



特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(51) 国際特許分類 5 C08G 14/08	A1	(11) 国際公開番号 WO 92/19661 (43) 国際公開日 1992年11月12日 (12. 11. 1992)
(21) 国際出願番号 PCT/JP91/00590 (22) 国際出願日 1991年4月30日 (30. 04. 91) (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 名古屋油化株式会社 (NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP] 〒476 愛知県東海市南柴田町ホの割213番地の5 Aichi, (JP) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 山岸祥泰 (YAMAGISHI, Yoshiyasu) [JP/JP] 〒422 静岡県静岡市池田3875-45 Shizuoka, (JP) 吉田弥明 (YOSHIDA, Hiroaki) [JP/JP] 〒424 静岡県清水市折戸一丁目20-7-43 Shizuoka, (JP) 滝 欽二 (TAKI, Kinji) [JP/JP] 〒422 静岡県静岡市大谷3097-14 Shizuoka, (JP) 堀本清之助 (HORIKI, Seinosuke) [JP/JP] 〒476 愛知県東海市南柴田町ホの割213番地の5 名古屋油化株式会社内 Aichi, (JP) (74) 代理人 弁理士 宇佐見忠男 (USAMI, Tadao) 〒467 愛知県名古屋市瑞穂区弥富町月見ヶ丘32番地102号 Aichi, (JP) (81) 指定国 CA, DE, FI, JP, SE, US.		添付公開書類 国際調査報告書
(54) Title : COCONDENSED UREA RESIN (54) 発明の名称 尿素系共縮合樹脂 (57) Abstract A cocondensed resin produced by cocondensing urea with a polyhydric phenol for the purpose of improving a urea resin in the resistances to water, weathering and boiling and workability. Although it is difficult to cocondense urea with a polyhydric phenol, the invention enables a cocondensate resin to be readily obtained by reacting 1 mol of urea with 0.2 to 2.0 mol of a polyhydric phenol and 0.1 to 2.0 mol of an aldehyde donor under heating in a pH range of 4 to 9.		

(57) 要約

本発明の目的は、尿素系樹脂の耐水性、耐候性、耐煮沸性、作業性を改良することにある。上記目的に対して本発明では尿素に多価フェノールを共縮合せしめた共縮合樹脂を提供するものである。尿素と多価フェノールは共縮合が困難であるが、本発明では尿素 1 モルに多価フェノール 0.2 ～ 2.0 モルとアルデヒド供与体 0.1 ～ 2.0 モルとを pH 4 ～ 9 の領域で加熱反応せしめて容易に共縮合樹脂を得る。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第1頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AT	オーストリア	FI	フィンランド	MN	モンゴル
AU	オーストラリア	FR	フランス	MR	モーリタニア
BB	バルバドス	GA	ガボン	MW	マラウイ
BE	ベルギー	GN	ギニア	NL	オランダ
BF	ブルキナ・ファソ	GB	イギリス	NO	ノルウェー
BG	ブルガリア	GR	ギリシャ	PL	ポーランド
BJ	ベナン	HU	ハンガリー	RO	ルーマニア
BR	ブラジル	IE	アイルランド	RU	ロシア連邦
CA	カナダ	IT	イタリア	SD	スーダン
CF	中央アフリカ共和国	JP	日本	SE	スウェーデン
CG	コンゴ	KP	朝鮮民主主義人民共和国	SN	セネガル
CH	スイス	KR	大韓民国	SU	ソビエト連邦
CI	コート・ジボアール	LI	リヒテンシュタイン	TD	チャード
CM	カメルーン	LK	スリランカ	TG	トーゴ
CS	チェコスロバキア	LU	ルクセンブルグ	UA	ウクライナ
DE	ドイツ	MC	モナコ	US	米国
DK	デンマーク	MG	マダガスカル		
ES	スペイン	ML	マリ		

－ 1 －

明 細 書

尿 素 系 共 縮 合 樹 脂

産業上の利用分野

本発明は安価で、耐水性、耐候性、耐煮沸性、作業性
5 が著しく改善された尿素系共縮合樹脂に関するものであり、該尿素系共縮合樹脂は木材、繊維、紙、ガラス繊維等の有機、無機材料の接着剤、バインダー、コーティング剤等として有用なものである。

