(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-535503
(P2024-535503A)
(43)公表日　令和6年9月30日(2024.9.30)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
C09D 201/10	*(2006.01)*	C09D	201/10	4H006
C09D 7/63	*(2018.01)*	C09D	7/63	4J038
C09D 131/00	*(2006.01)*	C09D	131/00	
C07C 215/08	*(2006.01)*	C07C	215/08	
C07C 215/10	*(2006.01)*	C07C	215/10	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全14頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-520570(P2024-520570)
(86)(22)出願日　令和4年9月27日(2022.9.27)
(85)翻訳文提出日　令和6年5月29日(2024.5.29)
(86)国際出願番号　PCT/US2022/044864
(87)国際公開番号　WO2023/059477
(87)国際公開日　令和5年4月13日(2023.4.13)
(31)優先権主張番号　21075012.1
(32)優先日　令和3年10月4日(2021.10.4)
(33)優先権主張国・地域又は機関
欧州特許庁(EP)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,
最終頁に続く

(71)出願人　511026854
ヘキシオン・インコーポレイテッド
アメリカ合衆国、オハイオ・４３２１５、コロンブス、イースト・ブロード・ストリート・１８０
(74)代理人　110001173
弁理士法人川口國際特許事務所
(72)発明者　エイマン，ドゥニ
ベルギー国、１３４８・ルベン－ラ－ヌーブ、オティニ、アブニュ・ジャン・モネ・１、ヘキシオン・リサーチ・ベルギー・エス・アー

Fターム（参考）　4H006　AA03 AB40 AB49 BN10 BS10 BU32
4J038　CF001 CG141 EA011 GA
最終頁に続く

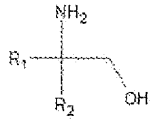
(54)【発明の名称】　分枝ビニルエステル（ｖｉｎｙｌ　ｂｒａｎｃｈｅｄ　ｅｓｔｅｒ）及びビニルシランで構成される常温硬化架橋性コポリマーに用いるための無黄変性触媒組成物

(57)【要約】
本発明は、低温（＜８０℃）にて湿気硬化可能な２パッケージ型の着色コーティング剤中でスズ塩の代替物として使用される触媒組成物に関する。低毒性のヒドロキシルアミンを単独により又は有機酸との組合せによりベースにした触媒は、色付きが少なく高性能のコーティング剤をもたらす。

10

20

【特許請求の範囲】
【請求項１】
溶剤含有一液型の硬化性コーティング組成物であって、
（Ａ）シロキサン結合の形成により架橋され得るケイ素含有基を有する有機ポリマーと、
（Ｂ）下記構造１
【化１】



の立体障害性第一級ヒドロキシルアミン、又は
（Ｃ）有機酸と組み合わされた構造１の立体障害性第一級ヒドロキシルアミンと
を含む、溶剤含有一液型の硬化性コーティング組成物。
【請求項２】
前記有機ポリマーが、Ｃ２～Ｃ１３炭素を有するカルボン酸のビニルエステルを含有する、請求項１に記載のポリマー。
【請求項３】
構造１の立体障害性第一級ヒドロキシルアミンが、固体樹脂を基準として０．２～５重量％、固体樹脂を基準として０．５～３．５重量％の範囲内の濃度で使用される、請求項１に記載の生成物。
【請求項４】
前記ヒドロキシルアミンと有機酸との組合せが、固体樹脂を基準として０．３～５重量％の範囲内の濃度、０．１／１～５／１の範囲内、好ましくは２／１～１．１／１の範囲内の酸／アミン重量比で使用される、請求項１に記載の生成物。
【請求項５】
構造１の立体障害性第一級ヒドロキシルアミンにおいて、Ｒ１が、ＣＨ３、ＣＨ２ＣＨ３、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）２、アルキル、シクロアルキル、アリールであり、Ｒ２が、アルキル、シクロアルキル、アリール、ヒドロキシアルキル、ＣＨ２ＯＨ、ＣＨ２ＣＨ２ＯＨであり、又は、Ｒ１及びＲ２が、連結されてシクロヘキサン環などの環状構造となっていてもよい、請求項１に記載の生成物。
【請求項６】
構造１の立体障害性第一級ヒドロキシルアミンが、２－アミノ－２－メチルプロパン－１－オール又は２－アミノ－２－エチル－１，３－プロパンジオールである、請求項１に記載の生成物。
【請求項７】
前記有機酸がアルキルカルボン酸である、請求項１に記載の生成物。
【請求項８】
前記有機酸が、酢酸、プロパン酸、ヘキサン酸、ネオデカン酸、及びこれらの組合せである、請求項１に記載の生成物。
【請求項９】
アミノ基で置換されたシラン化合物及び／又はエポキシ基で置換されたシラン化合物を含有する、請求項１～８のいずれかに記載の生成物。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、低温（＜８０℃）にて湿気硬化可能な１パッケージ型の（ｏｎｅ　ｐａｃｋａｇｅ）着色コーティング剤中でスズ塩の代替物として使用される触媒組成物に関する。低毒性のヒドロキシルアミンを単独により又は有機酸との組合せをベースにした触媒は、色付きが少なく（ｌｏｗ　ｃｏｌｏｒ）高性能のコーティング剤をもたらす。
【背景技術】

