(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2010 年 7 月 15 日(15.07.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/079673 A1

(51) 国際特許分類:
C08G 8/00 (2006.01) *C08G 8/04* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/070880

(22) 国際出願日: 2009 年 12 月 15 日(15.12.2009)

(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 2009-003353 2009 年 1 月 9 日(09.01.2009) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和高分子株式会社 **(SHOWA HIGHPOLYMER CO., LTD.)** [JP/JP]; 〒1050012 東京都港区芝大門一丁目１３番９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): 瀧本　進一 **(TAKIMOTO, Shinichi)** [CN/JP]; 〒3720833 群馬県伊勢崎市富塚町１０２１　昭和高分子株式会社内 Gunma (JP). 小野　能理善 **(ONO, Noriyoshi)** [JP/JP]; 〒3720833 群馬県伊勢崎市富塚町１０２１　昭和高分子株式会社内 Gunma (JP).

(74) 代理人: 大谷　保 **(OHTANI, Tamotsu)**; 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号　ブリヂストン虎ノ門ビル６階　大谷特許事務所 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, CL, 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, 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, PE, 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, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, 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（条約第 21 条(3)）

WO 2010/079673 A1

(54) Title: NOVOLAC RESIN AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称 : ノボラック樹脂およびその製造方法

(57) Abstract: Disclosed is a method for producing a novolac resin, wherein a phenol and an aldehyde are reacted with each other in the presence of a catalyst that contains calcium chloride and an acid. The method is characterized in that a novolac resin having a low molecular weight and a low melt viscosity is efficiently produced by reacting a phenol and an aldehyde with each other under mild conditions.

(57) 要約:　塩化カルシウムおよび酸を含む触媒の存在下、フェノール類とアルデヒド類とを反応させるノボラック樹脂の製造方法であって、フェノール類とアルデヒド類とを温和な条件下で反応させて、溶融粘度が低く、低分子量のノボラック樹脂を効率的に製造する方法を提供する。

明　細　書

発明の名称 ： ノボラック樹脂およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、溶融粘度が低く、低分子量のノボラック樹脂を高収率で得ることができる製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] フェノール樹脂は、耐熱性があり様々な分野に使用されている。

例えば、エポキシ樹脂の硬化剤として用いた場合、耐熱性、密着性、電気絶縁性等に優れ、プリント基板用樹脂組成物、プリント基板および樹脂付き銅箔に使用する層間絶縁材料用樹脂組成物、電子部品の封止材用樹脂組成物、レジストインキ、導電ペースト、塗料、接着剤、複合材料等に用いられている。

近年の技術革新に伴い、エポキシ樹脂組成物の更なる耐熱性、耐湿性、難燃性等の向上が求められている。

その解決手段の一つとして充填剤の使用量増加がある。

充填剤量を多くすることにより成形品の線膨張係数の低減や吸湿率の低減、難燃性の向上が可能となるが、一方で充填量が多くなることにより配合物の流動性が低下し、成形性が悪くなるという問題が生じるため、樹脂成分の低溶融粘度化が必要となる。

ノボラック樹脂は、フェノール類とアルデヒド類とを酸性触媒の存在下に付加縮合して製造される。

通常、フェノール類に対するアルデヒド類のモル比が０．３～０．９モルの範囲で使用され、モル比を調整することにより、得られる樹脂の分子量を制御している。

樹脂の溶融粘度を低くするには高分子量成分をできるだけ少なくする必要があるが、分子量の低いノボラック樹脂を得るためにはモル比を小さくしなければならず、その場合未反応のフェノールモノマーが多く残存することに

なる。

樹脂中の未反応フェノール類モノマーは減圧下で蒸留することにより低減することができるが、モル比の低い樹脂ほど大量のフェノール類モノマーを蒸留により除去する必要があるため、収率の低下が避けられない。

一方、樹脂中にフェノール類モノマーが残存した場合、成型物の寸法安定性の低下、ボイドの発生などを引き起こすことから、樹脂中のフェノール類モノマーはできるだけ少ない方が好ましい。

