

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015年3月5日(05.03.2015)



(10) 国際公開番号

WO 2015/029697 A1

- (51) 国際特許分類:
H02N 1/08 (2006.01) G04G 19/00 (2006.01)
G04C 10/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/070383
- (22) 国際出願日: 2014年8月1日(01.08.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-175911 2013年8月27日(27.08.2013) JP
- (71) 出願人: 旭硝子株式会社 (ASAHI GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 Tokyo (JP). セイコーインスツル株式会社 (SEIKO INSTRUMENTS INC.) [JP/JP]; 〒2618507 千葉県千葉市美浜区中瀬1丁目8番地 Chiba (JP).
- (72) 発明者: 濱谷 芳樹 (HAMATANI, Yoshiki); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 中嶋 正洋 (NAKAJIMA, Masahiro); 〒2618507 千葉県千葉市美浜区中瀬1丁目8番地 セイコーインスツル株式会社内 Chiba (JP). 新輪 隆 (NIWA, Takashi); 〒2618507 千葉県千葉市美浜区中瀬1丁目8番地 セイコーインスツル株式会社内 Chiba (JP). 小西

未英 (KONISHI, Miei); 〒2618507 千葉県千葉市美浜区中瀬1丁目8番地 セイコーインスツル株式会社内 Chiba (JP). 尾崎 徹 (OZAKI, Toru); 〒2618507 千葉県千葉市美浜区中瀬1丁目8番地 セイコーインスツル株式会社内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 泉名 謙治, 外 (SENMYO, Kenji et al.); 〒1010035 東京都千代田区神田紺屋町17番地 S I A 神田スクエア4階 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

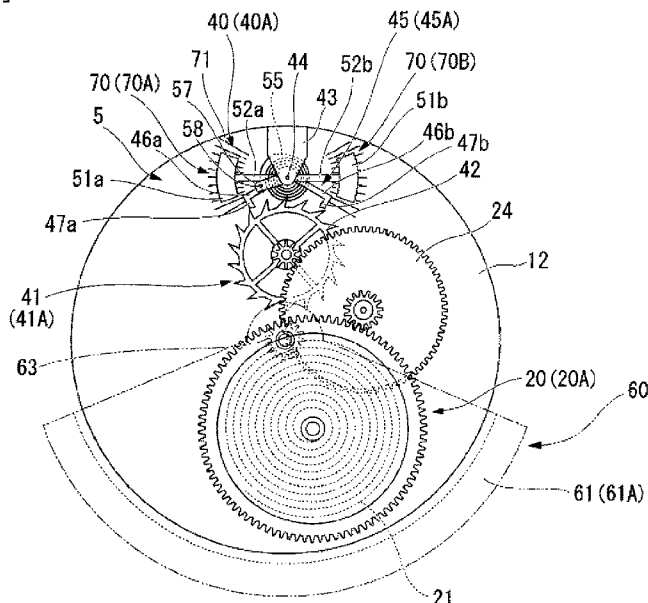
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,

[続葉有]

(54) Title: GENERATOR DEVICE, TIMEPIECE MOVEMENT, AND TIMEPIECE

(54) 発明の名称: 発電装置、時計用ムーブメントおよび時計

[図2]



(57) Abstract: Provided are a generator device of exceptional generation efficiency, and a timepiece movement and timepiece provided with the power generation device. The generator device (5) has: a swinging part (61A) which swings in position due to external swing; an accumulating part (20A) which accumulates the swing power of the swinging part (61A); a vibrational energy generating part (40A) which, from the power accumulated by the accumulating part (20A), generates vibrational energy of regulated amplitude and frequency; and a generator part (70) for converting the vibrational energy generated by the vibrational energy generating part (40A) to electric power. The generator device (5) is provided to a timepiece, the swinging part (61A) constituting the rotor (61), the accumulating part (20A) constituting the barrel wheel (20), and the vibrational energy generating part (40A) constituting the escapement governor (40). The generator part (70) is provided with a first electrode (71), a second electrode, and an electret film.

(57) 要約:

[続葉有]



NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
MR, NE, SN, TD, TG).

発電効率に優れた発電装置、発電装置を備えた時計用ムーブメントおよび時計を提供する。 外部変動により位置変動する変動部 6 1 A と、変動部 6 1 A の変動動力が蓄積される蓄積部 2 0 A と、蓄積部 2 0 A に蓄積された動力により、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生する振動エネルギー発生部 4 0 A と、振動エネルギー発生部 4 0 A で発生した振動エネルギーを電力に変換する発電部 7 0 と、を有する発電装置 5 である。発電装置 5 は、時計に設けられており、変動部 6 1 A は回転錘 6 1 であり、蓄積部 2 0 A は香箱車 2 0 であり、振動エネルギー発生部 4 0 A は脱進調速機 4 0 である。発電部 7 0 は、第 1 電極 7 1 と第 2 電極とエレクトレット膜とを備えている。

明 細 書

発明の名称：発電装置、時計用ムーブメントおよび時計

技術分野

[0001] 本発明は、発電装置、発電装置を備えた時計用ムーブメントおよび時計に関する。

背景技術

[0002] エレクトレット材料による静電誘導を利用した発電装置が提案されている。

特許文献1には、複数のエレクトレット電極を表面に有する不動基板と、複数の可動電極を表面に有する可動基板と、が離れて配置された発電装置が提案されている。

可動電極および可動基板は、不動基板上に設けられた固定構造体にバネ駆動体のような弾性部材を介して連結されている。可動基板は、発電装置に対して外部振動が加わったときに移動するように構成されている。発電装置を励振する外部振動としては、発電効率の向上を考慮すると、環境振動を利用することが望ましいとされる。

[0003] 可動基板は、外部振動の入力により移動する。これにより、エレクトレット電極と可動電極との重なり面積は、初期面積から増加または減少する。この重なり面積の変化によって、可動電極（集電電極）に電荷の変化が生じる。発電装置は、この電荷の変化により生じる交流電流をたとえば半波整流回路等の変換回路を介して直流電流に変換し、電気エネルギーとして取り出すことにより発電する。なお、一般に、変換回路により交流電流を直流電流へ変換する場合の変換効率は、交流電流の周波数および周期が一定であるほうが、交流電流の周波数および周期が不規則である場合よりも良いことが知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第4 2 2 9 9 7 0号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、従来技術にあっては、環境振動は周波数および振幅が一定ではないため、集電電極の電荷の変化により生じる交流電流の周波数および振幅も不規則となる。したがって、交流電流から直流電流に変換する際の変換効率の向上、すなわち、発電装置の発電効率の向上には限界がある。

[0006] そこで、本発明は、上述の事情に鑑みてなされたものであり、発電効率に優れた発電装置、該発電装置を備えた時計用ムーブメントおよび時計を提供する。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の要旨は、下記の〔1〕～〔11〕からなるものである。

〔1〕 外部変動により位置変動する変動部と、

前記変動部の変動動力が蓄積される蓄積部と、

前記蓄積部に蓄積された動力により、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生する振動エネルギー発生部と、

前記振動エネルギー発生部で発生した前記振動エネルギーを電力に変換する発電部と、

を有することを特徴とする発電装置。

〔2〕 前記振動エネルギー発生部は、前記蓄積部に蓄積された動力により回転する回転部に接触することで、前記回転部の回転速度を調整する振り子を有する、前記〔1〕の発電装置。

〔3〕 前記変動部は、筐体に対して位置変動可能に固定され、前記振動エネルギー発生部は、前記筐体に支持されている、前記〔1〕または〔2〕の発電装置。

〔4〕 前記発電部は、

第1電極と、

前記第1電極に対向して配置される第2電極と、

前記第 1 電極および前記第 2 電極の少なくとも一方に備えられる電荷保持部と、

を備える、前記 [1] ～ [3] のいずれかの発電装置。

[5] 前記電荷保持部が、含フッ素重合体を用いた樹脂膜に電荷を注入したものである、前記 [4] の発電装置。

[6] 前記含フッ素重合体が、 $1.8 \sim 8$ の比誘電率、 $10^{10} \Omega \cdot \text{cm} \sim 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ の体積固有抵抗、及び $10 \sim 25 \text{ kV/mm}$ の絶縁破壊強度を有する前記 [5] の発電装置

[7] 前記含フッ素重合体が、主鎖に脂肪族環を有する含フッ素重合体 (a) または該含フッ素重合体 (a) の誘導体 (a') を用いたものである、前記 [5] または [6] の発電装置。

[8] 前記含フッ素重合体 (a) が、環状含フッ素単量体に基づく繰り返し単位を有する重合体 (I)、またはジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成される繰り返し単位を有する重合体 (II) である前記 [7] の発電装置。

[9] 前記含フッ素重合体 (a) の誘導体 (a') が、前記含フッ素重合体 (a) と含フッ素重合体 (a) 以外の下記その他の成分との混合物、または前記含フッ素重合体 (a) と含フッ素重合体 (a) 以外のその他の成分との反応生成物である前記 [7] または [8] の発電装置。

他の成分：シランカップリング剤または極性官能基を 2 個以上有する分子量が $50 \sim 2000$ の多価極性化合物。

[10] 前記 [1] ～ [9] のいずれかの発電装置を備えた時計用ムーブメント。

[11] 前記 [10] の時計用ムーブメントを備えた時計。

発明の効果

[0008] 前記 [1] の発電装置によれば、変動部の変動動力が蓄積される蓄積部を有するので、環境振動等の不規則な外部変動による変動動力であっても、蓄積部に一時的に蓄積できる。また、蓄積部に蓄積された動力により、振幅と

周波数とが調整された振動エネルギーを発生する振動エネルギー発生部を備えているので、蓄積部に一時的に蓄積された動力を、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーとして発生できる。これにより、発電部は、振動エネルギーを効率よく電力に変換できるので、発電効率に優れた発電装置を提供できる。

[0009] 前記[2]の発電装置によれば、振動エネルギー発生部は、蓄積部に蓄積された動力により回転する回転部に接触することで、回転部の回転速度を調整する振り子を有するので、回転部の回転速度を精度よく調整するとともに、振り子が所定の周期で精度よく振動できる。したがって、振動エネルギー発生部は、振幅と周波数とを精度よく調整した振動エネルギーを発生できるので、発電効率に極めて優れた発電装置を提供できる。

