

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003年11月20日 (20.11.2003)

PCT

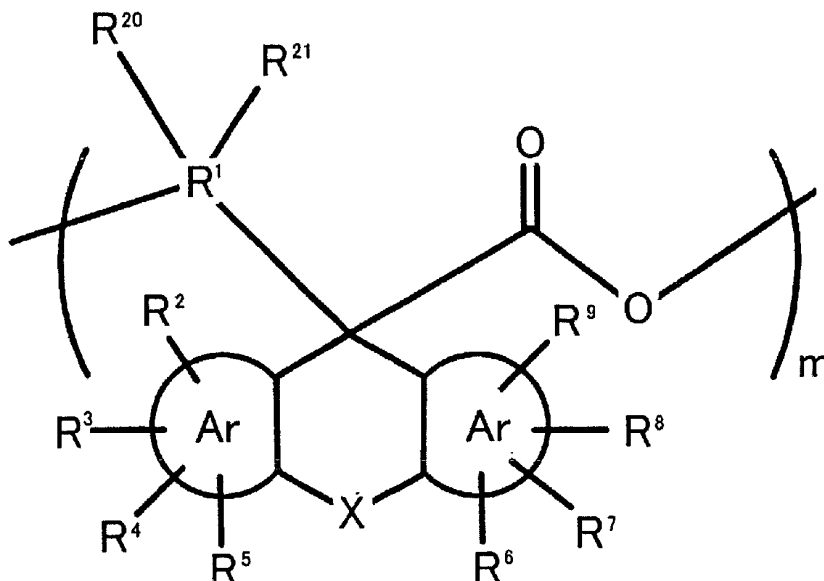
(10) 国際公開番号  
WO 03/095519 A1

- |   |                        |  |
|---|------------------------|--|
| (51) 国際特許分類:  | C08G 63/06             | (72) 発明者; および  |
| (21) 国際出願番号:  | PCT/JP03/05727         | (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 中野 環 (NAKANO, Tamaki) [JP/JP]; 〒630-0101 奈良県 奈良市 右京 5-9-24-503 Nara (JP).                               |
| (22) 国際出願日:   | 2003年5月7日 (07.05.2003) | (74) 代理人: 滝田 清暉, 外 (TAKITA, Seiki et al.); 〒104-0031 東京都 中央区 京橋3-3-4 京橋日栄ビル4階 Tokyo (JP).  |
| (25) 国際出願の言語:   | 日本語                    | (81) 指定国 (国内): CA, JP, US.   |
| (26) 国際公開の言語:   | 日本語                    | (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR). |
| (30) 優先権データ:<br>特願2002-132598 2002年5月8日 (08.05.2002) JP   |                        | 添付公開書類:<br>— 国際調査報告書   |
| (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 科学技術振興事業団 (JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY CORPORATION) [JP/JP]; 〒332-0012 埼玉県 川口市 本町4-1-8 Saitama (JP). |                        |  |

[続葉有]

(54) Title: NOVEL POLYESTER HAVING  $\pi$ -CONJUGATED GROUP IN SIDE CHAIN AND CHARGE TRANSPORTING MATERIAL USING THE SAME

(54) 発明の名称: 側鎖に $\pi$ 共役基を有する新規ポリエステル及びこのポリエステルを用いた電荷輸送材料



(57) Abstract: A polyester, characterized in that it is represented by the structural formula (1): (1) wherein Ar represents an aromatic group including a hetero ring, R<sup>1</sup> represents a carbon atom or nil (a direct bonding), R<sup>2</sup> to R<sup>9</sup> each represent a hydrogen atom, an electron donating group or an electron attracting group, R<sup>20</sup> and R<sup>21</sup> represent a hydrogen atom or an organic group, and X represents a hetero atom, a hetero atom containing group, an organic group or nil (a direct bonding), and m is an integer of 2 or greater; and a charge transporting material comprising the polyester and, incorporated therein, an electron accepting compound or an electron donating compound.

[続葉有]