[0003] このような背景から、ノボラック樹脂の高収率化が検討されてきた（特許文献１および２を参照）。

特許文献１では、フェノール類とパラホルムアルデヒドとをリン酸触媒の存在下で不均一反応する方法が示されている。

この方法によるとフェノール類の反応率は向上するものの、触媒がリン酸に限定されるため、パラホルムアルデヒドよりも反応性の低いアルデヒド、例えば、アセトアルデヒドやブチルアルデヒドなどの脂肪族アルデヒド、ベンズアルデヒドやサリチルアルデヒドなどの芳香族アルデヒドと反応させる場合には十分な反応性が得られない。

特許文献２では、フェノール類とアルデヒド類とを有機ホスホン酸触媒および水溶性の中性塩の存在下で反応する方法が示されており、触媒の存在する水相と樹脂の溶解し易い有機相を形成することによりモノマー反応率を向上させている。

しかし、この方法でも触媒が有機ホスホン酸に限定されるため、前述のホルムアルデヒドよりも反応性の低いアルデヒドと反応させる場合には十分な反応性が得られない。

また、触媒効率向上には１１０℃以上の温度が必要であることから、高分子量体の生成は避けられず、低分子量のノボラック樹脂を得るには好ましくない。

更に、特許文献２において、中性塩は水相のイオン濃度を上げて有機相と水相とをより明確に分離する目的で使用されている。

そのため、中性塩としては水への溶解性の高いことが重要であり、その構成元素は特に重要でない。

アセトアルデヒドやブチルアルデヒドなどの脂肪族アルデヒド、ベンズアルデヒドやサリチルアルデヒドなどの芳香族アルデヒドとフェノール類とを反応させる場合は、ハロゲン化水素やスルホン酸系化合物など、リン酸や有機ホスホン酸よりも更に強い酸を大量に使用し、かつ高い反応温度が必要となる。

このような条件下では、高分子量成分が生成し易くなるため、低分子量のノボラック樹脂を得るのは困難である。

このように、ホルムアルデヒドやパラホルムアルデヒドよりも反応性の低いアルデヒド類を使用して低分子量のノボラック樹脂を高収率で得ようとする場合、これまでに有効な製造手段はなかった。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２００４－３３９２５７号公報

特許文献2：特開２００２－１２８８４９号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] 本発明は以上のような事情に基づいてなされたものであり、フェノール類とアルデヒド類、特に、炭素数が２以上の脂肪族アルデヒドおよび芳香族アルデヒドとを、温和な条件下で反応させて、溶融粘度の低い、低分子量のノボラック樹脂を効率的に製造する方法を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、通常使用される酸と塩化カルシウムを含む触媒を用いることによって、前記課題が解決できることを見出し、本発明を完成するに至ったものである。

[0007] 即ち、本発明は以下を要旨とする。

１．塩化カルシウムおよび酸を含む触媒の存在下、フェノール類とアルデヒド類とを反応させることを特徴とするノボラック樹脂の製造方法、

２．酸がシュウ酸またはリン酸である上記１に記載のノボラック樹脂の製造方法、

３．分散度（重量平均分子量／数平均分子量）が１．３以下で、かつ１５０℃における溶融粘度が３００ｍＰａ・ｓ以下であるノボラック樹脂を得る、上記１または２に記載のノボラック樹脂の製造方法

発明の効果

[0008] 本発明によれば、塩化カルシウムおよび酸を含む触媒の存在下、フェノール類とアルデヒド類とを反応させることによって、低分子量かつ溶融粘度の低いノボラック樹脂を効率的に得ることができる。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]実施例１におけるノボラック樹脂のＧＰＣチャートである。

