

技術資料

金属サイディング用光カチオン硬化性インクジェットインクの開発

佐藤 正樹* 鈴木 成寿** 杉田 修一***
中川 暁**** 原 勝巳***** 水野 和義*****

Development of a Cationic UV Curable Ink-jet Ink for Printing Metal Siding

Masaki Sato, Seiju Suzuki, Shuichi Sugita, Akira Nakagawa, Katsumi Hara, Kazuyoshi Mizuno

Synopsis:

Ink-jet printing of metal siding is often adopted for the printing of exterior wall material. Weather resistance and adhesion of the ink-jet ink are important factors which affect the quality of ink-jet printed metal siding. We studied the composition of Cationic UV Curable Ink-jet Ink for printed metal siding. The following results were obtained:

- (1) In regards to poor adhesion due to curing shrinkage of the ink layer and curing failure due to moisture absorption, the addition ratio of OXA : DOX was 2 : 1.
- (2) By the addition of 5 mass% or more GLYMO to the ink, the dispersibility of the inorganic pigment was improved. The ink showed viscosity-shear rate dependency which was close to Newtonian.
- (3) In order to improve the poor storage stability of the ink caused by the high reactivity of the trimethoxysilyl group of GLYMO, the best addition ratio of the four cationic polymerization monomers was determined as follows. OXA : DOX : GLYMO : EEC = 8 : 4 : 1 : 2
- (4) For the conversion of the cationic polymerization monomers, at least 95% is required for close contact with the ink and the precoated steel sheet. The curing conditions are as follows:
 - ① UV irradiation condition 500mJ/cm² or more
 - ② Heat treatment condition 70°C, 2minutes or more
- (5) According to the results of the Okinawa Exposure Test for 5years, ink-jet printed metal siding demonstrated good weather resistance with a color difference (ΔE) of 1 or less.

1. 緒言

戸建住宅の新築用外壁材としては30年前までモルタルが主流であったが、近年は意匠性に優れる窯業サイディングおよび塗装鋼板を基材とした金属サイディングが多く使用されるようになってきた。その中で金属サイディングは、単色サイディングとエンボス形状に同調して印刷を施した加飾サイディングの2種類に大別される。

金属サイディングへの加飾方法は、ロールによるツートン塗装およびエンボス形状に同調したシンクロ塗装が主流である。しかし、これらの方法は、エンボス凸部のみを1～2色で塗装するため、石や砂等の天然素材の質感を表現することは難しい。

それに対して、インクジェット印刷は階調性の高い印刷方法であることから、天然素材の質感を再現した高画質印刷金属サイディングの製造が可能になり¹⁾、加飾

*塗装・構造部材研究所 機能性材料研究チーム 上席研究員
**塗装・構造部材研究所 機能性材料研究チーム
***塗装・構造部材研究所 機能性材料研究チーム チームリーダー
****ナトコ株式会社 化成品事業部
*****ナトコ株式会社 塗料事業部
*****ナトコ株式会社 取締役

サイディングに占めるインクジェット印刷材の比率は高まりつつある。

インクジェットインクの種類とその一般特性を表1に示す。金属サイディングに用いられるインクジェット印刷用インクは主に水系インクが採用されている。水系インクは、インクの濡れ広がり過程でインク滴同士が混ざり合い、淡い中間色の再現ができないという課題がある²⁾。溶剤系インクは、溶剤が蒸発しやすいため、ノズル詰まりが発生しやすく、インクジェット印刷の安定性に問題がある。

表1 インクジェットインクの種類とその一般特性 (相対評価)
Table 1 Types and general characteristics of ink-jet ink. (Relative evaluation)

Types of ink-jet ink		Adhesion of ink	Neutral color reproducibility	Stability of Ink-jet printing
Water-based ink		○	×	△
Solvent-based ink		○	○	×
UV curable ink	Free radical polymerization	×	○	○
	Cationic polymerization	○	○	○

水系インクと溶剤系インクに対して、紫外線硬化インクは基本的に無溶剤であり、紫外線照射によりインク液滴が瞬時に硬化するため、インク液滴の混合がなく、淡い中間色が再現でき³⁾、かつ溶剤を含まないためインクジェット印刷安定性にも優れるという利点がある。

