

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 4 月 10 日 (10.04.2003)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 03/029374 A1

- (51) 国際特許分類: C09D 179/04, (AIZAWA, Masami) [JP/JP]; 〒113-8662 東京都文京区本駒込二丁目28番8号 文京グリーンコート センターオフィス 9 階 クラリアントジャパン株式会社内 Tokyo (JP).
C08G 73/18, B05D 7/24, B29C 41/02
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/10195
- (22) 国際出願日: 2002 年 9 月 30 日 (30.09.2002) (74) 代理人: 吉武 賢次, 外(YOSHITAKE, Kenji et al.); 〒100-0005 東京都千代田区丸の内三丁目2番3号 富士ビル323号 協和特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): KR, US.
- (30) 優先権データ: 特願2001-303323 2001 年 9 月 28 日 (28.09.2001) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): クラリアントインターナショナルリミテッド (CLARIANT INTERNATIONAL LTD.) [CH/CH]; CH-4132 ムッテンツ 1、ロートハウスシュトラーゼ 6 1 MuttENZ (CH). 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 相澤 雅美
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: METHODS OF FORMING POLYBENZIMIDAZOLE COATING FILM AND OF FORMING FILM

(54) 発明の名称: ポリベンゾイミダゾール被膜およびフィルムの形成方法

(57) Abstract: A method of forming a polybenzimidazole coating film on a substrate surface; and a method of forming a polybenzimidazole film. The former method comprises applying a solution containing a prepolymer for polybenzimidazole to a substrate surface and heating the coating to cyclize the prepolymer to thereby form a cured coating film on the substrate surface. The latter method comprises peeling the cured coating film from the substrate to form a film.

(57) 要約:

基材表面にポリベンゾイミダゾールの被膜を形成させる方法、およびポリベンゾイミダゾールのフィルムを形成させる方法を提供する。本発明は、ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを含んでなる溶液を基材表面に塗布し、その塗布された被膜を加熱することによって、前記プレポリマーを環化させて、基材表面に硬化塗膜を形成させる方法、ならびに形成された被膜を基材から剥離してフィルムを形成させる方法に関するものである。



WO 03/029374 A1

明 細 書

ポリベンゾイミダゾール被膜およびフィルムの形成方法

発明の分野

本発明はポリベンゾイミダゾール被膜の形成方法に関するものである。さらに詳しくは、本発明は、ポリベンゾイミダゾールプレポリマーの溶液を基材上に塗布し、溶液中でプレポリマーを環化させ、基材を被覆するポリベンゾイミダゾール被膜を形成させる方法に関するものである。

背景技術

ポリベンゾイミダゾールは優れた耐エネルギー性および耐薬品性を持つものである。しかし、このような特性のうち、優れた耐薬品性、例えば耐溶剤性、のためにポリベンゾイミダゾールは溶剤への溶解性が低く、比較的濃度の低い溶液しか得ることができない。またこの特性のために、濃度を高くすることによって溶液の粘度を高くすることが難しい。このため、例えば基材に塗布して塗膜を形成させようとした時に厚い塗膜を得ることが困難である。

一方、ポリベンゾイミダゾールは、その特性から半導体製造装置などに利用することが期待される。すなわち、金属などで構成される製造装置の表面をポリベンゾイミダゾールの被膜で被覆することによって、製造装置を保護すると共に、製造される半導体装置が金属と接触することを防いで不純物の混入を防ぐことができる。しかしながら、前記したようにポリベンゾイミダゾールの溶液を塗布して十分な厚さの被覆を形成させることは困難であった。このような問題を解決するために、金属の可溶化剤を混入することも検討されているが、そのような方法でも溶解性を大きく改良することは不可能であり、また金属不純物の混入の原因となるために好ましくないことであった。

発明の概要

<要旨>

本発明の基材表面に硬化塗膜を形成させる方法は、ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを含んでなる溶液を基材表面に塗布し、その塗布された被膜を加熱することによって、前記プレポリマーを環化させることを特徴とするものである。