【０００２】
コーティング調合物におけるシランの使用は周知であり、特にアクリルシランコーティング組成物は、許容される硬化速度を有し、硬化させると、良好な物理的及び化学的特性を有する塗膜を生成する。これらの塗料に現在用いられている触媒はスズ系の塩であるが、こうしたスズ組成物が有する１つの重要な不利点は、その高毒性である。数十年来、この主要な欠点を解決するための選択肢を求めた取組みが業界により行われてきた。
【０００３】
ＵＳ３，０９４，４９７は、シランを縮合させるための触媒としてのアミンカルボキシレートの使用に関する。実施例１に、第一級、第二級、及び第三級アミンをカルボキシレート及びポリホスフェートと組み合わせることにより作製された触媒のリストが挙げられている。そこには、ヒドロキシルアミンについての言及はない。
【０００４】
ＵＳ３，２０８，９６１は、一酸化鉛及び炭酸鉛などの鉛化合物をカルボン酸のアンモニウム塩と「インサイチュで」組み合わせることを開示している。
【０００５】
ＵＳ１０６４０６４１は、非スズ系硬化性組成物であって、（Ａ）反応性ケイ素含有基を有する１つ以上の有機ポリマーであり、少なくとも１つのポリマーが、（中略）飽和炭化水素ポリマー及び（メタ）アクリル酸エステルポリマーを有する、１つ以上の有機ポリマー、（Ｂ）１つ以上の金属アミジン錯体及び１つ以上のアミンカルボキシレート塩からなる０．００１～２０重量部（中略）のシラノール縮合触媒、を有する非スズ系硬化性組成物を記載している。
【０００６】
ＪＰ－Ａ－５－１１７５１９又はＥＰ０５３８８８１は、カルボン酸及びアミンを一緒に使用することにより硬化性能は急に改善されるものの、こうして得られた組成物は十分な接着性に欠けるという欠点を有する、ということを開示している。加えて、このような触媒の保存安定性は望ましいものではなく、当該組成物の保存中に早期ゲル化が生じる可能性がある。一連の適当なカルボン酸及びアミンが開示されている。そのうちヒドロキシルアミンは、イソプロパノールアミン及びモノエタノールアミンのみである。この文献は、ヒドロキシルアミンの実際の使用例についても、ヒドロキシルアミンが有する他のアミンに比して優れた特性を著者らが見出したという証拠についても、言及していない。アミンが色に及ぼす効果、及び、その点で一部のアミンが有する可能性のあるより優れた性能については、考察されていない。
【先行技術文献】
【特許文献】
【０００７】
【特許文献１】米国特許第３０９４４９７号明細書
【特許文献２】米国特許第３２０８９６１号明細書
【特許文献３】米国特許第１０６４０６４１号明細書
【特許文献４】特開平５－１１７５１９号公報
【特許文献５】欧州特許出願公開第０５３８８８１号明細書
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００８】
このことは、環境及び毒性の側面から置きかえられるべき現在の有機スズ塩に代わる触媒を塗料業界が未だに探し求めていることを明確に示している。
【課題を解決するための手段】
【０００９】
（発明の要旨）
特にアクリルシランコーティング組成物の硬化に関する調査を経て、本発明者らは、立体障害性第一級ヒドロキシルアミンの単独による又は有機酸との組合せによる使用はスズ