これまで紫外線硬化インクは、モノマーの選択肢が多いという点からラジカル重合型インクで検討が成されてきた。しかし、ラジカル重合型インクは、硬化時の体積収縮が大きく、塗装鋼板への密着性が十分に確保できない⁴⁾という問題から、金属サイディング用途では実用化されていない。一方、ラジカル重合型インクに比べてカチオン重合型インクの方が、硬化時の体積収縮が小さいことが知られているが、これについても、原料となるモノマーの種類が極端に少ないことから、実験室レベルでは検討されてきたが、実用化には至っていない⁵⁾。

筆者らは、インク硬化時の体積収縮が小さいカチオン重合型インクに着目し、金属サイディングの加飾に適した光カチオン硬化性インクジェットインクを開発したので報告する。

2. 供試材および実験方法

2.1 供試インク

紫外線硬化インクの基本組成は、汎用およびインク

ジェット用等の用途に関係なく、光カチオン重合型モノマー、光重合開始剤、顔料、および顔料分散剤から成る。

モノマーとしては、(i)体積変化が少ない開環重合型のモノマー、(ii)工業的に安定供給が可能、(iii)モノマーコストが安価という3点を考慮し、オキセタン環を有するオキセタン系モノマーとオキシラン環を有するエポキシ系モノマーの2種類を選択した⁶⁻⁸⁾。

さらに、オキセタン系モノマーのなかから、水酸基を有し下地となる塗装鋼板との密着性の向上が期待される3-エチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン(以下、OXAと記す)と、インク層の架橋促進を目的として2官能のビス(3-エチル-3-オキセタニルメチル)エーテル(以下、DOXと記す)の2種を選択した。

エポキシ系モノマーとしては、モノマーの末端にトリメトキシシリル基を有することでインク中の無機顔料の分散性が向上することが報告⁹⁾されている3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン(以下、GLYMOと記す)、および前記のDOXと同様にインク層の架橋促進を目的とした2官能の3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3',4'-エポキシシクロヘキサンカルボキシレート(以下、EECと記す)の2種を選択した。それらの構造式を図1に示す。

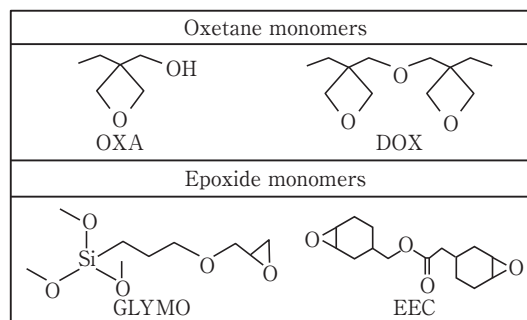


図1 光カチオン重合モノマーの構造
Fig. 1 Structures of cationic polymerizable monomers.

図2に光カチオン重合型モノマーの重合反応における特徴を示す⁸⁾。重合開始段階の反応速度は、環歪エネルギーに影響され、環歪エネルギーが大きいエポキシ系モノマー(114kJ/mol)の方が、オキセタン系モノマー(107kJ/mol)よりも速いことが知られている。一方、重合開始後のポリマー成長段階の反応速度は、モノマー中の環状エーテル酸素の塩基性に影響され、塩基度が高いオキセタン系モノマー(pKa 2.0)の方がエポキシ系モノマー(pKa 3.7)よりも速い⁸⁾。これらの特徴から、イン

Initiation stage	Reactivity stage
<p>Oxetane > Epoxide 114 > 107 Ring strain (kJ/mol)</p>	<p>Epoxide > Oxetane 2.0 > 3.7 Basicity (pKa)</p>

図2 光カチオン重合モノマーの硬化特性
Fig. 2 Curing properties in photo-cationic polymerization.