<効果>

本発明による被膜の形成方法によれば、高濃度のプレポリマー溶液を用いることによって、基材上に従来得ることのできなかった厚さのポリベンゾイミダゾールからなる被膜を形成させることができ、基材表面に、耐熱性、耐薬品性などの特性を付与することができる。

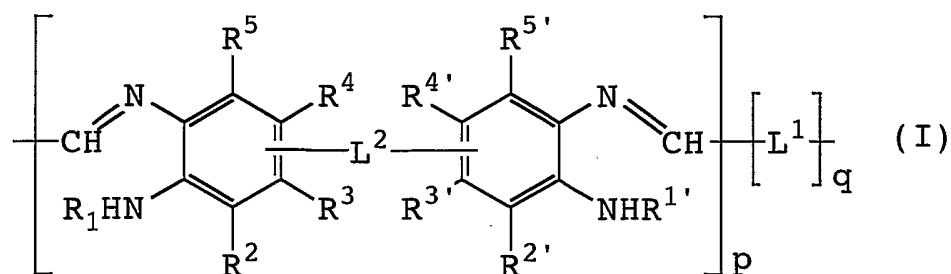
発明の具体的説明

プレポリマー

本発明による方法において、ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーとは、必要に応じて加熱することなどにより、環化してポリベンゾイミダゾール樹脂を形成するものをいう。その分子量などは特に限定されないが、用いる溶剤に対する溶解性が高く、また環化によって十分に硬化し得るように選択される。

ここで、ポリベンゾイミダゾールとは、置換または非置換のベンゾイミダゾールをモノマー単位として含む重合体をいう。ベンゾイミダゾールが置換基を有する場合、その置換基は本発明の効果を損なわない範囲で任意に選択される。

好ましいポリベンゾイミダゾールは、下記一般式 (I) で表されるものである。



ここで、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ および $\text{R}^{1'} \sim \text{R}^{5'}$ は、それぞれ独立に選択される置換基であり、 L^1 は 2 価の連結基であり、

L^1 は、 $R^1 \sim R^6$ のいずれか一つと、 $R^{1'} \sim R^{6'}$ のいずれか一つとを連結する2価の連結基であり、

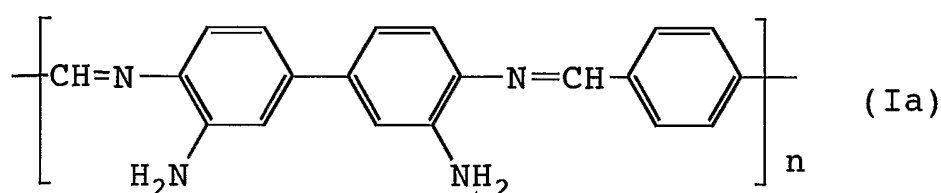
pおよびqは重合度を表す数である。

ここで、 $R^1 \sim R^6$ および $R^{1'} \sim R^{6'}$ は、それぞれ独立に、水素、炭素数1～10のアルキル基、炭素数6～12のアリール基、ハロゲン、水酸基、炭素数1～10のアルコキシル基であることが好ましく、

L^1 および L^2 は、それぞれ独立に、単結合であるか、カルコゲン原子、芳香族化合物、脂肪族化合物、脂環式化合物、または複素環化合物からなる2価の連結基であることが好ましい。

L^1 または L^2 が脂肪族化合物からなる連結基である場合は、炭素数が1～8のアルキレンであることがより好ましく、芳香族化合物である場合は、フェニレン、またはナフチレンであることが好ましく、複素環化合物からなる連結基である場合は、ピリジニレン、ピラジニレン、フラニレン、キノリニレン、チオフェニレン、ピラニレン、インデニレン、またはフリレニレンであることが好ましく、カルコゲンからなる連結基である場合は、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ であることが好ましい。