触媒の代替物を当業界にもたらす、ということを見出した。

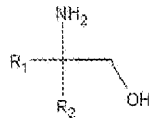
【発明を実施するための形態】

【００１０】

本発明は、下記構造１に定義の立体障害性第一級ヒドロキシルアミンの単独による又は有機酸との組合せによる触媒としての使用に関するものである。

【００１１】

【化１】



【００１２】

構造１

本発明のアミンは、第四級炭素原子に結合している置換基のうちの少なくとも１つがヒドロキシル官能基を有する、第一級アミンである。

【００１３】

Ｒ１＝ＣＨ３、ＣＨ２ＣＨ３、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）２、アルキル、シクロアルキル、アリールであり、Ｒ２＝アルキル、シクロアルキル、アリール、ヒドロキシアルキル、ＣＨ２ＯＨ、ＣＨ２ＣＨ２ＯＨである。

【００１４】

Ｒ１及びＲ２は、連結されて環状構造となって例えばシクロヘキサン環を形成していてもよい。

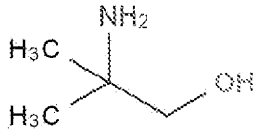
【００１５】

このファミリーの例は、

２－アミノ－２－メチルプロパン－１－オール（ＡＭＰ）

【００１６】

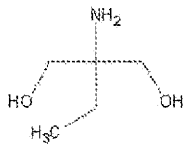
【化２】



、又は２－アミノ－２－エチル－１　３－プロパンジオール（ＡＥＰ）

【００１７】

【化３】



、及びトリス（ヒドロキシメチル）アミノメタン

である。

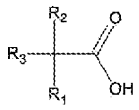
【００１８】

本発明の別の実施形態は、構造１のヒドロキシルアミンと有機酸との組合せである。好ましい有機酸は、アルキルカルボン酸、すなわちＲ３　ＣＯＯＨであり、式中、Ｒ３は、ＣＨ３、ＣＨ２ＣＨ３、アルキル、分枝鎖アルキル、シクロアルキルである。

【００１９】

酸の例としては、酸、プロパン酸、ヘキサン酸、２－エチルヘキサン酸、ネオデカン酸（Ｈｅｘｉｏｎ　Ｉｎｃ．製のＶｅｒｓａｔｉｃ　１０）が挙げられる。

【００２０】
【化４】



【００２１】
構造１のヒドロキシルアミンは、好ましくは、固体樹脂を基準として０．２～５重量パーセントの濃度で使用される。最も好ましいレベルは、固体樹脂を基準として０．５～３．５重量％の範囲内である。
【００２２】
ヒドロキシルアミンと有機酸との組合せは、固体樹脂を基準として０．３～５重量％の範囲内の濃度０．１／１～５／１の範囲内、好ましくは２／１～１．２／１の範囲内の酸／アミン重量比で使用される。アミンと酸との組合せは相乗効果を示し、結果として、以下の実施例において示すとおり、改善された塗膜特性をもたらす。
【００２３】
本発明を、その代表的な利点を含め、より良く理解できるように、以下の実施例を提供する。
【実施例】
【００２４】
本明細書において提示される本発明を当業者がより十分に理解できるように、以下の手順及び実施例を記載する。特に指示がない限り、以下の測定単位及び定義が本出願において適用される。すなわち、部及び百分率はすべて重量基準であり、温度はセ氏温度（℃）である。
【００２５】
実験の部
以下の実施例において、データは以下の手順に従って導かれた。
【００２６】
固形分：固形分は、コーティング調合物中に存在する不揮発性物質の重量百分率である。固形分は、換気オーブン中に１１０℃にて１時間置かれたときの重量減少により測定される。
【００２７】
粘度：粘度は、流れに対するポリマー調製物の抵抗性である。粘度は、Ｂｒｏｏｋｆｉｅｌｄ粘度計により決定される。
【００２８】
分子量：分子量は、ゲル浸透クロマトグラフにより決定される重量平均Ｍｗ及び数平均Ｍｗの形で与えられる。ゲル浸透クロマトグラフにおいては、参照物質としてポリスチレンを、溶出溶媒としてテトラヒドロフランを、また、検出器として、例えばＤＩＮ規格５５６７２に記載されている屈折率などを用いる。
【００２９】
可使時間：可使時間は、ポリマー組成物が実際の塗布に使用され得る時間の長さの推定値である。可使時間は、調合された系の塗布がいったん実施されてから、当該系の粘度が、密閉された缶中での最初の粘度の２倍になるのに要する時間により、典型的に決定される。
【００３０】
品質保持期間：品質保持期間は、調合されたバインダーが、典型的な保存条件下においてその性能を失うことなく保存され得る推定期間である。品質保持期間は、粘度変化を測定することにより典型的に決定される。
【００３１】
耐溶剤性：ＡＳＴＭ　Ｄ４７５２においては、焼き付けた塗膜の表面を、メチルエチル