ク層の硬化を効率的に進めるために、成長反応にかかわるオキセタン系モノマーと重合開始にかかわるエポキシ系モノマーとの比を20:1~2:1の割合で混合し、オキセタン系モノマーの混合比が高い状態で重合するという報告例がある⁸⁾。本報では、耐候性向上を目的として架橋構造を主体とした比較的低重合度のインク層を形成するために、オキセタン系モノマーとエポキシ系モノマー混合比を4:1に固定して実験を行った。

表2に供試インクの組成を示す。オキセタン系モノマーとエポキシ系モノマーの組成比を4:1と固定したなかで、オキセタン系モノマーではOXAとDOXの混合比を、エポキシ系モノマーではGLYMOとEECの混合比をそれぞれ変化させた。それらのモノマーに赤色顔料〔酸化鉄(III), pigment red 101, (CAS:1309-37-1)〕、と顔料分散剤(PB822; 味の素ファインテクノ(株))を表2の組成比で混合させ、ペイントシェーカーで4時間分散処理した。その顔料分散体を取り出し、工業的に安定供給可能なスルホニウム塩系光カチオン重合開始剤(CPI-100P; サンアプロ(株), 50mass%プロピオンカーボネート溶液)を所定量添加することで評価用インクを作製した。

表2 供試インクの組成
Table 2 Outline composition of cationic polymerizable ink-jet ink

Component	Content (mass%)
Oxetane monomer (OXA, DOX)	60
Epoxide monomer (GLYMO, EEC)	15
Sulfonium salt cationic photoinitiator (CPI-100P) Solvent : Propylene carbonate 50mass%	14.5
Pigment (Ferric oxide (III), Pigment red 101, CAS : 1309-37-1)	10
Dispersing agent (PB822)	0.5

2.2 インクジェット印刷性を評価するための供試材

塗装原板として、板厚が0.27mm、片面当たりのめっき付着量が90g/m²の溶融55%Al-Zn合金めっき鋼板を使用した。アルカリ脱脂した塗装原板に、全クロム換算付着量が50mg/m²になるように塗布型クロメート処理液(NR300NS; 日本ペイント(株))で化成処理皮膜を形成した。次いで、エポキシ系プライマー塗料(700P; 日本ペイント(株))を、バーコーターを用いて化成処理皮膜の上に塗布し、到達板温215℃で焼付けて、乾燥膜厚5μmの下塗り塗膜を形成した。

インク受理層はポリエステル(数平均分子量5000, ガラス転移温度-23℃, 水酸基価28mgKOH/g, DIC(株)製)と、架橋剤としてのメチル化メラミン樹脂(サイメル303; 三井サイテック(株))を7:3で混合して得られたベース樹脂に、さらに触媒, アミン, および顔料を配合することで調整し、バーコーターを用いて下塗り塗膜の上に塗布し、到達板温225℃で1分間焼き付けることで、乾燥膜厚18μmのインクジェット印刷評価用塗装鋼板を用意した。

2.3 光カチオン重合時の硬化収縮力の測定

測定は図3に示したように、応力制御型レオメータ(AR-G2; TAインスツルメント)を用いて、25℃環境下で石英ガラスと8mmΦのアルミプレート間の100μmのギャップに充填したインクに石英ガラス側から紫外線(光源: 浜松ホトニクス(株)製高圧水銀ランプ, 紫外線

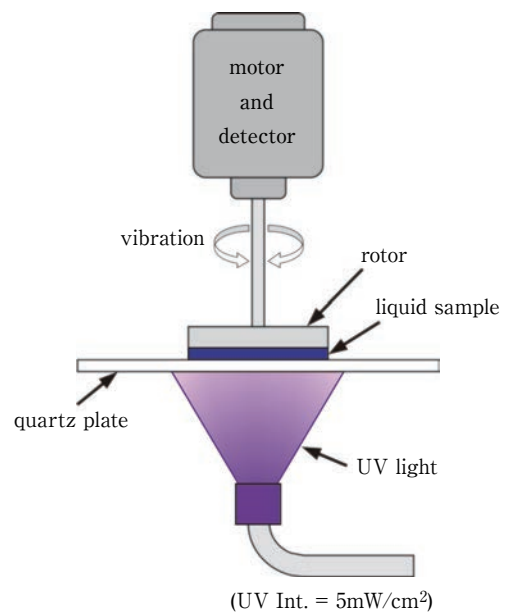


図3 光カチオン重合時の動的粘弾性測定
Fig. 3 Real-time dynamic rheological analysis measurement.