従 来 の 技 術

10 従来、木材等の接着用に使用された尿素樹脂は耐水性に劣り、これを改善するために尿素にメラミン、フェノール等を共縮合した共縮合樹脂が提供されてきた。しかしこれら共縮合樹脂では耐水性は改善されるが、耐煮沸性・耐候性がなお不十分であった。このため、尿素にレ
15 ゴルシンの如き多価フェノールを共縮合させることが種々試みられたが、尿素と多価フェノールモノマーとはアルデヒドに対する反応速度が大きく異なるために共縮合させることが極めて困難であり、尿素と多価フェノールとの共縮合樹脂を得ることは事実上不可能とみなされて
20 きた。

従って尿素と多価フェノールとの共縮合樹脂の代わりに、尿素樹脂と多価フェノールモノマーとの混合物（例えば特公昭57-9600号）または尿素樹脂と多価フ

－ 2 －

- エノール樹脂との樹脂混合物（例えば特公昭 5 8 - 2 3 4 2 5 号）が提案された。これらの混合物または樹脂混合物においては、耐水、耐煮沸性は改善されるものの、使用時に他の変性用樹脂、有機・無機充填剤、増粘剤、
- 5 硬化剤もしくは硬化触媒等を添加したとき、配合する成分によっては相溶性が悪く、増粘したり混合不可能となる場合があり、更に場合によっては配合後の可使用時間が短くなり、作業性が悪くなる等の不便があった。

- また尿素の初期縮合物に多価フェノールと必要ならば
- 10 更にホルムアルデヒドを添加して共縮合する方法が提案された（特開昭 4 8 - 5 4 1 4 8 号）。しかしこの方法においては尿素の初期縮合物を使用するために尿素 1 モルに対し多価フェノールの添加量は 0. 0 5 ~ 0. 2 モルと少量に制限されるため、多価フェノールの共縮合に
- 15 よる効果がなお不十分であり、例えば耐煮沸性、耐候性においては必ずしも満足な性能が得られない欠点があった。

発 明 の 開 示

- 本発明は上記従来の課題を解決するための手段として、
- 20 尿素 1 モルと多価フェノール 0. 2 ~ 2. 0 モルとアルデヒド供与体 0. 1 ~ 2. 0 モルとを pH 4 ~ 9 の領域で加熱共縮合せしめて得られることを特徴とする尿素系共縮合樹脂を提供せんとするものである。

— 3 —

発明の詳細な説明

以下に本発明を詳細に説明する。

〔多価フェノール〕

本発明の多価フェノールとは、レゾルシン、アルキル
5 レゾルシン、ピロガロール、カテコール、アルキルカテ
コール、ハイドロキノン、アルキルハイドロキノン、フ
ロログルシン、ビスフェノール、ジヒドロキシナフタリ
ン等の多価フェノールの一種または二種以上の混合物で
あるが、これら多価フェノールのうち望ましいのはレゾ
10 ルシンまたはアルキルレゾルシンであり、特に望ましい
のはレゾルシンよりもアルデヒドとの反応速度が速いア
ルキルレゾルシンである。

上記アルキルレゾルシンとしては、例えば5-メチル
レゾルシン、5-エチルレゾルシン、5-プロピルレゾ
15 ルシン、5-n-ブチルレゾルシン、4, 5-ジメチル
レゾルシン、2, 5-ジメチルレゾルシン、4, 5-ジ
エチルレゾルシン、2, 5-ジエチルレゾルシン、4,
5-ジプロピルレゾルシン、2, 5-ジプロピルレゾ
ルシン、4-メチル-5-エチルレゾルシン、2-メチル
20 -5-エチルレゾルシン、2-メチル-5-プロピルレ
ゾルシン、2, 4, 5-トリメチルレゾルシン、2, 4,
5-トリエチルレゾルシン等があるが、なかんずく5-
メチルレゾルシンは特に尿素と共縮合しやすく、また低

- 4 -

温硬化性が良好でかつ耐水性、耐候性、耐煮沸性の優れた尿素との共縮合樹脂が得られる。またエストニア産オイルシェールの乾留によって得られる多価フェノール混合物は安価であり、かつ5-メチルレゾルシンの他、反応性の高い各種アルキルレゾルシンを多量に含むので、
5 本発明に最も好ましい多価フェノールである。