ケトンすなわちＭＥＫを染み込ませたチーズクロスを使って塗膜の破損又は破綻が生じるまで摩擦する方法が用いられる。摩擦は、往復摩擦（ｄｏｕｂｌｅ　ｒｕｂ）としてカウントされる（前方への摩擦１回及び後方への摩擦１回が１往復摩擦を構成する）。

【００３２】

硬度：Ｋｏｅｎｉｇ振り子硬度テストは、振り子の振動振幅は、より軟らかい表面が支点になっているときほど早く減少する、という原理に基づいている。表面硬度に対する振動運動の減衰に関係する硬度テストはいくつかある。

【００３３】

色：樹脂を視覚的に比較し、無色透明の樹脂を０、最も色の濃い樹脂を５としてスコアを付けた。

【００３４】

以下の実施例を実施したが、本実施例は、本発明を例証するために提供されるものであり、本発明の範囲を限定するものと解釈されるべきではない。

【００３５】

［実施例１］　シリル化された（ｓｉｌｌｉｌａｔｅｄ）樹脂の合成

スターラー及び冷却器を備えた反応装置に、表１の原料を充填する。

【００３６】

【表１】

表1

反応装置への初期充填	重量 phm（100 モノマー当たり）	3L 反応装置中における重量(g)
酢酸ブチル		391.8
Luperox 531M80	0.40	8.4
モノマーミックス		
VeoVa 9*	52.00	1091.8
VeoVa 10*	28.00	587.9
ビニルトリメトキシシラン Silquest A171	5.00	105.0
メタクリルオキシプロピルトリメトキシシラン Silquest A174	15.00	315.0
過酸化物 Luperox 531M80	0.80	21.0
ブースター		
Luperox 531M80	1.60	42.0
酢酸ブチル		150.0
モノマーミックス投入時間(hr)	4	温度条件 115℃
ブースター投入時間(hr)	1	温度条件 115℃
後加熱(post cooking)(hr)	1	温度条件 115℃
モノマーの総重量(g)		2099.7
総固形分(g)		2171.1
総取込量(g)		2712.9
固形分含有率%		79,4 重量%
粘度		16033 cP

＊ ネオノナン酸のビニルエステル

＊ ネオデカン酸のビニルエステル

【００３７】

酢酸ブチルを反応装置中に注ぎ、１１５℃に加熱した。この温度に達したら、Ｌｕｐｅｒｏｘ　５３１Ｍ８０を加え、モノマーミックス及びＬｕｐｅｒｏｘの４時間かけての投入を開始した。その後、反応装置の温度を１１５℃に維持しながら、ブースターミックスを１時間かけて添加した。最後に、反応装置を６０℃未満に冷却した。

