

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年5月10日 (10.05.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/32768 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 11/00, C08K 3/04, 3/08 臣 (AOKI, Kazuomi) [JP/JP]; 〒949-0300 新潟県西頸城郡青海町大字青海2209番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP99/06112
- (22) 国際出願日: 1999年11月2日 (02.11.1999) (74) 代理人: 弁理士 小川利春, 外(OGAWA, Toshiharu et al.); 〒101-0042 東京都千代田区神田東松下町38番地 鳥本鋼業ビル Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, KR, MX, US.
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社 (DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒100-0006 東京都千代田区有楽町1丁目4番1号 Tokyo (JP). (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 阿部 靖 (ABE, Yasushi) [JP/JP]. 中田 満行 (NAKADA, Mitsuyuki) [JP/JP]. 山岸 功 (YAMAGISHI, Isao) [JP/JP]. 青木一
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。



(54) Title: CHLOROPRENE-BASED RUBBER COMPOSITION

(54) 発明の名称: クロロプレン系ゴム組生物

(57) Abstract: A chloroprene-based rubber composition characterized by containing a chloroprene-based rubber, a carbon black having an average stack height of layer planes in the direction of C axis within a crystallite i.e. Lc of 2 nm or more, and a zinc powder.

(57) 要約:

クロロプレン系ゴム、結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さLcが2nm以上のカーボンブラック及び亜鉛粉を含有することを特徴とするクロロプレン系ゴム組成物である。

WO 01/32768 A1

明細書

クロロプレン系ゴム組成物

技術分野

本発明は、クロロプレン系ゴム組成物に関するものであり、更に詳しくは、耐熱性が著しく改良された加硫物を与えるクロロプレン系ゴム組成物に関する。

背景技術

クロロプレンゴム組成物の加硫物の耐熱性を改良する方法は、これまでもいくつか提案されている。例えば、特開昭50-87437号公報には、クロロプレンゴムに亜鉛粉および水を添加して耐熱性を改良する方法、特開平2-34645号公報には、亜鉛粉末およびサーマルブラックを添加して耐熱性を改良する方法が、また、特開平3-81350号公報には、クロロプレンゴムに亜鉛粉末と4,4'-(α , α -ジメチルベンジル)ジフェニルアミンを添加して耐熱性を改良する方法が記載されている。しかし、自動車用ゴム部品等の用途では、耐熱性の要求が厳しくなっているため、これらの公知の方法では、耐熱性は必ずしも満足されるものではなく、その改良が望まれている。

発明の開示

本発明は、クロロプレン系ゴムに特定のカーボンブラックと亜鉛粉を含有する組成物であって、その加硫物の耐熱性を改良しようとするものである。

すなわち、本発明者らは、クロロプレン系ゴム組成物の加硫物の耐熱性を改善すべく鋭意検討を重ねたところ、クロロプレン系ゴムと結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2nm以上のカーボンブラックと亜鉛粉とを組み合わせることにより、その達成が可能なことを見出し本発明を完成させた。

以下、本発明について更に詳細に説明する。

本発明のクロロプレン系ゴム組成物におけるクロロプレン系ゴムは、クロロプレンゴムを主成分とするものであるが、クロロプレンゴムの他に、必要に応じて、天然ゴム、SBR、ブチルゴム、BR、NBR、EPDM等を含むことができる。

本発明のクロロプレン系ゴムは、クロロプレンの単独重合体またはクロロプレンとクロロプレンと共重合可能な他の単量体1種以上との混合物（以下、クロロプレン系単量体と称する）を重合させて得られた共重合体（以下、しばしばクロロプレン系ゴムと称する）である。

クロロプレンと共重合可能な単量体としては、例えば、2, 3-ジクロロ-1, 3-ブタジエン、1-クロロ-1, 3-ブタジエン、硫黄、スチレン、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、イソプレン、ブタジエン並びにアクリル酸、メタクリル酸及びこれらのエステル類などが挙げられ、本発明の目的を満たす範囲で用いることができる。

本発明で用いるクロロプレンゴムを得る重合方法には特に制限はなく、通常の重合方法が使用でき、クロロプレン系単量体をクロロプレンの重合に一般に用いられる重合開始剤の存在下に、通常用いられる方法により乳化重合して得ることができる。

この乳化重合を実施する場合の乳化剤は特に制限はなく、一般にクロロプレンの乳化重合に使用される乳化剤、例えば炭素数が6～22の飽和または不飽和の脂肪酸のアルカリ金属塩、ロジン酸または不均化ロジン酸のアルカリ金属塩、 β -ナフタレンスルホン酸のホルマリン縮合物のアルカリ金属塩などが用いられる。