〔アルデヒド供与体〕

アルデヒド供与体としては、ホルマリン、ホルムアルデヒド、パラホルムアルデヒド、トリオキサン、アセト
10 アルデヒド、プロピオンアルデヒド、ポリオキシメチレン、クロラール、ヘキサメチレンテトラミン、フルフラール、グリオキザール、n-ブチルアルデヒド、カブロアルデヒド、ベンツアルデヒド、アクロレイン、テトラ
15 アルデヒド、サルチルアルデヒド等アルデヒド基を有する化合物または加熱等によって分解してアルデヒド基を遊離する化合物の一種または二種以上の混合物が例示される。

〔錯化剤〕

20 本発明において多価フェノール特に5-メチルレゾルシンの如きアルキルレゾルシンはアルデヒドとの反応性が著しく高いので、反応を緩和する錯化剤を添加してもよい。かかる錯化剤としては、多価フェノールのフェノ

- 5 -

ール基に対して錯化形成能をもつケトン基またはアミド基等を有する化合物があり、アセトン、カプロラクタム等が例示され、特にアセトンは好ましい錯化剤である。錯化剤の添加量は特に制限はないが、通常多価フェノール 1 モルに対し錯化剤 0.4 ~ 0.8 モル程度が望ましい。

〔第三成分〕

本発明の共縮合樹脂の縮合反応において、上記尿素、多価フェノール、アルデヒド供与体および錯化剤以外に
10 第三成分として、所望なればメラミン、チオ尿素、フェノール、アルキルフェノール、ベンゾグアナミン、トルエン、キシレン、クマロン、シクロヘキサノン、カシューオイル、タンニン類、ダンマー、セラック、ロジンまたはロジン誘導体、石油樹脂、メタノール、エタノール、
15 イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ポリエチレングリコール、グリセリン、フルフリルアルコール、アマニ油、桐油、ひまし油等の一種または二種以上を共縮合剤または変性剤として添加、変性してもさしつかえない。

20 〔共縮合樹脂の製造〕

本発明の共縮合樹脂を得るには、尿素 1 モルに対し多価フェノール 0.2 ~ 2.0 モル、好ましくは 0.4 ~ 2.0 モルと、更に必要ならば錯化剤 0.16 ~ 1.6

- 6 -

モルを加え、酸またはアルカリでpHを4.0～9.0、好ましくは8.0～8.5に調整した後この混合物にアルデヒド供与体0.1～2.0モルを添加し、通常75～80℃で加熱反応せしめる。反応終了後は反応物を室温に冷却してpHを8.0程度に調節しておくことが望ましい。

この場合、多価フェノールが0.2モル以下であると、得られた樹脂中に未反応尿素が多量に残存し、耐水、耐煮沸性をもつ樹脂が得られないし、また2.0モル以上であると、得られた樹脂の安定性が悪くなる。更に多価フェノールが0.4モル以下であると、多価フェノールの種類によっては共縮合物に未反応尿素が残存しやすくなり樹脂の性能が劣る場合があるから、通常多価フェノールの添加量は0.4～2.0モルであることが望ましい。

更に本発明の共縮合樹脂に上記第三成分を添加する場合は、縮合反応の前に反応系に添加してもよく、また第三成分が共縮合に関与しないものであれば縮合反応の後に添加してもよい。

20 〔配合〕

本発明の共縮合樹脂を使用して接着剤、バインダー、コーティング剤等を調整するには、通常本発明の共縮合樹脂100重量部に対し硬化剤としてアルデヒド供与体1

- 7 -

5 ～ 8 0 重量部を添加混合し、更に必要ならば天然ゴム
およびその誘導体、SBR、NBR、CR等の合成ゴム、
酢酸ビニル樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂等の各種
合成樹脂、CMC、PVA、でんぷん、ニカワ、ゼラチ
5 ン、血粉、クルミ粉、ヤシガラ粉、小麦粉、炭酸カルシ
ウム、タルク、石膏等の充填剤、顔料、染料、難燃剤、
防虫剤、防腐剤その他の第三物質を添加混合する。

〔使用〕

上記配合によって得られた本発明の共縮合樹脂を含む
10 配合物は接着剤、バインダー、コーティング剤として適用
され、常温または加熱硬化せしめる。特に100℃以上
に加熱すると、極めて短時間に硬化し、木質・繊維質材
料等との接着性能の優れた樹脂硬化物を形成する。

