

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第3880967号  
(P3880967)

(45) 発行日 平成19年2月14日(2007.2.14)

(24) 登録日 平成18年11月17日(2006.11.17)

(51) Int. Cl.	F I
<b>C07C 211/54</b> (2006.01)	C O 7 C 211/54
<b>C07C 217/92</b> (2006.01)	C O 7 C 217/92
<b>C09K 11/06</b> (2006.01)	C O 9 K 11/06 6 2 0
<b>H01L 51/50</b> (2006.01)	H O 5 B 33/14 B
	H O 5 B 33/22 D

請求項の数 7 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2004-21884 (P2004-21884)	(73) 特許権者	000005821 松下電器産業株式会社 大阪府門真市大字門真1006番地
(22) 出願日	平成16年1月29日(2004.1.29)	(73) 特許権者	000005315 保土谷化学工業株式会社 神奈川県川崎市幸区堀川町66番地2
(62) 分割の表示	特願2001-49489 (P2001-49489) の分割	(74) 代理人	100082692 弁理士 蔵合 正博
原出願日	平成5年11月1日(1993.11.1)	(74) 代理人	100081514 弁理士 酒井 一
(65) 公開番号	特開2004-182740 (P2004-182740A)	(72) 発明者	鈴木 睦美 神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番 1号 松下技研株式会社内
(43) 公開日	平成16年7月2日(2004.7.2)		
審査請求日	平成16年1月29日(2004.1.29)		
審判番号	不服2005-15368 (P2005-15368/J1)		
審判請求日	平成17年8月11日(2005.8.11)		

最終頁に続く

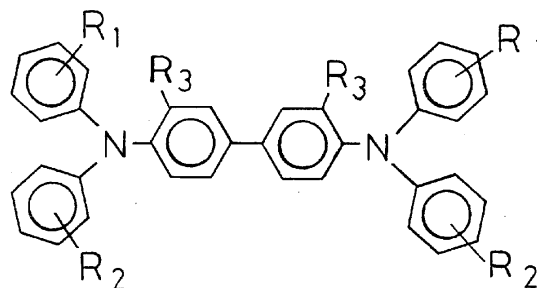
(54) 【発明の名称】 電界発光素子用化合物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式で記述されるテトラフェニルベンジジン化合物。

【化1】



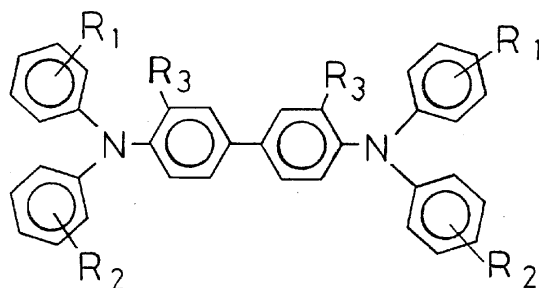
上記化学式において、R1、R2はターシャリーブチル基、フェニル基、低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基、R3は水素原子、メチル基またはメトキシ基を表す。ただし、R1 = R2 = ターシャリーブチル基ではない。

【請求項2】

下記一般式で記述されるテトラフェニルベンジジン化合物である、電界発光素子用化合物

。

## 【化2】



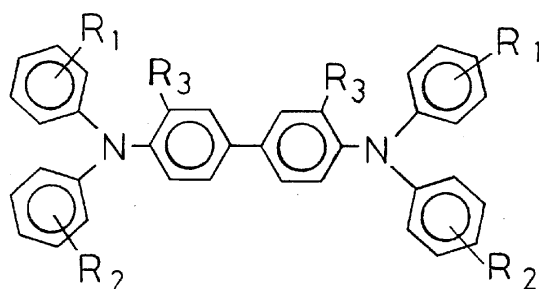
10

上記化学式において、 $R_1$ 、 $R_2$  はターシャリーブチル基、フェニル基、低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基、 $R_3$  は水素原子、メチル基またはメトキシ基を表す。ただし、 $R_1 = R_2 =$ ターシャリーブチル基ではない。