[0010] 前記[3]の発電装置によれば、たとえば持ち運び等により移動可能な筐体に対して発電装置を設けることができる。したがって、環境振動を利用して、変動部の変動動力を蓄積部に蓄積することができる。

[0011] 前記[4]の発電装置によれば、第1電極および第2電極の少なくとも一方に電荷保持部を備えるので、電荷保持部と第1電極および第2電極の少なくとも他方との間の重なり面積の増減により、少なくとも前記他方の電極の電荷が増減する。したがって、発電装置は、電荷の変化を電力として取り出すことにより、発電を行うことができる。

[0012] 前記[5]～前記[9]の発電装置によれば、より多くの電荷を保持可能な電荷保持部とすることができる。

[0013] 前記[10]の時計用ムーブメントおよび前記[11]の時計によれば、発電可能な時計用ムーブメントおよび時計を供給できる。とりわけ、時計が腕時計である場合には、ユーザーの歩行時の振動（環境振動）を外部振動として利用して、効率的に発電することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]発電装置5のブロック図である。

[図2]本発明の1つの実施形態に係る発電装置5の概略構成図である。

[図3]振動エネルギー発生部40Aの拡大図である。

[図4]図3のA-A線に沿った断面図と、発電装置の整流回路の回路図とを模式的に図示した説明図である。

[図5]クォーツ式腕時計のムーブメントの構造図である。

[図6]本発明の他の実施形態にかかる発電装置の発電部の説明図である。

発明を実施するための形態

[0015] 以下に、本発明の実施形態について、図面を用いて説明する。

図1に示すように、発電装置5は、変動部61Aと、蓄積部20Aと、振動エネルギー発生部40Aと、発電部70(70A, 70B)とにより構成されている。以下に、発電装置5の各構成部品の詳細について説明する。

[0016] 図2に示すように、変動部61Aは、たとえば環境振動等の外部変動により筐体12に対して位置変動する回転錘61を備えている。回転錘61は、平面が視略扇形状に形成されており、発電装置5の中心軸周りに回転可能に設けられている。

回転錘61の回転中心には、ラチェット63が設けられている。ラチェット63は、回転錘61の一方向の回転のみを蓄積部20Aに伝達するものである。

[0017] 蓄積部20Aは香箱車20を備えている。香箱車20は、筐体12に対して回転可能に支持されており、内部にぜんまい21を有している。ぜんまい21は、外部変動により回転錘61が回転することで巻き上げられるように構成されている。

香箱車20には、変動部61Aからの変動動力が蓄積される。具体的には、変動部61Aである回転錘61が回転することにより、ラチェット63を介して香箱車20の内部のぜんまい21が巻き上げられ、回転錘61の変動動力がぜんまい21に動力として蓄積される。

[0018] 図3に示すように、振動エネルギー発生部40Aは、がんぎ車41と、アングル45と、ひげぜんまい55とを備えた脱進調速機40により構成されている。

がんぎ車 4 1 の外周には、歯 4 2 が形成されている。

アングル 4 5 は、筐体 1 2 とアングル受 4 3 との間で、アングル真 4 4 周りに回転可能に支持されている。アングル 4 5 は、一对のアングルビーム 4 6 a, 4 6 b により、がんぎ車 4 1 側を開いた V 字形状に形成されている。

[0019] 一对のアングルビーム 4 6 a, 4 6 b の先端には、それぞれつめ石 4 7 a, 4 7 b が設けられている。アングル 4 5 のつめ石 4 7 a, 4 7 b は、それぞれがんぎ車 4 1 の歯 4 2 に係合することにより、がんぎ車 4 1 の回転を一時的に停止させることができる。

アングル 4 5 は、一对の振動体 5 1 a, 5 1 b を備えている。一对の振動体 5 1 a, 5 1 b は、それぞれアングル真 4 4 を中心として所定の曲率を有する弧状に形成された板部材である。一对の振動体 5 1 a, 5 1 b は、それぞれアングル真 4 4 を挟んでアングル真 4 4 の径方向の両側に配置されている。一对の振動体 5 1 a, 5 1 b は、それぞれアーム 5 2 a, 5 2 b を介してアングルビーム 4 6 a, 4 6 b に連結されている。これにより、一对の振動体 5 1 a, 5 1 b は、アングルビーム 4 6 a, 4 6 b とともに、アングル真 4 4 周りに一定周期で往復回動（すなわち振動）するように構成される。

[0020] ひげぜんまい 5 5 は、たとえば鉄やニッケル等の金属材料からなり、複数の巻き数をもった渦巻状の薄板ばね部材である。ひげぜんまい 5 5 は、内周側の一方端部がアングル 4 5 のアングル真 4 4 近傍に固定され、外周側の他方端部がたとえばアングル受 4 3 から延設されたひげ持ち受 5 7 のひげ持ち 5 8 に固定されている。ひげぜんまい 5 5 は、拡張することにより発生するばね力により、アングル 4 5 および一对の振動体 5 1 a, 5 1 b を所定周期で振動させている。

[0021] 振動エネルギー発生部 4 0 A は、蓄積部 2 0 A に蓄積された動力により、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生している。

具体的には、蓄積部 2 0 A である香箱車 2 0 のぜんまい 2 1 が巻き上げられて、動力がぜんまい 2 1 の復元力として蓄積される。香箱車 2 0 は、ぜんまい 2 1 に蓄積された動力により回転し、伝達歯車 2 4 を介して、振動エネ

ルギー発生部４０Ａである脱進調速機４０のがんぎ車４１に動力が伝達される。すなわち、がんぎ車４１は、蓄積部２０Ａに蓄積された動力により回転する回転部４１Ａとなっている。

[0022] がんぎ車４１の回転速度は、アングル４５によって調整される。具体的には、アングル４５の一方のつめ石４７ａおよび他方のつめ石４７ｂが、それぞれ交互にがんぎ車４１の歯４２に対して係合および解除することにより、がんぎ車４１を一定速度で脱進させている。すなわち、アングル４５は、回転部４１Ａの回転速度を調整する振り子４５Ａとして機能する。

[0023] アングル４５は、ひげぜんまい５５の拡張によるエネルギーと、がんぎ車４１につめ石４７ａ、４７ｂが接触する際に付与される衝突エネルギーとにより、アングル真４４周りに一定の振幅および周波数でアングル真４４周りに往復回転する。これにより、振動エネルギー発生部４０Ａは、アングル４５の振動体５１ａ、５１ｂから、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生することができる。

[0024] 発電部７０は、振動エネルギー発生部４０Ａで発生した振動エネルギーを電力に変換しており、アングル４５の振動体５１ａ、５１ｂと筐体１２とに形成されている。なお、アングル４５の一方の振動体５１ａと筐体１２とに形成された発電部７０Ａと、他方の振動体５１ｂと筐体１２とに形成された発電部７０Ｂとは、それぞれ同一の構造となっている。したがって、以下では、アングル４５の一方の振動体５１ａと筐体１２とに形成された発電部７０Ａについてのみ説明をし、アングル４５の他方の振動体５１ｂと筐体１２とに形成された発電部７０Ｂについては、説明を省略する。

[0025] 図４は、図３のＡ－Ａ線に沿った断面図と、発電装置５の整流回路９０の回路図とを模式的に示した説明図である。

図４に示すように、発電部７０Ａは、第１電極７１と、第２電極７２と、エレクトレット膜７５（請求項の「電荷保持部」に相当する）とを備えている。

[0026] 図３に示すように、第１電極７１は、たとえば銅や金、銀、アルミニウム

、鉄等の導電性を有する金属材料からなり、筐体 1 2 の表面に、たとえばスパッタリング技術等により成膜されている。第 1 電極 7 1 は、アングル真 4 4 を中心とした径方向に沿う帯状であって、かつアングル真 4 4 を中心とした周方向に所定のピッチを開けた状態で並んで複数パターンニングされている。

[0027] 複数の第 1 電極 7 1 が形成されている範囲は、振動体 5 1 a が振動した時の可動範囲よりも十分に広がっている。また、複数の第 1 電極 7 1 の長さは、弧状に形成された振動体 5 1 a の径方向に沿う幅よりも十分長くなっている。これにより、振動体 5 1 a の振動時において、平面視で第 1 電極 7 1 と振動体 5 1 a とが常に重なるようになっている。

図 4 に示すように、複数の第 1 電極 7 1 は、それぞれ接続配線 9 1 を介して電氣的に接続され、後述の整流回路 9 0 に電氣的に接続される。

[0028] 第 2 電極 7 2 は、第 1 電極 7 1 と同様に、たとえば銅や金、銀、アルミニウム、鉄等の導電性を有する金属材料からなり、振動体 5 1 a の筐体 1 2 側の面に、たとえばスパッタリング技術等により成膜されている。第 2 電極 7 2 は、振動体 5 1 a の径方向に沿う帯状であって、かつ振動体 5 1 a の周方向に所定のピッチを開けた状態で並んで複数パターンニングされている。複数の第 2 電極 7 2 は、それぞれ接続配線 9 2 を介して電氣的に接続され、後述の整流回路 9 0 に電氣的に接続される。第 2 電極 7 2 は、後述のエレクトレット膜 7 5 の電荷を集電する集電材として機能する。

[0029] 第 2 電極 7 2 は、表面にエレクトレット膜 7 5 を備えている。エレクトレット膜 7 5 は、第 2 電極 7 2 の表面に成膜されることにより、第 2 電極 7 2 のパターンニングに対応して、振動体 5 1 a の径方向に沿う帯状であって、かつ振動体 5 1 a の周方向に所定のピッチを開けた状態で並んで複数パターンニングされる。

[0030] エレクトレット膜 7 5（電荷保持部）を構成する電荷保持媒体には、従来からエレクトレットに用いられている絶縁材料が使用できる。絶縁材料は、有機絶縁材料であっても無機絶縁材料であってもよい。