従って、本発明の共縮合樹脂は合板、集成材、パーチ
15 クルボード、段ボール、フェルト、不織布等の木材、繊
維、紙、ガラス繊維、岩綿、セラミック繊維あるいはカー
ボン繊維等の有機物、無機物材料の接着剤、バインダ
ー、コーティング剤等として利用できる。

本発明の共縮合樹脂の硬化には、従来の尿素系樹脂の
20 如く酸性の硬化触媒の添加を必要としないので中性に保
たれ、使用後長時間経過しても樹脂硬化物が残留酸によ
って加水分解される恐れがなく被着材である木材を劣化
させることもない高い耐久性が得られる。しかし必要な

- 8 -

らば酸性触媒を添加してもさしつかえない。

また本発明による共縮合樹脂は、多価フェノールとの共縮合によって従来の尿素系樹脂と異なり、レゾルシン、アルキルレゾルシン等の多価フェノール系樹脂の性能に

5 近い耐水性、耐煮沸性、耐候性が得られる。

しかも、レゾルシン系樹脂においてはパラホルムアルデヒドを硬化剤として添加した場合、硬化速度が速すぎて可使用時間が短く、そのためヘキサメチレンテトラミンを硬化剤として使用せざるをえなかったのであるが、本
10 発明の共縮合樹脂の場合にはそれとは異なり、パラホルムアルデヒド添加時の可使用時間は2時間以上であり、しかも常温で硬化する。更に、加熱した場合には100～120℃の比較的低温で極めて短時間に硬化が完了する。従って本発明の共縮合樹脂の作業性は極めて良好である。

15 また本発明の共縮合樹脂においては、多価フェノールとの共縮合によって尿素とアルデヒドとの間に生成する架橋の密度が低下し、樹脂自体が軟らかくなり、樹脂の硬化収縮に伴う応力が減少し、生成する樹脂硬化物の層にひび割れ、変形等が発生しにくいと同時に耐久性にも
20 優れている。

〔実施例1〕

反応フラスコに尿素60重量部（1モル）、5-メチルレゾルシン62重量部（0.5モル）および錯化剤と

— 9 —

してアセトン 14.5 重量部 (0.25 モル) を仕込み、
40% 苛性ソーダ水溶液で pH を 8.0 に調整した後、
攪拌しながら 50～55℃ の温度で 37% ホルマリンを
40.5 重量部 (0.5 モル) を 30 分間で滴下し、更
5 に 75～85℃ で 90 分間反応させ、冷却後再度 pH を
8.0 に調整し、共縮合樹脂 (試料 1) を得た。この樹
脂は室温で 2～3 ヶ月以上安定であった。

試料 1 の 100 重量部に対し充填剤としてヤシガラ粉
20 重量部および硬化剤としてパラホルムアルデヒド 2
10 0 重量部を添加混合して接着剤とし、下記の条件で合板
を製造し、接着力を測定した結果を表 1 に示した。

構成 ラワン 3 プライ 1.5-3.0-1.5mm

塗布量 35 gr / 300×300mm²

熱圧 10 kg/cm² - 105℃ × 4 min

15 〔表 1〕

	接着力 (kg/cm ²)	木破率 (%)
常態接着	11.4	100
72 時間煮沸	8.3	98

20

(接着試験: JAS 構造用合板の試験法に準ずる)

- 1 0 -

〔実施例 2〕

実施例 1 で用いた 5 - メチルレゾルシンの代わりに、
レゾルシン 5 5 重量部 (0 . 5 モル) を用い、他の条件
は実施例 1 と同様の配合割合並びに反応条件で共縮合さ
5 せて得られた樹脂 (試料 2) を使用し、実施例 1 と同様の
合板を作成し、接着力試験を行った結果を表 2 に示し
た。

〔表 2〕

10		接着力 (kg / cm ²)	木破率 (%)
	常態接着	1 1 . 0	9 8
	7 2 時間煮沸	8 . 0	9 5

15 〔実施例 3〕

実施例 1 および 2 で用いた共縮合樹脂試料 1、試料 2
を用い、各々の樹脂 1 0 0 重量部に対しパラホルム 2 0
重量部を加え、解繊した広葉樹チップに対し重量比で 1
0 % 相当量を添加混合し、1 4 0 °C で 2 分間熱圧し、厚
20 さ 3 mm、比重 0 . 8 ファイバーボードを作成し、その性
能を表 3 に示した。