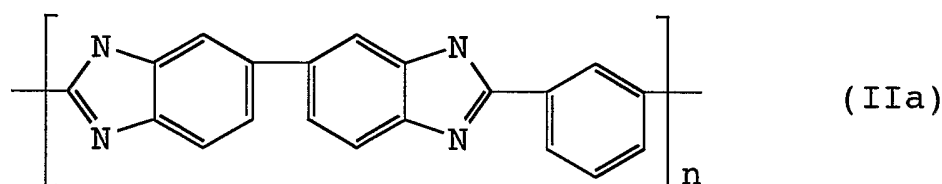
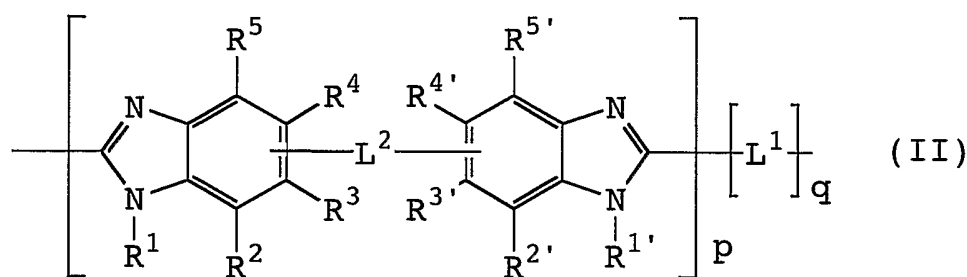
このような一般式(I)で示されるプレポリマーのうち、好ましいのは、以下の一般式(Ia)で示されるものである。



ここでnは重合度を表す数である。

このような一般式(I)で表されるプレポリマーを縮合させて得られるポリベンゾイミダゾールは、一般式(II)で表され、特に一般式(Ia)で表されるプレポリマーを縮合させて得られるポリベンゾイミダゾールは、一般式(IIa)で表される。

4



ここで、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^6$ 、 $\text{R}^{1'} \sim \text{R}^{6'}$ 、 L^1 、 L^2 、 p 、 q 、および n は前記したとおりである。

本発明による方法では、最終的にポリベンゾイミダゾールが生成する。このポリベンゾイミダゾールは、その構造や分子量などに応じて、広範な範囲の固有粘度を取り得るが、本発明において、ポリベンゾイミダゾールの分子量は一般に2,000~1,000,000、好ましくは2,000~300,000、より好ましくは5,000~100,000、である。また、本発明に用いるポリベンゾイミダゾールは、その固有粘度が0.2以上であることが好ましい。

このようなポリベンゾイミダゾールの具体例は、下記のものである。

ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジベンゾイミダゾール (一般式(II))、
 ポリ-2,2'-(ジフェニレン-2'',2'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
 ポリ-2,2'-(ジフェニレン-4'',4'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
 ポリ-2,2'-(1'',1'',3''-トリメチルインダニレン)-3'',5''-*p*-フェニレン-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
 2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジベンゾイミダゾール/2,2'-(1'',1'',3''-トリメチルインダニレン)-3'',5''-*p*-フェニレン-5,5'-ジベンゾイミダゾール共重合体、
 2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジベンゾイミダゾール/2,2'-(ジフェニレン-2'',2'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール共重合体、
 ポリ-2,2'-(フリレン-2'',5'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール、

ポリ-2,2'-(ナフタレン-1'',6'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
ポリ-2,2'-(ナフタレン-2'',6'')-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
ポリ-2,2'-アミレン-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
ポリ-2,2'-オクタメチレン-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
ポリ-2,2'-シクロヘキセニル-5,5'-ジベンゾイミダゾール、
ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)エーテル、
ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)サルファイド、
ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)スルホン、
ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)メタン、
ポリ-2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)プロパン2,2、および
ポリ-エチレン-1,2,2,2'-(*m*-フェニレン)-5,5'-ジ(ベンゾイミダゾール)エチレン-1,2。

