

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2009年2月5日 (05.02.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/017205 A1

- (51) 国際特許分類:
C09D 1/00 (2006.01) *B05D 7/24* (2006.01)
A61K 8/25 (2006.01) *C01B 33/025* (2006.01)
A61Q 17/04 (2006.01) *C01B 33/18* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/063801
- (22) 国際出願日: 2008年7月31日 (31.07.2008)
- (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2007-200750 2007年8月1日 (01.08.2007) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社ブリヂストン (BRIDGESTONE CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1048340 東京都中央区京橋1丁目10番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 遠藤 忍 (ENDO, Shinobu).
- (74) 代理人: 三好 秀和, 外 (MIYOSHI, Hidekazu et al.);
〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目2番8号 虎ノ門
琴平タワー 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING SILICON FINE PARTICLE COATING AGENT

(54) 発明の名称: ケイ素微粒子塗布剤の製造方法

(57) Abstract: A method for manufacturing a silicon fine particle coating agent includes a step of obtaining a mixed solution as the coating agent by dispersing a mixed powdery material containing silicon fine particles in a solvent, while applying ultrasonic waves.

(57) 要約: ケイ素微粒子を含む混合粉体を、超音波を照射しながら溶媒に分散させて混合溶液を塗布剤として得る工程を含む。



WO 2009/017205 A1

明 細 書

ケイ素微粒子塗布剤の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、被塗布体に塗布するケイ素微粒子塗布剤の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年のナノテクノロジーの進歩とともに、原料としての粉体に要求されるサイズは、微小化している。研究開発のターゲットは、サブミクロン粒子からナノ粒子に移行しつつある。特に20nm以下のナノ粒子は、バルク素材にない優れた特性を持つことが知られている。例えば、電子状態の変化に伴って特異な電磁的効果を発現する特性や、電子状態の変化に伴って表面原子が占める割合が増大する特性が挙げられる。そのため、例えば、ケイ素微粒子は、発光素子としての応用等が期待されている。

[0003] かかるケイ素微粒子の製造方法としては種々のものが提案されている(例えば特許文献1、非特許文献1参照)。

[0004] ところが、特許文献1、非特許文献1に開示された製造方法では、製造装置の取り扱いが複雑であった。また、特許文献1、非特許文献1に開示された製造方法によって生成されるケイ素微粒子は、用途や使用方法に制限があった。

特許文献1:特開平6—279015号

非特許文献1:「レーザーアブレーションによるナノ粒子の合成」、瀬戸章文、粉体工学会誌(J. Soc. Powder Technology, Japan)第42巻(2005)、pp. 39—44

発明の開示

[0005] そのため、ケイ素微粒子を種々の用途に利用する上で、ケイ素微粒子をより簡便に製造する方法が求められていた。

[0006] 本発明の特徴は、以下の事項を要旨とする。

[0007] (1)ケイ素微粒子を含む混合粉体を超音波を照射しながら溶媒に分散させた混合溶液を塗布剤として得る工程を含む。

[0008] (2)さらに、混合溶液を静置する工程を含み、静置工程後の混合溶液の上澄み液を

被塗布体に塗布する塗布剤として得る。

[0009] (3)不活性雰囲気下においてケイ素源と炭素源を含む混合物を焼成する工程と、不活性雰囲気から生成ガスを抜き出し、急冷してケイ素微粒子を含む混合粉体を得る工程とを有する。

[0010] (4)ケイ素源は、加熱されることにより一酸化ケイ素を生成する。

[0011] (5)ケイ素源は、エチルシリケートである。

[0012] (6)炭素源は、フェノール樹脂である。

[0013] 以上の特徴によれば、ケイ素微粒子をより簡便に製造することができる。更に、ケイ素微粒子を含む塗布剤として利用する上で、ケイ素微粒子をより簡便に製造することができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]図1は、ケイ素微粒子を含む混合粉体の透過型電子顕微鏡写真を示す。