強度：5mW/cm²)を照射して、光カチオン重合中の動的粘弾性測定により、インク硬化収縮力を求めた。

2.4 インクの定常流粘度測定

インクジェット用インクとしての必須要件であるインクの定常流粘度測定は、コーンプレート型粘度計(R215型粘度計;東機産業(株))を用いて行った。外部循環恒温槽でインク温度を25℃一定とし、せん断速度を0.1s⁻¹~1000s⁻¹まで変化させ、インクの粘度を測定した。

2.5 インク層と塗装鋼板の密着性評価

2.2で作成した塗装鋼板に、インクをウェット膜厚10μmでバーコーター塗装した。インク塗装材に対して、高圧水銀ランプ(フュージョンUVシステムズ・ジャパン(株)製Hバルブ)を用いて、200W/cmのランプ出力で、積算光量：700mJ/cm²((株)オーク製作所製紫外線光量計UV-351-25で測定)となるように、紫外線を照射した。次に、炉内温度70℃の乾燥炉に入れて5分間加熱した。そしてJIS K5600-5-6に準拠した基盤目試験を実施した。インク層の表面に、1mm間隔で100個のマス目ができるように基盤目状の切り込みを入れ、その部分に粘着テープを貼り付けて、テープ剥離後、インク層の残存率を測定した。

2.6 インクの反応率測定

紫外線照射によるインクの反応率がおおよそインクと塗装鋼板の密着性の関係を調査するため、以下の方法でインクの反応率を求めた。

インクを、バーコーターを用いて、赤外線透過性を有するKBr板上にウェット膜厚が10μmになるように塗布し、紫外線を照射した。紫外線ランプは高圧水銀ランプ(光源:浜松ホトニクス(株)製)を使用し、紫外線強度は5mW/cm²で一定とした。調査時の気温は23±2℃、相対湿度50±5%にコントロールした。

インクの反応率は、フーリエ変換赤外分光光度計(FT/IR-410;日本分光(株)製)を用いて、リアルタイムFT-IR ATR法によりインクに紫外線を照射しながら測定した。

インクへの添加量がオキセタン系モノマーの1/4と少ないエポキシ系モノマーの開環反応からインクの反応率を検出することが困難であったため、式1より、977cm⁻¹のオキセタン系モノマーの開環反応からインクの反応率を算出した。

$$\frac{\text{照射前ピーク高さ}-\text{照射後ピーク高さ}}{\text{照射前ピーク高さ}} \times 100 \dots \dots \text{式 1}$$

2.7 屋外暴露試験(沖縄)

表3のインク組成を基準として、それぞれ表4の無機顔料を用いて、Cyan, Magenta, Yellow, Blackのインクを作製した。

表3 光カチオン重合インクジェットインクの最適組成

Table 3 Composition of cationic polymerizable ink-jet ink

Component		Content (mass%)
Oxetane monomer	OXA	40
	DOX	20
Epoxide monomer	GLYMO	5
	EEC	10
Sulfonium salt cationic photoinitiator (CPI-100P) Solvent: Propylene carbonate 50mass%		14.5
Pigment (Ferric oxide (III), Pigment red 101, CAS: 1309-37-1)		10
Dispersing agent (PB822)		0.5

表4 インクジェットインクの顔料

Table 4 Pigment of ink-jet ink

	Pigment
Cyan	Cobalt(II) aluminum oxide
Magenta	Ferric oxide (III)
Yellow	α-Ferric oxyhydroxide
Black	Carbon black

暴露場所は沖縄県宜野湾市を選定した。宜野湾暴露試験場は、沖縄本島の西岸に位置し、東シナ海から200mほど離れた場所で、亜熱帯地域に属するため、温度、湿度が高く、変退色環境としては最も厳しい部類に入る¹⁰⁾。

供試材は塗装鋼板上に、インク液滴体積42plのコニカミノルタ(株)製KM1024LHBヘッドを用いて、360dpi×360dpiの解像度で、Cyan, Magenta, Yellow, Blackの4色について、それぞれ全面印刷を行い、その上に、インク層の保護クリアー樹脂層として、乾燥膜厚が20μmで350nm以下の紫外線透過率を3~4%になるように紫外線吸収剤を配合した水系アクリルシリコンクリアー塗料(リブレ NSC-3;ナトコ(株))を塗装した。