WO 03/095519 A1

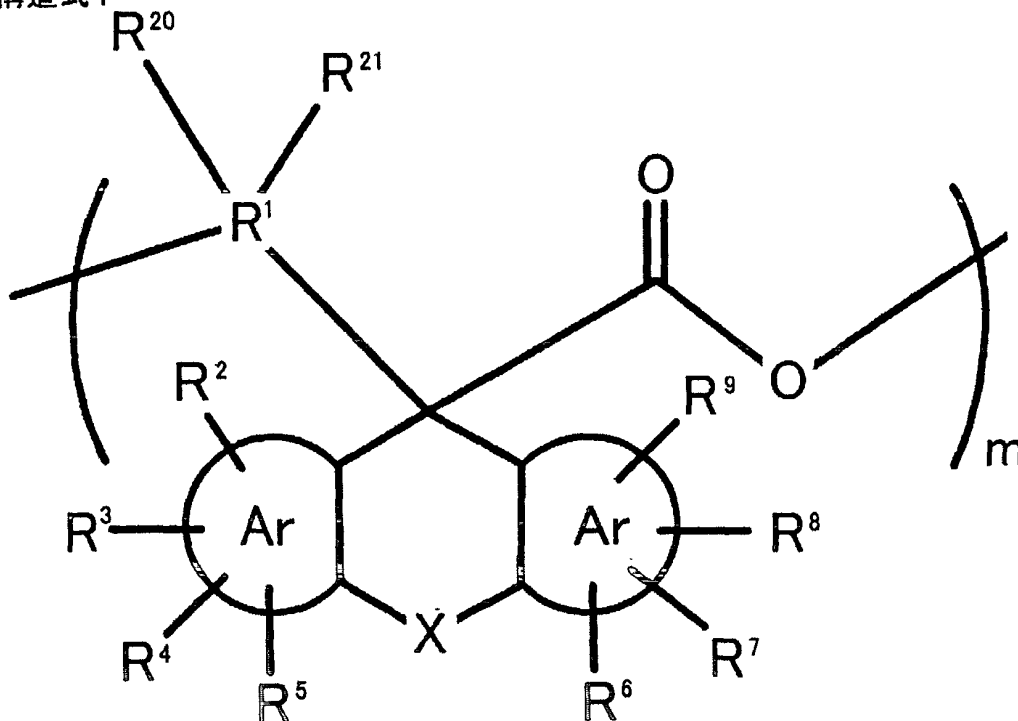


2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

本発明は、下記構造式1で表されることを特徴とするポリエステル、及び、上記ポリエステルに電子受容性化合物、又は電子供与性化合物を添加してなる電化輸送材料である。

構造式1



尚、上記構造式において、Arは芳香族基を表し、この芳香族基にはヘテロ環も含まれる。R<sup>1</sup>は炭素原子又は無し（直接結合）、R<sup>2</sup>~R<sup>9</sup>は水素原子、電子供与性基又は電子吸引性基、R<sup>20</sup>及びR<sup>21</sup>は水素又は有機基、Xはヘテロ原子、ヘテロ原子含有基、有機基、又は無し（直接結合）、mは2以上の整数である。

## 明 細 書

側鎖に $\pi$ 共役基を有する新規ポリエステル及びこのポリエステルを用いた電荷輸送材料

5

技術分野

本発明は、側鎖にフルオレン残基を有する新規な高分子化合物に関し、特に、電子受容性化合物、または、電子供与性化合物と電荷移動錯体を形成し得る新規な高分子化合物、及び、電子受容性化合物、または、電子供与性化合物を添加してなる電荷移動錯体に関する。

10

背景技術

特開2000-319366号公報にあるように、フルオレン残基を持つポリエステルは既に知られている。このポリエステルは、耐熱性及び透明性に優れると共に屈折率が高く、複屈折率及び吸水性が低い為に、光学機器用材料として好適である。しかしながら、フルオレン残基同士の重なりがほとんどないため、 $\pi$ 共役電子の特性を利用した電気特性を発現させることは困難であった。

15

また、ポリアセチレンやポリフルオレンのような $\pi$ 共役基を持つ高分子材料に電子受容性化合物、または電子供与性化合物を添加することにより電荷輸送性を示す材料が得られることは既に知られている。しかしながら、これらの材料の場合には水分や酸素等によって劣化するため、電荷輸送性を示す材料としての安定性に問題があった。