〔比較例 1〕

実施例 3 との比較のために、通常の 5 0 % 尿素樹脂 1

- 1 1 -

0 0 重量部に硬化剤として塩化アンモン 0. 6 重量部を添加調整した接着剤について実施例 3 と同様の試験を行い、表 3 にその結果を示した。

〔表 3〕

5		曲げ強さ (kg/cm ²)	柔軟性
	試料 1	2 0 0	○
	試料 2	1 8 0	△
10	比較例 1	1 7 0	×

柔軟性：幅 5 0 mm、長さ 3 0 0 mm の試験片の中央から 2 0 ° 折り曲げた時に、柔軟性があり変化しないものを○、ひび割れが生ずるが破壊されないものを△、折れて破壊
15 されるものを×とした。

〔実施例 4〕

反応フラスコに尿素 6 0 重量部（1 モル）、オイルシ
ェールの乾留によって得られたアルキルレゾルシン 7 4
重量部（0. 5 モル）および錯化剤としてアセトン 1 4 .
20 5 重量部（0. 2 5 モル）を仕込み、4 0 % 苛性ソーダ
水溶液で pH を 8. 0 に調整した後、攪拌しながら 5 0
～ 5 2 °C の温度で 3 7 % ホルマリンを 4 0. 5 重量部
（0. 5 モル）を 3 0 分間で滴下し、ついで温度を 8 0

— 1 2 —

～ 8 5 °C に上げ 1 0 0 分間反応させた後、室温に冷却し、
p H を 8 . 5 に調整し、共縮合樹脂（試料 3 ）を得た。
この樹脂は室温で 3 ヶ月以上安定であった。

この試料 1 0 0 重量部に対し、クルミ粉 1 5 重量部と
5 パラホルム 1 5 重量部を添加混合して接着剤とし、実施
例 1 と同じ条件で合板を作成し、可使時間並びに接着試
験を行い、その結果を表 4 に示した。

〔比較例 2〕

実施例 4 との比較のために、通常 5 0 % 尿素樹脂 8
10 0 重量部と 5 0 % アルキルレゾルシン樹脂 2 0 重量部の
混合物に、クルミ粉 1 5 重量部と硬化剤としてパラホル
ム 3 重量部を添加調整した接着剤について実施例 4 と同
様の試験を行い、表 4 にその結果を示した。

- 13 -

〔表 4〕

		試料 3	比較例 2
5	可使時間 (h r)	3 . 8	1 . 0
	常態接着		
	接着力 (kg/cm ²)	1 2 . 5	1 1 . 2
	木破率 (%)	1 0 0	8 0
10	7 2 時間煮沸		
	接着力 (kg/cm ²)	8 . 5	7 . 5
	木破率 (%)	1 0 0	7 0

(可使時間 : J I S K 6 8 4 0 の試験法に準ずる)

実施例 1 ~ 3 から本発明による共縮合樹脂が良好な接
 15 着力と耐水性、耐煮沸性をもち、また多価フェノールの中
 中でもレゾルシンよりアルキルレゾルシンを用いた樹脂の方
 がより柔軟性をもつことがわかる。また実施例 4 から尿素樹
 脂と多価フェノール樹脂とをブレンドした場合より可使時
 間が長く、作業性が良いことがわかる。

— 1 4 —

請 求 の 範 囲

尿素 1 モルと多価フェノール 0. 2 ～ 2. 0 モルとアルデヒド供与体 0. 1 ～ 2. 0 モルとを pH 4 ～ 9 の領域で加熱反応せしめて得られる尿素系共縮合樹脂

