(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3771298号
(P3771298)
(45)発行日　平成18年4月26日(2006.4.26)　(24)登録日　平成18年2月17日(2006.2.17)

(51)Int.Cl.　　F I
C09D 183/16 (2006.01)　　C09D 183/16
C09J 183/16 (2006.01)　　C09J 183/16

請求項の数 6　(全 10 頁)

(21)出願番号　特願平7-132036
(22)出願日　平成7年5月30日(1995.5.30)
(65)公開番号　特開平8-325460
(43)公開日　平成8年12月10日(1996.12.10)
審査請求日　平成14年5月15日(2002.5.15)

(73)特許権者　596033657
クラリアント　インターナショナル　リミティド
スイス国，ツェーハー－４１３２　ムッテンツ１，ロータウシュトラーセ　６１
(74)代理人　100099759
弁理士　青木　篤
(74)代理人　100077517
弁理士　石田　敬
(74)代理人　100087413
弁理士　古賀　哲次
(74)代理人　100128495
弁理士　出野　知
(74)代理人　100082898
弁理士　西山　雅也

最終頁に続く

(54)【発明の名称】ポリシラザン組成物

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μｍの電気絶縁性無機フィラーとを含む、厚さ２０μｍ以上の接着剤層を形成するための耐熱性接着剤。

【請求項２】

前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、請求項１に記載の耐熱性接着剤。

【請求項３】

ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μｍの電気絶縁性無機フィラーとを含む、厚さ２０μｍ以上の塗膜を形成するための耐熱性塗料。

【請求項４】

前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、請求項３に記載の耐熱性塗料。

【請求項５】

ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μｍの電気絶縁性無機フィラーとを含む組成物を基材間あるいは基材表面に適用した後、焼成することにより得られる、厚さ２０μｍ以上の耐熱性接着剤層あるいは耐熱性塗膜を有する基材。

【請求項６】
前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、請求項５に記載の基材。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【産業上の利用分野】
本発明は、耐熱性接着剤や耐熱性塗料に使用することができるポリシラザンと比較的多量の無機フィラーを含む組成物に関する。
【０００２】
【従来の技術】
ポリシラザンと無機フィラーとを含む組成物が知られている。例えば、本出願人による特開平３－１１９０８７号公報に、ポリシラザンとサブミクロンの無機フィラーとを含む接着剤組成物が記載されている。この組成物によると、セラミックスや金属部材を接着することができ、しかも耐熱性と気密封止性の両方に優れたSiO_2系の接着剤層が得られる。
また、同じく本出願人による特願平６－４７０７１号明細書に、ポリシラザンと平均粒径０．００５～０．１μmのＺｎＯ及び／又はTiO_2の超微粒子とを含むコーティング組成物が記載されている。この組成物によると、緻密且つ高硬度の透明なSiO_2系のＵＶ吸収膜が得られる。
【０００３】
【発明が解決しようとする課題】
しかしながら、上記出願公開公報や特許出願明細書によるポリシラザンと無機フィラーを含む組成物は、接着剤や塗料として高い耐熱性や硬度、気密封止性を示すものの、セラミック化時の収縮性が大きいため、接着剤や塗料として適用した際の接着剤層や塗膜を厚く（例えば、２０μm以上に）するとクラックが入るなどの問題があった。
従って、本発明の目的は、耐熱性と気密封止性や平滑性に優れ、しかも厚くしてもクラックの入らないSiO_2系の接着剤層や塗膜を形成することができるポリシラザン組成物を提供することにある。
【０００４】
【課題を解決するための手段】
本発明によると、これらの及びその他の目的は、
（１）ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μmの電気絶縁性無機フィラーとを含む、厚さ２０μm以上の接着剤層を形成するための耐熱性接着剤；
（２）前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、（１）に記載の耐熱性接着剤；
（３）ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μmの電気絶縁性無機フィラーとを含む、厚さ２０μm以上の塗膜を形成するための耐熱性塗料；
（４）前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、（３）に記載の耐熱性塗料；
（５）ペルヒドロポリシラザンと、前記ペルヒドロポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の平均粒径０．００５～０．５μmの電気絶縁性無機フィラーとを含む組成物を基材間あるいは基材表面に適用した後、焼成することにより得られる、厚さ２０μm以上の耐熱性接着剤層あるいは耐熱性塗膜を有する基材；並びに
（６）前記電気絶縁性無機フィラーが、平均粒径が異なる２種以上のフィラーを組み合わせたものである、（５）に記載の基材
によって達成される。
【０００９】
このように、ペルヒドロポリシラザンと比較的多量の電気絶縁性無機フィラーとを含む