[図2]比較例３におけるノボラック樹脂のＧＰＣチャートである。

発明を実施するための最良の形態

[0010] 以下、本発明を詳しく説明する。

本発明のノボラック樹脂の製造方法は、塩化カルシウムおよび酸を含む触媒の存在下、フェノール類とアルデヒド類を反応させるものである。

本発明に使用されるフェノール類としては、一般的なフェノール樹脂の製造に使用されるものであれば良く、例えばフェノール、各種クレゾール、各種エチルフェノール、各種キシレノール、各種エチルフェノール、各種ブチルフェノール、各種オクチルフェノール、各種ノニルフェノール、各種フェニルフェノール、各種シクロヘキシルフェノール、各種トリメチルフェノール、ビスフェノールＡ、カテコール、レゾシノール、ハイドロキノン、各種ナフトール、ピロガロールなどを単独又は２種以上混合して使用することができる。

これらのうち、フェノールや各種クレゾールが実用上好ましい。

[0011] 一方、フェノール類と反応させるアルデヒド類としては、フェノール樹脂の製造に使用可能とされているアルデヒド類であれば使用可能である。

例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、パラホルムアルデヒド、各種プロピルアルデヒド、各種ブチルアルデヒド、各種バレルアルデヒド、各種ヘキシルアルデヒド、グリオキザール、クロトンアルデヒド、グルタルアルデヒド、ベンズアルデヒド、各種ヒドロキシベンズアルデヒド、各種ジヒドロキシベンズアルデヒド、各種ヒドロキシメチルベンズアルデヒドなどを単独もしくは２種以上混合して使用することができる。

上記アルデヒド類の使用量は、フェノール類の合計量１モルに対して、０．３～１．０モル、好ましくは０．４～０．９モルの割合で用いるのが望ましい。

アルデヒド類の使用量が０．３モル未満であると、残存するフェノール類モノマーが多くなるため効率的でない。

一方、アルデヒド類の使用量が１．０モルを超えると、得られる樹脂の分子量が高くなるため好ましくない。

[0012] 本発明方法に使用される酸としては、一般的なノボラック樹脂の製造に使用されるものであれば良く、例えば、シュウ酸、リン酸、パラトルエンスルホン酸および塩酸などが挙げられ、単独若しくは２種類以上を混合して使用することができる。

反応設備への腐食などを考慮すると、シュウ酸またはリン酸が好ましい。

酸の使用量は、フェノール類１００質量部に対して０．１～２０質量部、好ましくは０．１～１０重量部、より好ましくは０．２～５重量部の割合で用いるのが望ましい。

[0013] 本発明では、更に塩化カルシウムを触媒成分として使用する。

塩化カルシウムは、結晶水を有するものと無水物とがあるが、無水物が好ましい。

塩化カルシウムの使用量は、フェノール類１００質量部に対して１～２０質量部、好ましくは２～１０重量部の割合で用いるのが良い。

塩化カルシウムの使用量が１質量部未満では、フェノール類とアルデヒド類の反応率が低下するため好ましくなく、２０質量部を越えると反応率向上の効果がほとんどなくなるため、実用的でない。

[0014] 本発明の製造方法で得られるノボラック樹脂は、数平均分子量が２００～５００であり、好ましくは２５０～４００、より好ましくは２５０～３５０である。

数平均分子量が上記範囲内であると、ノボラック樹脂の溶融粘度を低くすることができ、エポキシ樹脂の硬化剤として十分な効果を発揮する。

また、分散度（重量平均分子量／数平均分子量）が１．３以下であり、好ましくは１．２以下である。

分散度が１．３以下であることは、ノボラック樹脂中の多核体が少ないことを意味する。ノボラック樹脂の溶融粘度を低くするためには、多核体の含有量をできるだけ少なくする必要がある。

更に、１５０℃における溶融粘度が３００ｍＰａ・ｓ以下であり、好ましくは２５０ｍＰａ・ｓ以下である。

溶融粘度が３００ｍＰａ・ｓ以下であると、エポキシ樹脂の硬化剤として使用した場合、配合物の流動性が向上するため成形性に優れた配合物が得られる。

[0015] フェノール類とアルデヒド類とを反応させる方法には、特に制限はなく、例えば、フェノール類、アルデヒド類、塩化カルシウムおよび酸を一括で仕込み反応させる方法、またはフェノール類、塩化カルシウムおよび酸を仕込み、所定の反応温度においてアルデヒド類を添加する方法が挙げられる。