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/JP91/00590

I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER (if several classification symbols apply, indicate all) ⁶ According to International Patent Classification (IPC) or to both National Classification and IPC Int. Cl⁵ C08G14/08																				
II. FIELDS SEARCHED Minimum Documentation Searched ⁷ <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse; margin-top: 5px;"> <tr> <th style="width: 25%;">Classification System</th> <th style="width: 75%;">Classification Symbols</th> </tr> <tr> <td style="text-align: center; padding: 10px;">IPC</td> <td style="text-align: center; padding: 10px;">C08G14/08</td> </tr> </table> Documentation Searched other than Minimum Documentation to the Extent that such Documents are Included in the Fields Searched ⁸ Jitsuyo Shinan Koho 1926 - 1991 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971 - 1991			Classification System	Classification Symbols	IPC	C08G14/08														
Classification System	Classification Symbols																			
IPC	C08G14/08																			
III. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT ⁹ <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse; margin-top: 5px;"> <thead> <tr> <th style="width: 10%;">Category ¹⁰</th> <th style="width: 60%;">Citation of Document, ¹¹ with Indication, where appropriate, of the relevant passages ¹²</th> <th style="width: 30%;">Relevant to Claim No. ¹³</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td>JP, B2, 57-9600 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), February 22, 1982 (22. 02. 82), Lines 21 to 23, column 1 (Family: none)</td> <td style="text-align: center;">1</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td>JP, B2, 58-23425 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), May 14, 1983 (14. 05. 83), Lines 23 to 24, column 1 (Family: none)</td> <td style="text-align: center;">1</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td>JP, A, 48-54148 (Badische Anilin - & Soda - Fubrik AG (BASF), July 30, 1973 (30. 07. 73), Line 5, lower left column to line 2, lower right column, page 1 & DE, A1, 2,158,441 & CA, A1, 984,537</td> <td style="text-align: center;">1</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td>JP, A, 58-45216 (BASF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83), Line 6, lower left column, page 1 to line 13, upper left column, page 2 & EP, A1, 68,241</td> <td style="text-align: center;">1</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;">A</td> <td>JP, A, 58-45217 (BSAF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83),</td> <td style="text-align: center;">1</td> </tr> </tbody> </table> ¹⁰ 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 "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			Category ¹⁰	Citation of Document, ¹¹ with Indication, where appropriate, of the relevant passages ¹²	Relevant to Claim No. ¹³	A	JP, B2, 57-9600 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), February 22, 1982 (22. 02. 82), Lines 21 to 23, column 1 (Family: none)	1	A	JP, B2, 58-23425 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), May 14, 1983 (14. 05. 83), Lines 23 to 24, column 1 (Family: none)	1	A	JP, A, 48-54148 (Badische Anilin - & Soda - Fubrik AG (BASF), July 30, 1973 (30. 07. 73), Line 5, lower left column to line 2, lower right column, page 1 & DE, A1, 2,158,441 & CA, A1, 984,537	1	A	JP, A, 58-45216 (BASF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83), Line 6, lower left column, page 1 to line 13, upper left column, page 2 & EP, A1, 68,241	1	A	JP, A, 58-45217 (BSAF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83),	1
Category ¹⁰	Citation of Document, ¹¹ with Indication, where appropriate, of the relevant passages ¹²	Relevant to Claim No. ¹³																		
A	JP, B2, 57-9600 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), February 22, 1982 (22. 02. 82), Lines 21 to 23, column 1 (Family: none)	1																		
A	JP, B2, 58-23425 (Nagoya Yuka Kogyo K.K.), May 14, 1983 (14. 05. 83), Lines 23 to 24, column 1 (Family: none)	1																		
A	JP, A, 48-54148 (Badische Anilin - & Soda - Fubrik AG (BASF), July 30, 1973 (30. 07. 73), Line 5, lower left column to line 2, lower right column, page 1 & DE, A1, 2,158,441 & CA, A1, 984,537	1																		
A	JP, A, 58-45216 (BASF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83), Line 6, lower left column, page 1 to line 13, upper left column, page 2 & EP, A1, 68,241	1																		
A	JP, A, 58-45217 (BSAF AG), March 16, 1983 (16. 03. 83),	1																		
IV. CERTIFICATION <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse; margin-top: 5px;"> <tr> <td style="width: 50%; padding: 5px;"> Date of the Actual Completion of the International Search July 18, 1991 (18. 07. 91) </td> <td style="width: 50%; padding: 5px;"> Date of Mailing of this International Search Report August 5, 1991 (05. 08. 91) </td> </tr> <tr> <td style="width: 50%; padding: 5px;"> International Searching Authority Japanese Patent Office </td> <td style="width: 50%; padding: 5px;"> Signature of Authorized Officer </td> </tr> </table>			Date of the Actual Completion of the International Search July 18, 1991 (18. 07. 91)	Date of Mailing of this International Search Report August 5, 1991 (05. 08. 91)	International Searching Authority Japanese Patent Office	Signature of Authorized Officer 														
Date of the Actual Completion of the International Search July 18, 1991 (18. 07. 91)	Date of Mailing of this International Search Report August 5, 1991 (05. 08. 91)																			
International Searching Authority Japanese Patent Office	Signature of Authorized Officer 																			

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM THE SECOND SHEET

Line 6, lower left column, page 1 to
line 9, upper right column, page 2
& EP, A1, 68,243

V. ☐ OBSERVATIONS WHERE CERTAIN CLAIMS WERE FOUND UNSEARCHABLE ¹

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2) (a) for the following reasons:

1. ☐ Claim numbers , because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claim numbers , because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claim numbers , because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of PCT Rule 6.4(a).