有機絶縁材料としては、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、テトラフルオロエチレンーペルフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（PFA）、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体（FEP）、テトラフルオロエチレンーエチレン共重合体（ETFE）等の含フッ素重合体（フッ素樹脂）；ポリプロピレン、ポリスチレン、シクロオレフィンコポリマー等の炭化水素系重合体；ポリカーボネート；これらの重合体に由来する材料等が挙げられる。

重合体に由来する材料としては、重合体と該重合体以外の他の成分との混合物、重合体と該重合体以外の他の成分との反応生成物、等が挙げられる。

無機絶縁材料としては、熱酸化またはプラズマCVDにより形成されるシリコン酸化膜、シリコン窒化膜等が挙げられる。

電荷保持部としては、高い絶縁性を有し、吸水性が低いことから、含フッ素重合体を用いた樹脂膜が好ましい。また、表面電位値や電荷保持の安定性（常温安定性、加熱時の安定性の両方）等に優れることから、主鎖に脂肪族環構造を有する重合体または該重合体に由来する材料を用いた樹脂膜が好ましい。電荷保持部としては、主鎖に脂肪族環を有する含フッ素重合体（a）または該含フッ素重合体（a）の誘導体（a'）を用いた樹脂膜（以下、樹脂膜（A）ということがある。）が特に好ましい。また樹脂膜（A）は、ウェットコート（溶液を用いた塗布法）により形成でき、精密加工性に優れ、回転運動に用いる部品への適用性に優れる。

樹脂膜（A）は、含フッ素重合体（a）または誘導体（a'）を用いることにより、高い電荷保持性能を有し、樹脂膜（A）に電荷を注入してなるエレクトレットは高い表面電荷密度を有する。

[0031] （樹脂膜（A））

樹脂膜（A）は、主鎖に脂肪族環を有する含フッ素重合体（a）または該含フッ素重合体（a）の誘導体（a'）を用いて形成されている、つまりこれらを主として含有する。

誘導体（a'）としては、詳しくは後述するが、含フッ素重合体（a）と

含フッ素重合体（a）以外の他の成分との混合物、含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分との反応生成物、等が挙げられる。樹脂膜（A）が前記反応生成物を含む場合、該樹脂膜（A）中には、前記反応生成物の形成に用いた含フッ素重合体（a）または他の成分の一部が未反応のまま残留していてもよい。

[0032] <含フッ素重合体（a）>

含フッ素重合体（a）は、主鎖に脂肪族環を有する含フッ素重合体である。

含フッ素重合体（a）において、フッ素原子は、主鎖を構成する炭素原子に結合していてもよく、側鎖に結合していてもよい。低吸水率・低誘電率で絶縁破壊電圧が高く、体積抵抗率の高いエレクトレット化に適していることから、フッ素原子が、主鎖を構成する炭素原子に結合していることが好ましい。

[0033] 「主鎖に脂肪族環を有する」とは、脂肪族環の環骨格を構成する炭素原子のうち、少なくとも1つが、含フッ素重合体（a）の主鎖を構成する炭素原子であることを意味する。

たとえば含フッ素重合体（a）が、重合性二重結合を有する単量体の重合により得られたものである場合、重合に用いられた単量体が有する重合性二重結合に由来する炭素原子のうちの少なくとも1つが、前記主鎖を構成する炭素原子となる。たとえば含フッ素重合体（a）が、後述するような環状単量体を重合させて得た含フッ素重合体の場合は、該環状単量体が有する重合性二重結合を構成する2個の炭素原子が主鎖を構成する炭素原子となる。また、2個の重合性二重結合を有する単量体を環化重合させて得た含フッ素重合体の場合は、2個の重合性二重結合を構成する4個の炭素原子のうちの少なくとも2個が主鎖を構成する炭素原子となる。

[0034] 「脂肪族環」とは、芳香族性を有さない環を示す。脂肪族環は、飽和であってもよく、不飽和であってもよい。脂肪族環は、環骨格が、炭素原子のみから構成される炭素環構造のものであってもよく、環骨格に、炭素原子以外

の原子（ヘテロ原子）を含む複素環構造のものであってもよい。該ヘテロ原子としては酸素原子、窒素原子等が挙げられる。

脂肪族環の環骨格を構成する原子の数は、4～7個が好ましく、5または6個が特に好ましい。すなわち、脂肪族環は4～7員環が好ましく、5または6員環が特に好ましい。

脂肪族環は置換基を有していてもよく、有さなくてもよい。「置換基を有していてもよい」とは、該脂肪族環の環骨格を構成する原子に置換基（水素原子以外の原子または基）が結合してもよいことを意味する。

[0035] 脂肪族環は、非含フッ素脂肪族環であってもよく、含フッ素脂肪族環であってもよい。

非含フッ素脂肪族環は、構造中にフッ素原子を含まない脂肪族環である。非含フッ素脂肪族環として、具体的には、飽和または不飽和の脂肪族炭化水素環、該脂肪族炭化水素環における炭素原子の一部が酸素原子、窒素原子等のヘテロ原子で置換された脂肪族複素環等が挙げられる。

含フッ素脂肪族環は、構造中にフッ素原子を含む脂肪族環である。含フッ素脂肪族環としては、脂肪族環の環骨格を構成する炭素原子に、フッ素原子を含む置換基（以下、含フッ素基という。）が結合した脂肪族環が挙げられる。含フッ素基としては、フッ素原子、ペルフルオロアルキル基、ペルフルオロアルコキシ基、 $=CF_2$ 等が挙げられる。

該含フッ素脂肪族環または非含フッ素脂肪族環は、含フッ素基以外の置換基を有していてもよい。

脂肪族環としては、電荷保持性能に優れる点から、含フッ素脂肪族環が好ましい。

[0036] 好ましい含フッ素重合体（a）として、下記含フッ素環状重合体（I）、含フッ素環状重合体（II）が挙げられる。

含フッ素環状重合体（I）：環状含フッ素単量体に基づく単位を有する重合体。

含フッ素環状重合体（II）：ジエン系含フッ素単量体の環化重合により

形成される単位を有する重合体。

「環状重合体」とは環状構造を有する重合体を意味する。

「単位」は、重合体を構成する繰り返し単位を意味する。

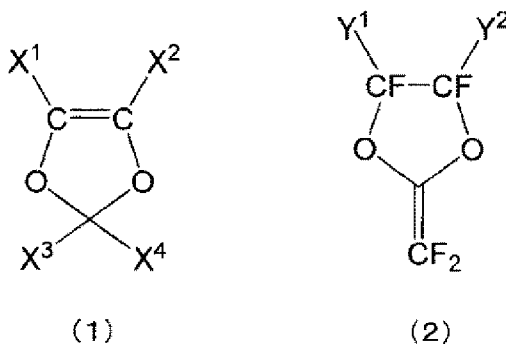
以下、式（１）で表される化合物を「化合物（１）」とも記す。他の式で表される単位、化合物等についても同様に記し、たとえば式（３－１）で表される単位を「単位（３－１）」とも記す。

[0037] 含フッ素環状重合体（１）は、環状含フッ素単量体に基づく単位を有する。

「環状含フッ素単量体」とは、含フッ素脂肪族環を構成する炭素原子間に重合性二重結合を有する単量体、または、含フッ素脂肪族環を構成する炭素原子と含フッ素脂肪族環外の炭素原子との間に重合性二重結合を有する単量体である。

環状含フッ素単量体としては、下記の化合物（１）または化合物（２）が好ましい。

[0038] [化1]



[式中、 X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 は、それぞれ独立に、フッ素原子、エーテル性酸素原子（－Ｏ－）を含んでもよいペルフルオロアルキル基、またはエーテル性酸素原子を含んでもよいペルフルオロアルコキシ基である。 X^3 および X^4 は相互に結合して環を形成してもよい。]

[0039] X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 におけるペルフルオロアルキル基は、炭素数が１～７であることが好ましく、炭素数が１～４であることが特に好ましい。該ペルフルオロアルキル基は、直鎖状または分岐鎖状であり、直鎖

状が好ましい。具体的には、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ヘプタフルオロプロピル基等が挙げられ、特にトリフルオロメチル基が好ましい。

X^1 、 X^2 、 X^3 、 X^4 、 Y^1 および Y^2 におけるペルフルオロアルコキシ基としては、前記ペルフルオロアルキル基に酸素原子（ $-O-$ ）が結合したものが挙げられ、トリフルオロメトキシ基が特に好ましい。

[0040] 式（1）中、 X^1 は、フッ素原子であることが好ましい。

X^2 は、フッ素原子、トリフルオロメチル基、または炭素数1～4のペルフルオロアルコキシ基であることが好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメトキシ基であることが特に好ましい。

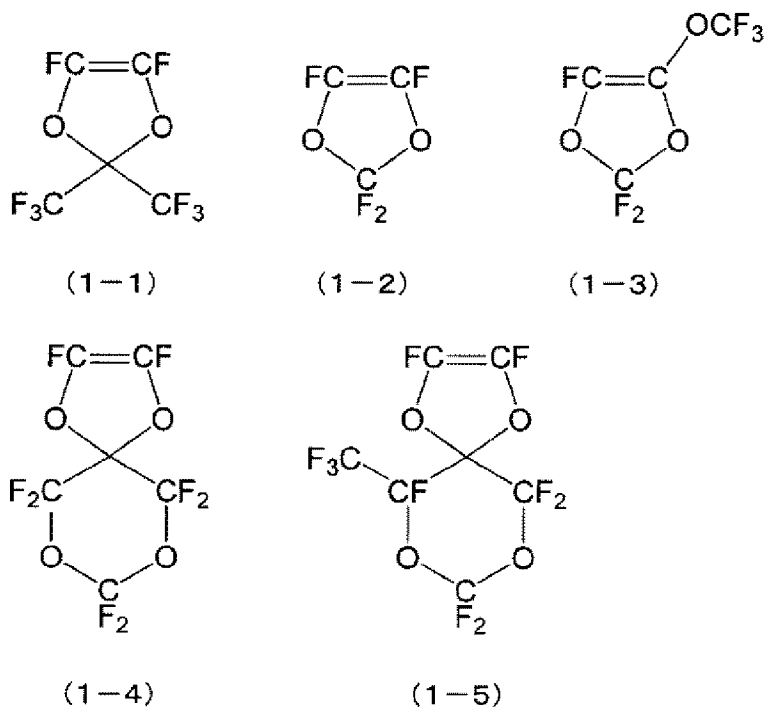
X^3 および X^4 は、それぞれ独立に、フッ素原子または炭素数1～4のペルフルオロアルキル基であることが好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメチル基であることが特に好ましい。