## 【請求項3】

下記一般式で記述されるテトラフェニルベンジジン化合物である、熱安定性電界発光素子用化合物。

## 【化3】



20

上記化学式において、 $R_1$ 、 $R_2$  はターシャリーブチル基、フェニル基、低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基、 $R_3$  は水素原子、メチル基またはメトキシ基を表す。ただし、 $R_1 = R_2 =$ ターシャリーブチル基ではない。

## 【請求項4】

前記した電界発光素子用化合物が、正孔輸送層に使用されることを特徴とする請求項2記載の電界発光素子用化合物。

30

## 【請求項5】

前記した熱安定性電界発光素子用化合物が、正孔輸送層に使用されることを特徴とする請求項3記載の熱安定性電界発光素子用化合物。

## 【請求項6】

前記した電界発光素子用化合物が、発光層に使用されることを特徴とする請求項2記載の電界発光素子用化合物。

## 【請求項7】

前記した熱安定性電界発光素子用化合物が、発光層に使用されることを特徴とする請求項3記載の熱安定性電界発光素子用化合物。

40

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、正孔輸送層、発光層、電子輸送層を有し、各種の表示装置として広範囲に利用される発光素子であって、低い印加電圧、高輝度、かつ安定性にも優れた電界発光素子(EL素子)用化合物に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

EL素子は自己発光のために液晶素子にくらべて明るく、鮮明な表示が可能であるため

50

、古くから多くの研究者によって研究されてきた。現在実用レベルに達した発光素子としては、無機蛍光体であるZnSを用いた素子がある。しかし、このような無機のEL素子は、発光のための印加電圧として200V以上が必要であるため、広く使用されるには至っていない。

【0003】

これに対して有機材料を用いた発光素子は、従来実用的なレベルからは遠いものであったが、1987年にコダック社のC. W. Tangらによって開発された積層構造素子によりその特性が飛躍的に進歩した。彼らは蒸着膜の構造が安定で電子を輸送することのできる蛍光体と、正孔を輸送することのできる有機物を積層し、両方のキャリアを蛍光体中に注入して発光させることに成功した。これによって有機電界発光素子の発光効率が向上し、10V以下の電圧で1000cd/m<sup>2</sup>以上の発光が得られるようになった。その後多くの研究者によってその特性向上のための研究が行なわれ、現在では短時間の発光では10000cd/m<sup>2</sup>以上の発光特性が得られている。この種の発光素子の従来例としては、例えば特許文献1に記載されたものがある。

10

【特許文献1】特開平4-220995号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

このような有機発光素子の基本的な発光特性はすでに十分実用範囲にあり、現在その実用化を妨げている最も大きな原因は、第1にその駆動時の発光安定性の不足であり、第2に保存安定性の不足である。ここで言う駆動時の発光安定性の不足とは、素子電流を印加して駆動した時に発光輝度が低下し、ダークスポットと呼ばれる発光しない領域が発生したり、素子の短絡により破壊が起こる現象を言い、保存安定性の不足とは、製作した素子を保存しているだけでも発光特性が低下する現象を言う。

20

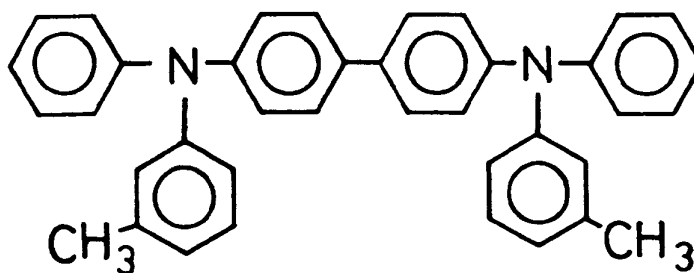
【0005】

本発明者らはこのようなEL素子の発光の安定性、保存安定性に関する問題点を解決するためその劣化の機構を検討した。その結果、特性劣化の大きな原因の一つがその正孔輸送層にあることが分かった。即ち、正孔輸送層として一般に利用される(化4：略称TPD)、(化5：略称TPAC)のような正孔輸送材料は、(1)湿度、温度、電流により結晶化して薄膜形状が一様でなくなる。(2)正孔輸送層が通電により分解する、などの変化を起こし、それによって発光性が著しく劣化することが分かった。