【００３８】

実施例１の樹脂を、酢酸ブチルを用いて希釈することにより粘度１００ｃＰに到達させ、表２に示すとおりの分量の触媒と混合した。

【００３９】

調合されたクリアコートを、スチールパネル上にウェット膜厚およそ１００ミクロンにてバーコーターによって塗布し、およそ２３℃及び相対湿度５０％の条件で少なくとも１週間（１６８時間）、乾燥硬化させた。コーティングの硬化及び固化（ｈａｒｄｅｎｉｎｇ）の進行を、Ｋｏｅｎｉｇ硬度により測定した。また、液体試料の黄変を視覚的に判定した。試料は、黄変なし：０～濃い黄変：４のランクが付けられた。

【００４０】

【表２】

表2

#	アミンの種類	固体樹脂を基準としたアミンの重量%	168時間経過時のKoenig硬度 [s]	色 0:無色透明 5:濃色
1	2-アミノ-2-メチル-1-プロパノール(AMP)	1	80	0
2	2-アミノ-2-メチル-1-プロパノール(AMP)	5	50	2
3	2-アミノ-2-エチル-1,3-プロパンジオール (AEP)	1	42	0
4	2-アミノ-2-エチル-1,3-プロパンジオール (AEP)	5	28	0
比較例				
5	アミノプロピルトリメトキシシラン	1	22	3
6	アミノプロピルトリメトキシシラン	3	27	4
7	アミノプロピルトリエトキシシラン	1	27	3
8	アミノプロピルトリエトキシシラン	3	51	4
9	N-(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリメトキシシラン	1	12	4
10	γ-ウレイドプロピルトリメトキシシラン	1	10	0
11	ヘキサメチレンジアミン	1	49	3
12	モノエタノールアミン	1	74	3
13	モノエタノールアミン	5	37	3
14	ジブチルアミン(DBU)	1	83	2

15	ジブチルアミン	5	95	2
16	トリエチレンテトラミン	1	50	2
17	トリエチレンテトラミン	5	28	2
18	N,N-ジメチルベンジルアミン	1	32	1
19	ジブチルスズジラウレート	1	70	0

【００４１】
表２の結論：非スズ系触媒のうち、ＡＭＰ及びＤＢＵのみが高反応性を示している。加えて、ＡＭＰは、低濃度において、より薄い色を呈している。ジブチルアミンは、非常に良好な反応性を示しているが、高い毒性を有する。ＡＭＰ及びＡＥＰは、１％レベルの場合、ここで使用した他のアミンと違って樹脂の黄変をもたらさない、ということも理解される。
【００４２】
ＡＭＰ及びＡＥＰは、反応性が高く、黄変が少なく、非スズ系である、という利益を併せ持っている。
【００４３】
［実施例２］　シリル化された樹脂の合成
スターラー及び冷却器を備えた反応装置に、表３の原料を充填する。
【００４４】

【表３】

反応装置への初期充填	重量phm（100モノマー当たり）	3L反応装置中における重量(g)
n-ブチルアセテート	23,6	507
ACH-80-AL3 (United initiator)	0,90	19,4
メチルトリメトキシシラン	2,5	54
n-ブタノール	2,5	54
モノマーミックス		
VeoVa 9	52,0	1118
VeoVa 10	28,0	602
Silquest A171	5,0	107,5
Silquest A174	15,0	322,5
ACH-80-AL3	0,90	19,4
ブースター		
ACH-80-AL3	1,33	28,7
n-ブチルアセテート	2,0	43
モノマーミックス投入時間(hr)	4	温度条件105℃
ブースター投入時間(hr)	1	温度条件105℃
後加熱(hr)	1	温度条件105℃
モノマーの総重量(g)		2150,9
総固形分(g)		2184,7
総取込量(g)		2878,96
固形分含有率%		76,8重量%

【００４５】

酢酸ブチルを反応装置中に注ぎ、１０５℃に加熱した。この温度に達したら、Ｌｕｐｅｒｏｘ　５３１Ｍ８０を加え、モノマーミックス及びＬｕｐｅｒｏｘの４時間かけての投入を開始した。その後、反応装置の温度を１０５℃に維持しながら、ブースターミックスを１時間かけて添加した。反応装置を６０℃未満に冷却し、ビニルトリメトキシシラン２ｐｈｍを樹脂に加え、最後にｎ－ブチルアセテート３０ｐｈｍを加えて、粘度を約１００ｃＰに低下させた。