[図2]図2は、ケイ素微粒子を含む混合粉体の透過型電子顕微鏡写真を示す。

[図3]図3は、ケイ素微粒子の製造装置の概略構成図を示す。

[図4]図4は、本発明の実施例の紫外線吸収スペクトル図を示す。

発明を実施するための最良の形態

[0015] 以下に実施形態を挙げて本発明を説明する。本発明は、以下の実施形態に限定されない。

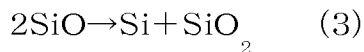
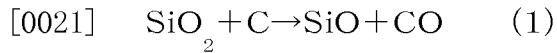
[0016] 炭化ケイ素焼結体の製造方法の中間工程である炭化ケイ素粉末の製造工程では、例えばケイ素源と炭素源とを混合した後、非酸化雰囲気下にて1600℃以上の温度で加熱することで炭化ケイ素(SiC)粉末が得られる。

[0017] この化学反応では、(1)式に示されるように、はじめに中間生成物として一酸化ケイ素(SiO)ガスが生成される。

[0018] この生成された一酸化ケイ素ガスをそのまま1600℃以上の温度で加熱し続けると、(2)式に示されるように、炭化ケイ素粉末が生成される。

[0019] ところが、(1)式に示される反応により一酸化ケイ素ガスが生成された後、一酸化ケイ素ガスを速やかに1600℃未満の温度にて冷却すると、(3)式に示されるように、ケイ素(Si)微粒子を含む混合物が得られることを、本発明者は見出した。

[0020] 本発明は、上記知見に基づくものである。かかる知見は、簡易にケイ素微粒子を製造できるという観点から有益である。また、かかる知見は、炭化ケイ素焼結体の製造工程において生じる副生成物の再利用を図ることができるという観点からも有益である。



(成分)

本発明の実施形態では、炭化ケイ素焼結体の製造方法の中間工程である炭化ケイ素粉末の製造工程で用いられる原料を用いることができる。従って、炭化ケイ素粉末の製造工程を説明しながら、本発明の実施形態に用いられる原料について説明する。

[0022] 炭化ケイ素粉末としては、 α 型、 β 型、非晶質、あるいはこれらの混合物等を使用することができる。高純度の炭化ケイ素焼結体を生成する過程で製造される高純度の炭化ケイ素粉末を用いることが好ましい。

[0023] 使用可能な β 型炭化ケイ素粉末のグレードに、特に制限はない。例えば、一般に市販されている β 型炭化ケイ素を用いることができる。

[0024] 炭化ケイ素粉末の粒径は、具体的には、 $0.01\ \mu\text{m} \sim 10\ \mu\text{m}$ 程度であることが好ましい。さらに好ましくは、炭化ケイ素粉末の粒径は、 $0.05\ \mu\text{m} \sim 5\ \mu\text{m}$ である。

[0025] 粒径が $0.01\ \mu\text{m}$ 未満であると、計量、混合等の処理における取り扱いが困難になる。また、炭化ケイ素粉末の粒径が $10\ \mu\text{m}$ を超えると、炭化ケイ素粉末の比表面積が小さくなる。即ち、隣接する粉末同士の接触面積が小さくなる。この場合、炭化ケイ素焼結体を高密度化することが難しい。

[0026] 高密度の炭化ケイ素粉末は、例えば、少なくとも1種以上のケイ素化合物を含むケイ素源と、少なくとも1種以上の加熱により炭素を生成する有機化合物を含む炭素源と、重合触媒又は架橋触媒とを溶媒中で溶解し、乾燥した後に得られた粉末を非酸化性雰囲気下で焼成することにより生成できる。

[0027] 上記ケイ素化合物を含むケイ素源(以下、「ケイ素源」という。)としては、液状のケイ

素化合物と固体のケイ素化合物とを併用することができるが、少なくとも1種は液状のケイ素化合物から選ばれなくてはならない。

[0028] 液状のケイ素化合物としては、アルコキシシラン(モノー、ジー、トリー、テトラー)及びテトラアルコキシシランの重合体が用いられる。アルコキシシランの中ではテトラアルコキシシランが好適に用いられる。

[0029] 具体的には、メトキシシラン、エトキシシラン、プロポキシシラン、ブトキシシラン等を用いることができる。ハンドリングの点からは、液状のケイ素化合物として、エトキシシランを使用することが好ましい。

[0030] また、テトラアルコキシシランの重合体としては、重合度が2～15程度の低分子量重合体(オリゴマー)を使用できる。さらに重合度が高いケイ酸ポリマーのうち液状のケイ酸ポリマーを使用できる。