30

【0006】

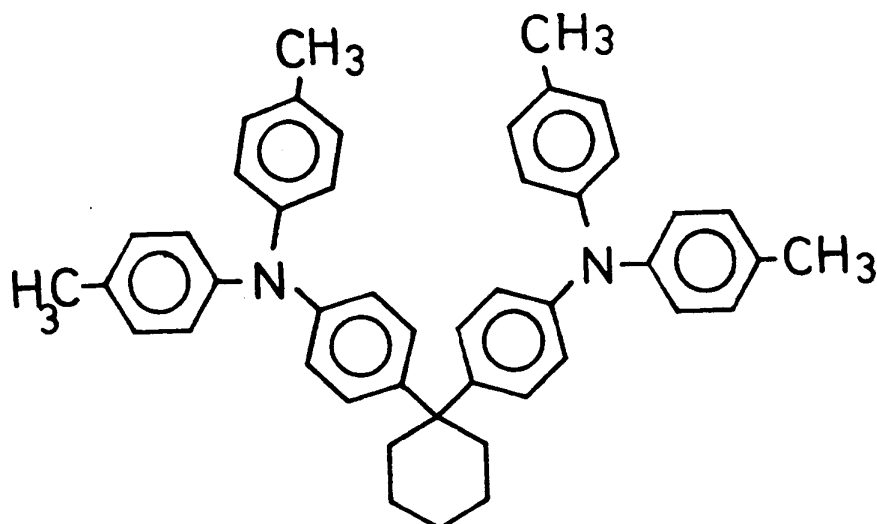
【化4】



40

【0007】

【化5】



10

20

本発明の目的は、このような知見に基づき、発光安定性、保存安定性に優れた正孔輸送層を有する有機EL素子用化合物を提供することにある。また、それらの正孔輸送層、発光層、電子輸送層の材料として有用なテトラフェニルベンジジン化合物を提供することにある。このような正孔輸送材料の具備しなければならない条件としては、(1)優れた正孔輸送能力を持つこと、(2)熱的に安定で、ガラス状態が安定であること、(3)薄膜を形成できること、(4)電氣的、化学的に安定であること、等を挙げることができる。

【課題を解決するための手段】

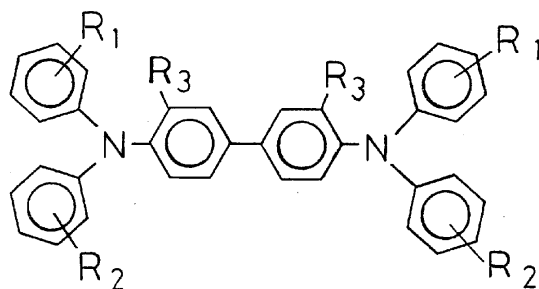
【0008】

上記目的を達成するために、本発明者らは、ITO電極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層およびマグネシウム/銀電極からなるEL素子を試作し、新たに合成した数多くの正孔輸送材料の評価を行なった。発光層としては主に電子輸送層を兼ねるアルミキノリン3量体を用いた。上記正孔輸送層の材料として、少なくとも(化6)で記述されるテトラフェニルベンジジン化合物、または(化6)で記述されるテトラフェニルベンジジン化合物と(化7)で記述されるトリフェニルアミン3量体のうちのいずれかを使用した。