X^3 および X^4 は相互に結合して環を形成してもよい。前記環の環骨格を構成する原子の数は、4～7個が好ましく、5～6個が特に好ましい。

化合物（1）の好ましい具体例として、化合物（1-1）～（1-5）が挙げられる。

[0041]

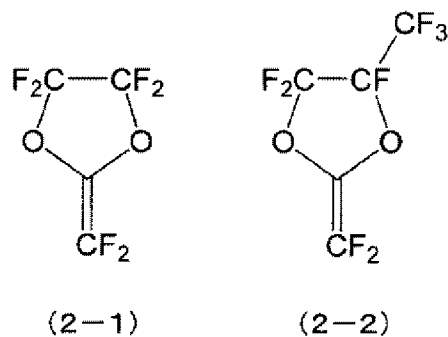
[化2]



[0042] 式(2)中、 Y^1 および Y^2 は、それぞれ独立に、フッ素原子、炭素数1～4のペルフルオロアルキル基または炭素数1～4のペルフルオロアルコキシ基が好ましく、フッ素原子またはトリフルオロメチル基が特に好ましい。

化合物(2)の好ましい具体例として、化合物(2-1)または(2-2)が挙げられる。

[0043] [化3]



[0044] 含フッ素環状重合体(1)は、上記環状含フッ素単量体により形成される単位のみから構成されてもよく、該単位と、それ以外の他の単位とを有する共重合体であってもよい。

ただし、該含フッ素環状重合体（１）中、環状含フッ素単量体に基づく単位の割合は、該含フッ素環状重合体（１）を構成する全繰返し単位の合計に対し、２０モル％以上が好ましく、４０モル％以上がより好ましく、１００モル％であってもよい。

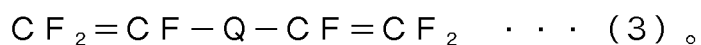
該他の単量体としては、上記環状含フッ素単量体と共重合可能なものであればよく、特に限定されない。具体的には、ジエン系含フッ素単量体、側鎖に反応性官能基を有する単量体、テトラフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン、ペルフルオロ（メチルビニルエーテル）等が挙げられる。ジエン系含フッ素単量体としては、後述する含フッ素環状重合体（１１）の説明で挙げるものと同様のものが挙げられる。側鎖に反応性官能基を有する単量体としては、重合性二重結合および反応性官能基を有する単量体が挙げられる。重合性二重結合としては、 $\text{CF}_2=\text{CF}-$ 、 $\text{CF}_2=\text{CH}-$ 、 $\text{CH}_2=\text{CF}-$ 、 $\text{CFH}=\text{CF}-$ 、 $\text{CFH}=\text{CH}-$ 、 $\text{CF}_2=\text{C}-$ 、 $\text{CF}=\text{CF}-$ 等が挙げられる。反応性官能基としては、後述する含フッ素環状重合体（１１）の説明で挙げるものと同様のものが挙げられる。

なお、ここでは、環状含フッ素単量体とジエン系含フッ素単量体との共重合により得られる重合体は含フッ素環状重合体（１）とみなす。

[0045] 含フッ素環状重合体（１１）は、ジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成される単位を有する。

「ジエン系含フッ素単量体」とは、２個の重合性二重結合およびフッ素原子を有する単量体である。該重合性二重結合としては、特に限定されないが、ビニル基、アリル基、アクリロイル基またはメタクリロイル基が好ましい。

ジエン系含フッ素単量体としては、下記化合物（３）が好ましい。

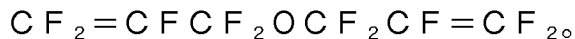
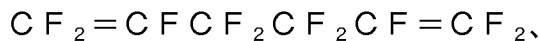
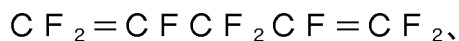
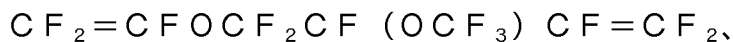
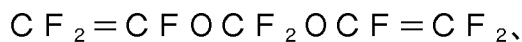
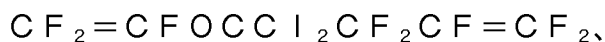
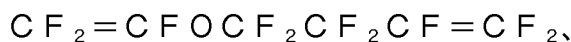
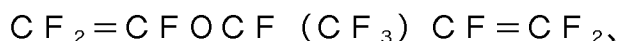


式（３）中、Ｑは、エーテル性酸素原子を含んでいてもよく、フッ素原子の一部がフッ素原子以外のハロゲン原子で置換されていてもよい炭素数１～５、好ましくは１～３の、分岐を有してもよいペルフルオロアルキレン基で

ある。該フッ素以外のハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

Qは、エーテル性酸素原子を含むペルフルオロアルキレン基であることが好ましい。その場合、該ペルフルオロアルキレン基におけるエーテル性酸素原子は、該基の一方の末端に存在していてもよく、該基の両末端に存在していてもよく、該基の炭素原子間に存在していてもよい。環化重合性の点から、該基の一方の末端に存在していることが好ましい。

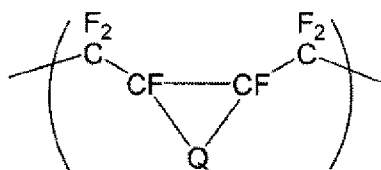
[0046] 化合物（3）の具体例としては、下記化合物が挙げられる。



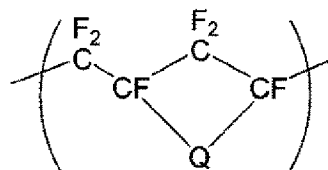
[0047] 化合物（3）の環化重合により形成される単位として、下記単位（3-1）～（3-4）等が挙げられる。

[0048]

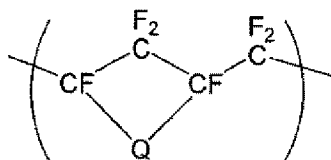
[化4]



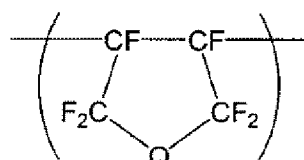
(3-1)



(3-2)



(3-3)



(3-4)

[0049] 含フッ素重合体（a）は、反応性官能基を有することが好ましい。

「反応性官能基」とは、加熱等を行った際に、当該含フッ素重合体（a）の分子間、または含フッ素重合体（a）とともに配合されている他の成分と反応して結合を形成し得る反応性を有する基を意味する。

たとえば、該他の成分として、後述するシランカップリング剤または極性官能基を2個以上有する分子量50～2,000の化合物（ただしシランカップリング剤は除く。以下、多価極性化合物という。）を混合し、それらを反応させて反応生成物とする場合は、含フッ素重合体（a）が、シランカップリング剤が有する官能基または多価極性化合物が有する極性官能基と反応し得る反応性官能基を有することが好ましい。

含フッ素重合体（a）が有する反応性官能基としては、重合体中への導入のしやすさ、シランカップリング剤または多価極性化合物との相互作用の強さ等を考慮すると、カルボキシ基、酸ハライド基、アルコキシカルボニル基、カルボニルオキシ基、カーボネート基、スルホ基、ホスホノ基、ヒドロキシ基、チオール基、シラノール基およびアルコキシシリル基からなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、カルボキシ基またはアルコキシカルボニル基が特に好ましい。

反応性官能基は、含フッ素重合体（a）の主鎖の末端に結合していてもよ

く、側鎖に結合していてもよい。製造しやすい点からは、主鎖の末端に結合していることが好ましい。すなわち、含フッ素重合体（a）として最も好ましい様態は、主鎖の末端にカルボキシ基またはアルコキシカルボニル基を有することである。

[0050] 含フッ素重合体（a）の比誘電率は $1.8 \sim 8$ が好ましく、 $1.8 \sim 5$ がより好ましく、 $1.8 \sim 3$ がさらに好ましく、 $1.8 \sim 2.7$ が特に好ましく、 $1.8 \sim 2.3$ が最も好ましい。該比誘電率が上記範囲の下限值以上であると、エレクトレットとして蓄え得る電荷量が高く、上限値以下であると、電気絶縁性、およびエレクトレットとしての電荷保持安定性に優れる。該比誘電率は、ASTM D150に準拠し、周波数1MHzにおいて測定される。

また、樹脂膜（A）は、エレクトレットとしての電荷保持を担う部分であることから、含フッ素重合体（a）としては、体積固有抵抗が高く、絶縁破壊強度が大きいものが好ましい。

含フッ素重合体（a）の体積固有抵抗は、 $10^{10} \sim 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ が好ましく、 $10^{16} \sim 10^{19} \Omega \cdot \text{cm}$ が特に好ましい。該体積固有抵抗は、ASTM D257により測定される。

含フッ素重合体（a）の絶縁破壊強度は、 $10 \sim 25 \text{ kV/mm}$ が好ましく、 $15 \sim 22 \text{ kV/mm}$ が特に好ましい。該絶縁破壊強度は、ASTM D149により測定される。

含フッ素重合体（a）の屈折率は、基板との屈折率差を小さくし、複屈折等による光の干渉を抑え、透明性を確保する点から、 $1.2 \sim 2$ が好ましく、 $1.2 \sim 1.5$ が特に好ましい。

[0051] 含フッ素重合体（a）の重量平均分子量（Mw）は、5万以上が好ましく、15万以上がより好ましく、20万以上がさらに好ましく、25万以上が特に好ましい。Mwが5万以上であると、製膜しやすい。特に20万以上であると、膜の耐熱性が向上し、エレクトレットとした際、保持した電荷の熱安定性が向上する。一方、重量平均分子量（Mw）が大きすぎると、溶媒に

溶けにくくなり、製膜プロセスが制限される等の問題が生じるおそれがある。したがって、含フッ素重合体（a）の重量平均分子量（Mw）は、100万以下が好ましく、85万以下がより好ましく、65万以下がさらに好ましく、55万以下が特に好ましい。