このとき反応温度は、３０～１２０℃の範囲で行うのが良い。

３０℃未満であると反応の進行が遅く、かつ未反応のフェノール類が残存するため好ましくなく、また１２０℃を超える温度では高分子量成分の生成が促進されるため好ましくない。

反応時間には特に制限はなく、アルデヒド類、塩化カルシウムおよび酸の量、反応温度により調整すればよい。

反応の際、有機溶剤を使用することももちろん可能である。

有機溶媒としては、プロピルアルコール、ブタノール等のアルコール類、エチレングリコール、プロピレングリコール等のグリコール類、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、ブチレングリコールモノメチルエーテル、ブチレングリコールモノエチルエーテル、ブチレングリコールモノプロピルエーテル等のグリコールエーテル類、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン類、酢酸プロピル、酢酸ブチル、乳酸エチル、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート等のエステル類、１，４－ジオキサン等のエーテル類等が単独で、若しくは２種以上を併用して使用できる。

前記有機溶媒は、フェノール類１００質量部に対して、０～１，０００質量部、好ましくは１０～１００質量部程度となるように使用することができる。

但し、溶媒として水は使用しない方が良い。

塩化カルシウムは水溶性が高いため、系内に水が存在すると直ちに溶解し、塩化カルシウムが水溶液になると反応の効率が下がるため好ましくない。

また、フェノール類とアルデヒド類の反応により縮合水が生成するため、反応の進行に伴い塩化カルシウムが徐々に水を吸着して溶融状態になるが、完全に透明になるような状態でなければ特に問題ない。

しかし、塩化カルシウムへの水分の吸着を防ぐ目的で、硫酸カルシウム、シリカゲル、モレキュラーシーブなどの乾燥剤を使用することも可能である。

前記乾燥剤はフェノール類化合物１００質量部に対して、０～２０質量部、好ましくは０～１０質量部程度となるように使用することができる。

反応終了後は、蒸留により縮合水を除去したり、また、必要に応じて、水洗して塩化カルシウムおよび酸を除去しても良い。

更に、減圧蒸留或いは水蒸気蒸留を行って未反応のフェノール類や未反応アルデヒド類を除去しても良い。

実施例

[0016] 以下に、本発明の製造方法によるノボラック樹脂の実施例及び比較例を示して、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

実施例１

冷却管、攪拌機を備えたフラスコに、フェノール１００ｇ、ベンズアルデヒド５６ｇ、塩化カルシウム５ｇおよびシュウ酸１ｇを仕込み、５０℃で３時間反応させた。

次いで、純水１００ｇで３回洗浄を行い、塩化カルシウムおよびシュウ酸を除去した。

次いで、１８０℃、５０ｍｍＨｇの減圧下で溜出分を除去し、ノボラック樹脂Ａ９８ｇを得た。

図１に、樹脂Ａのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）チャートを示す。なお、横軸は溶出時間（分）を示す。図１から樹脂Ａは、低分子量の２核体が主生成物であることが分かる。

[0017] 実施例２

シュウ酸の代わりにリン酸１ｇを使用した以外は、実施例１と同様に行い、ノボラック樹脂Ｂ９８ｇを得た。

[0018] 実施例３

アルデヒド類としてイソブチルアルデヒド３８ｇを使用した以外は、実施例１と同様に行い、ノボラック樹脂Ｃ９０ｇを得た。

[0019] 実施例４

フェノール類としてオルソクレゾール１００ｇ、アルデヒド類としてイソブチルアルデヒド３３ｇを使用した以外は、実施例１と同様に行い、ノボラック樹脂Ｄ８９ｇを得た。

[0020] 比較例１

冷却管、攪拌機を備えたフラスコに、オルソクレゾール１００ｇ、ベンズアルデヒド４９ｇおよびシュウ酸１ｇを仕込み、１００℃で８時間反応させたところ、反応が進行せず樹脂は得られなかった。