30

【0009】

【化6】



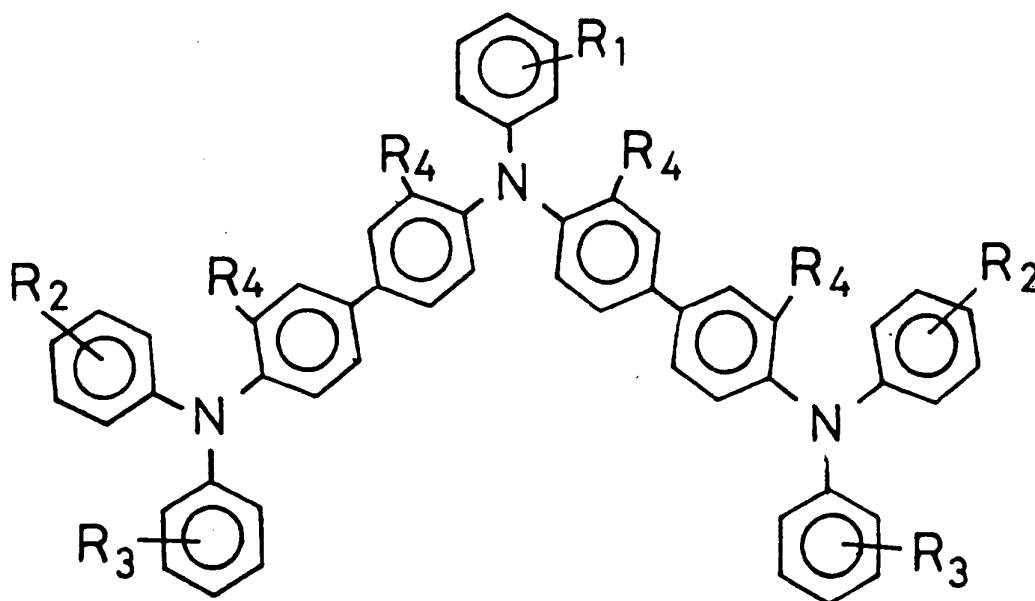
40

上記(化6)の化学式において、R1、R2はターシャリーブチル基、フェニル基、低級アルキル基もしくは低級アルコキシ基を置換基として有するフェニル基、R3は水素原子、メチル基またはメトキシ基を表す。ただし、R1=R2=ターシャリーブチル基ではない。

50

【 0 0 1 0 】

【 化 7 】



10

20

ただし、R1、R2、R3は水素原子、低級アルキル基、または低級アルコキシ基、R4は水素原子、メチル基、メトキシ基、またはクロル原子を表す。

【 0 0 1 1 】

本発明は、上記のような正孔輸送材料を使用した結果、それらが優れた正孔輸送能力を有しているばかりでなく、良好な薄膜を形成し、さらに熱的にも安定であることが分かった。この結果、優れた発光安定性、保存安定性を有するEL素子が実現できることが明らかになり、表示素子として広範囲に利用することができた。

30

【 発 明 の 効 果 】

【 0 0 1 2 】

以上のように、本発明は、正孔輸送層の材料として、テトラフェニルベンジジン化合物を用いたことを特徴とする電界発光素子であり、本発明の材料を使用することにより、従来の有機電界発光素子の最も大きな問題点であった発光安定性および保存安定性を格段に改良した電界発光素子を実現することができる。

【 発 明 を 実 施 す る た め の 最 良 の 形 態 】

【 0 0 1 3 】

本発明の電解発光素子用化合物の例を実施例を挙げながら、説明する。

40

【 実 施 例 1 】

【 0 0 1 4 】

本発明の正孔輸送材料の一つであるテトラフェニルベンジジン化合物は、相当する4,4'-ジハロゲン化ビフェニルと相当するジフェニルアミン化合物との縮合反応、または相当するベンジジン化合物と相当するハロゲン化アリアルとの縮合反応により合成することができる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。

【 0 0 1 5 】

また、本発明の別の正孔輸送材料であるトリフェニルアミン3量体は、相当するアニリン化合物と相当する4'-ハロゲン化ビフェニルアセトアニリド化合物との縮合反応、そしてその加水分解により得られるトリアミン化合物とハロゲン化アリアルとの縮合反応に