溶剤

本発明による方法において、溶剤は上記のポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを溶解させるためのものであり、そのプレポリマーが溶解し、かつそのプレポリマーまたは環化後のポリマーを分解させないものであることが好ましい。溶解性の観点からは、溶剤は極性溶剤であることが好ましい。

このような溶媒、特に極性溶媒、として好ましいものは、メチルピロリドン、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、ジエチルアセトアミド、ジメチルメトキシアセトアミド、ジメチルスルホン、およびそれらの混合物である。

プレポリマー溶液

本発明の方法に用いる、ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを含んでなる溶液は、前記のポリベンゾイミダゾールを前記の溶剤に溶解させたものである。このような溶液を得るためには、(1)プレポリマーを溶剤に溶解させる方法と、(2)プレポリマーの前駆体、すなわちモノマー、を液相において反応させて、その反応後の液体をそのままプレポリマー溶液とする方法とが挙げられる。

プレポリマーを溶剤に溶解させる場合、最終的に得られるポリベンゾイミダゾール被膜の厚さを高くすることができ、かつ塗布性を維持するために、1～50重量%とすることが好ましく、20～30重量%とすることがより好ましい。

モノマーを液相において反応させてプレポリマー溶液を生成させる場合、前記のプレポリマーは、例えば、一般式 (I) のひとつめの括弧に対応するテトラアミノジフェニルと、一般式 (I) のふたつめの括弧に対応するジアルデヒドとを適当な溶剤中で反応させることにより得ることができる。例えば、 $R^1 \sim R^6$ 、 $R^{1'} \sim R^{6'}$ がすべて水素であり、 L^1 がフェニルであり、 L^2 が単結合であるプレポリマーは、3, 3', 4, 4' -テトラアミノジフェニルとジアルデヒドベンゼンとを反応させることにより生成させることができる。

そして、それぞれのモノマー溶液を反応させてプレポリマーを生成させる場合には、反応後にプレポリマーの溶液が得られる。このプレポリマー溶液をそのまま基材に塗布することができれば、工程を簡便化することができる。従って、モノマーの溶剤として、プレポリマーの溶解性が高いものを選択することが好ましいが、その具体的な例は前記した溶剤である。なお、このようにモノマーを液相で反応させる方法は、プレポリマー溶液の濃度を高くしやすいため、好ましい。

モノマー溶液からプレポリマーを生成させる場合、最終的に得られるプレポリマー溶液の濃度が適当になるようにモノマー溶液の濃度を調整することが好ましい。この場合におけるモノマー溶液の好ましい濃度範囲は10～80重量%である。このようなモノマー溶液を混合する場合には、一方のモノマー溶液を攪拌しながら、もう一方のモノマー溶液を適当な速度で滴下することが好ましい。このとき、実用的な温度であり、かつ副反応による不純物の発生を防止するという観点から-40～40℃において反応を行うことが好ましい。このときの滴下速度は、滴下される溶液の初期重量を基準として0.01～10重量%/分であることが好ましい。

そのほか、任意の方法でプレポリマーを生成させることができるが、いずれの場合においても、金属不純物の混入を防ぐという観点から、金属触媒を用いない方法でプレポリマーを生成させることが好ましい。また、用いる溶剤にも金属不純物が含まれないか、金属不純物濃度の低いものを使用することが好ましい。

プレポリマー溶液は、ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーのほかに、その他の添加剤を含んでいてもよい。このような添加剤としては、フィラーが挙げられる。

フィラーとしては、(1) 無機フィラー、具体的には、ガラスファイバー、金属ファイバー、炭化ケイ素など、および(2) 有機フィラー、具体的には、カーボンファイバー、カーボンブラック、グラファイト、ポリベンゾイミダゾール樹脂などの樹脂、が挙げられる。これらのフィラーを添加することによって、得られるポリベンゾイミダゾール被膜の強度向上、膜厚の増加、電気的特性、例えば絶縁性、の付与、摺動性の改良、などの効果を得ることができることがある。