20

発明の開示

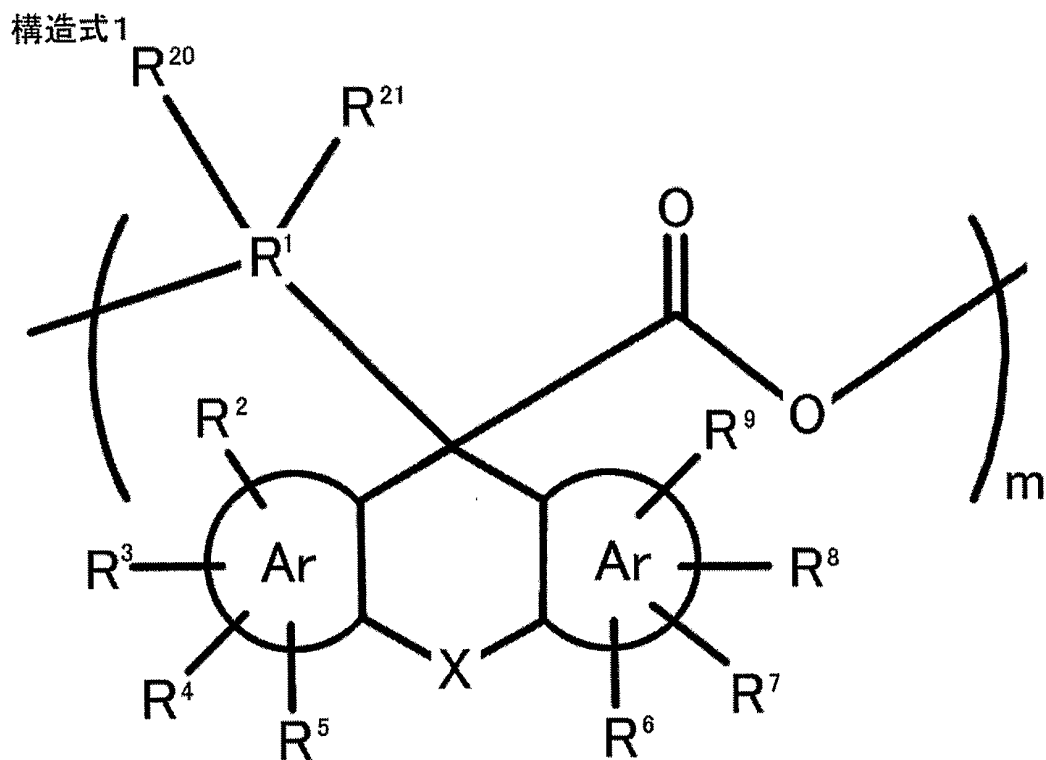
そこで、本発明者がパイ共役電子の特性によって特殊な電気特性を発現することの出来る高分子化合物について鋭意検討した結果、フルオレン残基を側鎖に有するポリエステルが特異な電気特性を発現する上、適当な電子受容性化合物又は電子供与性化合物と安定性に優れた電荷移動錯体を形成することを見出し本発明に到達した。

25

従って本発明の第1の目的は、 $\pi$ 共役電子を有するポリエステルであって、該  
 $\pi$ 共役電子の特性によって特異な電気特性を発現するポリエステルを提供するこ  
 とにある。

本発明の第2の目的は、電子受容性化合物又は電子供与性化合物と安定な電荷  
 5 移動錯体を形成した組成物を提供することにある。

本発明の上記の諸目的は、下記構造式1で表されることを特徴とするポリエス  
 テルによって達成された。但し、式中のmは2以上の整数である。



尚、上記構造式において、Arは芳香族基を表し、この芳香族基にはヘテロ環  
 10 も含まれる。R<sup>1</sup>は炭素原子又は無し（直接結合）、R<sup>2</sup>～R<sup>9</sup>は水素原子、電子供  
 与性基又は電子吸引性基、R<sup>20</sup>及びR<sup>21</sup>は水素又は有機基、Xはヘテロ原子、ヘ  
 テロ原子含有基、有機基、又は無し（直接結合）である。

本発明においては、特にR<sup>1</sup>がないこと、つまり重合単位の末端となっている  
 ことが好ましい。

15

発明を実施するための最良の形態

構造式1におけるXのヘテロ原子としては、 $-O-$ 、 $-NR-$ 、 $-S-$ などが挙げられ、有機基としては $-(CH_2)-$ 又は芳香族基が好ましい。

本発明の上記構造式1における電子供与性基とは、その置換基を導入することにより、フルオレン残基の電子密度が上がりフルオレン残基の電子ドナー性を強める官能基のことである。このような電子供与性基とは、例えば、 $-F$ 、 $-Cl$ 、 $-Br$ 、 $-I$ 、 $-OH$ 、 $-OR$ 、 $-O(C=O)R$ 、 $-NR^{10}R^{11}$ 、 $-SR$ 、 $-SH$ 、及びアルキル基などが挙げられるが、これらの中でも特に、 $-C_5H_{11}$ 、 $-t-C_4H_9$ 、 $-NR^{10}R^{11}$ が好ましい。但し、 $R$ 、 $R^{10}$ 及び $R^{11}$ は、 $H$ 又は有機基、好ましくは、芳香族基又はアルキル基である。 $R^{20}$ 、 $R^{21}$ としては、特に水素原子、アルキル基、芳香族基、 $-CN$ 、エステル基が好ましい。

一方、電子吸引性基とは、その置換基を導入することによってフルオレン残基の電子密度が下がり、これによってフルオレン残基の電子アクセプター性を強める官能基のことである。このような電子吸引性基としては、例えば $-C\equiv N$ 、 $-(C=O)R$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NO_2$ 、フェニル基、 $-COOH$ 、 $-COOR$ 等が挙げられるが、特に $-C\equiv N$ 及び $-NO_2$ が好ましい。