[0021] 比較例２

冷却管、攪拌機を備えたフラスコに、オルソクレゾール１００ｇ、ベンズアルデヒド４９ｇ、塩化ナトリウム５ｇおよびシュウ酸１ｇを仕込み、１００℃で８時間反応させたところ、反応が進行せず樹脂は得られなかった。

[0022] 比較例３

冷却管、攪拌機を備えたフラスコに、フェノール１００ｇ、ベンズアルデヒド５６ｇおよびパラトルエンスルホン酸１０ｇを仕込み、１００℃で８時間反応させた。

次いで、水酸化ナトリウム水溶液で中和した後、純水１００ｇで５回洗浄を行い生成塩を除去した。

次いで、１８０℃、５０ｍｍＨｇの減圧下で溜出分を除去し、ノボラック樹脂Ｅ８３ｇを得た。

図２に、樹脂Ｅのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）チャートを示す。なお、横軸は溶出時間（分）を示す。

図２から樹脂Ｅは、２核体以外に相当量の多核体が生成していることが分かる。

[0023] 比較例４

フェノール類としてオルソクレゾールを使用した以外は、比較例３と同様に反応を行い、ノボラック樹脂Ｆ７７ｇを得た。

[0024] 実施例１～３で得られたノボラック樹脂、比較例３および４で得られたノボラック樹脂について下記分析方法で測定した値を表１に示す。

樹脂の分析方法は以下の通りである。

（１）数平均分子量、重量平均分子量、分散度

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定した。

カラム構成は昭和電工（株）製のＫＦ－８０４を２本用い、溶媒としてテ

トラヒドロフランを使用し、流量１ｍｌ／分で測定した。

分子量はポリスチレン換算、含有率は全ピーク面積中の百分率で算出した。

分散度は重量平均分子量／数平均分子量で算出した。

（２）軟化点（℃）

エレックス科学製気相軟化点測定装置ＥＸ－７１９ＰＤを用いて昇温速度２．５℃／分で測定した。

（３）溶融粘度（ｍＰａ・ｓ）

リサーチ・イクウィップ社製ＩＣＩ粘度計を用い、１５０℃で測定した。

[0025] [表1]

表 1

	樹脂A	樹脂B	樹脂C	樹脂D	樹脂E	樹脂F
数平均分子量	３１０	３００	２９０	２９０	６７０	６１０
重量平均分子量	３７０	３６０	３４０	３２０	１７００	１３００
分散度	１．２	１．２	１．２	１．１	２．５	２．１
収量（ｇ）	９８	９８	９０	８９	８３	７７
溶融粘度(mPa・s)	２２５	２１０	３１	３４	２０００	１０００
軟化点（℃）	９６	９４	６８	７１	１１９	１１７