組成物を用いることにより、耐熱性と気密封止性や平滑性に優れ、しかも電気絶縁性の高い比較的厚いSiO_2系の接着剤層や塗膜を形成することが可能になる。

本発明の組成物はペルヒドロポリシラザン（以下、単に「ポリシラザン」又は「ＰＨＰＳ」ともいう。）を含む。用いるペルヒドロポリシラザンは、分子内にＳｉ－Ｈ結合およびＮ－Ｈ結合を有し、ペルヒドロポリシラザン単独は勿論のこと、ペルヒドロポリシラザンと他のポリマーとの共重合体やペルヒドロポリシラザンと他の化合物との混合物でも利用できる。

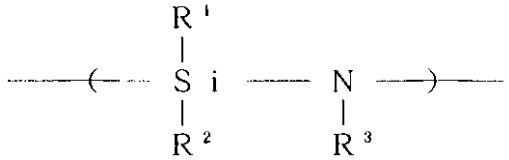
【００１０】

用いるペルヒドロポリシラザンには、鎖状、環状または架橋構造を有するもの、あるいは分子内にこれら複数の構造を同時に有するものがあり、これら単独でもまたは混合物としても利用できる。

用いるペルヒドロポリシラザンの代表例として下記のようなものが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【００１１】

【化２】



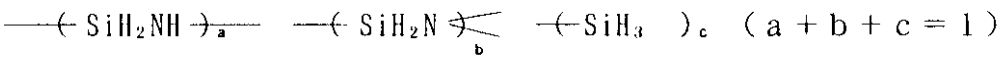
（Ｉ）

【００１２】

上記一般式（Ｉ）で、R^1、R^2及びR^3に水素原子を有するものがペルヒドロポリシラザンであり、その製造法は、例えば特公昭６３－１６３２５号公報、D. Seyferth らCommunication of Am. Cer. Soc., C-13, January 1983. に報告されている。これらの方法で得られるものは、種々の構造を有するポリマーの混合物であるが、基本的には分子内に鎖状部分と環状部分を含み、下式、

