月修正/更正/補充

附件一：第 86106669 號專利申請案中文說明書(含申請專利範圍)修正本

民國 89 年 9 月呈

申請日期	86 年 5 月 19 日
案 號	86106669
類 別	01.1 2.6 2.2



(以上各欄由本局填註)

煩請委員明示，本案修正後是否變更原實質內容

發明專利說明書 455618

一、發明 名稱	中 文	黃色顏料組成物及其製備方法
	英 文	Yellow pigment compositions and the process thereof
二、發明人 創作	姓 名	(1) 波昂·海斯 Hays, Byron G.
	國 籍	(1) 美國
	住、居所	(1) 美國俄亥俄州恰格瑞瀑布貓屋路一六八七一號 16871 Cats Den Road, Chagrin Falls, OH 44023, U.S.A.
三、申請人	姓 名 (名稱)	(1) 恩格哈特有限公司 Engelhard Corporation
	國 籍	(1) 美國
	住、居所 (事務所)	(1) 美國新澤西州艾斯林第七七〇信箱木街一〇一號 101 Wood Avenue, P.O. Box 770, Iselin, NJ 08830-0770 USA
	代 表 人 姓 名	(1) 史帝芬·米勒 Miller, Stephen I.

裝

訂

線

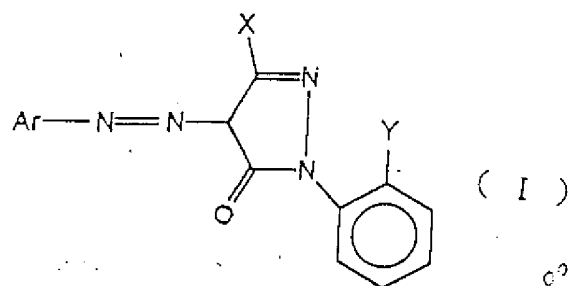
經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

88 (月) (日) 更正/補充

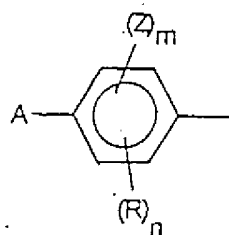
A8
B8
C8
D8

六、申請專利範圍

1. 一種綠色色澤的黃色顏料組成物，係包括式 (I)
-) 化合物特徵的一或多種化合物：



其中 X 為烴基；Y 為烴基或鹵素；Ar 為下式特徵的芳族基團：



其中 A 為鹵素基；各 Z 彼此獨立地為 $-SO_3H$ 基，或此基團的鹽類；m 為 1 或 2；各 R 彼此獨立地為鹵素或烴基；且 n 為 0、1 或 2。

2. 如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 X 為低碳烴基。

3. 如申請專利範圍第 1 項之綠色色澤黃色顏料組成物，其中 Ar 為下式的基團：

(請先閱讀背面之注意事項再為本頁)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製