上記のような電子吸引性基や電子供与性基をポリマーに持たせることにより、後述する電子供与性化合物や電子受容性化合物を添加した場合に、より安定な電荷移動型組成物となる。

$R^2\sim R^9$ の好ましい組み合わせは、① $R^2\sim R^9$ の全てが $H$ である場合；② $R^3$ 及び $R^8$ が $NR^{10}R^{11}$  ( $R^{10}$ 及び $R^{11}$ は、 $H$ 、アルキル基、又は芳香族基)で、 $R^2$ 、 $R^4\sim R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；③ $R^3$ 及び $R^8$ が $NH_2$ で、 $R^2$ 、 $R^4\sim R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；④ $R^3$ 及び $R^8$ が $-N(C_6H_5)_2$ で、 $R^2$ 、 $R^4\sim R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；⑤ $R^3$ 及び $R^8$ 並びに $R^6$ が $NO_2$ で、 $R^2$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；⑥ $R^3$ 及び $R^8$ が $NO_2$ で、 $R^2$ 、 $R^4\sim R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；⑦ $R^3$ 、 $R^8$ 及び $R^6$ が $CN$ で、 $R^2$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合；及び⑧ $R^3$ 及び $R^8$ が $CN$ で、 $R^2$ 、 $R^4\sim R^7$ 及び $R^9$ が $H$ である場合である。

上記された電子受容性化合物とは、構造式1のポリマーより電子親和力の強い化合物のことであり、例えば、下記のようなハロゲン類、ルイス酸、プロトン酸、

遷移金属ハロゲン等を挙げる事が出来る。

ハロゲン類： $I_2$ 、 $Br_2$ 、 $Cl_2$ 、 $ICl$ 、 $ICl_3$ 、 $IBr$ 、 $IF$

ルイス酸： $BF_3$ 、 $PF_5$ 、 $AsF_5$ 、 $SbF_5$ 、 $SO_3$ 、 $BBr_5$ 、

$BF_4^-$ 、 $PF_6^-$ 、 $AsF_6^-$ 、 $SbF_6^-$ 、 $ClO_4^-$

- 5 プロトン酸： $HNO_3$ 、 $H_2SO_4$ 、 $HClO_4$ 、 $HF$ 、 $HCl$ 、 $FSO_3H$ 、  
 $CFSO_3H$