[0031] これらの液状ケイ素化合物と併用可能な固体状のケイ素化合物としては、酸化ケイ素が挙げられる。

[0032] 上述した反応焼結法で使用可能な酸化ケイ素とは、SiO₂の他、シリカゲル(内部にOH基やアルコキシル基を含むコロイド状超微細シリカ含有液)、二酸化ケイ素(シリカゲル、微細シリカ、石英粉末)等を含む。

[0033] これらケイ素源は、単独で用いてもよいし、2種以上併用してもよい。これらケイ素源の中でも、均質性及びハンドリング性が良好なテトラエトキシシランのオリゴマー、及びテトラエトキシシランのオリゴマーと微粉末シリカとの混合物等を使用することが好ましい。

[0034] また、ケイ素源は、高純度の物質である。ケイ素源は、初期の不純物含有量が20ppm以下であることが好ましく、5ppm以下であることがさらに好ましい。ケイ素源としては、加熱により一酸化ケイ素を生成するものであることが好ましく、具体的にはエチルシリケートである。

[0035] 炭素源として用いられる物質は、酸素を分子内に含有し、加熱により炭素を残留する高純度有機化合物であることが好ましい。具体的には、フェノール樹脂、フラン樹脂、エポキシ樹脂、フェノキシ樹脂やグルコース等の単糖類、蔗糖等の少糖類、セルロース、デンプン等の多糖類など各種糖類が挙げられる。

- [0036] ケイ素源と均質に混合する目的から、炭素源として用いられる物質は、常温で液状であることが好ましい。また、常温で溶媒に溶解することが好ましい。更に、熱可塑性あるいは熱融解性のよう、加熱により軟化或いは液状化する物質であることが好ましい。
- [0037] レゾール型フェノール樹脂、ノボラック型フェノール樹脂は、ケイ素源として好適である。特に、ケイ素源として、レゾール型フェノール樹脂を使用することが好ましい。
- [0038] 高純度の炭化ケイ素粉末の製造に用いられる重合触媒及び架橋触媒は、炭素源に応じて適宜選択できる。炭素源がフェノール樹脂またはフラン樹脂の場合には、重合触媒または架橋触媒として、トルエンスルホン酸、トルエンカルボン酸、酢酸、しょう酸、硫酸等の酸類を使用することができる。これらの中でも、トルエンスルホン酸は、好適に用いられる。
- [0039] 炭化ケイ素焼結体の製造方法の中間工程である炭化ケイ素粉末を製造する工程では、炭素とケイ素の比(以下、C/Si比と略記)は、混合物を1000°Cにて炭化して得られる炭化物中間体を元素分析することにより定義できる。
- [0040] 化学量論的には、C/Si比が3.0のとき、生成される炭化ケイ素中における遊離炭素が0%となる。しかし、実際には、炭化ケイ素と同時に生成するSiOガスが揮散することにより、C/Si比が3.0よりも低いとき、遊離炭素が発生する。
- [0041] 従って、炭化ケイ素粉末中の遊離炭素量が製造用途に合わせて最適になるように、ケイ素源と炭素源との配合を予め決定することが重要である。通常、(2)式に示すように、1気圧近傍において1600°C以上で焼成する場合、C/Si比を2.0~2.5にすると遊離炭素を抑制できる。
- [0042] C/Si比が2.55以上の場合、遊離炭素量は、顕著に増加する。遊離炭素は、結晶成長を抑制する効果を持つため、所望の結晶成長サイズに応じて、C/Si比を適宜選択しても良い。但し、純粋な炭化ケイ素を得るためのC/Si比は、反応雰囲気圧力に応じて変動するため、雰囲気の圧力を1気圧よりも低圧又は高圧とする場合には、必ずしも上記C/Si比の範囲(2.0~2.5)にならない。
- [0043] 以上より、特に、高純度の炭化ケイ素粉末を得る方法として、本願出願人が先に出願した特開平9-48605号の単結晶の製造方法に記載の原料粉末の製造方法を