本明細書において、含フッ素重合体（a）の重量平均分子量（Mw）は、日本化学会誌、2001, NO. 12, P. 661に記載される、Mwと固有粘度 $[\eta]$ （30℃）との関係式（ $[\eta] = 1.7 \times 10^{-4} \times Mw^{0.60}$ ）を用いて算出される値である。

固有粘度 $[\eta]$ （30℃）（単位：dl/g）は、30℃で、ペルフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）を溶媒として、ウベローデ型粘度計により測定される値である。

[0052] 含フッ素重合体（a）は、前述した単量体を重合させることにより製造したものをを用いてもよく、市販品を用いてもよい。

主鎖にエーテル性酸素原子を含む含フッ素脂肪族環を有し、主鎖の末端にカルボキシ基またはアルコキシカルボニル基を有する含フッ素重合体の市販品としては、CYTOP（登録商標、旭硝子社製）が挙げられる。

また化合物（1-1）とテトラフルオロエチレンとの共重合体（含フッ素重合体）の市販品としては、Teflon-AF（登録商標、DuPont社製）が挙げられる。

[0053] <誘導体（a'）>

誘導体（a'）としては、上述したように、含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分との混合物、含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分との反応生成物、等が挙げられる。

前記混合物とは、反応生成物と異なり、含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分とが、反応せずに混合した状態をいう。

前記反応生成物としては、たとえば含フッ素重合体（a）および前記他の成分を溶媒に溶解したコーティング液を加熱（溶媒を揮発させて成膜する際のバーク等）した際に、各成分が反応して生成するものが挙げられる。なお

、含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分とを反応させた際に、反応できずに残存する含フッ素重合体（a）および含フッ素重合体（a）以外の他の成分は、混合物ということになる。

含フッ素重合体（a）と混合または反応させる他の成分としては、シランカップリング剤または多価極性化合物が好ましく、シランカップリング剤が特に好ましい。これにより、形成される樹脂膜（A）の電荷保持性能（保持した電荷の熱安定性、経時安定性等）が向上する。電荷保持性能の向上効果は、特に、含フッ素重合体（a）が主鎖の末端にカルボキシ基またはアルコキシカルボニル基を有する場合に顕著である。

電荷保持性能の向上効果は、含フッ素重合体（a）とシランカップリング剤または多価極性化合物とがナノ相分離を引き起こし、シランカップリング剤または多価極性化合物由来のナノクラスタ構造が形成され、当該ナノクラスタ構造が、エレクトレットにおける電荷を蓄える部位として機能するためであると推察される。

誘導体（a'）中、シランカップリング剤または多価極性化合物は、分子同士が反応した状態で存在していてもよい。

[0054] シランカップリング剤としては、特に限定されず、従来公知または周知のものを含めて広範囲にわたって利用できる。

シランカップリング剤としては、アミノ基を有するシランカップリング剤が好ましい。

入手の容易性等を考慮すると、特に好ましいシランカップリング剤は、 γ -アミノプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、N-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、およびN-（ β -アミノエチル）- γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、から選択される1種以上である。

[0055] シランカップリング剤は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用し

てもよい。

シランカップリング剤の配合量は、含フッ素重合体（a）とシランカップリング剤との合計量に対して、0.1～20質量%が好ましく、0.3～10質量%がより好ましく、0.5～5質量%が特に好ましい。上記範囲であると、含フッ素重合体（a）とともに溶媒に溶解してコーティング液とした際に、簡便に均一な溶液とすることができる。

[0056] 多価極性化合物は、極性官能基を2個以上有する分子量が50～2,000の化合物（ただし前記シランカップリング剤は除く。）が好ましく、分子量が100～2,000の化合物（ただし前記シランカップリング剤は除く。）が特に好ましい。多価極性化合物の分子量が上記範囲の下限値以上であると、分子量が高いために揮発しにくく、製膜後に膜中に残存させることが容易になる。また、上記範囲の上限値以下であると、含フッ素重合体（a）との相溶性が良好になる。

「極性官能基」とは、下記の（1a）および（1b）の何れか一方または両方の特性を有する官能基である。

（1a）電気陰性度の異なる2種類以上の原子を含み、当該官能基中に分極による極性を有する。

（1b）当該官能基と結合した炭素との電気陰性度の差により分極を生じさせる。

[0057] 上記特性（1a）のみを有する極性官能基の具体例としては、ヒドロキシフェニル基等が挙げられる。

上記特性（1b）のみを有する極性官能基の具体例としては、1級アミノ基（ $-NH_2$ ）、2級アミノ基（ $-NH-$ ）、ヒドロキシシル基、チオール基等が挙げられる。

上記特性（1a）および（1b）の両方を有する極性官能基の具体例としては、スルホ基、ホスホノ基、カルボキシシル基、アルコキシカルボニル基、酸ハライド基、ホルミル基、イソシアナート基、シアノ基、カルボニルオキシ基（ $-C(O)-O-$ ）カーボネート基（ $-O-C(O)-O-$ ）等が挙

げられる。

[0058] 多価極性化合物としては、ペンタン-1, 5-ジアミン、ヘキサン-1, 6-ジアミン、シクロヘキサン-1, 2-ジアミン、シクロヘキサン-1, 3-ジアミン、シクロヘキサン-1, 4-ジアミン、1, 2-ジアミノベンゼン、1, 3-ジアミノベンゼン、1, 4-ジアミノベンゼン、トリアミノメチルアミン、トリス(2-アミノエチル)アミン、トリス(3-アミノプロピル)アミン、シクロヘキサン-1, 3, 5-トリアミン、シクロヘキサン-1, 2, 4-トリアミン、1, 3, 5-トリアミノベンゼン、1, 2, 4-トリアミノベンゼン、2, 4, 6-トリアミノトルエン、1, 3, 5-トリス(2-アミノエチル)ベンゼン、1, 2, 4-トリス(2-アミノエチル)ベンゼン、2, 4, 6-トリス(2-アミノエチル)トルエン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミンおよびポリエチレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも1種が好ましく、トリス(2-アミノエチル)アミン、トリス(3-アミノプロピル)アミン、シクロヘキサン-1, 3-ジアミン、ヘキサン-1, 6-ジアミン、ジエチレントリアミンおよびポリエチレンジアミンからなる群から選ばれる少なくとも1種が特に好ましい。

[0059] 多価極性化合物は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。たとえば、極性官能基を2個有する化合物と、極性官能基を3個以上有する化合物とを混合して用いてもよい。

多価極性化合物の配合量は、含フッ素重合体(a)の配合量の0.01~30質量%が好ましく、0.05~10質量%が特に好ましい。該配合量が上記範囲の下限値以上であると、多価極性化合物を配合することによる効果が十分に得られる。該配合量が上記範囲の上限値以下であると、含フッ素重合体(a)との混和性が良好であり、コーティング液中での分布が均一となる。

樹脂膜(A)は、主鎖にエーテル性酸素原子を含む含フッ素脂肪族環を有し、主鎖の末端にカルボキシ基またはアルコキシカルボニル基を有する含フ

ッ素重合体と、アミノ基を有するシランカップリング剤との混合物、または、主鎖にエーテル性酸素原子を含む含フッ素脂肪族環を有し、主鎖の末端にカルボキシ基またはアルコキシカルボニル基を有する含フッ素重合体と、アミノ基を有するシランカップリング剤との反応生成物で形成されていることが、特に好ましい。

[0060] (樹脂膜 (A) の形成方法)

樹脂膜 (A) の形成方法としては特に限定されず、公知の方法を利用できる。たとえば、第 2 電極 7 2 が形成された振動体 5 1 a の、第 2 電極 7 2 側の表面上にコーティング膜を形成し、該コーティング膜を、第 2 電極 7 2 に対応するパターンにパターニングする方法が挙げられる。

コーティング膜の形成方法としては、たとえば、含フッ素重合体 (a) を溶媒に溶解してなるコーティング液、または含フッ素重合体 (a) と該含フッ素重合体 (a) 以外の他の成分とを溶媒に溶解してなるコーティング液を用いてコーティング膜を製膜する方法が挙げられる。前記他の成分としては、上述したとおり、シランカップリング剤または多価極性化合物が好ましく、シランカップリング剤が特に好ましい。

[0061] 溶媒としては、少なくとも含フッ素重合体 (a) を溶解する溶媒が用いられ、他の成分を含む場合、前記含フッ素重合体 (a) を溶解する溶媒が、該他の成分を溶解するものであれば、該溶媒単独で均一な溶液とすることができる。また、該他の成分を溶解する他の溶媒を併用してもよい。

溶媒として具体的には、プロトン性溶媒、非プロトン性溶媒等が挙げられ、それらの中から当該コーティング液に配合される成分を溶解するものを適宜選択すればよい。

「プロトン性溶媒」とは、プロトン供与性を有する溶媒である。「非プロトン性溶媒」とは、プロトン供与性を有さない溶媒である。

[0062] プロトン性溶媒としては、以下に示すプロトン性非含フッ素溶媒、プロトン性含フッ素溶媒等が挙げられる。

メタノール、エタノール、1-プロパノール、イソプロピルアルコール、

1-ブタノール、2-ブタノール、tert-ブチルアルコール、ペンタノール、ヘキサノール、1-オクタノール、2-オクタノール、エチレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコール、乳酸メチル等のプロトン性非含フッ素溶媒。

2-（ペルフルオロオクチル）エタノール等の含フッ素アルコール、含フッ素カルボン酸、含フッ素カルボン酸のアミド、含フッ素スルホン酸等のプロトン性含フッ素溶媒。

[0063] 非プロトン性溶媒としては、以下に示す非プロトン性非含フッ素溶媒、非プロトン性含フッ素溶媒等が挙げられる。

ヘキサン、シクロヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、デカリン、アセトン、シクロヘキサノン、2-ブタノン、ジメトキシエタン、モノメチルエーテル、酢酸エチル、酢酸ブチル、ジグリム、トリグリム、プロピレングリコールモノメチルエーテルモノアセテート（PGMEA）、N，N-ジメチルホルムアミド（DMF）、N，N-ジメチルアセトアミド（DMA）、N-メチルピロリドン、テトラヒドロフラン、アニソール、ジクロロメタン、ジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、メシチレン、テトラリン、メチルナフタレン等の非プロトン性非含フッ素溶媒。