【００４６】

［実施例３］　塗料の調製

１Ｋ湿気硬化塗料を、実施例２の樹脂２４０ｇ、分散化剤Ｄｉｓｐｅｒｐｌａｓｔ　Ｐ６．４９ｇ、レベリング剤ＢＹＫ３５８Ｎ　２．３ｇ、消泡剤ＢＹＫ０７７　２．３ｇ、たれ防止剤Ｓｏｌｔｈｉｘ２５０　４．６６ｇ、及び疎水性二酸化チタンＴｉ－ＰｕｒｅＲ３５０　１２９．７ｇを粉砕下に用いて調製した。レットダウンには、エトキシエチルプロピオネート５８．４ｇ及びメチルアミルケトン５９．９ｇを用いた。缶中における塗料の早期硬化を回避するために、低含水性の原料が好ましかった。最後に、固体ポリマーを基準として３％量のＣｏａｔｏｓｉｌ　ＭＰ２００を接着促進剤として加えた。

【００４７】

クリアコート用としての触媒の評価：

一連の触媒を、実施例２の樹脂と混合した。こうして調合されたクリアコートを、スチールパネル上にウェット膜厚およそ１００ミクロンにてバーコーターによって塗布し、およそ２３℃及び相対湿度５０％の条件で少なくとも１週間（１６８時間）、乾燥硬化させた。コーティングの硬化及び固化の進行を、Ｋｏｅｎｉｇ硬度及び耐溶剤性により測定した。

【００４８】

【表４】

表4

#	触媒	乾燥樹脂を基準とした触媒の重量%	7日経過時のKonig硬度 [s]	24時間経過時のMEK耐性 [回]
比較例1	DBTDA	0,5	150	38
1	AMP	0,3	115	39
2	Versatic 10	0,5	15	1
3	Versatic 10	2.0	24	1
4	Versatic 10/AMP	0,5/0,3	138	66
比較例2	Versatic 10/DBU	0,5/03	104	65

【００４９】

この表から得られる結論：使用したカルボン酸（Ｖｅｒｓａｔｉｃ　１０）とヒドロキシルアミン（ＡＭＰ）との間には相乗効果がある。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US 22/44864

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC - INV. C08K 3/28, C08K 5/17, C08K 5/16 (2022.01)
ADD. C08K 5/54 (2022.01)
CPC - INV. C08K 3/28, C08K 5/17, C08K 5/16, C08K 5/5415
ADD. C08K 5/54
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
See Search History document

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
See Search History document

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
See Search History document

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 10,640,641 B2 (KING INDUSTRIES INC) 5 May 2020 (05.05.2020), especially: col 1, ln 16-22; col 3, ln 6-15; col 8, ln 46-67; col 11, ln 17-67; col 22, ln 39-67; col 43, ln 28-38; col 44, ln 14-23; col 44, ln 38-67.	1-8
Y	US 8,663,740 B2 (FLOSBACH et al.) 4 March 2014 (04.03.2014), especially: col 2, ln 56-67; col 9, ln 8-20.	1-8
A	US 3,094,497 A (HYDE et al.) 18 June 1963 (18.06.1963), entire document.	1-8
A	US 2009/0076217 A1 (GOMMANS et al.) 19 March 2009 (19.03.2009), entire document.	1-8

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"D" document cited by the applicant in the international application
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
2 December 2022	JAN 06 2023
Name and mailing address of the ISA/US Mail Stop PCT, Attn: ISA/US, Commissioner for Patents P.O. Box 1450, Alexandria, Virginia 22313-1450 Facsimile No. 571-273-8300	Authorized officer Kari Rodriquez Telephone No. PCT Helpdesk: 571-272-4300

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2022)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US 22/44864

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☒ Claims Nos.: 9
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

フロントページの続き

(51)国際特許分類	FI	テーマコード（参考）
C07C 53/128 (2006.01)	C07C 53/128	

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

Fターム（参考） 15 JA37 JA38 JB01 JC34 JC35 KA04 NA27 PA20