【００１３】

【化３】



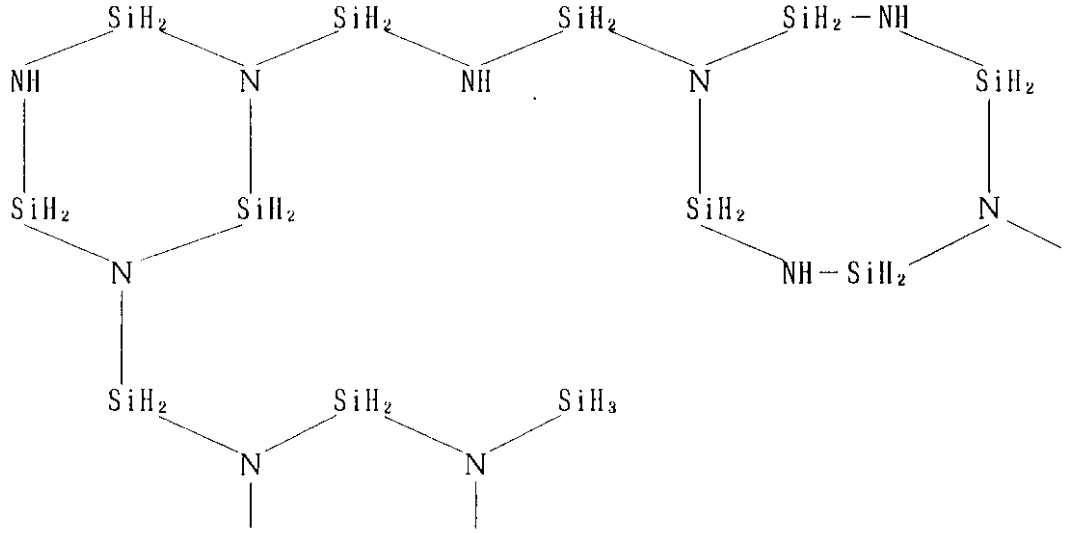
（ａ＋ｂ＋ｃ＝１）

【００１４】

で表わすことができる。ペルヒドロポリシラザンの構造の一例を以下に示す。

【００１５】

【化４】



【００２５】
その他、特開昭６２－１９５０２４号公報に報告されているような繰り返し単位が〔（SiH_2）$_n$（NH）$_m$〕及び〔（SiH_2）$_r$O〕（これらの式中、ｎ、ｍ、ｒはそれぞれ１、２または３である）で表わされるポリシロキサザン、特開平２－８４４３７号公報に報告されているようなポリシラザンにボロン化合物を反応させて製造する耐熱性に優れたポリボロシラザン、特開昭６３－８１１２２号、同６３－１９１８３２号、特開平２－７７４２７号公報に報告されているようなポリシラザンとメタルアルコキシドとを反応させて製造するポリメタロシラザン、特開平１－１３８１０８号、同１－１３８１０７号、同１－２０３４２９号、同１－２０３４３０号、同４－６３８３３号、同３－３２０１６７号公報に報告されているような分子量を増加させたり（上記公報の前４者）、耐加水分解性を向上させた（後２者）、無機シラザン高重合体や改質ポリシラザン、特開平２－１７５７２６号、同５－８６２００号、同５－３３１２９３号、同３－３１３２６号公報に報告されているようなポリシラザンに有機成分を導入した共重合シラザン、特開平５－２３８８２７号公報、特願平４－２７２０２０号、同５－９３２７５号、同５－２１４２６８号、同５－３０７５０号、同５－３３８５２４号明細書に報告されているようなポリシラザンにセラミック化を促進するための触媒的化合物を付加または添加した、より低温でセラミックス化する低温セラミックス化ポリシラザンなども同様に使用できる。

【００２６】
本発明により用いるポリシラザンは、分子量が低すぎると、焼成時の収率が低くなり、実用的でない。一方分子量が高すぎるとその溶液の安定性が低くなり、健全な接着結合が得られない。これらの理由から、用いるポリシラザンの分子量は数平均分子量で下限は１００、好ましくは５００である。また、上限は５万、好ましくは１００００である。

【００２７】
本発明の組成物は、上記のようなポリシラザンを適当な溶剤中に含む接着剤や塗料としてセラミックスや金属の基材に適用される。
溶剤としては、脂肪族炭化水素、脂環式炭化水素、芳香族炭化水素の炭化水素溶媒、ハロゲン化メタン、ハロゲン化エタン、ハロゲン化ベンゼン等のハロゲン化炭化水素、脂肪族エーテル、脂環式エーテル等のエーテル類を使用することができる。好ましい溶媒は、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、ブロモホルム、塩化エチレン、塩化エチリデン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン等のハロゲン化炭化水素、エチルエーテル、イソプロピルエーテル、エチルブチルエーテル、ブチルエーテル、１，２－ジオキシエタン