使用することができる。

[0044] 即ち、ケイ素源は、高純度のテトラアルコキシシラン、テトラアルコキシシラン重合体から選択される1種以上の化合物である。炭素源は、加熱により炭素を生成する高純度有機化合物である。これらのケイ素源と炭素源とを均質に混合し、得られた混合物を非酸化性雰囲気下において焼成して炭化ケイ素粉末を得る(炭化ケイ素生成工程)。続いて、得られた炭化ケイ素粉末を1700℃以上2000℃未満の温度に保持し、上記温度に保持中に、2000℃～2100℃の温度で5～20分間にわたって加熱する処理を少なくとも1回行う(後処理工程)。

[0045] 上記2工程(炭化ケイ素生成工程と、後処理工程)を行うことにより、各不純物元素の含有量が0.5ppm以下である高純度の炭化ケイ素粉末を製造することができる。

[0046] この様にして得られた炭化ケイ素粉末は、粒度が不均一であるため、解粉、分級により上記粒度に適合するように処理することが好ましい。

[0047] 炭化ケイ素粉末を製造する工程において窒素を導入する場合は、まず、ケイ素源と、炭素源と、窒素源からなる有機物質と、重合触媒又は架橋触媒とを均質に混合する。

[0048] すなわち、フェノール樹脂等の炭素源と、ヘキサメチレンテトラミン等の窒素源からなる有機物質と、トルエンスルホン酸等の重合触媒又は架橋触媒とを、エタノール等の溶媒に溶解する際に、テトラエトキシシランのオリゴマー等のケイ素源と十分に混合する。

[0049] (ケイ素微粒子の製造装置)

ケイ素微粒子の製造に用いられる加熱装置1の概略図を図3に示す。加熱装置1は、ケイ素源と炭素源とを含む混合物を収容し、加熱雰囲気を形成する加熱容器2と、加熱容器2を保持するステージ6と、上記混合物(焼結体)Wを加熱する加熱体10a、10bと、加熱容器2と加熱体10a、10bとを覆う断熱材12と、加熱容器2から吸引管21を介して反応ガスを吸引するブロア23と、混合粉体を収容する集塵機22と、ガスを供給する供給管24を有する吸引装置20とを備える。

[0050] 吸引装置20は、加熱容器2内に加熱及び不活性雰囲気を維持しながらSiO₂ガスを吸引することができる。吸引装置20の内部をアルゴンガスが循環する。また設定圧力

により自動開閉する電磁弁25を備える。

[0051] (ケイ素微粒子塗布剤の製造方法)

本発明の実施形態にかかるケイ素微粒子塗布剤の製造方法は、(A)不活性雰囲気下においてケイ素源と炭素源を含む混合物を焼成する工程と、(B)不活性雰囲気から生成ガスを抜き出し、急冷してケイ素微粒子を含む混合粉体を得る工程と、(C)混合粉体を溶媒に分散させて混合溶液を得る工程とを含む。(A)乃至(C)工程で生成された混合溶液(塗布剤)を被塗布体に塗布する(工程D)。以下、工程毎に詳細に説明する。

[0052] (A)加熱焼成工程

まず、ケイ素源としてのエチルシリケートと、炭素源としてのフェノール樹脂と、重合触媒としてのマレイン酸とからなる混合物を加熱容器2に配置する。Si/C比は0.5～3.0が好ましい。そして上記混合物を150℃程度で加熱し、硬化させることにより硬化物を生成する。次に、硬化物を、窒素雰囲気下800～1200℃で、0.5～2時間加熱する。その後、アルゴン雰囲気下1500～2000℃で加熱する。

[0053] (B)急冷工程

次に、ブローア23を作動させる。ブローア23から吹き出されるアルゴンガス気流を供給管24を介して加熱容器2に送り込む。そして、(A)工程で生成したガス(生成ガスという)をブローア23から吹き出されるアルゴンガス気流に乗せて、加熱容器2内から吸引管21へ抜き出す。断熱材12の外部は、室温に保たれているため、加熱容器2内から吸引管21へ抜き出された生成ガスは、室温まで急冷される。生成ガスを急冷することにより、ケイ素(Si)とシリカ(SiO_2)からなる混合粉体を得られる。得られた混合粉体を集塵機22で集める。