50

より得られる。これら縮合反応はウルマン反応として知られる方法である。

【0016】

これらの化合物の同定は、元素分析、IR測定により行ない、さらに溶媒による再結晶法、真空昇華法により精製し、純度を99.8%以上とした。純度の確認はTLCスキャナー、TG-DTA、融点測定により行なった。融点、分解点は正孔輸送層の熱安定性の目安となり、ガラス転移点はガラス状態の安定性の目安となる。発明者らは上記の化合物の置換基を種々に変えて材料を合成した。その結果、融点、分解点の大きさが置換基により変化し、いくつかの置換基の場合には、融点、分解点が高い材料を得ることができた。以下にいくつかの代表的な合成実施例を示す。

【0017】

(合成参考例1)

p-イソブチルアニリン、70.0g(0.47モル)を氷酢酸126mlに溶解して、30°Cで無水酢酸59.9g(0.58モル)を滴下し、滴下終了後40°Cで1時間反応させた。反応液を水300ml中へ注加し、析出した結晶をろ過、水洗、乾燥した。この結晶をトルエン140mlとn-ヘキサン、700mlの混合溶液で再結晶し、p-イソブチルアセトアニリド、60.4g(収率67.3%)を得た。融点は124.5~125.0°Cであった。

【0018】

上記得られた、p-イソブチルアセトアニリド、17.9g(0.094モル)とブロムベンゼン22.1g(0.14モル)、無水炭酸カリウム、16.9g(0.12モル)、銅粉、0.89g(0.014モル)を混合し、168~217°Cで14時間反応させた。反応生成物をトルエン100mlで抽出し、不溶分を濾別、除去後、濃縮乾固した。これをイソアミルアルコール、30mlで溶解し、水、3.4g、85%水酸化カリウム、11.8g(0.18モル)を加え、131°Cで加水分解した。水蒸気蒸留でイソアミルアルコール、過剰のブロムベンゼンを留去後、トルエン、120mlで抽出し、水洗、乾燥して濃縮した。濃縮物は乾燥し、N-4-イソブチルフェニルアニリン、17.6g(収率86.8%)を得た。

【0019】

さらに、N-4-イソブチルフェニルアニリン、17.6g(0.078モル)、4,4'-ジヨードビフェニル、12.6g(0.031モル)、無水炭酸カリウム、12.9g(0.093モル)および銅粉、0.89g(0.014モル)を混合し、190~220°Cで12時間反応させた。反応生成物をトルエン、70mlで抽出し、不溶分を濾別、除去後、濃縮してオイル状物とした。得られた粗製物は、カラムクロマトにより精製して(担体:シリカゲル、溶離液:トルエン/n-ヘキサン=1/6)、N,N'-ビス(p-イソブチルフェニル)-N,N'-ジフェニルベンジジン、8.5g(収率45.7%)を得た。融点は133.8~135.3°Cであった。元素分析、IR測定により生成物の同定を行なった。元素分析値は次の通りである。炭素:測定値87.77%、理論値:87.96%、水素:測定値7.43%、理論値7.38%、窒素:測定値4.51%、理論値4.66%。

【0020】

(合成参考例2)

アセトアニリド、23.0g(0.17モル)と4,4'-ジヨードビフェニル、85.3g(0.21モル)、無水炭酸カリウム、24.9g(0.18モル)、銅粉、2.48g(0.039モル)、ニトロベンゼン、40mlを混合し、190~205°Cで10時間反応させた。反応生成物をトルエン200mlで抽出し、不溶分を濾別、除去後、濃縮乾固した。これをカラムクロマトにより精製して(担体:シリカゲル、溶離液:トルエン/n-ヘキサン=1/6)、N-(4'-ヨード-4-ピフェニル)アセトアニリド、45.5g(収率64.8%)を得た。融点は135.0~136.0°Cであった。