、ジオキサン、ジメチルジオキサン、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン等のエーテル類、ペンタン、ヘキサン、イソヘキサン、メチルペンタン、ヘプタン、イソヘプタン、オクタン、イソオクタン、シクロペンタン、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等の炭化水素等である。これらの溶剤を使用する場合、ポリシラザンの溶解度や溶剤の蒸発速度を調節するために、２種類以上の溶剤を混合してもよい。

【００２８】

溶剤の使用量（割合）は採用する適用法により作業性がよくなるように選択され、また用いるポリシラザンの平均分子量、分子量分布、その構造によって異なるので、適宜、自由に混合することができる。一般に、接着剤として使用する場合には、固形分濃度で５～９５重量％の範囲、好ましくは１０～９０重量％の範囲で、また塗料として使用する場合にも、固形分濃度で５～９５重量％の範囲、好ましくは１０～９０重量％の範囲で混合することができる。固形分濃度を高くすることにより、得られる接着剤層や塗膜を厚くすることができる。

【００２９】

本発明の組成物は、ポリシラザンのセラミック化に伴う体積収縮を緩和するために、ポリシラザン１重量部当たり１２～５０重量部の無機フィラーを含む。無機フィラーの配合量が５重量部よりも少ないと、セラミック化時にクラックが入るために所望の厚さ（好ましくは２０μm以上、より好ましくは３０μm以上）の接着剤層や塗膜を得ることができない。反対に、無機フィラーの配合量が５０重量部よりも多いと、接着剤としての接着性や塗膜の付着性が不十分となる。無機フィラーの好ましい配合量は、ポリシラザン１重量部当たり１２～４０重量部、より好ましくは１２～３０重量部である。

【００３０】

本発明に用いる電気絶縁性無機フィラーの平均粒径は、一般に０．００５～０．５μm、好ましくは０．０１～０．５μmである。この平均粒径が５０μmよりも大きいと、粒子の沈降により接着剤や塗料として使用しにくくなる。０．００５μmよりも小さいと、粒子が均一分散せず、クラックが生じる。フィラーの体積割合を高めるため、２種以上の粒径のフィラーを用いることが好ましい。

【００３１】

本発明に好適な無機フィラーとして、Al_2O_3、SiO_2、ZrO_2、TiO_2、SiC、MgO、AlN、等を挙げることができる。特に、分散性の点から、Al_2O_3、TiO_2 の種を一緒に混合することが好ましい。このように混合する場合であって、例えば、ポリシラザンにペルヒドロポリシラザン（ＰＨＰＳ）を使用し、無機フィラーに粒径０．５μmのAl_2O_3と粒径０．０２μmのTiO_2を使用した場合の配合割合は、重量部でＰＨＰＳ：Al_2O_3＝１：５～５０（より好ましくは１：１０～２５）の範囲に、ＰＨＰＳ：TiO_2＝１：０．０５～１．０（より好ましくは１：０．１～０．５）の範囲にあることが好ましい。

無機フィラーはポリシラザン組成物に均一に分散させるべきである。均一に分散させる方法としては、従来行われている超音波分散法、ボールミル分散法、振動ミル法またはこれらの組合せが挙げられる。

【００３２】

本発明の組成物には、ポリシラザンのセラミック化に伴う体積収縮を緩和するために、フッ素樹脂をさらに含有させることができる。

用いるフッ素樹脂としては、各種のフッ素樹脂を使用できるが、耐熱性の点から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－パー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－ヘキサフルオロプロピレン（ＦＥＰ）、テトラフルオロエチレン－ヘキサフルオロプロピレン－パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体（ＥＰＥ）、テトラフルオロエチレン－エチレン共重合体（ＥＴＦＥ）、ポリクロロトリフルオロエチレン（ＰＣＴＦＥ）、クロロトリフルオロエチレン－エチレン共重合体（ＥＣＴＦＥ）、ポリビニリデンフルオライド（ＰＶＤＦ）、ポリビ