クロロプレンゴムは分子量調節剤の種類により、イオウ変性タイプ、メルカプタン変性タイプ、キサントゲン変性タイプに分類される。イオウ変性タイプは、イオウとクロロプレンを共重合したポリマーをチウラムジスルフィドで可塑化し、所定のムーニー粘度に調整するものである。メルカプタン変性タイプは、*n*-ドデシルメルカプタン、*tert*-ドデシルメルカプタン、オクチルメルカプタン等のアルキルメルカプタン類を分子量調節剤に使用するものである。また、キサントゲン変性タイプは、アルキルキサントゲン化合物を分子量調節剤に使用するものである。

本発明のクロロプレン系ゴムとしては、いずれの変性タイプも使用可能であり、また、イオウ、メルカプタン及びキサントゲンを組み合わせて変性したクロロプレン系ゴムも使用できる。しかし、硫黄変性タイプは、メルカプタン変

性およびキサントゲン変性タイプに比較するとポリマー自体の耐熱性が劣るため、より耐熱性が要求される場合は、メルカプタン変性およびキサントゲン変性タイプを使用することが好ましい。

キサントゲン変性タイプに使用されるアルキルキサントゲン化合物の具体例としては、ジメチルキサントゲンジスルフィド、ジエチルキサントゲンジスルフィド、ジイソプロピルキサントゲンジスルフィド、ジイソブチルキサントゲンジスルフィドなどがある。

アルキルキサントゲン化合物の使用量は、クロロプレン系重合体の分子量（あるいは、重合体を単離して得られるクロロプレン系ゴムのムーニー粘度）が適正となるように選定される。アルキル基の構造や目標とする分子量によって異なるが、一般にはクロロプレン系単量体100重量部に対して0.05～5.0重量部、好ましくは0.3～1.0重量部の範囲で用いられる。

重合開始剤としては、クロロプレンの乳化重合に一般に用いられる公知の過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム、過硫酸ナトリウム、過酸化水素、t-ブチルハイドロパーオキシドなどの有機過酸化物類が用いられる。

本発明においては重合温度及びモノマーの最終転化率は特に制限されないが、重合温度は0～50℃であることが好ましく、更に20～50℃であることが好ましい。また、モノマーの最終転化率は50～90%の範囲に入るように行うことが好ましく、この転化率に達した時点で重合禁止剤を少量添加して重合を停止させる。

重合禁止剤としては、例えば、チオジフェニルアミン、4-ターシャリーブチルカテコール、2,2-メチレンビス-4-メチル-6-ターシャリーブチルフェノールなどの通常用いられる禁止剤が用いられる。

未反応の単量体は、例えば、スチームストリッピング法によって除去し、その後、ラテックスのpHを調整し、常法の凍結凝固、水洗、熱風乾燥などにより重合体を単離することができる。

本発明のクロロプレン系ゴム組成物中に配合されるカーボンブラックは、熱分解法によるサーマルブラック、アセチレンブラック、また、不完全燃焼法によるファーネスブラック、チャンネルブラックのいずれも使用可能であるが、

これらのカーボンブラックにおいて、結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2 nm以上であることが必要であり、層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2.5 nm以上のものが特に好ましい。

更に、平均粒径が60 nm以下で、かつDBP吸油量が好ましくは100～350 ml/100 g、更に好ましくは120～300 ml/100 g、特に好ましくは140～300 ml/100 gのカーボンブラックであることが好ましい。

結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2 nmより小さいとクロロプレン系ゴム組成物を加硫して得られる加硫物の耐熱性が十分ではない。

更に、アセチレンブラックは、アセチレンガスを熱分解して得られるカーボンブラックであり、結晶化が著しく進み、しかもストラクチャーも高度に発達し、吸油量も大きいので、アセチレンブラックを使用したクロロプレン系ゴム組成物は、その加硫物の耐熱性の改善効果が大きく最も好ましい。

カーボンブラックの添加量はクロロプレン系ゴム100重量部に対して10～70重量部が好ましく、20～60重量部が更に好ましい。添加量が70重量部を超えると加工性が悪くなり、スコーチを起こし易くなり、また加硫物の脆化温度が高くなる。添加量が10重量部よりも少ないと加硫物の引張強度やモジュラスが低下する。