供試材を210mm×300mmの寸法に切断し、4辺の切断端面部をラッカー塗料で被覆して、壁材を模擬して、南面90°の角度で暴露架台に取り付けた。

供試材を定期的に取り外して、表面外観と変退色挙動について調査した。

3. 結果および考察

3.1 インク密着性におよぼすオキセタン系モノマーの影響

オキセタン系モノマーのOXA/DOXの重量混合比を変化させた時のインク層と塗装鋼板の密着性について検討した結果を図4に示す。また、その際のエポキシ系モノマー GLYMO/EECの重量混合比は2.0一定とした。

OXA/DOXの重量混合比が0.5以上になるとインク層の密着性が著しく改善され、さらなる混合重量比の増加とともにインク層の密着性が向上した。これはOXAの水酸基が重合活性末端に連鎖移動することにより重合が促進され¹¹⁾、その結果、塗装鋼板との密着性が向上したと考えられる。

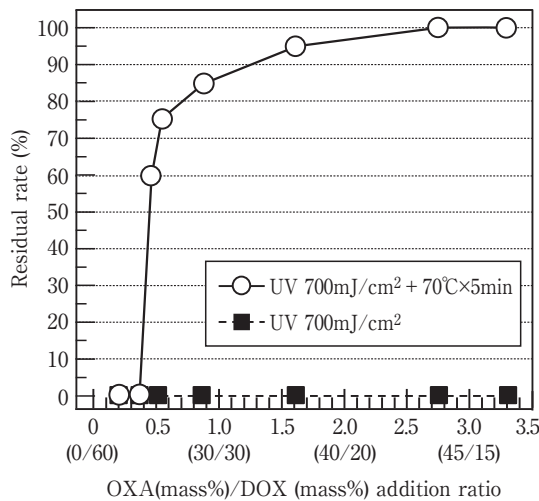


図4 クロスカット試験 (JIS K5600-5-6) によるOXA/DOX重量混合比とインク層残存率の関係

Fig. 4 Relationship between OXA (mass%)/DOX (mass%) addition ratio and the ink coating residual rate measured by the crosscut test (JIS K5600-5-6).

また、図4に示すように紫外線照射後に70°Cで5分間加熱処理しないと、すべてのOXA/DOX重量混合比において密着性は得られなかったことから、紫外線照射後の加熱処理は必須であることがわかった。詳細な加熱処理条件については後述する。

オキセタン系モノマーのOXA/DOXの重量混合比を変化させた時のインクの硬化収縮力測定結果を図5に示す。

OXA/DOXの重量混合比が増加するとインクの硬化収縮力が小さくなる。紫外線照射350mJ/cm²後において、OXA/DOXの重量混合比が0.15のインクに対して、

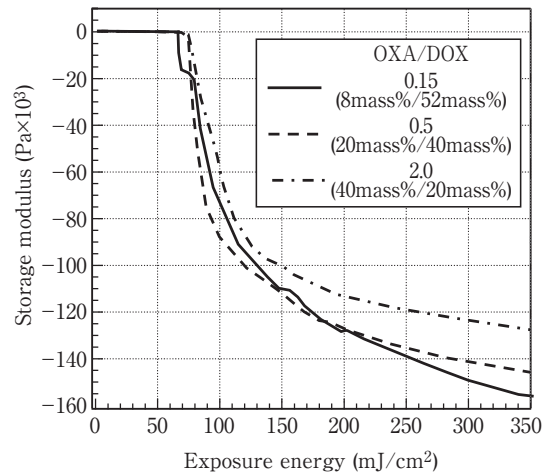


図5 OXA/DOX重量混合比と硬化収縮力の関係

Fig. 5 Relationship between OXA/DOX addition ratio and real-time dynamic rheological analysis results.

重量混合比が2.0のインクでは約30,000Paの硬化収縮力の低下が認められた。2官能モノマーであるDOXの添加率が高くなるほど、インク層の架橋密度ならびに硬化収縮率が高くなることが報告されている¹²⁾。図5もその作用が現れた結果と推察される。

以上の結果から、オキセタン系モノマーのOXA/DOXの重量混合比を増加させると、インク層と塗装鋼板との密着性が改善することが明らかとなった。その理由として、OXAの水酸基によるインク層の反応率の向上およびDOXの添加率低下によるインク層の硬化収縮力の低減が考えられたが、今回の実験では、それらの影響度合いまでは明らかにできなかった。一方、OXAは水酸基を有するため、吸湿性が高いことが知られている¹³⁾。OXA/DOXの混合比を高めすぎるとインクの紫外線硬化性が損なわれる¹⁴⁾ことから、OXA/DOXの重量混合比は2.0とした。