[0054] (C)混合溶液を得る工程

ケイ素とシリカからなる混合粉体を溶媒に加え、混合溶液を得る。溶媒は、混合粉体が分散し得るものであれば、得に制限なく用いることができる。例えば、水、アルコール等を用いることができる。混合粉体を加えた溶媒をホモジナイザー等を用いて攪拌し、混合粉体を溶媒中に分散させる。混合粉体の分散を容易にするため、硫酸ラウリルナトリウム等の界面活性剤を混合溶液に加えておくことが好ましい。また攪拌と

併せて超音波を混合溶液に照射することがさらに好ましい。

[0055] (D) 塗布工程

混合溶液を被塗布体、例えば、ガラス表面に塗布する。この場合、混合溶液を7日間程度静置する。静置後に得られる混合溶液の上澄み液を被塗布体に塗布することが好ましい。静置により SiO_2 が沈み、混合溶液中のSi微粒子の割合が増えるからである。塗布方法としては刷毛法、スピンコート法、カーテンコート法等が挙げられる。塗布厚は、被塗布面の性質や用途により適宜選択することができる。塗布厚は、50～200mm程度が好ましい。

[0056] 従来、ケイ素微粒子が含まれた混合粉体からケイ素微粒子を抽出する場合には、以下の抽出工程が必要になる。すなわち、例えば、ケイ素とシリカからなる混合粉体をフッ酸水溶媒に加える工程と、二酸化ケイ素を溶媒に溶解させる工程と、ケイ素を溶媒から抽出し適宜乾燥させる工程と、を含む抽出工程を経して、混合粉体からケイ素微粒子を抽出する。

[0057] かかる抽出工程を経ることにより、平均粒径が30nm以下、好ましくは20～30nmであるケイ素微粒子が得られる。かかるケイ素微粒子は、例えば、発光素子材料、紫外線(UV)カット用化粧料として用いることができる。

[0058] これに対して、本実施形態にかかるケイ素微粒子塗布剤の製造方法によれば、(B)工程で得られた混合粉体を溶媒に分散させた混合溶液の上澄み液は、被塗布体に塗布することができる。すなわち、混合粉体は、未処理の状態で塗布剤の溶質となり得る。従って、本実施形態にかかるケイ素微粒子塗布剤の製造方法によれば、上記のような品雑なケイ素微粒子の抽出工程を経ることなく、ケイ素微粒子を被塗布体に簡易に塗布することができる。また抽出工程を得て得られたケイ素微粒子を被塗布体に塗布したときと同様に、紫外線吸収剤等としての作用効果を得ることができる。本実施形態にかかるケイ素微粒子の使用方法によれば、ケイ素微粒子を例えば発光素子材料、紫外線(UV)カット用化粧料として用いることができる。

実施例

[0059] 以下に、本発明の実施例を示すが、本発明はこれら実施例に何ら制限されない。

[0060] (ケイ素微粒子の製造例)

ケイ素源としてのエチルシリケート620gと、炭素源としてのフェノール樹脂288gと、重合触媒としてのマレイン酸水溶液92g(35重量%)とからなる混合溶液を図3の加熱容器2内に配置した。そして上記混合溶液を150℃で加熱して固化させた。次に、得られた固化物を窒素雰囲気下において90℃で1時間炭化させた。得られた炭化物をアルゴン雰囲気下において1600℃で加熱した。

[0061] 次に、加熱容器2内で生成された副生ガスを、吸引装置20とアルゴンガスのキャリアガスをを用いて加熱容器2の外へ搬送し、1500℃以下で冷却して粉体を得た。

[0062] 得られた粉体について透過型電子顕微鏡(TEM)写真分析を行ったところ、図1, 2に示されるように二酸化ケイ素に包み混まれるようにしてケイ素微粒子を包含する粉体を得られたことが確認された。

[0063] (実施例)

ケイ素微粒子の製造例で得られたケイ素微粒子を包含する混合粉体33gと、硫酸ラウリルナトリウム(界面活性剤)0.33gとを蒸留水50cc中に加えて混合溶液を得た。混合溶液を超音波を照射しながらホモジナイザーで5分間攪拌した。その後、混合溶液を7日間静置した。静置後、混合溶液の上澄み液を採取し、上澄み液の紫外線可視吸収スペクトル実験を行った。得られた結果を図4に示す。図4に示す結果から、混合溶液の上澄み液は、UV光を選択的に吸収できることが分かった。