基材

本発明による方法においては、前記のプレポリマー溶液を基材に塗布する。用いる基材としては、任意のものを用いることができる。ただし、プレポリマーを加熱することによって環化させるため、加熱温度に応じた適当な耐熱性を有するべきである。具体的には、金属基材、例えばステンレス、鉄、アルミニウム、および銅など、ならびに無機材料基材、例えばガラス、セラミックス、例えばアルミナ、サファイア、ムライト、およびコージライトなど、が挙げられる。これらは、塗布に先立って表面処理されていてもよい。例えば、金属材料においては表面にアルマイト加工を施したり、粗面化処理を施したりすることができる。

また、ポリベンゾイミダゾールのフィルムを形成させる場合にも、基材は前記のものから適宜選択することができる。

被膜の形成方法

本発明による方法においては、前記のプレポリマー溶液を基材に塗布し、塗布済みの基材を加熱することによってポリベンゾイミダゾールの被膜を形成させる。

プレポリマー溶液を基材に塗布する方法は任意であるが、例えば、スプレーコーティング、ディップコーティング、ロールコーティング、カーテンコーティング、およびその他の方法が挙げられる。

加熱に先立って、必要に応じて塗膜から溶媒の一部を除去することができる。この溶媒除去は、環化反応や副反応が起こらない、または起こりにくい温度に加熱したり、減圧を印加することにより行うことができる。このように過剰の溶媒を加熱に先立って除去することによって、加熱時に発生する気泡などを抑制することができ、被覆に生じる欠陥を低減させることができる。

その後、塗膜を加熱して、プレポリマーを環化させる。加熱は、任意の方法に

より行うことができるが、通常、加熱炉、ホットプレート、赤外線照射などを用いて行う。温度は徐々に上昇させることが好ましい。具体的には、温度上昇は1～20度/分であることが好ましく、1～5度/分であることがより好ましい。最終的な到達温度は、通常300～400℃である。必要に応じて、到達温度に達した後で、一定温度で加熱を続けることもできる。

必要に応じて、塗布および加熱を繰り返し、さらに厚い被膜を形成させることもできる。

フィルムの形成方法

ポリベンゾイミダゾールのフィルムは、前記したフィルムの形成方法に従って、基材表面に被膜を形成させた後、硬化した被膜を基材から剥離することにより形成させることができる。剥離は任意の方法によって行うことができるが、一般的には機械的に剥離する。このとき、剥離を容易にするためにポリベンゾイミダゾールのプレポリマー溶液を塗布する前に、基材表面に剥離を容易にする処理をすることもできる。このような手段としては、基材表面の鏡面処理や剥離剤の塗布などが挙げられる。

実 施 例

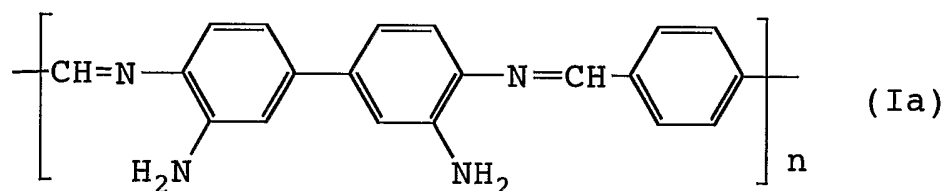
実施例

60 gのジメチルアセトアミドに4.28 gの3, 3', 4, 4'-テトラアミノジフェニルを溶解させた溶液に、40 gのジメチルアセトアミドに2.68 gのジアルデヒドベンゼンを溶解させた溶液を、混合しながら0℃で滴下速度0.1重量%/分で滴下を行い、プレポリマーを生成させた。この粘性液体をアルマイト加工されたステンレス基材上にディッピング法により塗布した。塗布済みの基材を、室温から380℃まで3時間かけて昇温させることによって焼成を行った。この結果、20 μmの厚さのポリベンゾイミダゾール被膜を形成することができた。さらに、この操作を繰り返すことにより、最終的に200 μmの厚さのポリベンゾイミダゾールからなる被膜を形成することができた。