3.2 インクの流動特性におよぼすエポキシ系モノマーの影響

インクジェットインクには、1秒間に3,000回以上の吐出と休止の負荷が連続して掛けられることから、ニュートン流体であることが求められる¹⁵⁾。それを評価する方法の一つとして、定常流粘度測定がある。オキセタン系モノマーであるOXA/DOXの重量混合比を3.1で決定した混合比2.0一定とし、エポキシ系モノマーのGLYMO/EECの重量混合比を変化させた時の定常流粘度測定結果を図6に示す。

GLYMO/EECの重量混合比が0.5以上になると、インクはニュートン流体に近い粘度-ずり速度依存性の関係を示す。GLYMOの末端にはトリメトキシシリル基

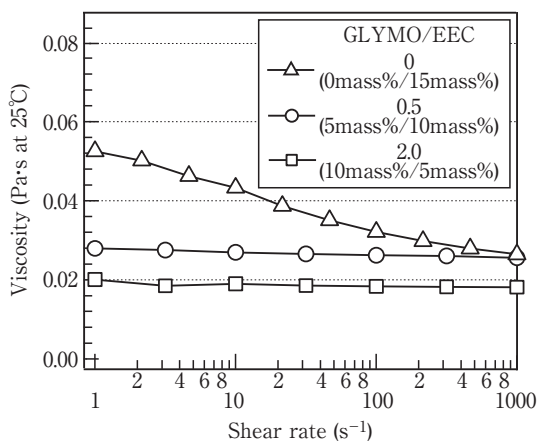


図6 GLYMO/EEC重量混合比によるカチオン重合インクジェットインクの定常流粘度変化

Fig. 6 Changes of steady shear viscosity for cationic polymerizable ink-jet ink with GLYMO/EEC addition ratio.

(図1)があり、それが加水分解によってシラノール基に変化すると、無機顔料の表面をGLYMOが覆うことになる¹⁶⁾。そのことより、無機顔料の表面エネルギーが低下し、顔料の分散性が向上した結果、ニュートン流体特性を示すようになったと考える。ただし、GLYMOのトリメトキシシリル基は水分との反応性が高く、インクの貯蔵安定性を低下させる要因となる。そのため、GLYMO/EECの重量混合比は0.5とした。これまでの結果をまとめたインクの最適組成を表3に示す。

3.3 塗装鋼板との密着性におよぼすカチオン重合モノマーの反応率の影響

紫外線照射量と表3に示したインクの反応率の関係を図7に示す。

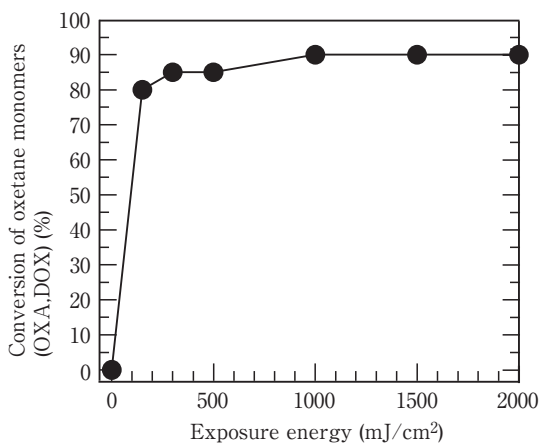


図7 紫外線照射によるオキセタン系モノマー反応率の変化
Fig. 7 Changes of conversion of oxetane monomers with UV irradiation.

インクの反応率は、紫外線照射量 $1,000\text{mJ}/\text{cm}^2$ で90%に到達するものの、その後、 $2,000\text{mJ}/\text{cm}^2$ まで増やしても、反応率の上昇は認められなかった。また、インクの反応率90%では、JIS K5600-5-6に準拠した基盤目試験により、塗装鋼板への密着性は得られなかった。

次にインクの反応率を向上させるために、加熱処理を行った。紫外線照射量 $500\text{mJ}/\text{cm}^2$ のサンプルを炉内温度 70°C の乾燥炉に入れて、加熱処理時間と反応率の関係を調査した結果を図8に示す。 70°C で2分以上の加熱処理を施すことにより、インクの反応率は88%から95%に向上し、JIS K5600-5-6に準拠した基盤目試験を実施したところ、塗装鋼板に対して十分な密着性が得られた。インク層を塗装鋼板と密着させるためには、紫外線照射後に加熱処理を施すことにより、カチオン重合モノマーの反応率を95%以上に上げる必要があることが分かった。