遷移金属ハロゲン： $FeCl_3$ 、 $MoCl_5$ 、 $WCl_5$ 、 $SnCl_4$ 、 $MoF_5$ 、

$FeOCl$ 、 $RuF_5$ 、 $TaBr_5$ 、 $SnI_4$ 、 $LnCl_3$  ( $Ln$ は $La$ 、 $Ce$ 、

$Pr$ 、 $Nd$ 、又は $Sm$ である。)、(9-フルオレニリデン) アセトニトリル、(9-

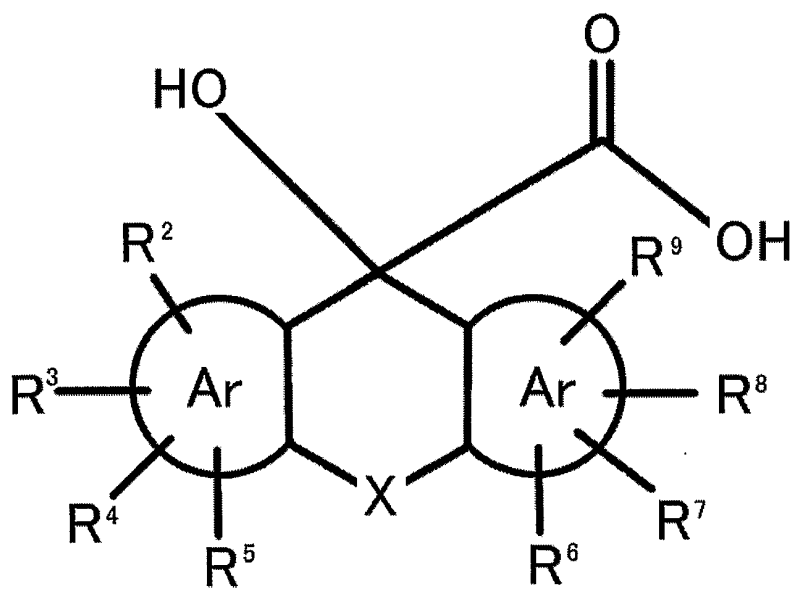
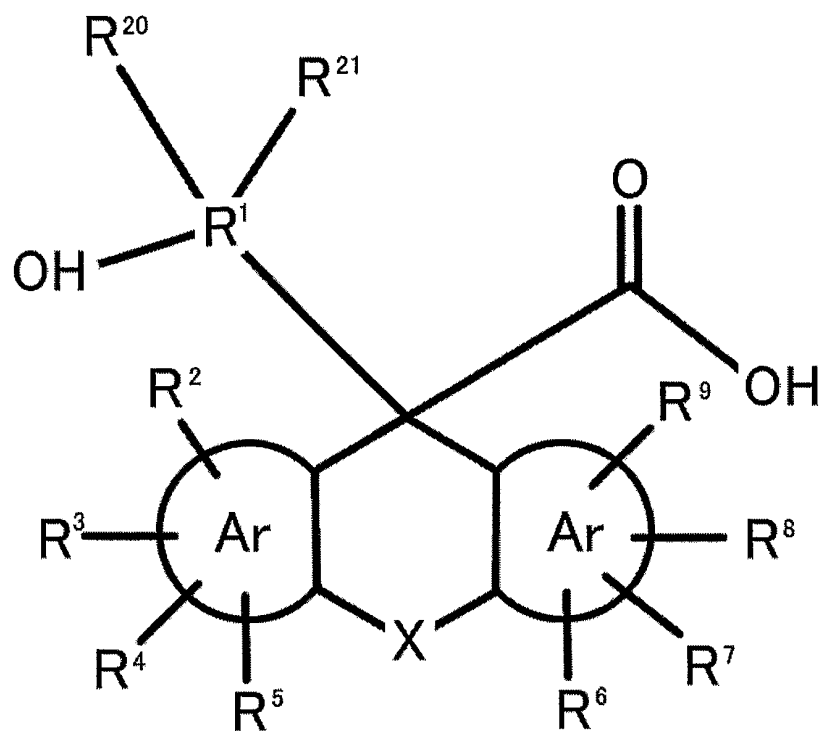
- 10 -フルオレニリデン) マロノニトリル、(2, 4, 7-トリニトロ-9-フルオレニリデン) アセトニトリル、(2, 4, 7-トリニトロ-9-フルオレニリデン) マロノニトリル、*o*-ジニトロベンゼン、*m*-ジニトロベンゼン、*p*-ジニトロベンゼン、2, 4, 7-トリニトロベンゼン、2, 4, 7-トリニトロトルエン、 $TCNQ$ 、 $TCNE$ 、 $DDQ$ 等が挙げられる。

- 15 一方、電子供与性化合物とは、構造式1のポリマーよりイオン化ポテンシャルの小さい化合物のことであり、例えば、ヘキサメチルベンゼン、アルカリ金属、アンモニウムイオン、ランタノイドなどが挙げられる。

フルオレン残基に電子吸引性官能基を導入した場合には、電子供与性化合物を添加し、フルオレン残基に電子供与性官能基を導入した場合には、電子受容性化合物を添加することが好ましい。このようにすることによって、安定な電荷移動型錯体が得られる。

- 20 (合成方法)

本発明のポリマーの合成には、例えば下記の化合物を通常の触媒を用いて重縮合させれば良い。



尚、これらの式におけるR<sup>1</sup>~R<sup>9</sup>及びR<sup>20</sup>、R<sup>21</sup>は、夫々構造式1中のR<sup>1</sup>~

R<sup>9</sup>及びR<sup>20</sup>、R<sup>21</sup>と同じである。

ポリマーの好ましい分子量は、数平均分子量で400～100万であり、さらに好ましくは、800～10万である。400以下では、フルオレン残基間に電子受容性化合物または、電子供与性化合物が入り込むことが少なく、100万以上では溶解性が低くなる。

好ましいフルオレン残基間の距離は、4～20 Å、より好ましくは5～10 Åである。4 Å以下ではフルオレン残基間に電子受容性化合物または、電子供与性化合物が入り込むことができず、20 Å以上ではフルオレン残基間に入った電子受容性化合物または電子供与性化合物が、電荷移動錯体を形成しにくい。

10 更に、ポリマーのT<sub>g</sub>は30～300℃であることが好ましく、特に80～200℃であることが好ましい。T<sub>g</sub>が30℃以下では、温度変化によるポリマーの構造変化により電荷移動錯体の形成が阻害される。

上記の条件が満たされると、安定な電荷移動錯体を得ることが出来る。このような安定な電荷移動錯体は、例えば有機EL、太陽電池のホール輸送層のような電荷輸送材料として好適である。このような電荷輸送材料は、スピコートなどの公知の方法によって容易に製造することが出来る。