本発明に用いられる亜鉛粉の粒度は、200メッシュ通過したものが好ましい。亜鉛粉の添加量は、クロロプレン系ゴム100重量部に対し、1～30重量部が好ましく、2～20重量部が更に好ましい。1重量部より亜鉛粉が少ない場合は、加硫物の耐熱性が十分改良されず、また、30重量部より多い場合は加硫物の機械的特性が低下する。

本発明に用いられる加硫剤には特に制限はないが、金属酸化物が好ましく、具体的には酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化鉛、四酸化三鉛、三酸化鉄、二酸化チタン、酸化カルシウム等が挙げられる。これらは2種以上を併用して用いることもできる。これらの加硫剤の添加量はクロロプレン系ゴム100重量部に対して3～15重量部が好ましい。

また、下記の加硫促進剤と併用することにより更に効果的に加硫を行うこともできる。

加硫促進剤としては、クロロプレン系ゴムの加硫に一般に用いられるチオウレア系、グアニジン系、チウラム系、チアゾール系及びトリアジン系の加硫促進剤が使用できるが、チオウレア系のものが好ましい。チオウレア系の加硫促進剤としては、エチレンチオウレア、ジエチルチオウレア、トリメチルチオウレア、トリエチルチオウレア、N, N' -ジフェニルチオウレアなどが挙げられ、特にトリメチルチオウレアが好ましい。また、3-メチルチアゾリジンチオン-2あるいはチアジアゾールとフェニレンジマレイミドとの混合物、ジメチルアンモニウムハイドロジェンイソフタレートあるいは1, 2-ジメルカプト-1, 3, 4-チアジアゾール誘導体等の加硫促進剤も使用することができる。これらの加硫促進剤は上記に挙げたものを2種以上を併用して用いてもよい。また、過酸化物加硫系も使用できる。これらの加硫促進剤の添加量はクロロプレン系ゴム100重量部に対して0.5~5重量部が好ましい。

本発明のクロロプレン系ゴム組成物中には、必要に応じ種々の添加剤、例えば軟化剤、可塑剤、加工助剤、老化防止剤、滑剤、充填剤等を配合することができる。

老化防止剤としては、アミン系、イミダゾール系、カルバミン酸金属塩、フェノール系、ワックス等、一般的な老化防止剤が使用できる。耐熱性の改良効果の大きい老化防止剤種としては、アミン系の4, 4'-ビス(α , α -ジメチルベンジル)ジフェニルアミン、オクチル化ジフェニルアミン等が挙げられる。特に、4, 4'-ビス(α , α -ジメチルベンジル)ジフェニルアミンは本発明のクロロプレン系ゴム組成物の耐熱性を更に改善することができる。これらの老化防止剤は、一種類もしくは併用して使用することができる。

軟化剤としては、潤滑油、プロセスオイル、パラフィン、流動パラフィン、ワセリン、石油アスファルト等の石油系軟化剤、ナタネ油、アマニ油、ヒマシ油、ヤシ油等の脂肪族系軟化剤等、一般的な軟化剤が使用できる。可塑剤としては、ジオクチルフタレート、ジオクチルアジペート等の一般的な可塑剤が使用できる。本発明のクロロプレン系ゴム組成物の耐熱性を阻害しない、若しく

は向上させる可塑剤としては、エーテル・チオエーテル系可塑剤、例えばブルカノールOT (Vulkanol OT: 商品名、バイエル社製)、植物油あるいはエステル系可塑剤、エーテル・エステル系可塑剤、例えばアデカサイザーRS-700、RS-735 (商品名、旭電化工業社製) 等が挙げられる。特に、エーテル・チオエーテル系可塑剤が耐熱性を向上させるとともに耐寒性を改善する効果があり、両者のバランスに優れていることから好ましい。これらの可塑剤は、要求される特性に応じて一種類あるいは複数を併用することができる。

本発明におけるゴム組成物の混練方法ならびに加硫方法は、通常のゴム工業で行われている方法を使用することができる。一般的には、ニーダー、バンパリーまたはロール等の混練り機によって混合し、目的に応じた形状に成形加工し成形加硫物を得ることができる。具体的には各成分を加硫温度以下の温度で混練した後、その混練物を各種形状に成形し加硫する。加硫時の温度や加硫時間は適宜設定することができる。加硫温度は、140～190℃が好ましく、150～180℃が更に好ましい。