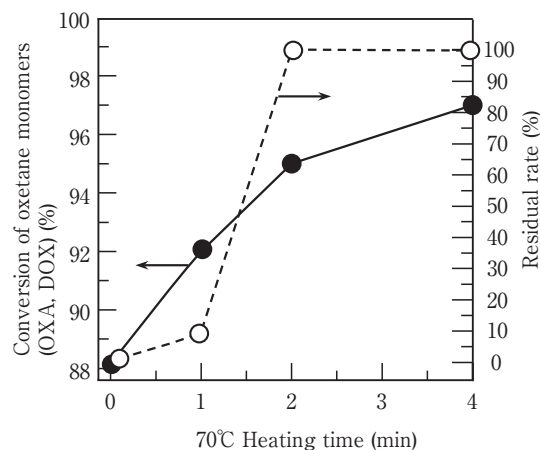


図8 70°C 加熱処理によるオキセタン系モノマー反応率とインク層残存率の変化

Fig. 8 Changes of conversion of oxetane monomers and the ink coating residual rate (JIS K5600-5-6) with 70°C heating treatment.

光カチオン重合においては、紫外線照射によって発生したプロトンの寿命が長いこと、紫外線照射後に加熱処理工程を入れることにより、紫外線が到達しにくいインク層と塗装鋼板の界面部分の重合(暗反応)¹⁷⁾が進むことによって、密着性が向上したと考えられる。

インク層を塗装鋼板に密着させるためのインク硬化条件を下記に示す。

- ① 紫外線照射条件 照射量 $500\text{mJ}/\text{cm}^2$ 以上
- ② 加熱処理条件 70°C 、2分以上

3.4 屋外暴露試験結果 (沖縄)

沖縄暴露5年前後の外観写真を図9に、各色の色差と光沢度の変化を図10に示す。印刷部は未印刷部と同様、色差 ΔE が1以下で推移していた。また、光沢度も両者で差異はほとんどなく、開発インクは優れた耐候性を有していた。

4. 結言

耐候性と密着性に優れた金属サイディング用光カチオン硬化性インクジェットインクの組成について検討した。得られた結果は以下の通りである。

- (1) オキセタン系モノマーとして添加したOXAとDOXの重量混合比を2:1とした。その結果、インク層の硬化収縮による密着不良と吸湿による硬化不良を

抑制することができた。

- (2) GLYMOの添加量を5 mass%以上にすることにより、無機顔料の分散性が向上し、インクはニュートン流体に近い粘度-ずり速度依存性を示した。

- (3) GLYMOのトリメトキシシリル基は反応性が高く、インクの貯蔵安定性を低下させることから、4種の光カチオン重合モノマーの重量混合比を以下のように設定した。

OXA : DOX : GLYMO : EEC = 8 : 4 : 1 : 2

- (4) インクと塗装鋼板を密着させるために必要な光カチオン重合モノマーの反応率は95%以上であった。その硬化条件は以下の通りである。

① 紫外線照射条件 500mJ/cm²以上

② 加熱処理条件 70℃, 2分以上

- (5) 沖縄に暴露して5年経過したインクジェット印刷供試材は、各原色の色差 ΔE が1以下で優れた耐候性を有していた。

なお、日新製鋼建材株式会社において、平成25年4月から開発インクを使用したインクジェット印刷金属サイディング「グラジェット®」が製造されている。

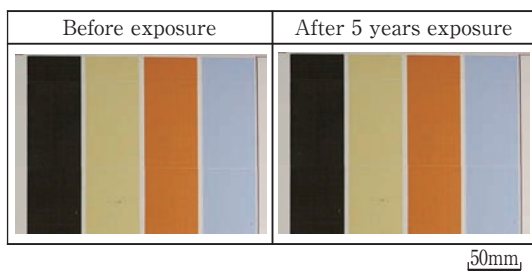


図9 沖縄で5年間屋外暴露したインクジェット印刷供試材の表面外観

Fig. 9 Appearance of the ink-jet printed metal siding in the atmospheric exposure test. (5 years, Okinawa)