### 実施例

以下、本発明を実施例によって更に詳述するが、本発明はこれによって限定されるものではない。

#### 実施例1 (ポリマー合成).

##### <9-ヒドロキシメチル-9-フルオレンカルボン酸 (モノマー) の合成>

フレイムドライ及び窒素置換した反応容器に、9-フルオレンカルボン酸 (4.98 g, 23.7 mモル) と無水THF (300 ml) を加え、反応溶液を-78℃に冷却した後、n-ブチルリチウム (1.6M-ヘキサン溶液41.0 ml, 71.0 mモル) を加えた。反応溶液を-78℃で30分攪拌した後、-78℃のままパラホルムアルデヒド (2.30 g, 75.0 mモル) を無水THF (100 ml) に溶解して加え、室温で13時間攪拌した。蒸留水を加え、エーテルで抽出し、水層を1Nの塩酸を用いてpH=2に調製した後、クロロホルムで再び



抽出し、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥した。ロータリーエバポレータで低沸分を減圧留去し、粗生成物4.21gを得た。この粗生成物の内の塩化メチレン不溶分を回収し、目的化合物(4.60g, 19.3mモル, 80.5%)を得た。<sup>1</sup>H-NMR(500MHz, CDCl<sub>3</sub>) d: 7.78(d, J=7.5, 2H), 7.67(d, J=7.5, 2H), 7.46(dd, J=7.0, 2H), 7.54(dd, J=8.0, 2H), 4.02(s, 4H).

<9-ヒドロキシメチル-9-フルオレンカルボン酸を原料とするポリマーの合成>

反応容器(9mmΦ×50mm)に9-ヒドロキシメチル-9-フルオレンカルボン酸(50.4mg, 0.21mモル)および触媒として(CF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>Snを0.90mg入れ、全体が均一になるように振り混ぜた。その後、窒素を吹き込みながら(シリンジ針を、化合物の約2mm上で固定した。)、180℃で3時間加熱した。3時間後、得られた化合物をTHF可溶分(47.1mg)と不溶分(2.20mg)にデカンテーションにより分別した。一旦乾燥して秤量した可溶分をあらためてTHF(3ml)に溶解し、ゆっくりと攪拌しながらジアゾメタン(エーテル溶液、1ml)を滴下し、室温で5時間攪拌した。5時間後、ロータリーエバポレータで溶媒および揮発性成分を減圧留去し、得られた粗生成物をメタノール可溶分(8.10mg)と不溶分(34.9mg)に分け、さらにメタノール不溶分をTHF可溶分(14.19mg)と不溶分(20.64mg)に分けた。メタノールに不溶でTHFに可溶な部分は、1,000~10<sup>5</sup>程度の分子量(SEC, ポリスチレン換算)分布を有した。

実施例2(ポリマー合成).

フレイムドライ及び窒素置換した反応容器中で、9-ヒドロキシ-9-フルオレンカルボン酸(1.01g, 4.42mモル)に無水塩化メチレン(17ml)を加え、室温で5分間攪拌して均一な溶液とした後、無水トリエチルアミン(0.62ml, 4.502mモル)を滴下して加えた。反応溶液を室温で30分間攪拌した後、塩化p-トルエンスルホン(762mg, 4.42mモル)の無水塩化メチレン(3ml)溶液を滴下した。反応溶液を室温で15分間攪拌した後蒸留水を加え、クロロホルムで抽出し、有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥し

た。ロータリーエバポレータで溶媒を減圧留去し、得られた粗生成物をヘキサン可溶分（111mg）と不溶分（777mg）に分別した。ヘキサン不溶分をTHF（20ml）に溶解し、ゆっくりと攪拌しながらジアゾメタン（エーテル溶液、3ml）を滴下し、室温で5時間攪拌した。反応生成物は2～10量体の混合物であった。また、このポリマーをリサイクル液体クロマトグラフィーで分別し、純粋な2量体、3量体、および4量体を得た。

実施例3（D-A錯体形成、分光測定）。

<ポリ（9-ヒドロキシメチル-9-フルオレンカルボン酸）とm-ジニトロベンゼン（DNB）によるD-A錯体の形成>

#### 10 1. 溶液中での吸収スペクトル測定

ポリマー（2.98mg）とDNB（1.80mg, 0.01mmol）を紫外吸収スペクトル用THFに溶かして10mlの溶液とした。これを100倍に希釈し、室温での吸収スペクトル測定（石英セル；10mm）に用いた。ポリマーとDNBの混合物の吸収強度はポリマーのみの吸収強度より小さくなり、242nmにおいて0.140あった強度は、DNBを加えた後に、0.108に変化した。またこの変化は濃度に依存し、DNBの濃度を $2.5 \times 10^{-5}M$ 、 $5.0 \times 10^{-5}M$ と変えると、242nmにおける吸収強度はそれぞれ0.077及び0.059と変化した。この淡色効果は、ポリマーのフルオレン環とDNBがスタックした錯体を形成したことを実証するものである。