ニルフルオライド（ＰＶＦ）などが好適である。

【００３３】

フッ素樹脂を含むポリシラザン組成物を調製する場合には、上記のようなポリシラザン含有組成物とフッ素樹脂粒子の分散液とを単に混合するだけでよい。

フッ素樹脂粒子の大きさは、一般に５０μｍ以下、好ましくは１０μｍ以下とする。均一微細に混合するために有利だからである。

フッ素樹脂粒子を分散させるための分散媒としては、上記のようなポリシラザン組成物を調製する際に用いられる溶剤と同じものを使用することが好ましい。特に、キシレンまたはトルエンを分散媒とすることが好ましい。

【００３４】

上記のようなフッ素樹脂を含有するポリシラザン組成物を使用する場合、フッ素樹脂の配合量は、接着剤や塗料に求められる特性バランス（例えば、耐熱性、透光性、クラック防止性、などの間のバランス）により変動するが、全固形分（ポリシラザン＋無機フィラー＋フッ素樹脂）を１００重量％とした場合、一般に５～９０重量％、好ましくは１０～８０重量％である。

【００３５】

本発明のポリシラザン組成物には、前述した主成分としての無機フィラーに加え、必要に応じて適当な充填剤及び／又は増量剤を加えることができる。充填剤の例としてはシリカ、アルミナ、ジルコニア、マイカを始めとする酸化物系無機物あるいは炭化珪素、窒化珪素等の非酸化物系無機物の微粉等が挙げられる。また用途によってはアルミニウム、亜鉛、銅等の金属粉末の添加も可能である。さらに充填剤の例を詳しく述べれば、シリカゾル、ジルコニアゾル、アルミナゾル、チタニアゾル等のゾル：ケイ砂、石英、ノバキュライト、ケイ藻土等のシリカ系：合成無定形シリカ：カオリナイト、雲母、滑石、ウオラストナイト、アスベスト、ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム等のケイ酸塩：ガラス粉末、ガラス球、中空ガラス球、ガラスフレーク、泡ガラス球等のガラス体：窒化ホウ素、炭化ホウ素、窒化アルミニウム、炭化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、ホウ化チタン、窒化チタン、炭化チタン等の非酸化物系無機物：炭酸カルシウム：酸化亜鉛、アルミナ、マグネシア、酸化チタン、酸化ベリリウム等の金属酸化物：硫酸バリウム、二硫化モリブデン、二硫化タングステン、弗化炭素その他無機物：アルミニウム、ブロンズ、鉛、ステンレススチール、亜鉛等の金属粉末：カーボンブラック、コークス、黒鉛、熱分解炭素、中空カーボン球等のカーボン体等があげられる。好ましい充填剤は、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化ジルコニウムなどの酸化物系無機物の超微粒子及びシリカゾルである。

【００３６】

これら充填剤は、針状（ウィスカーを含む）、粒状、鱗片状等種々の形状のものを単独又は２種以上混合して用いることができる。充填剤の添加量はポリシラザン１重量部に対し、０．０５～５重量部の範囲であり、特に好ましい添加量は０．２～３重量部の範囲である。

ポリシラザン組成物には、必要に応じて各種顔料、レベリング剤、消泡剤、帯電防止剤、pH調整剤、分散剤、表面改質剤、可塑剤、乾燥促進剤、流れ止め剤、等を加えてもよい。

【００３７】

本発明によると、上記のように調製したポリシラザン組成物を、セラミックスや金属部材の被接着箇所又は気密封止箇所に塗布し、セラミックスや金属部材同士を接触させ、組立て完了後、焼成処理を含む組成物のセラミック化を行うことにより、耐熱性接着剤として使用することができる。本発明による組成物は、厚いSiO_2系の接着剤層を可能にするので、耐熱性、気密封止性と共に高い電気絶縁性が要求されるような用途、例えば、固体電解質型燃料電池の部材の接合に特に有用である。