【0021】

10

20

30

40

50

続いてN-(4'-ヨード-4-ピフェニル)アセトアニリド、18.2g(0.044モル)、アニリン、1.84g(0.020モル)、無水炭酸カリウム、6.91g(0.050モル)および銅粉、0.64g(0.010モル)、ニトロベンゼン、10mlを混合し、190~215°Cで15時間反応させた。反応生成物をトルエン100mlで抽出し、不溶分を濾別、除去後、濃縮してオイル状物とした。オイル状物はイソアミルアルコール、50mlに溶解し、水1ml、85%水酸化カリウム、2.64g(0.040モル)を加え、130°Cで加水分解した。水蒸気蒸留でイソアミルアルコールを留去後、トルエン250mlで抽出し、水洗、乾燥して濃縮した。濃縮物はカラムクロマトにより精製して(担体:シリカゲル、溶離液:トルエン/n-ヘキサン=3/1)、N,N'-ビス(4'-フェニルアミノ-4-ピフェニル)アニリン、8.85g(収率76.3%)を得た。

10

#### 【0022】

さらにN,N'-ビス(4'-フェニルアミノ-4-ピフェニル)アニリン、8.70g(0.015モル)、ヨードベンゼン、6.74g(0.033モル)、無水炭酸カリウム、4.56g(0.33モル)、銅粉、0.48g(0.0075モル)、ニトロベンゼン、10mlを混合し、195~205°Cで16時間反応させた。反応生成物をトルエン100mlで抽出し、不溶分を濾別、濃縮後、n-ヘキサンを加えて粗結晶を取り出した。粗結晶はカラムクロマトにより精製し、N,N'-ビス(4'-ジフェニルアミノ-4-ピフェニル)アニリン、5.50g(収率:50.1%)を得た。明瞭な融点は見られなかった。元素分析、IR測定により生成物の同定を行なった。元素分析値は以下の通りである。炭素:測定値88.80%、理論値:88.61%、水素:測定値5.77%、理論値5.65%、窒素:測定値5.62%、理論値5.74%。

20

#### 【実施例2】

#### 【0023】

次に、これらを実際にEL素子として評価し、その素子の発光特性、発光特性の安定性、保存安定性を検討した。EL素子は、図1に示すように、ガラス基板1上に透明電極2としてITO電極をあらかじめ形成したものの上に、正孔輸送層3、電子輸送層兼発光層4、Mg/Ag電極5の順に蒸着して作製した。まず、十分に洗浄したガラス基板(ITO電極は製膜済み)、正孔輸送材、電子輸送性発光材として精製したアルミキノリン3量体を蒸着装置にセットした。0.1nm/秒の速度で正孔輸送層を蒸着し、膜厚を変えた試料を作製して最適の発光が得られる厚さを決定した。膜厚は材料によって異なるが、最適膜厚は40~60nmの間の厚さであった。なお膜厚は水晶振動子によってモニターした。アルミキノリン3量体の蒸着は同じく0.1nm/秒の速度で行ない、その膜厚は50nmとした。Mg/Ag電極は0.4nm/秒の速度で行ない、その厚さを100nmとした。これらの蒸着はいずれも真空を破らずに連続して行なった。素子作製後、直ちに乾燥室素中で電極の取り出しを行ない、引続き特性測定を行なった。

30

#### 【0024】

得られた素子の発光特性は100mA/cm<sup>2</sup>の電流を印加した場合の発光輝度で定義した。また、発光の安定性は200cd/m<sup>2</sup>の発光が得られる電流を連続で印加し、その時の発光輝度の変化を測定した。発光の寿命は輝度が半分の100cd/m<sup>2</sup>になるまでの時間と定義した。保存安定性は室温、乾燥空気中に一定時間素子を放置後、20mA/cm<sup>2</sup>の電流を印加し、輝度が初期発光特性の半分になるまでの時間で定義した。

40

#### 【0025】

本発明の正孔輸送材料の評価のために、電子輸送層兼発光層4としてアルミキノリン3量体を用いたが、もちろん本発明では発光層の材料として各種の希土類錯体、オキサゾール誘導体、ポリパラフェニレンビニレンなどの各種の材料を用いることができる。また、発光層にキナクリドンやクマリンなどのドーパントを添加することにより、さらに高性能のELを作製することができる。さらにまた、電子輸送層、発光層、正孔輸送層の3層からなる電界発光素子とすることもできる。また、本発明の正孔輸送材料と適性な電子輸送材料とを組み合わせることにより、正孔輸送層を発光層として用いることもできる。