20 また、長波長側の吸収が310nmから345nmにのびた。

#### 2. 固体状態でのD-A錯体形成

ポリマー（100mg）とm-ニトロベンゼン（100mg）を $CH_2Cl_2$ 溶液とした後、溶媒を留去しながら生成した薄赤色固体を集めた。これを再び $CH_2Cl_2$ に溶解して溶媒を留去したところ、薄赤色針状結晶を得た。

#### 25 実施例4.

<ポリ（9-ヒドロキシ-9-フルオレンカルボン酸）と2,4,7-トリニトロ-9-フルオレニリデンマロノニトリル（TNFMN）による、D-A錯体の形成>

#### 1. 溶液中での吸収スペクトル測定

TNFMN (363.3 mg, 1.0 mモル) を紫外吸収スペクトル用塩化メチレン溶媒で溶解し、100 ml の溶液とした。次いで、その溶液を用いてポリマー (2-10 量体の混合物 10.4 mg, モノマー単位で 0.05 mモル) を溶解し、1 ml の溶液として室温で吸収スペクトルの測定 (石英セル; 0.1 mm) を行った。測定の結果、D-A 錯体に由来する新たなピーク、386 nm ( $\lambda_{\max} = 0.038$ )、488 nm ( $\lambda_{\max} = 0.009$ ) を観測した。

## 2. 固体状態での D-A 錯体形成

TNFMN (15.1 mg, 0.04 mモル) とポリマー (10.4 mg, モノマー単位で 0.05 mモル) を塩化メチレン溶液とした後、溶媒を留去乾燥することにより橙色~赤色の固体を得た。この固体の<sup>1</sup>HNMRによる組成分析の結果、モノマー単位 : TNFMN = 1 : 1 の割合であることがわかった。

### 実施例 5.

<9-ヒドロキシ-9-フルオレンカルボン酸の 3 量体と TNFMN による D-A 錯体形成>

#### 15 1. 溶液中での吸収スペクトル測定

TNFMN (363.3 mg, 1.0 mモル) を紫外吸収スペクトル用塩化メチレン溶媒で溶解し、100 ml の溶液とした。次いで、その溶液を用いて 3 量体 (10.4 mg, モノマー単位で 0.05 mモル) を溶解し、1 ml の溶液として室温で吸収スペクトルの測定 (石英セル; 0.1 mm) を行った。測定の結果、D-A 錯体に由来する新たなピーク、388 nm ( $\lambda_{\max} = 0.037$ )、489 nm ( $\lambda_{\max} = 0.009$ ) を観測した。またこれらの吸収強度は濃度に依存し、フルオレンの濃度を 0.03 M、0.04 M と変えると、388 nm における吸収強度はそれぞれ 0.022 及び 0.029 と変化した。

## 2. 固体状態での D-A 錯体形成

25 TNFMN (15.1 mg, 0.04 mモル) と 3 量体 (10.4 mg, モノマー単位で 0.05 mモル) を塩化メチレン溶液とした後、溶媒を留去乾燥することにより橙色固体得た。この固体の<sup>1</sup>HNMRによる組成分析の結果、モノマー単位 : TNFMN が 1 : 1 の割合であることが判明した。

実施例 6 (導電性 : 飛行時間測定).

重合度一20程度の混合物（主成分2量体一4量体）を $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ 溶液とし、これに2, 4, 7-トリニトロフルオレンマロノニトリル1%を加えて溶解した後、溶液をITOガラス基板上に流延して乾燥し薄膜（1 $\mu\text{m}$ 厚）を作製した。得られた膜上にアルミニウムを真空蒸着した（厚さ1000 $\text{\AA}$ 、面積5mm $\times$ 5mm）。TOF301（株式会社オプテル製）を用いてITO-アルミニウム間に5.0Vの電圧を印可し、同時にITO側から337nmのパルスレーザー（窒素レーザ、パルス幅1ns、150 $\mu\text{J}$ ）を照射し、飛行時間の測定を行った。室温での測定結果から、ホール移動度を $1.20 \times 10^{-4} \text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s} \text{e} \text{c}^{-1}$ と決定した。