【００３８】

例示として、本発明のポリシラザン組成物が耐熱性接着剤として好適に適用される固体電解質型燃料電池の模式図を図１に示す。図中、１はアノード、２はジルコニア固体電解質

、３はカソード、４は集電極（インターコネクター）、５はマニホールドである。単位セル６はインターコネクター４の１面、固体電解質２及びもう一つのインターコネクター４の１面からなる。ここで、ジルコニア固体電解質２と集電極４との間、及びマニホールド５と積層した単位セル６との間などに絶縁気密封止が必要である。

【００３９】

本発明によると、上記のように調製したポリシラザン組成物を、ガラス、プラスチックス、セラミックス、金属、等をはじめとする各種の基材表面に塗布することにより、耐熱性塗料としても使用することができる。本発明による組成物は、厚いSiO_2系の塗膜を可能にするので、耐熱性、平滑性と共に高い電気絶縁性が要求されるような用途、例えば、パワートランジスタ基板用絶縁コーティングや抵抗器絶縁板用コーティングに特に有用である。

【００４０】

塗布方法は、刷毛塗り法、スプレー法、印刷法、ロールコート法、フローコート法、など通常の接着剤や塗料を適用するための方法が挙げられるが、これらに限定はされない。また、所望の厚さの接着剤層や塗膜を得るために、本発明のポリシラザン組成物を同じ箇所に２回以上塗布適用することもできる。

このような方法で塗布し、充分自然乾燥させた後、ポリシラザン組成物を加熱・焼成する。この焼成によってポリシラザンは架橋、縮合、あるいは、焼成雰囲気によっては酸化、加水分解して硬化し、強靱な接着結合を形成する。

【００４１】

上記焼成条件はポリシラザンの分子量や構造などによって異なる。焼成温度はポリシラザンがセラミックス化する温度、通常４００℃以上が好ましいが、より低温でセラミックス化するタイプのポリシラザンでは、例えば１３０～３５０℃でもよい。昇温速度は特に限定しないが、５～２０℃／分の緩やかな昇温速度が好ましい。焼成雰囲気は酸素中、空気中あるいは不活性ガス等のいずれであってもよいが、空気中がより好ましい。空気中での焼成によりポリシラザンの酸化、あるいは空気中に共存する水蒸気による加水分解が進行し、上記のような低い焼成温度でＳｉ－Ｏ結合あるいはＳｉ－Ｎ結合を主体とする強靱な接着結合の形成が可能となる。

こうして得られたSiO_2系の接着剤層又は塗膜は、耐熱性（耐熱温度３００℃以上）と気密封止性（相対密度８５％以上）に優れ、しかも高い電気絶縁性（例えば、比抵抗10^3Ω以上）を示す厚い層（約２０μｍ以上）にしてもクラックが入らないので、例えば、固体電解質型燃料電池の絶縁気密封止用、光ファイバー端面接着用、パワートランジスタ基板用絶縁コーティング、抵抗器絶縁板用コーティング、等として有用である。

【００４２】

【実施例】

実施例によって本発明をさらに説明する。

本発明の組成物の調製

東燃製ＰＨＰＳ－１（Ｍｎ＝７２０）の１５％キシレン溶液を調製し、これにAl_2O_3〔住友化学製／ＡＫＰ－２０（０．５μｍ）〕とTiO_2〔出光興産製／ＩＴ－ＵＤ（０．０２μｍ）〕とを配合し、全固形分を７７．２重量％、Al_2O_3／ＰＨＰＳ＝１５（重量比）、TiO_2／ＰＨＰＳ＝０．２５（重量比）とした。この配合物に超音波分散処理を２０分間施した。

次いで、１ｍｍφのAl_2O_3製ボールを用い、ＰＦＡ容器中でボールミルを２４時間分散させた後、＃４００のステンレスメッシュで濾過して液状組成物とした。

【００４３】

実施例１

寸法１ｃｍ×２ｃｍのジルコニア（ZrO_2）、アルミナ（Al_2O_3）、ヘインズアロイ（商標）の板をその主面に上記組成物を刷毛で塗布して接合した。次いで、この接合体を１２０℃で１０分保持した後、１０℃／分の速度で４５０℃まで昇温し、４５０℃で１時間保持し、そして炉冷することにより該組成物をセラミック化した。