[0064] なお、日本国特許出願第2007-200750号(2007年8月1日出願)の全内容が、参照により、本願明細書に組み込まれている。

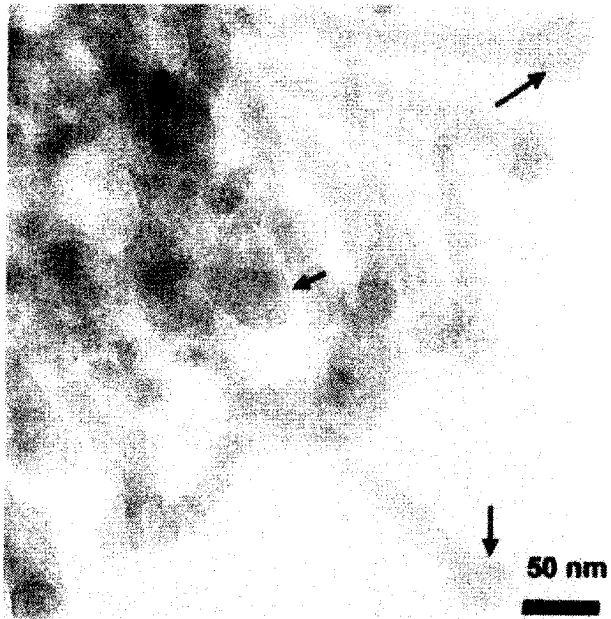
産業上の利用可能性

[0065] 以上のように、本発明に係るケイ素微粒子塗布剤の製造方法は、混合粉体からケイ素微粒子を抽出する工程を経ることなく、被塗布体に塗布できるケイ素微粒子の塗布剤を得ることができるため、ケイ素微粒子を、例えば発光素子材料、紫外線(UV)カット用化粧料などの分野に適用することができる。

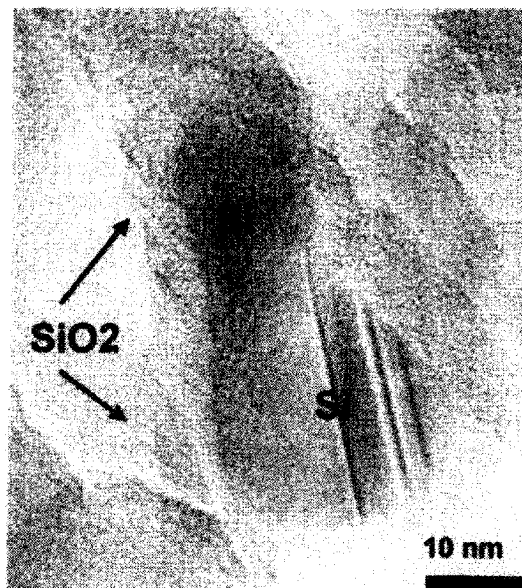
請求の範囲

- [1] ケイ素微粒子を含む混合粉体を超音波を照射しながら溶媒に分散させて混合溶液を塗布剤として得る工程を含むことを特徴とするケイ素微粒子塗布剤の製造方法。
- [2] さらに、前記混合溶液を静置する工程を含み、前記静置する工程の後の前記混合溶液の上澄み液を前記被塗布体に塗布する塗布剤として得ることを特徴とする請求の範囲第1項に記載のケイ素微粒子塗布剤の製造方法。
- [3] 不活性雰囲気下においてケイ素源と炭素源を含む混合物を焼成する工程と、前記不活性雰囲気から生成ガスを抜き出して急冷し、前記ケイ素微粒子を含む混合粉体を得る工程とを有することを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載のケイ素微粒子塗布剤の製造方法。
- [4] 前記ケイ素源は、加熱されることにより一酸化ケイ素を生成することを特徴とする請求の範囲第3項に記載のケイ素微粒子塗布剤の製造方法。
- [5] 前記ケイ素源は、エチルシリケートであることを特徴とする請求の範囲第4項に記載のケイ素微粒子塗布剤の製造方法。
- [6] 前記炭素源は、フェノール樹脂であることを特徴とする請求の範囲第3項乃至第5項の何れか1項に記載のケイ素微粒子塗布剤の製造方法。