VI. ☐ OBSERVATIONS WHERE UNITY OF INVENTION IS LACKING ²

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims of the international application.
2. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims of the international application for which fees were paid, specifically claims:
3. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claim numbers:
4. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, the International Searching Authority did not invite payment of any additional fee.

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

国 際 調 査 報 告

国際出願番号PCT/JP 91/ 00590

I. 発明の属する分野の分類		
国際特許分類 (IPC) Int. Cl⁵ C08G14/08		
II. 国際調査を行った分野		
調 査 を 行 っ た 最 小 限 資 料		
分 類 体 系	分 類 記 号	
IPC	C08G14/08	
最小限資料以外の資料で調査を行ったもの		
日本国実用新案公報 1926-1991年 日本国公開実用新案公報 1971-1991年		
III. 関連する技術に関する文献		
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	請求の範囲の番号
A	JP, B2, 57-9600 (名古屋油化学工業株式会社), 22. 2月. 1982 (22. 02. 82), 第1欄, 第21-23行, (ファミリーなし)	1
A	JP, B2, 58-23425 (名古屋油化学工業株式会社), 14. 5月. 1983 (14. 05. 83), 第1欄, 第23-24行, (ファミリーなし)	1
A	JP, A, 48-54148 (パーダイツシエ・アニリン・ウント・ ソーダ・フアブリク・アクチエンゲゼルシャフト), 30. 7月. 1973 (30. 07. 73), 第1頁左下欄第5行-右下欄第2行, &DE, A1, 2,158,441 &CA, A1, 984,537	1
A	JP, A, 58-45216 (パスフ・アクチエンゲゼルシャフト) 16. 3月. 1983 (16. 03. 83),	1
※ 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」 先行文献ではあるが、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の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の文献		
IV. 認 証		
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日	
18. 07. 91	05.08.91	
国際調査機関	権限のある職員	4 J 8 2 1 5
日本国特許庁 (ISA/JP)	特許庁審査官	佐 藤 邦 彦

第2ページから続く情報

	(証拠の続き) 第1頁左下欄第6行—第2頁左上欄第13行, &EP, A1, 68,241 A JP, A, 58-45217 (パスフ・アクチエンゲゼルシャフト) 16. 3月. 1983 (16. 03. 83), 第1頁左下欄第6行—第2頁右上欄第9行, &EP, A1, 68,243	1
--	---	---

V. ☐ 一部の請求の範囲について国際調査を行わないときの意見

次の請求の範囲については特許協力条約に基づく国際出願等に関する法律第8条第3項の規定によりこの国際調査報告を作成しない。その理由は、次のとおりである。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、国際調査をすることを要しない事項を内容とするものである。
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有効な国際調査をすることができる程度にまで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲でありかつPCT 規則 6.4(a)第2文の規定に従って起草されていない。

VI. ☐ 発明の単一性の要件を満たしていないときの意見

次に述べるようにこの国際出願には二以上の発明が含まれている。

1. ☐ 追加して納付すべき手数料が指定した期間内に納付されたので、この国際調査報告は、国際出願のすべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加して納付すべき手数料が指定した期間内に一部分しか納付されなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付があった発明に係る次の請求の範囲について作成した。
請求の範囲 _____
3. ☐ 追加して納付すべき手数料が指定した期間内に納付されなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲に最初に記載された発明に係る次の請求の範囲について作成した。
請求の範囲 _____
4. ☐ 追加して納付すべき手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加して納付すべき手数料の納付を命じなかった。

追加手数料異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加して納付すべき手数料の納付と同時に、追加手数料異議の申立てがされた。
- ☐ 追加して納付すべき手数料の納付に際し、追加手数料異議の申立てがされなかった。