産業上の利用可能性

[0026] 本発明のノボラック樹脂は、溶融粘度が低いため流動性が高く、エポキシ樹脂の硬化剤として使用した熱硬化性樹脂組成物は、成形時の流動性が著しく向上する。

本発明のノボラック樹脂を半導体封止材用として使用した場合、充填剤量を多くすることにより成形品の線膨張係数の低減や吸湿率の低減、難燃性の向上が可能となる。

また、その硬化物は、良好な耐熱性、耐湿性、機械的特性、電気絶縁性、金属との接着性などを有し、従って、高信頼性を必要とする電子材料用途に非常に有効である。

具体的には、電子部品の封止材用樹脂組成物、プリント基板用樹脂組成物、プリント基板および樹脂付き銅箔に使用する層間絶縁材料用樹脂組成物、

レジストインキ、導電ペースト（導電性充填剤含有）、塗料、接着剤、複合材料等に利用可能である。

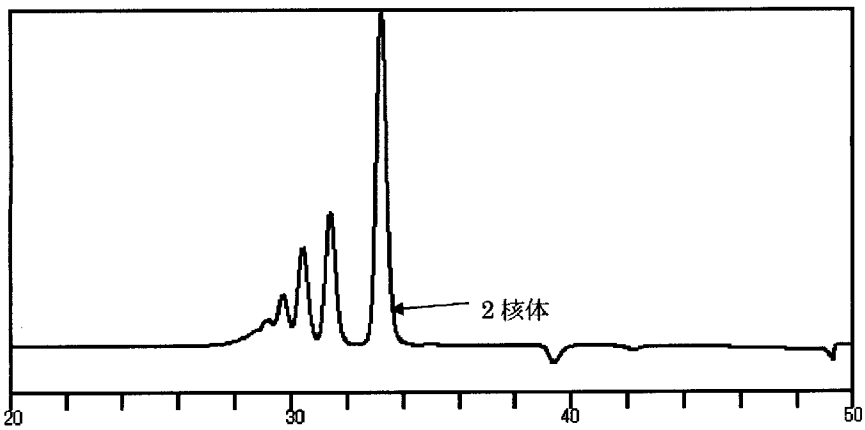
請求の範囲

[請求項1] 塩化カルシウムおよび酸を含む触媒の存在下、フェノール類とアルデヒド類とを反応させることを特徴とするノボラック樹脂の製造方法。

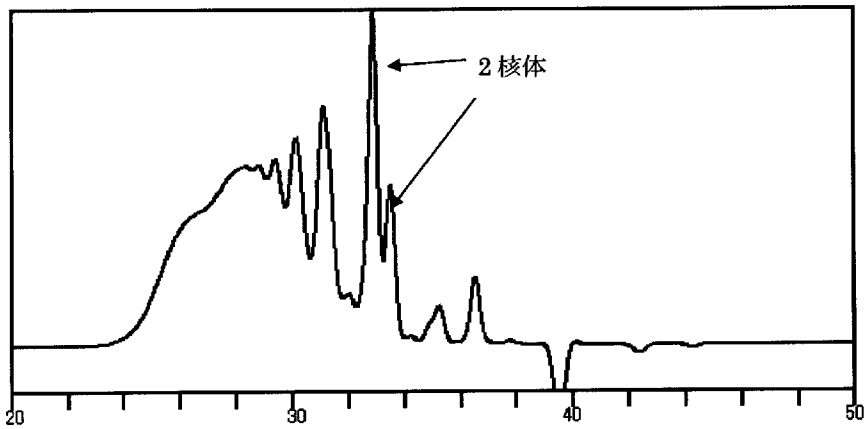
[請求項2] 酸がシュウ酸またはリン酸である請求項１に記載のノボラック樹脂の製造方法。

[請求項3] 数平均分子量が２００～５００であり、分散度（重量平均分子量／数平均分子量）が１．３以下で、かつ１５０℃における溶融粘度が３００ｍＰａ・ｓ以下であるノボラック樹脂を得る、請求項１または２に記載のノボラック樹脂の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/070880

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08G8/00(2006.01)i, *C08G8/04*(2006.01)i

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)
C08G8/00-38

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-297574 A (Toshio HONDA), 15 November 2007 (15.11.2007), claims 1, 2; paragraphs [0020], [0023] (Family: none)	1-3
X A	JP 2002-128849 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 09 May 2002 (09.05.2002), claims 1, 2; paragraphs [0009], [0010] (Family: none)	1,3 2
A	JP 5-23785 A (Kao Corp.), 02 February 1993 (02.02.1993), claims 1 to 4 (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 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	Date of mailing of the international search report
12 January, 2010 (12.01.10)	26 January, 2010 (26.01.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０７０８８０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08G8/00(2006.01)i, C08G8/04(2006.01)i

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.　C08G8/00-38

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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１０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）

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	関連する請求項の番号
X	JP 2007-297574 A（本田　壽男） 2007.11.15, 請求項１，２，【００２０】,【００２３】 （ファミリーなし）	1-3
X A	JP 2002-128849 A（住友ベークライト株式会社） 2002.05.09, 請求項１，２，【０００９】,【００１０】 （ファミリーなし）	1，3 2

☑　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 １２．０１．２０１０	国際調査報告の発送日 ２６．０１．２０１０
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｊ　３７７６ 久保田　英樹 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４５７

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	関連する請求項の番号
A	JP 5-23785 A (花王株式会社) 1993.02.02, 請求項１－４（ファミリーなし）	1-3