[0064] 1，4-ビス（トリフルオロメチル）ベンゼン等のポリフルオロ芳香族化合物、ペルフルオロトリブチルアミン等のポリフルオロトリアルキルアミン化合物、ペルフルオロデカリン等のポリフルオロシクロアルカン化合物、ペルフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）等のポリフルオロ環状エーテル化合物、ペルフルオロポリエーテル、ポリフルオロアルカン化合物、ハイドロフルオロエーテル（HFE）等の非プロトン性含フッ素溶媒。

[0065] これらの溶媒は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。またこれらの他にも広範な化合物が使用できる。

これらのうち、含フッ素重合体（a）の溶解の用いる溶媒としては、含フッ素重合体（a）の溶解度が大きく、良溶媒であることから、非プロトン性含フッ素溶媒が好ましい。

シランカップリング剤または多価極性化合物を溶解する溶媒としては、プロトン性含フッ素溶媒が好ましい。

該溶媒の沸点は、コーティングの際に均一な膜を形成しやすいことから、65～220℃が好ましく、100～220℃が特に好ましい。

[0066] コーティング液の調製に用いる溶媒は、水分含量が少ないことが好ましい。該水分含量は、100質量ppm以下が好ましく、20質量ppm以下が特に好ましい。

コーティング液における含フッ素重合体（a）の濃度は、0.1～30質量%が好ましく、0.5～20質量%が特に好ましい。

コーティング液の固形分濃度は、形成しようとする膜厚に応じて適宜設定すればよい。通常、0.1～30質量%であり、0.5～20質量%が好ましい。

なお、固形分は、質量を測定したコーティング液を常圧下200℃で1時間加熱することで、溶媒を留去し、残存する固形分の質量を測定して算出する。

[0067] コーティング液は、各成分を含む組成物を予め調製し、これを溶媒に溶解して得てもよく、各成分をそれぞれ溶媒に溶解し、各溶液を混合して得てもよい。

各成分を含む組成物を予め調製する場合の該組成物の製造方法としては、固体と固体、または固体と液体を混練、共融押し出し法等により混合してもよく、それぞれを可溶性溶媒に溶解した各溶液を混合してもよい。これらの中でも、各溶液を混合することが特に好ましい。

含フッ素重合体（a）とシランカップリング剤とを併用する場合、コーティング液は、含フッ素重合体（a）を非プロトン性含フッ素溶媒に溶解した重合体溶液と、シランカップリング剤をプロトン性含フッ素溶媒に溶解した

シランカップリング剤溶液とを各々調製し、該重合体溶液とシランカップリング剤溶液とを混合することによって得ることが好ましい。

[0068] コーティング膜の製膜は、たとえば、コーティング液を基板の表面にコーティングし、ベーク等により乾燥させることにより実施できる。

コーティング方法としては、溶液から膜を形成させる従来公知の方法が使用でき、特に限定されない。かかる方法の具体例としては、スピコート法、ロールコート法、キャスト法、ディッピング法、水上キャスト法、ラングミュア・プロジェクト法、ダイコート法、インクジェット法、スプレーコート法等が挙げられる。また、凸版印刷法、グラビア印刷法、平板印刷法、スクリーン印刷法、フレキソ印刷法等の印刷技術も用いることができる。

乾燥は、常温での風乾により行ってもよいが、加熱してベークすることにより行うことが好ましい。ベーク温度は、溶媒の沸点以上であることが好ましく、特に230℃以上の高温で行うことが、添加したシランカップリング剤や多価極性化合物と含フッ素重合体(a)との反応を十分に完結させる点で特に好ましい。

[0069] 上記した含フッ素重合体(a)または誘導体(a')を用いて樹脂膜(A)を形成する場合、該樹脂膜(A)を形成する基板の表面は、基板との接合性を確保するため、クロム、アルミニウム、銅等で形成されていることが好ましい。仮に、該樹脂膜(A)を形成する基板の表面が金、白金、純ニッケルで形成されている場合、該樹脂膜(A)は基板に接合しづらい。このため、該樹脂膜(A)を振動板23上に形成する場合、振動板23の表面は、電極膜の形成材料として前述した材料のうち、金、白金、純ニッケルを除く導電性材料で形成されていることが好ましい。したがって、仮に、振動板23の主要形成材として金、白金、純ニッケルを採用する場合には、金、白金、純ニッケルの表面にクロムやアルミニウム等の膜を形成することが好ましい。

[0070] コーティング膜のパターニング方法としては、特に限定されず、公知のパターニング技術を利用できる。

具体例としては、前記コーティング膜上に、所定のパターンのマスクを形成し、エッチングする方法が挙げられる。

該マスクは、たとえば第2電極72と同様の方法により形成できる。ただしマスクを構成する材料は、コーティング膜に対し、ある程度のエッチング選択比を有するものであればよく、導電性材料でなくてもよい。たとえば該マスクとして、第2電極72に対応するパターンにパターニングされたレジスト膜を用いてもよい。レジスト膜のパターニングは、公知のリソグラフィ法により実施できる。

エレクトレット膜75の形成の具体例としては、例えば、図4の実施形態においては、第2電極72を形成する材料の上にCYTOP（旭硝子社登録商標）とγ-アミノプロピルメチルジメトキシシランを含むペルフルオロ（2-ブチルテトラヒドロフラン）の溶液を塗布し、加熱して樹脂膜（A）を得て、リソグラフィ法で第2電極を樹脂膜（A）と共に加工して形成し、電荷を注入することでエレクトレット膜75を形成できる。

[0071]（電荷の注入）

樹脂膜（A）に電荷を注入することで、該樹脂膜（A）をエレクトレット膜75とすることができる。

樹脂膜（A）への電荷の注入方法としては、一般的に絶縁体を帯電させる方法であれば特に限定されない。たとえば、G.M.Sessler, Electrets Third Edition, pp20, Chapter2.2 “Charging and Polarizing Methods” (Laplacian Press, 1998)に記載のコロナ放電法、電子ビーム衝突法、イオンビーム衝突法、放射線照射法、光照射法、接触帯電法、液体接触帯電法等が適用可能である。本発明においては、特にコロナ放電法、または電子ビーム衝突法を用いることが好ましい。

電荷を注入する際の温度条件としては、樹脂膜（A）に含まれる含フッ素重合体（a）または誘導体（a'）のガラス転移温度（ T_g ）以上で行うことが、注入後に保持される電荷の安定性の点から好ましく、該 $T_g + 10^\circ\text{C}$ ～該 $T_g + 20^\circ\text{C}$ 程度の温度条件で行うことが特に好ましい。

電荷を注入する際の印加電圧としては、樹脂膜（A）の絶縁破壊電圧以下であれば、高圧を印加することが好ましい。本発明において、樹脂膜（A）への印加電圧は、正電荷では6～30 kV、好ましくは8～15 kVであり、負電荷では－6～－30 kV、好ましくは－8～－15 kVである。

含フッ素重合体（a）または誘導体（a'）は、正電荷より負電荷をより安定に保持できることから、印加電圧は負電荷であることが好ましい。この場合、エレクトレット膜75の表面電位はマイナスとなる。

[0072] なお、ここでは、表面に第2電極72が形成された振動体51aの第2電極72上に直接樹脂膜（A）を形成し、電荷を注入する例を示したが、エレクトレット膜75の製造方法はこれに限定されない。たとえば、任意の基板上に樹脂膜（A）を形成し、基板から剥離した後、表面に第2電極72が形成された振動体51a上に配置し、電荷を注入してエレクトレット膜75としてもよい。また、任意の基板上に樹脂膜（A）を形成し、電荷を注入してエレクトレット膜75とした後、該エレクトレット膜75を基板から剥離し、これを、表面に第2電極72が形成された振動体51a上に配置してもよい。

振動体51aとは別の基板に樹脂膜（A）を形成する場合であって該基板上で電荷の注入を行わない場合、該基板としては、特に材質を選ばずに用いることができる。

振動体51aとは別の基板に樹脂膜（A）を形成する場合であって該基板上で電荷の注入を行う場合、該基板としては、得られた積層体に電荷を注入する際にアースに接続できるような基板が用いられる。好ましい材質としては、たとえば、金、銀、銅、ニッケル、クロム、アルミニウム、チタン、タングステン、モリブデン、錫、コバルト、パラジウム、白金、これらのうちの少なくとも1種を主成分とする合金等の導電性の金属が挙げられる。また、材質が導電性の金属以外のもの、たとえばガラス等の無機材料、ポリエチレンテレフタレート、ポリイミド、ポリカーボネート、アクリル樹脂等の有機材料等の絶縁性の材料の基板（絶縁性基板）であっても、その表面にスパ

ッタリング、蒸着、ウエットコーティング等の方法で金属膜、またはITO (Indium Tin Oxide)、IZO (Indium Zinc Oxide)、酸化亜鉛、二酸化チタン、酸化スズ等の金属酸化物；ポリアニリン、ポリピロール、PEDOT/ PSS (poly(3,4-ethylenedioxythiophene)及びpoly(4-styrenesulfonate)を含む導電性複合体)、カーボンナノチューブ等からなる有機導電材料等をコーティングしたものであれば用いることができる。またシリコン等の半導体材料も同様の表面処理を行ったものであるか、または半導体材料そのものの抵抗値が低いものであれば、基板として用いることができる。基板材料の抵抗値としては、体積固有抵抗値で $0.1\ \Omega\text{cm}$ 以下であることが好ましく、特に $0.01\ \Omega\text{cm}$ 以下であることが特に好ましい。このような低抵抗値の基板材料であれば、当該基板上に形成された積層体にそのまま電荷を注入してエレクトレットとすることができる。

[0073] 発電装置5の整流回路90は、ブリッジ式整流回路93と、平滑回路94とを備えている。

ブリッジ式整流回路93は、たとえば4個のダイオードを備え、その入力側には、第1電極71と、エレクトレット膜75の集電材である第2電極72とが、それぞれ接続配線91、92を介して接続されている。ブリッジ式整流回路93の出力側は、平滑コンデンサを備えた平滑回路94を介して、様々な電気機器95に接続される。