10

#### 産業上の利用可能性

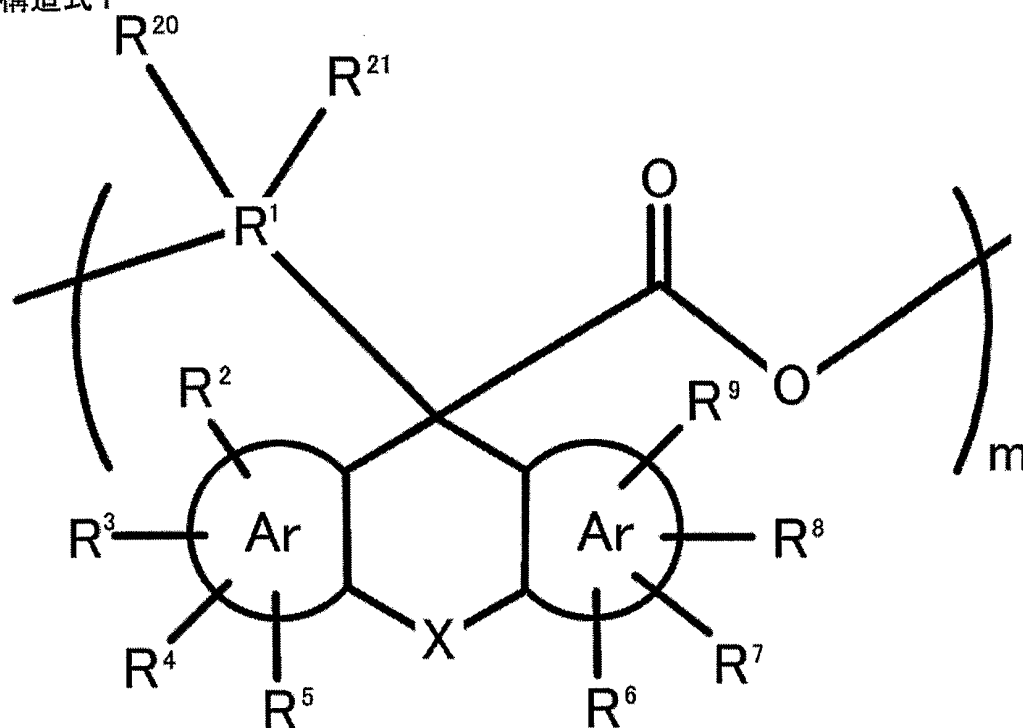
本発明のポリエステルは、フルオレン残基を側鎖に有するので特異な電気特性を有する上、適当な電子受容化合物又は電子供与性化合物と安定性に優れた電荷移動錯体を形成することが出来るので、有機EL材料として、或いは太陽電池のホール輸送層のような電荷輸送材料として好適である。

15

## 請求の範囲

1. 下記構造式1で表されることを特徴とするポリエステル；但し、式中の $R^1$ は $C_nH_{2n}$ であり、 $n$ は0以上の整数、 $R^2 \sim R^9$ は水素原子、電子供与性基または電子吸引性基、 $m$ は2以上の整数である。

構造式1



- 尚、上記構造式において、Arは芳香族基を表し、この芳香族基にはヘテロ環も含まれる。 $R^1$ は炭素原子又は無し（直接結合）、 $R^2 \sim R^9$ は水素原子、電子供与性基又は電子吸引性基、 $R^{20}$ 及び $R^{21}$ は水素又は有機基、Xはヘテロ原子、ヘテロ原子含有基、有機基、又は無し（直接結合）である。
2. 前記ポリエステルの分子量が、数平均分子量で400～100万である、請求項1に記載されたポリエステル。
3. 前記ポリエステル中のフルオレン残基間の距離が4～20 Åである、請求項2に記載されたポリエステル。
4. 前記ポリエステルのTgが30～300℃である、請求項1に記載されたポリエステル。

5. 請求項 1 に記載されたポリエステルに、電子受容性化合物又は電子供与性化合物を添加してなる組成物。
6. 前記組成物が電荷移動錯体を形成している、請求項 5 に記載された組成物。
7. 請求項 6 に記載された組成物を用いてなることを特徴とする電荷輸送材料。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. <p style="text-align: center;">PCT/JP03/05727</p>
--

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 Int.Cl<sup>7</sup> C08G63/06

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<sup>7</sup> C08G63/00-63/91

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

Jitsuyo Shinan Koho	1926-2003	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

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.
A	JP 2002-80734 A (Teijin Kasei Kabushiki Kaisha), 19 March, 2002 (19.03.02), Column 1, lines 2 to 20; column 2, lines 32 to 34 (Family: none)	1-7

Further documents are listed in the continuation of Box C.       See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
--	---

Date of the actual completion of the international search 28 May, 2003 (28.05.03)	Date of mailing of the international search report 10 June, 2003 (10.06.03)
--	--

Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office  Facsimile No.	Authorized officer  Telephone No.
---	---

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup> C08G 63/06

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<sup>7</sup> C08G 63/00- 63/91

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 1926-2003年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

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)

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
A	JP 2002-80734 A (帝人化成株式会社) 2002.03.19、第1欄第2-20行、第2欄第32-34 行 (ファミリーなし)	1-7

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  
28.05.03

国際調査報告の発送日  
10.06.03

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)  
森川 聡



4 J 9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456