50

## 【0026】

このような検討の結果、正孔輸送材料が130°C以上の融点、300°C以上の分解点を有する場合には優れた発光の安定性、保存安定性が得られることが分かった。したがって、上記化合物の置換基は、本発明の置換基に限らず、上記以上の融点、分解点を持つものであれば使用できる。

## 【0027】

また、本発明による正孔輸送材料は、単独で用いることもできるが、2種類以上を共蒸着などで製膜して混合状態で用いることができる。さらに、本発明の正孔輸送材料を従来の正孔輸送材料であるTPACやTPDとの共蒸着によって使用することができる。2種類以上を同時蒸着して用いることにより、その結晶化を起こし難くする効果をしばしば呈する。

10

## 【0028】

## (素子参考例1)

十分に洗浄したITO電極、正孔輸送材としてテトラフェニルベンジジン化合物(1) (R1 = p-n-Bu、R2 = H、R3 = H、mp = 132.9°C)、電子輸送性発光材として精製したアルミキノリン3量体を蒸着装置にセットした。0.1nm/秒の速度で化合物(1)を50nmの厚さで蒸着した。なお膜厚は水晶振動子によってモニターした。アルキミノリンの蒸着は同じく0.1nm/秒の速度で行ない、その膜厚は50nmとした。Mg/Ag電極は0.4nm/秒の速度で行ない、その厚さを100nmとした。これらの蒸着はいずれも真空を破らずに連続して行なった。素子作製後、直ちに乾燥窒素中で電極の取り出しを行ない、引続き特性測定を行なった。発光特性は2500cd/m<sup>2</sup>、発光の寿命は620Hr、保存安定性は2200Hrであった。

20

## 【0029】

## (比較例)

比較のために正孔輸送材として(化4：略称TPD)、(化5：略称TPAC)を用いて同じ条件でEL素子を作製し、その特性を調べた。TPDでの発光特性、発光の寿命性、保存安定性はそれぞれ、2200cd/m<sup>2</sup>、220Hr、460Hrであった。一方、TPACでの発光性、発光の寿命性、保存安定性はそれぞれ、2500cd/m<sup>2</sup>、280Hr、560Hrであった。

## 【0030】

## (素子実施例1)

素子参考例1と同様の方法でそれぞれ、テトラフェニルベンジジン化合物(5) (R1 = tBu、R2 = tBu、R3 = H)、(7) (R1 = C6H5、R2 = C6H5、R3 = H)、(8) (R1 = C6H5、R2 = C6H5、R3 = CH3)、(10) (R1 = p-CH3-C6H4、R2 = p-CH3-C6H4、R3 = H)を正孔輸送材として使用したEL素子を作製し、その特性を評価した。

30

## 【0031】

## (素子参考例2)

素子参考例1と同様の方法でそれぞれ、テトラフェニルベンジジン化合物(2) (R1 = iBu、R2 = H、R3 = H)、(3) (R1 = iBu、R2 = H、R3 = CH3)、(4) (R1 = tBu、R2 = H、R3 = H)、(6) (R1 = C6H5、R2 = H、R3 = H)、(9) (R1 = p-CH3-C6H4、R2 = H、R3 = OCH3)を正孔輸送材として使用したEL素子を作製し、その特性を評価した。その結果を図2に示す。なお、上記テトラフェニルベンジジン化合物(2)~(10)のR1およびR2の置換位置はすべてp-位を示す。このことから本発明によるテトラフェニルベンジジン化合物(・・5)、(7)、(8)、(10)は、発光寿命、保存安定性に優れていることが分かった。