[0074] エレクトレット膜75の表面には、正または負の電荷が保持されているので、対向配置された第1電極71の内面には、静電誘導によりエレクトレット膜75の表面と反対の電荷（エレクトレット膜75の表面が正の場合には、負。エレクトレット膜75の表面が負の場合には、正。）が引き寄せられる。筐体12に対して振動体51aがアングル45（図3参照）の回転に連動して振動すると、平面視でエレクトレット膜75と第1電極71との重なり面積（以下、単に「重なり面積」という。）が増減するとともに、第1電極71の正電荷が増減する。静電誘導型の発電装置5では、電荷の変化を電気エネルギーとして取り出すことにより発電を行う。すなわち、整流回路9

0を備えた発電装置5は直流電源として機能する。

[0075] 本実施形態によれば、変動部61Aの変動動力が蓄積される蓄積部20Aを有するので、たとえば環境振動等の不規則な外部変動による変動動力であっても、蓄積部20Aに一時的に蓄積できる。また、蓄積部20Aに蓄積された動力により、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生する振動エネルギー発生部40Aを備えているので、蓄積部20Aに一時的に蓄積された動力を、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーとして発生できる。これにより、発電部70は、振動エネルギーを効率よく電力に変換できるので、発電効率に優れた発電装置5を提供できる。

[0076] また、振動エネルギー発生部40Aは、蓄積部20Aに蓄積された動力により回転する回転部41Aに接触することで、回転部41Aの回転速度を調整する振り子45Aを有するので、回転部41Aの回転速度を精度よく調整するとともに、振り子45Aが所定の周期で精度よく振動できる。したがって、振動エネルギー発生部40Aは、振幅と周波数とを精度よく調整した振動エネルギーを発生できるので、発電効率に極めて優れた発電装置5を提供できる。

[0077] また、たとえば持ち運び等により移動可能な腕時計等に対して発電装置5を設けることができる。したがって、たとえばユーザーの歩行時の振動（環境振動）を外部振動として利用して、変動部61Aの変動動力を蓄積部20Aに蓄積することができる。

[0078] また、第2電極72にエレクトレット膜75を備えるので、エレクトレット膜75と第1電極71との間の重なり面積の増減により、第1電極71の電荷が増減する。したがって、発電装置5は、電荷の変化を電力として取り出すことにより、発電を行うことができる。

[0079] （クォーツ式腕時計）

本発明に係る発電装置を備えた携帯型電気機器の一例として、クォーツ式腕時計1（請求項の「時計」に相当。）について説明する。

図5は、クォーツ式腕時計1のムーブメント10（請求項の「時計用ムー

ブメント」に相当。)の内部構造図である。なお、図5は、発電装置5を模式的に示している。

図5に示すように、クォーツ式腕時計1は、上述した実施形態に係る発電装置5と、水晶振動子2と、回路基板3と、コイル6と、ステータ7と、ロータ8と、歯車9とを備えている。そのうち回路基板3は、発振回路と、分周回路と、駆動回路とを備えている。

[0080] クォーツ式腕時計1を装着した人が歩行すると、歩行振動が外部変動（環境振動）として発電装置5に入力されて、発電装置5が発電する。発電装置5から水晶振動子2に電圧が印加されると、圧電効果により水晶振動子2は所定周波数の電気信号を出力する。この電気信号が回路基板3に入力されると、発振回路は所定周波数で安定して発振する。分周回路は、発振回路の出力信号をカウントして所定時間ごとにパルス信号を出力する。駆動回路は、パルス信号をトリガーとしてコイル6の駆動電流を交互に反転させる。この駆動電流によりコイル6は磁界を発生させ、ステータ7の両端からロータ8に磁界を印加して、永久磁石を備えたロータ8を回転させる。このロータ8の回転により歯車9が回転して、クォーツ式腕時計1が駆動される。

[0081] また、本実施形態によれば、発電装置5を備えた時計用のムーブメント10およびクォーツ式腕時計1を供給できる。とりわけ、時計がクォーツ式腕時計1であるので、ユーザーの歩行時の振動（環境振動）を外部変動として利用して、効率的に発電することができる。

[0082] なお、本発明の技術範囲は上記の実施形態に限られるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲において種々の変更を加えることが可能である。

実施形態では、発電装置5が組み込まれた時計は、いわゆるクォーツ式腕時計1であったが、発電装置5の適用は、クォーツ式腕時計1に限定されない。

また、実施形態では、時計1に発電装置5を設けた場合について説明したが、発電装置5が単独で存在してもよい。

[0083] また、第1電極71、第2電極72およびエレクトレット膜75のパター

ニングは、実施形態の形状に限定されることはなく、筐体 12 に対して振動体 51a, 51b が相対的に移動したときに、重なり面積が増減するのであれば、他の形状にパターンニングされていてもよい。

[0084] 実施形態（図 3 及び 4 参照）では、筐体 12 に第 1 電極 71 が設けられ、振動体 51a, 51b に第 2 電極 72 およびエレクトレット膜 75 が設けられていた。他の実施形態としては、筐体 12 に第 1 電極 71 およびエレクトレット膜 75 が設けられ、振動体 51a, 51b に第 2 電極 72 が設けられていてもよい。

また、実施形態では、発電装置 5 の整流回路 90 としてブリッジ式整流回路 93 を採用しているが、ブリッジ式整流回路 93 に限定はされない。

[0085] 図 6 は、他の実施形態にかかる発電部 70 の縦断面図である。

この実施形態では、エレクトレット膜 75 は、第 2 電極 72 にのみ備えられていたが、第 1 電極 71 および第 2 電極 72 の少なくとも一方に備えられていればよい。したがって、たとえば、図 6 に示す他の実施形態のように、第 1 電極 71 および第 2 電極 72 の両電極にエレクトレット膜 75 が備えられていてもよい。

筐体 12 には、たとえば、エレクトレット膜 75 を備えた第 1 電極 71a と、エレクトレット膜 75 を備えていない第 1 電極 71b とが交互に並んでいる。また、振動体 51a には、第 1 電極 71a, 71b に対抗するように、たとえば、エレクトレット膜 75 を備えた第 2 電極 72a と、エレクトレット膜 75 を備えていない第 2 電極 72b とが、交互に並んでいる。これにより、筐体 12 と振動体 51a とが相対的に移動したとき、第 1 電極 71 側のエレクトレット膜 75 と第 2 電極 72、および第 2 電極 72 側のエレクトレット膜 75 と第 1 電極 71 との重なり面積が増減できる。したがって、発電装置 5 は、第 1 電極 71 および第 2 電極 72 の両電極にエレクトレット膜 75 を備えている場合であっても上述の実施形態と同様に発電することができる。

[0086] その他、本発明を逸脱しない範囲で、上記した実施の形態における構成要

素を周知の構成要素に置き換えることは適宜可能である。

産業上の利用可能性

[0087] 本発明の発電装置は、時計用、特に、クォーツ式腕時計用のムーブメントなどにおいて広く使用可能である。

なお、2013年8月27日に出願された日本特許出願2013-175911号の明細書、特許請求の範囲、図面及び要約書の全内容をここに引用し、本発明の明細書の開示として、取り入れるものである。

符号の説明

[0088] 1・・・時計 10・・・ムーブメント（時計用ムーブメント） 12・・・筐体 20・・・香箱車（蓄積部） 20A・・・蓄積部 40・・・脱進調速機（振動エネルギー発生部） 40A・・・振動エネルギー発生部 41・・・がんぎ車（回転部） 41A・・・回転部 45・・・アングル（振り子） 45A・・・振り子 61・・・回転錘（変動部） 61A・・・変動部 70, 70A, 70B・・・発電部 71・・・第1電極 72・・・第2電極 75・・・エレクトレット膜（電荷保持部）

請求の範囲

- [請求項1] 外部変動により位置変動する変動部と、
前記変動部の変動動力が蓄積される蓄積部と、
前記蓄積部に蓄積された動力により、振幅と周波数とが調整された振動エネルギーを発生する振動エネルギー発生部と、
前記振動エネルギー発生部で発生した前記振動エネルギーを電力に変換する発電部と、
を有することを特徴とする発電装置。
- [請求項2] 前記振動エネルギー発生部は、前記蓄積部に蓄積された動力により回転する回転部に接触することで、前記回転部の回転速度を調整する振り子を有する、請求項1に記載の発電装置。
- [請求項3] 前記変動部は、筐体に対して位置変動可能に固定され、前記振動エネルギー発生部は、前記筐体に支持されている、請求項1または2に記載の発電装置。
- [請求項4] 前記発電部は、
第1電極と、
前記第1電極に対向して配置される第2電極と、
前記第1電極および前記第2電極の少なくとも一方に備えられる電荷保持部と、
を備える、請求項1～3のいずれか一項に記載の発電装置。
- [請求項5] 前記電荷保持部が、含フッ素重合体を用いた樹脂膜に電荷を注入したものである、請求項4に記載の発電装置。
- [請求項6] 前記含フッ素重合体が、 $1.8 \sim 8$ の比誘電率、 $10^{10} \Omega \cdot \text{cm} \sim 10^{20} \Omega \cdot \text{cm}$ の体積固有抵抗、及び $10 \sim 25 \text{ kV/mm}$ の絶縁破壊強度を有する請求項5に記載の発電装置
- [請求項7] 前記含フッ素重合体が、主鎖に脂肪族環を有する含フッ素重合体（a）または該含フッ素重合体（a）の誘導体（a'）を用いたものである、請求項5または6に記載の発電装置。

- [請求項8] 前記含フッ素重合体（a）が、環状含フッ素単量体に基づく繰り返し単位を有する重合体（I）、またはジエン系含フッ素単量体の環化重合により形成される繰り返し単位を有する重合体（II）である請求項7に記載の発電装置。
- [請求項9] 前記含フッ素重合体（a）の誘導体（a'）が、前記含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の下記その他の成分との混合物、または前記含フッ素重合体（a）と含フッ素重合体（a）以外の他の成分との反応生成物である請求項7または8に記載の発電装置。
- 他の成分：シランカップリング剤または極性官能基を2個以上有する分子量が50～2000の多価極性化合物。
- [請求項10] 請求項1～9のいずれか一項に記載の発電装置を備えた時計用ムーブメント。
- [請求項11] 請求項10に記載の時計用ムーブメントを備えた時計。