本発明のクロロプレン系ゴム組成物から得られる加硫物は、ゴムの機械特性に加えて耐熱性・耐油性・耐寒性に優れているため、耐熱性と耐油性と耐寒性が要求されるブーツ、ホース、ベルト、防振ゴム、制振材、電線、ガスケット、オイルシール、パッキンなどの工業部品、特に品質保証および耐熱性の要求が厳しい自動車用ゴム部品に好適である。

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例により本発明を詳しく説明するが、本発明は下記の実施例により限定されるものではない。

実施例1～5、比較例1～4

表1、2に示す配合処方により、8インチロールを用いて混練を行い、厚さ2.3mmのシートを作製した。このシートについてプレス加硫を150℃×20分の条件で行って、厚さ2mmの加硫シートを作製した。物性試験は3号ダンベルを使用し、引張試験はJIS K6251に準拠して、硬度はJIS K6253に準拠して行った。また、低温性評価はJIS K6261に準

扱し、ゲーマンねじり試験により測定しT10（23℃でのモデュラスに対する値である比モデュラスが10になる温度）で示した。

耐熱性は、JIS K6257に準拠して140℃のギアオープン中に9日間保存した試験片を用い、上記の測定方法によってそれぞれ引張試験及び硬度の測定を行い、引張強さと伸びの変化率及び硬度の変化量で示した。

結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c (nm)は、Cu-K α 線を用いたX線回折法における(002)回折線により、次式に従って計算した。

$$L_c = (180 \cdot K \cdot \lambda) / (\pi \cdot \beta \cdot \cos \theta)$$

K = 形状因子(0.9を用いた)

λ = X線の波長(0.154 nm)

θ = (002)回折線吸収バンドにおける極大値を示す角度

β = (002)回折線吸収バンドにおける半価幅を角度で示したもの

表 1

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1	比較例 2
クロロレンゴム	100	100	100	100	100	100	100
ステアリン酸	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
老防 4,4'-Bis(α, α -dimethylbenzyl)-diphenylamine	6	-	6	-	6	6	6
老防 Octylated diphenylamine	-	6	-	6	-	-	-
老防 Tris(nonylated phenyl)phosphite	2	2	2	2	2	2	2
MgO	4	4	4	4	4	4	4
アセチレンブラック	4.5	4.5	2.0	4.5	4.5	-	-
カーボンブラック(MAF)	-	-	-	-	-	5.0	-
カーボンブラック(N330: HAF)	-	-	-	-	-	-	-
カーボンブラック(N880: FT)	-	-	-	-	-	-	-
Vulkanol OT	2.5	2.5	-	2.5	-	2.5	2.5
Diocetyl sebacate	-	-	-	2.5	-	-	-
Diocetyl phthalate	-	-	-	-	2.5	-	-
Zn粉	5	5	5	5	5	5	5
ZnO	5	5	5	5	5	5	5
Ethylenethiourea	1	1	1	1	1	1	1
Tetramethylthiuramdisulfide	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
加硫物特性 (加硫条件: 150°C×20分)							
(常態物性)							
引張り強さ (MPa)	15.6	15.7	18.6	15.5	15.7	18.0	18.9
伸び (%)	630	620	610	600	610	420	370
硬さ (JIS-A)	57	56	57	57	57	57	56
(耐寒性 : ゲーマンねじり試験)							
T10 (°C)	-45	-45	-37	-49	-43	-44	-44
(耐熱性 : 140°C×9日)							
引張り強さ変化率 (%)	-14	-16	-12	-17	-18	-22	-19
伸び変化率 (%)	-16	-24	2	-25	-25	-36	-36
硬さ変化	+17	+22	+15	+24	+23	+28	+29

表1で用いた材料は下記の通り。

- 1) 電気化学工業株式会社製、メルカプタン変性クロロプレングム (S-40V)
- 2) 電気化学工業株式会社製、デンプラック粒状品 ($L_c = 3.5 \text{ nm}$ 、DBP吸油量 = $210 \text{ ml} / 100 \text{ g}$)
- 3) 東海カーボン株式会社製、シート116 ($L_c = 1.8 \text{ nm}$ 以下、DBP吸油量 = $133 \text{ ml} / 100 \text{ g}$)
- 4) 東海カーボン株式会社製、シート3 ($L_c = 1.8 \text{ nm}$ 以下、DBP吸油量 = $101 \text{ ml} / 100 \text{ g}$)
- 5) 旭カーボン株式会社製、アサヒサーマルFT ($L_c = 1.8 \text{ nm}$ 以下、DBP吸油量 = $28 \text{ ml} / 100 \text{ g}$)
- 6) バイエル (Bayer) 社 (ドイツ) 製、エーテル・チオエーテル系可塑剤