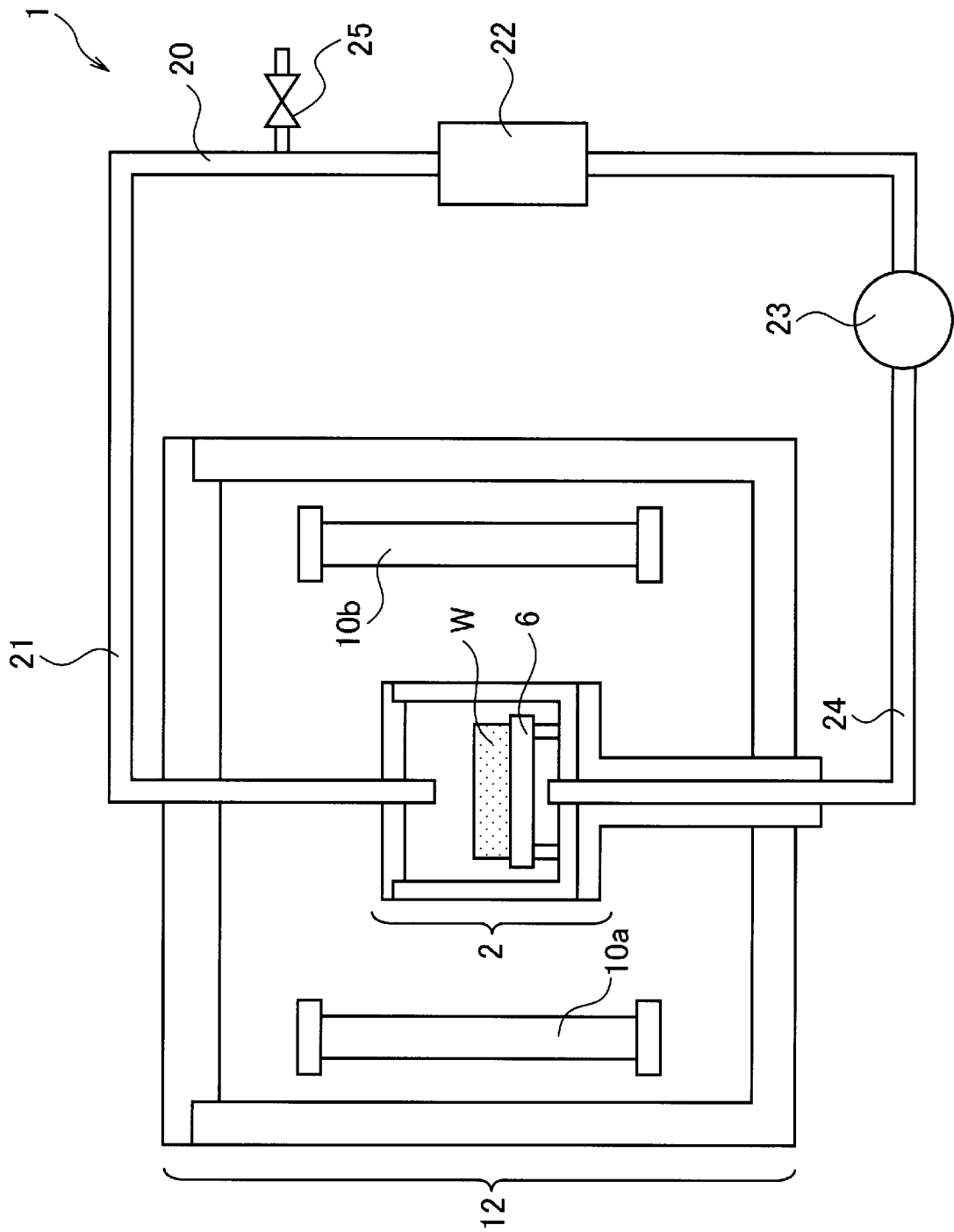
[図1]