得られた接着剤層の厚さは３０μｍであったが、クラックは全く認められなかった。また、接着層の比抵抗を１０００℃、空気中で直流四端子法で測定したところ、10^4 Ωｃｍであった。

【００４４】

実施例２

図１に示す固体電解質型燃料電池のジルコニア固体電解質と集電極の間及びマニホールドと積層した単位セルの間に本発明の接着剤組成物を用い、実施例１と同様の条件で該組成物をセラミック化した後、１０００℃で正極側に酸素、負極側に水素を流して運転した。接着層はこの条件下でも流れることはなく、またガスの漏出もなかった。

【００４５】

実施例３

本発明の組成物をＮｉめっきＣｕ板にフローコート法で塗布した。次いで、この塗膜を１２０℃で１０分保持した後、１０℃／分の速度で４５０℃まで昇温し、４５０℃で１時間保持し、そして炉冷することにより該組成物をセラミック化した。

得られたセラミック塗膜の厚さは５０μｍであったが、クラックは全く認められなかった。この塗膜のラリステップ（触針式粗さ計）によるＲmax 値は０．１μｍであり、また絶縁耐圧は３．５ｋＶを示した。さらに、この塗膜を４５０℃で１００時間したところ、塗膜にはまったく変化がなかった。

【００４６】

【発明の効果】

本発明によるポリシラザンと無機フィラーとを含む組成物を用いることにより、耐熱性と気密封止性や平滑性に優れ、しかも電気絶縁性の高い厚いSiO_2系の接着剤層又は塗膜を形成することが可能になる。

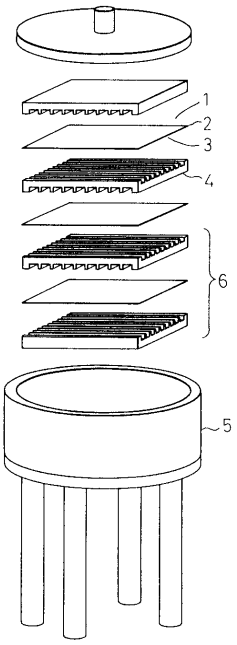
【図面の簡単な説明】

【図１】本発明の接着剤が好適に適用される固体電解質型燃料電池の模式図である。

【符号の説明】

１…アノード
２…ジルコニア固体電解質
３…カソード
４…集電極（インターコネクター）
５…マニホールド

【図１】



フロントページの続き

(72)発明者　鈴木　直
埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡１丁目３番１号　東燃株式会社　総合研究所内
(72)発明者　長原　達郎
埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡１丁目３番１号　東燃株式会社　総合研究所内
(72)発明者　田村　文考
埼玉県入間郡大井町西鶴ヶ岡１丁目３番１号　東燃株式会社　総合研究所内

審査官　前田　孝泰

(56)参考文献　特開平０３－２５００８２（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－００２５７５（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－３２９９８９（ＪＰ，Ａ）
特開平０１－１３８１０７（ＪＰ，Ａ）
特開平０１－１３８１０８（ＪＰ，Ａ）
特開昭４９－０６９７１７（ＪＰ，Ａ）
特開平０３－１１９０８７（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－１１１８４５（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－０６０８９１（ＪＰ，Ａ）
特開平０３－２８５２６８（ＪＰ，Ａ）
特開平０５－１５６１７６（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－１９６９８６（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－２５２４５３（ＪＰ，Ａ）
特開平０８－１６５１４５（ＪＰ，Ａ）
特開平０８－１７１０２４（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
C08L 83/00- 83/16
C09D183/00-183/16
C09J183/00-183/16
WPI/L(QUESTEL)