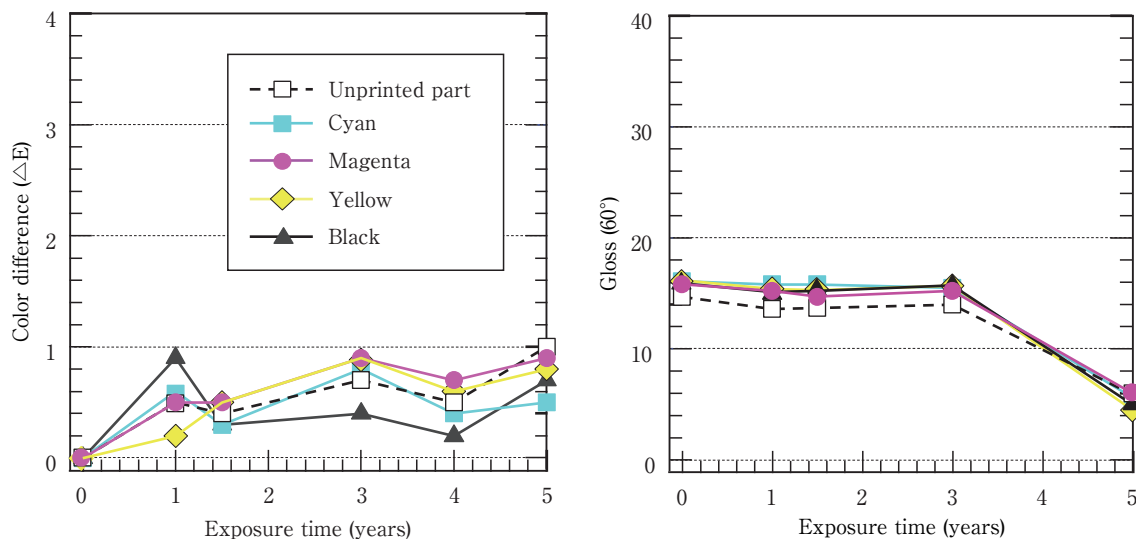


図10 沖縄で屋外暴露試験したインクジェット印刷供試材の色差と光沢の変化

Fig.10 Changes in ΔE and Gloss (60°) of the ink-jet printed metal siding in the atmospheric exposure test. (Okinawa)

参考文献

- 1) 松本幹夫, 福留和美: 塗料の研究, 145 (2006), 38
- 2) 佐藤正樹, 鈴木成寿, 杉田修一, 和泉圭二, 兼國憲一, 岡田祐一:
日新製鋼技報, 94 (2013), 44
- 3) 塩谷真, 岡崎猛史, 田村泰之: 電子写真学会誌, 37, No.2 (1998),
149
- 4) 小関健一, 紙崎信: 日本印刷学会誌, 44 (4) (2007), 209
- 5) 荒井健夫, 仲島厚志: KONICA MINOLTA TECHNOLOGY
REPORT, 4 (2007), 57
- 6) 小関健一, 猪俣智, 鄭京模: 日本印刷学会誌, 51 (3) (2014), 185
- 7) 角岡正弘: コンバーテック, 6 (2008), 30
- 8) 小池信明: J. Jpn. Soc. Colour Mater., 80 (3) (2007), 116
- 9) 公開特許公報: 特開2015-78321
- 10) 川口洋充, 三吉泰史, 橘高敏晴: 日新製鋼技報, 78 (1998), 52
- 11) 佐々木裕: 東亜合成研究年報, 2 (1999), 4
- 12) 佐々木裕: 東亜合成研究年報, 2 (2002), 4
- 13) 佐々木裕: 東亜合成研究年報, 8 (2005), 11
- 14) 小関健一, 大塚健祐: 日本印刷学会誌, 48 (1) (2011), 63
- 15) 野口弘道, 細田徹: 色材協会誌, 69 (12) (1996), 855
- 16) 山崎諒太, 藤井秀司, 中村吉伸, 永田員也: 日本接着学会誌, 50
(3) (2014), 82
- 17) J. V. Crivello, J. H. W. Lam, : J. Polym. Sci. Polym. Chem. Ed., 17
(1979), 977