40

## 【0032】

## (素子参考例3)

正孔輸送材に使用可能なトリフェニルアミン3量体化合物としては、次の化合物があげ

50

られる。トリフェニルアミン3量体化合物(11)(R1 = H、R2 = H、R3 = H、R4 = H)、(12)(R1 = H、R2 = H、R3 = H、R4 = CH3)、(13)(R1 = tBu、R2 = p-CH3、R3 = p-CH3、R4 = H)、(14)(R1 = H、R2 = H、R3 = H、R4 = OCH3)、(15)(R1 = H、R2 = m-CH3、R3 = m-CH3、R4 = H)、(16)(R1 = H、R2 = p-OCH3、R3 = p-OCH3、R4 = H)、(17)(R1 = p-CH3、R2 = H、R3 = H、R4 = CH3)、(18)(R1 = p-CH3、R2 = p-iBu、R3 = p-iBu、R4 = H)、(19)(R1 = p-nBu、R2 = m-CH3、R3 = H、R4 = Cl)、(20)(R1 = p-OC2H5、R2 = p-CH3、R3 = p-CH3、R4 = H)。

10

## 【0033】

(素子参考例4)

素子参考例1と同様の方法でそれぞれ、トリフェニルアミン3量体化合物(11)(R1 = H、R2 = H、R3 = H、R4 = H)とテトラフェニルベンジジン化合物(4)(R1 = p-tBu、R2 = H、R3 = H)を共蒸着し、正孔輸送材として使用したEL素子を作製し、その特性を評価した。発光特性は3300cd/m<sup>2</sup>、発光の寿命は720Hr、保存安定性は2900Hrであった。

## 【産業上の利用可能性】

## 【0034】

本発明は、有機電界発光素子の正孔輸送層や発光層の材料として適したテトラフェニルベンジジン化合物を提供するものであり、本発明の材料を使用することにより、従来の有機電界発光素子の最も大きな問題点であった発光安定性および保存安定性を格段に改良した電界発光素子を実現することができる。

20

## 【図面の簡単な説明】

## 【0035】

【図1】本発明の一実施例における電界発光素子の構成を示す部分断面拡大斜視図

【図2】本発明の一実施例における正孔輸送層としてテトラフェニルベンジジン化合物を用いた電界発光素子の特性を示す一覧図

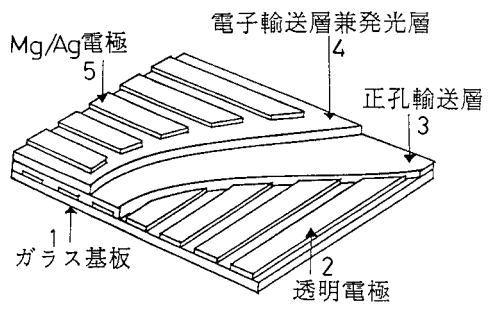
## 【符号の説明】

## 【0036】

- 1 ガラス基板
- 2 透明電極
- 3 正孔輸送層
- 4 電子輸送層兼発光層
- 5 Mg/Ag電極

30

【 図 1 】



【 図 2 】

化合物 No	発光特性 (cd/m <sup>2</sup> )	発光寿命 (Hr)	保存安定性 (Hr)
2	3 2 0 0	5 6 0	1 4 0 0
3	2 8 0 0	6 7 0	1 6 0 0
4	4 1 0 0	6 5 0	1 1 0 0
5	2 5 0 0	7 0 0	2 1 0 0
6	3 7 0 0	4 6 0	1 8 0 0
7	2 9 0 0	6 0 0	2 2 0 0
8	3 2 0 0	4 5 0	1 9 0 0
9	4 0 0 0	5 9 0	1 7 0 0
1 0	3 6 0 0	5 7 0	2 2 0 0

## フロントページの続き

- (72)発明者 福山 正雄  
神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号 松  
下技研株式会社内
- (72)発明者 村上 睦明  
神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号 松  
下技研株式会社内
- (72)発明者 南部 太郎  
神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号 松  
下技研株式会社内
- (72)発明者 富山 裕光  
茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業  
株式会社 筑波研究所内
- (72)発明者 押野 雅彦  
茨城県つくば市御幸が丘45番地 保土谷化学工業  
株式会社 筑波研究所内

## 合議体

審判長 脇村 善一

審判官 鈴木 紀子

審判官 天野 宏樹

(56)参考文献 特開平4-220995(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

C07C211/54