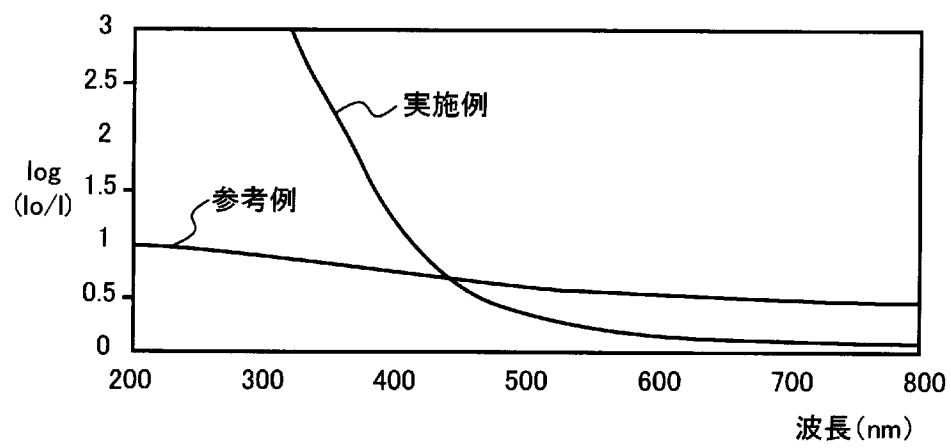
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/063801

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09D1/00(2006.01)i, A61K8/25(2006.01)n, A61Q17/04(2006.01)n, B05D7/24(2006.01)n, C01B33/025(2006.01)n, C01B33/18(2006.01)n

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)

C09D1/00, A61K8/25, A61Q17/04, B05D7/24, C01B33/025, C01B33/18

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2003-515459 A (Board of Trustees of the University of Illinois), 07 May, 2003 (07.05.03), Claims; Par. Nos. [0009], [0016], [0036] & WO 2001/038222 A1 & AU 200139678 A & EP 1232116 A1 & DE 60033170 E & CA 2388815 C	1,2 3-6
Y	JP 2007-112656 A (Bridgestone Corp.), 10 May, 2007 (10.05.07), Claims; Par. Nos. [0019] to [0020] (Family: none)	3-6
A	JP 2004-149700 A (Carmate Mfg. Co., Ltd.), 27 May, 2004 (27.05.04), Claims; Par. Nos. [0015] to [0016] (Family: none)	1-6

☒ 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, 2008 (09.10.08)

Date of mailing of the international search report
21 October, 2008 (21.10.08)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/063801

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP 2008-019113 A (Catalysts & Chemicals Industries Co., Ltd.), 31 January, 2008 (31.01.08), Claims (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C09D1/00(2006.01)i, A61K8/25(2006.01)n, A61Q17/04(2006.01)n, B05D7/24(2006.01)n, C01B33/025(2006.01)n, C01B33/18(2006.01)n

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. C09D1/00, A61K8/25, A61Q17/04, B05D7/24, C01B33/025, C01B33/18

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 0 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 8 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)

J S T P l u s (J D r e a m I I)

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
X	J P 2 0 0 3 - 5 1 5 4 5 9 A (ザ ボード オブ トラスティーズ オブ	1, 2
Y	ザ ユニバーシティ オブ イリノイ) 2 0 0 3 . 0 5 . 0 7, 特許請求の範 囲, 【0 0 0 9】, 【0 0 1 6】, 【0 0 3 6】& W O 2 0 0 1 / 0 3 8 2 2 2 A 1 & A U 2 0 0 1 3 9 6 7 8 A & E P 1 2 3 2 1 1 6 A 1 & D E 6 0 0 3 3 1 7 0 E & C A 2 3 8 8 8 1 5 C	3-6

☒ 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 0 8

国際調査報告の発送日

2 1 . 1 0 . 2 0 0 8

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)

天野 宏樹

4 V

9 2 7 2

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 8 3

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	J P 2007-112656 A (株式会社ブリヂストン) 2007. 05. 10, 特許請求の範囲, 【0019】～【0020】 (ファミリーなし)	3-6
A	J P 2004-149700 A (株式会社カーメイト) 2004. 05. 27, 特許請求の範囲, 【0015】～【0016】 (ファミリーなし)	1-6
PA	J P 2008-019113 A (触媒化成工業株式会社) 2008. 01. 31, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6