表 2

	比較例 3	比較例 4
クロロプレングム 1)	100	100
ステアリン酸	0.5	0.5
老防 4,4'-Bis(α, α -dimethylbenzyl) -diphenylamine	6	6
老防 Octylated diphenylamine	—	—
老防 Tris(nonylated phenyl)phosphite	2	2
MgO	4	4
アセチレンブラック 2)	—	45
カーボンブラック(MAF) 3)	—	—
カーボンブラック(N330: HAF) 4)	—	—
カーボンブラック(N880: FT) 5)	85	—
ブルカノールOT 6)	25	25
Diocetyl sebacate	—	—
Diocetyl phthalate	—	—
Zn粉	5	—
ZnO	5	5
Ethylenethiourea	1	1
Tetramethylthiuramdisulfide	0.3	0.3
加硫物特性 (加硫条件: 150°C × 20分)		
(常態物性)		
引張り強さ (MPa)	13.9	15.7
伸び (%)	510	630
硬さ (JIS-A)	57	56
(耐寒性: ゲーマンねじり試験)		
T10 (°C)	-41	-46
(耐熱性: 140°C × 9日)		
引張り強さ変化率 (%)	-22	-19
伸び変化率 (%)	-31	-29
硬さ変化	+28	+27

表1及び表2に示すように、クロロプレングムに結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2nm以上のカーボンブラックと亜鉛粉とを含有する本発明のクロロpren系ゴム組成物は、優れた耐熱性を有する加硫物を与える。

請求の範囲

1. クロロプレン系ゴム、結晶子内の層平面のC軸方向の平均積み重なり高さ L_c が2 nm以上のカーボンブラック及び亜鉛粉を含有することを特徴とするクロロプレン系ゴム組成物。
2. クロロプレン系ゴム100重量部に対して、カーボンブラックを10～70重量部、亜鉛粉を1～30重量部配合してなることを特徴とする請求項1記載のクロロプレン系ゴム組成物。
3. 請求項1または2記載のクロロプレン系ゴム組成物を加硫してなることを特徴とする加硫物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06112

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ C08L11/00, C08K3/04, C08K3/08

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)
Int.Cl.⁷ C08L11/00, C08K3/04, C08K3/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
Derwent WPIL "lattice", "heat-resistant" (in Japanese), in abstract
C08L11/00, C08K3/04, C08K3/08

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
EX	JP, 11-323020, A (Denki Kagaku Kogyo K. K.), 26 November, 1999 (26.11.99), Claims (Family: none)	1-3
Y	US, 5037360, A (Bando Chemistry Co. Ltd.), 06 August, 1991 (06.08.91), Claims & JP, 03-081350, A, Claims & EP, 419055, A1	1-3
Y	JP, 02-034645, A (SHOWA ELECTRIC WIRE & CABLE CO., LTD.), 05 February, 1990 (05.02.90), Claims (Family: none)	1-3
Y	JP, 50-087437, A (Denki Kagaku Kogyo K. K.), 14 July, 1975 (14.07.75), Claims (Family: none)	1-3

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 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 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
07 January, 2000 (07.01.00)


Date of mailing of the international search report
18 January, 2000 (18.01.00)

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 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08L11/00, C08K3/04, C08K3/08		
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 (IPC)) Int. Cl ⁷ C08L11/00, C08K3/04, C08K3/08		
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		
国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) Derwent WPI アブストラクト中の 格子"lattice"、耐熱性"heat-resistant"、C08L11/00、 C08K3/04、C08K3/08		
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
EX	JP, 11-323020, A (電気化学工業株式会社) 26. 11月. 1999 (26. 11. 99) 特許請求の範囲 ファミリーなし	1-3
Y	US, 5037360, A (Bando Chemistry Co. Ltd.) 6. 8月. 1991 (06. 08. 91) 特許請求の範囲 & JP, 03-081350, A、特許請求の範囲 & EP, 419055, A1	1-3
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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 07. 01. 00	国際調査報告の発送日 18.01.00	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 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) 原田 隆興	4 J 9167 
電話番号 03-3581-1101 内線 3495		

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	JP, 02-034645, A (昭和電線電纜株式会社) 5. 2月. 1990 (05. 02. 90) 特許請求の範囲 ファミリーなし	1-3
Y	JP, 50-087437, A (電気化学工業株式会社) 14. 7月. 1975 (14. 07. 75) 特許請求の範囲 ファミリーなし	1-3