請求の範囲

1. ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを含んでなる溶液を基材表面に塗布し、その塗布された被膜を加熱することによって、前記プレポリマーを環化させて、基材表面に硬化塗膜を形成させる方法。

2. ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーが、下記一般式 (Ia) で表される、請求項 1 に記載の方法。



ここで、nは重合度を表す数である。

3. 溶液の濃度が1～50重量%である、請求項1または2に記載の方法。

4. 溶液の溶剤が極性溶媒である、請求項1～3のいずれか1項に記載の方法。

5. 溶剤が、メチルピロリドン、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、ジエチルアセトアミド、ジメチルメトキシアセトアミド、ジメチルスルホン、およびそれらの混合物からなる群から選択される、請求項4に記載の方法。

6. ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーの合成が、金属触媒を使用せずに行われる、請求項1～5のいずれか1項に記載の方法。

7. 溶液がフィラーを含んでなる、請求項1～6のいずれか1項に記載の方法。

8. 温度を昇温速度1～20度/分で、300～400℃まで上昇させることで加熱を行う、請求項1～7のいずれか1項に記載の方法。

9. 請求項1～8のいずれか1項に記載の方法で形成された被膜を具備してなる物品。

10. ポリベンゾイミダゾールのプレポリマーを含んでなる溶液を基材表面に塗布し、その塗布された被膜を加熱することによって、前記プレポリマーを環化させて、基材表面に硬化塗膜を形成させ、形成された被膜を基材から剥離することによってフィルムを形成させる方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/10195

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C09D179/04, C08G73/18, B05D7/24, B29C41/02

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)

Int.Cl⁷ C09D1/00-10/00, C09D101/00-201/10, C08G73/00-73/26,
B05D7/24, B29C41/02

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 816415 A2 (Hoechst Japan Ltd.), 07 January, 1998 (07.01.98), Table 1, page 4; lines 30-31, Claims & CA 2209079 A1 & US 5902876 A & JP 10-17669 A	1-10
Y	JP 10-87989 A (Toshiba Corp.), 07 April, 1998 (07.04.98), Claims; Par. No. [0019]; table 2 (Family: none)	1-10
Y	EP 95348 B1 (Celanese Corp.), 09 April, 1986 (09.04.86), Claims; examples & US 4483977 A & US 4452967 A & US 4414383 A & JP 58-213021 A	1-10

☐ 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

"E" earlier document 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
27 December, 2002 (27.12.02)

Date of mailing of the international search report
21 January, 2003 (21.01.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09D179/04, C08G73/18, B05D7/24, B29C41/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09D1/00-10/00, C09D101/00-201/10,
C08G73/00-73/26, B05D7/24, B29C41/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2002年
 日本国実用新案登録公報 1996-2002年
 日本国登録実用新案公報 1994-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 816415 A2 (HOECHST JAPAN LIMITED) 1998. 01. 07, Table 1, Page 4; lines 30-31, claims & CA 2209079 A1 & US 5902876 A & JP 10-17669 A	1-10
Y	JP 10-87989 A (株式会社東芝) 1998. 04. 07, 【特許請求の範囲】、段落【0019】、 【表2】 (ファミリーなし)	1-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 12. 02

国際調査報告の発送日

21.01.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

大畑 通隆

4V

9443

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 95348 B1 (CELANESE CORPORATION) 1986.04.09, Claims, Examples & US 4483977 A & US 4452967 A & US 4414383 A & JP 58-213021 A	1-10