5

61A

変動部

20A

蓄積部

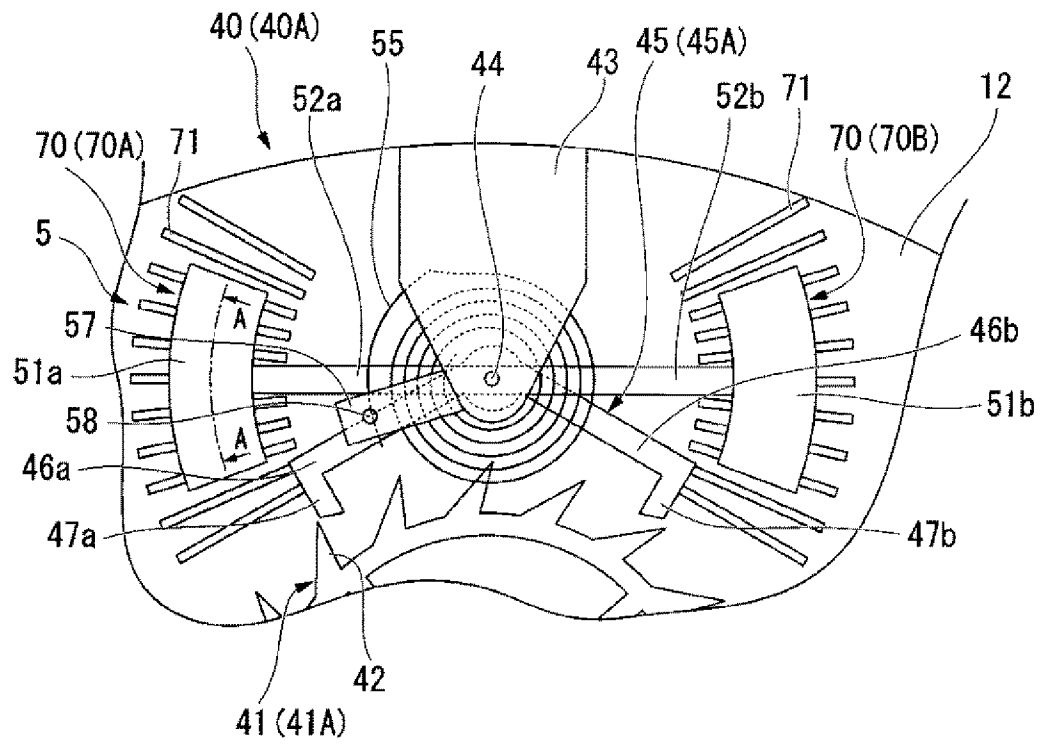
40A

エネルギー発生部

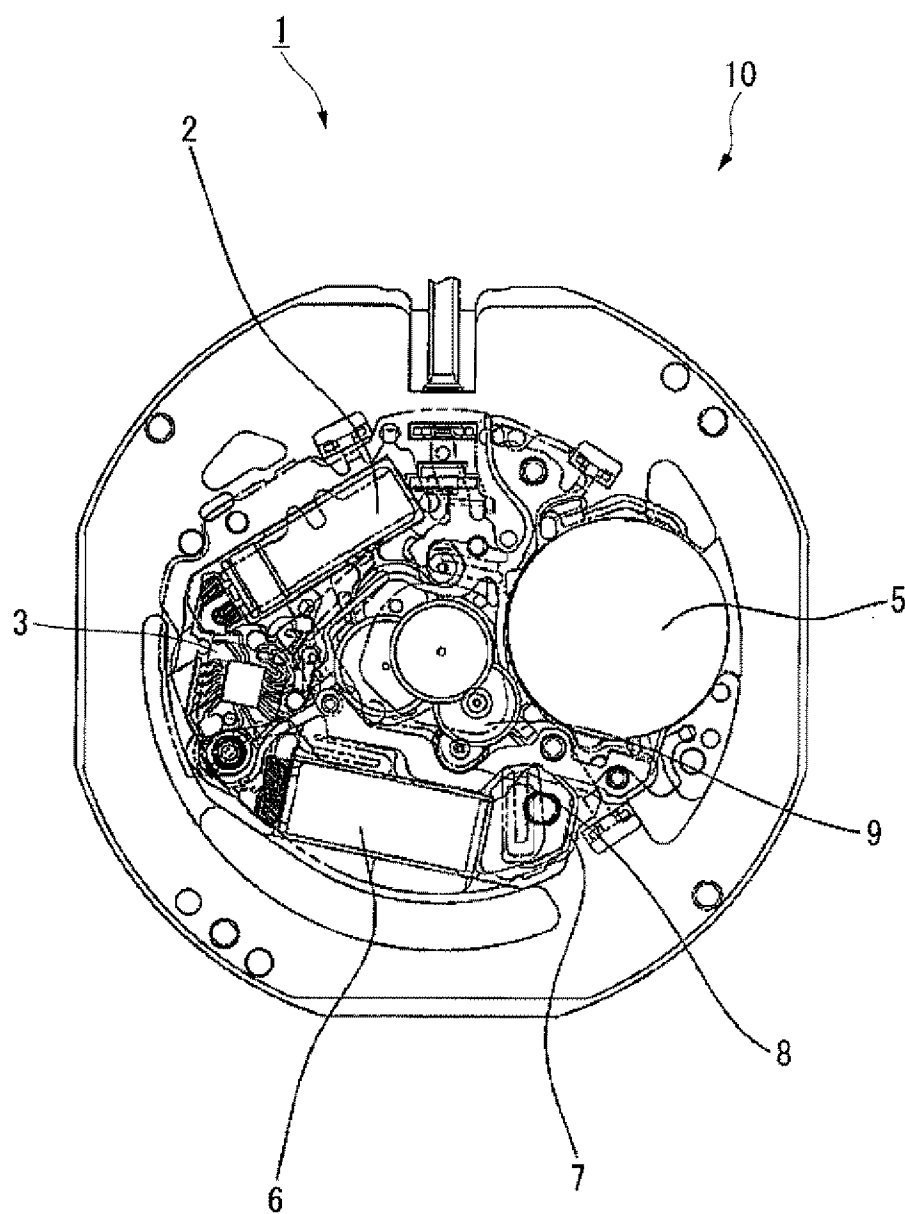
70 (70A, 70B)

発電部

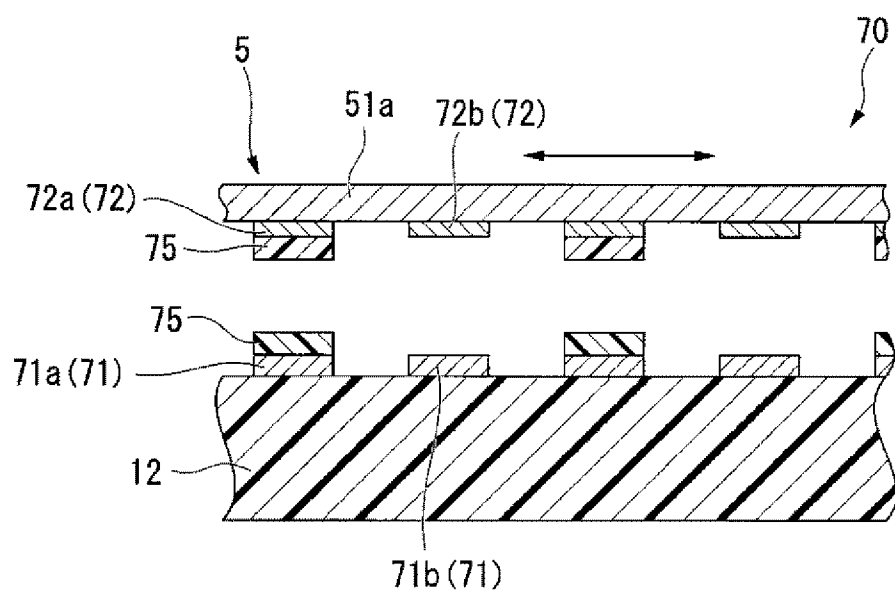
[図3]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070383

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H02N1/08(2006.01)i, G04C10/00(2006.01)i, G04G19/00(2006.01)i

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)

H02N1/08, G04C10/00, G04G19/00

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	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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.
X Y A	JP 2013-59149 A (Seiko Instruments Inc.), 28 March 2013 (28.03.2013), paragraphs [0020] to [0041], [0057] to [0059]; fig. 1 to 4, 11 (Family: none)	1, 3-5 6-11 2
Y A	JP 2012-206630 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 25 October 2012 (25.10.2012), paragraphs [0034], [0040], [0059] to [0084]; fig. 6 to 7 (Family: none)	6-11 2
A	JP 2013-135544 A (Citizen Holdings Co., Ltd.), 08 July 2013 (08.07.2013), paragraphs [0015] to [0030]; fig. 1 (Family: none)	1-11

☐ 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 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
09 October, 2014 (09.10.14)

Date of mailing of the international search report
21 October, 2014 (21.10.14)

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（I P C））

Int.Cl. H02N1/08(2006.01)i, G04C10/00(2006.01)i, G04G19/00(2006.01)i

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（I P C））

Int.Cl. H02N1/08, G04C10/00, G04G19/00

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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 請求項の番号
X Y A	JP 2013-59149 A（セイコーインスツル株式会社）2013.03.28, 段落 0020-0041, 0057-0059, 図 1-4, 図 11（ファミリーなし）	1, 3-5 6-11 2
Y A	JP 2012-206630 A（旭硝子株式会社）2012.10.25, 段落 0034, 0040, 0059-0084, 図 6-7（ファミリーなし）	6-11 2
A	JP 2013-135544 A（シチズンホールディング株式会社）2013.07.08, 段落 0015-0030, 図 1（ファミリーなし）	1-11

☐ 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

0 9 . 1 0 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

2 1 . 1 0 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

宮地 将斗

3 V

5 0 6 8

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 3 5 7