

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2009-540058

(P2009-540058A)

(43) 公表日 平成21年11月19日(2009.11.19)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8F 2/48 (2006.01)	CO8F 2/48	4H006
CO8F 220/26 (2006.01)	CO8F 220/26	4J011
CO7C 69/716 (2006.01)	CO7C 69/716 Z	4J100

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2009-514425 (P2009-514425)	(71) 出願人	590004464
(86) (22) 出願日	平成19年6月8日 (2007.6.8)		デンツプライ インターナショナル イン
(85) 翻訳文提出日	平成21年2月4日 (2009.2.4)		コーポレーテッド
(86) 国際出願番号	PCT/US2007/013702		アメリカ合衆国, 17405 ペンシルヴ
(87) 国際公開番号	W02007/146239		アニア ヨーク, ウェスト カレッジ ア
(87) 国際公開日	平成19年12月21日 (2007.12.21)		ヴェニュー 570
(31) 優先権主張番号	60/812, 669	(74) 代理人	100064447
(32) 優先日	平成18年6月9日 (2006.6.9)		弁理士 岡部 正夫
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100085176
			弁理士 加藤 伸晃
		(74) 代理人	100094112
			弁理士 岡部 譲
		(74) 代理人	100096943
			弁理士 臼井 伸一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 光重合性、光開裂性樹脂及び低収縮、低応力複合組成物

(57) 【要約】

光重合性且つ光開裂性 (P & P) 樹脂モノマーは、種々の結合を介した反応性の光応答性部位に由来して光重合性モノマー及び/又はオリゴマーを形成する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

種々の結合を介した反応性の光応答性部位に由来して光重合性モノマー及び/又はオリゴマーを形成することを特徴とする光重合性且つ光開裂性(P & P)樹脂モノマー。

【請求項 2】

前記反応性の光応答性部位が、より好ましくは - ヒドロキシアルキルフェノン(H P)又は任意の他の官能性光応答性部位である請求項 1 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 3】

エステル、カーボネート、尿素、ウレタン、エーテル等の任意の結合を介して構成される請求項 1 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 4】

少なくとも 2 つの光重合性基を有する請求項 1 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 5】

前記光重合性基が、ビニル、ビニルエーテル、アクリレート、メタクリレート又はそれらの組合せである請求項 2 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 6】

液体及び/又は半結晶固体である請求項 1 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 7】

B i s G M A、T E G D M A、U D M A 等を含む任意の他の従来樹脂と共に使用される請求項 6 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 8】

他の樹脂との混合物中の前記光重合性且つ光開裂性(P & P)樹脂モノマーの量が、1重量% ~ 99重量%、好ましくは20重量% ~ 70重量%、より好ましくは30重量% ~ 50重量%の範囲である請求項 7 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 9】

第一級ジオール、ジアミン、二価酸、ジイソシアネート等の種々のカップリング剤が使用される請求項 3 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 10】

前記カップリング剤が、脂肪族若しくは芳香族、又はその両方である請求項 9 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 11】

前記異なるカップリング剤が使用されている請求項 10 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 12】

種々の量のカップリング剤が、得られる P & P 樹脂モノマーの粘度を制御するのに使用されている請求項 11 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【請求項 13】

不活性な重合性樹脂が、粘度を制御するために導入されている請求項 12 に記載の P & P 樹脂モノマー。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、極めて低い重合収縮及びさらに極めて低い収縮応力を含むバランスのとれた固有の全体性能を有することを特徴とする、光重合性且つ光開裂性の樹脂モノマー並びに樹脂複合組成物に関する。かかる新規樹脂のメインフレームに組み込まれる光反応性部位は、かかる樹脂の光開裂性に基づく、樹脂及び/又は硬化樹脂の網目構造を生成することができる。このため、網目構造形成プロセスを変えて結果的に収縮応力を有意に緩和させることから、(メタ)アクリレートベース樹脂系に関するフリーラジカル反応の重合速度は実質的に遅いものとなる。加えて、かかる P & P 樹脂を含有するラジカル重合性樹脂系は、硬化材料中の寸法安定性及び収縮応力が全体性能にとって重要である、マイクロエレクトロニクス、特別なコーティング及び修復歯科における広範な用途を提供するもので

10

20

30

40

50

あると期待されている。

【背景技術】

【0002】

高架橋ポリマーは、複合体、発泡構造体、構造用接着剤、電子パッケージ用の絶縁体等のマトリクスとして広範に研究されている。高密架橋構造は、高弾性率、高破壊強度及び耐溶剤性等の優れた機械特性に基づくものである。しかしながら、これらの材料は、クラックの形成及び伝播に起因する高い応力によって不可逆的に損傷を受ける。重合応力は、制限される鎖移動性と併せて重合収縮によって生じる。これは最終的に収縮応力集中をもたらす、また徐々にこのような閉じ込められた応力が放出して、界面領域のような或る特定の弱い帯域に損傷を微視的にもたらす。微視的にこれは、剥離、クラッキング等として反映されている。同様に、現行の接着修復物における収縮応力の発生は、樹脂複合体が硬化している間の収縮の制限にも起因し、またこれは修復物の構成に大いに影響を受ける。さらに、機能充填 (functional loading) 中の不均質変形は材料の界面並びに凝集に損傷を与えるおそれがある。種々のアプローチは、修復材料からの全体的な応力の発生を制限することによって、又は修復された界面の直接的な応力集中を最小限に抑えることによって研究されている。このようなアプローチには、例えば、新規の樹脂、新規の樹脂化学物質、新規のフィラー、新規の硬化プロセス、新規の結合剤及びさらに新規の手法が含まれる。

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0003】

低重合収縮及び低収縮応力をもたらす得る新規の樹脂マトリクスの開発には多大な関心が寄せられている。例えば、(メタ)アクリレートベース樹脂系の種々の構造及び幾何学形状の誘導体、例えば非(メタ)アクリレート樹脂系、非ラジカルベース樹脂系が挙げられる。加えて、光硬化性の低収縮歯科用複合体について、新規の樹脂系及び新規の光開始剤のみならず、ナノメートルからマイクロメートルまでの種々の粒径及びサイズ分布、異なる形状、粉碎されるか又は仕上がり球状である不規則形状を有するフィラー等の、新規のフィラー及びフィルターの表面改質が広範囲にわたって研究されている。またこれは、無機、有機、ハイブリッドであるような組成物で異なり得る。漸進的な改良は、各アプローチ及び/又はそれらの相互の寄与によって達成されているが、重合応力は依然として硬化網目構造系における最大の課題である。

30

【課題を解決するための手段】

【0004】

本発明は新規な種類の樹脂組成物に関する。しかしながら、従来の樹脂系とは異なり、本発明の新たな概念は、応力を一部放出させるために、ポストゲル段階における重合応力が、その後の選択的な網目構造の開裂にもたらされるかかる新たな樹脂組成物の設計に関与する。上述のように、低収縮及び低応力に向けたこれまでの技術は全て、一般的に収縮及び応力の形成を制限することに基づくものである。しかしながら、硬化網目構造系における収縮及び応力の発生は、2つの異なる段階、即ちプレゲル段階及びポストゲル段階を有するものである。実際に、現行の技術の大半の試みはプレゲル段階に着目するものであり、試みのいくつかは効果的であることが判明している。残念なことに、これらのアプローチは、収縮がプレゲル段階ほど起こらないが、任意の重合伸長に対して応力がさらに影響を受けようになるポストゲル段階における応力の発生を制御する点で効果的でない。硬化系において増大する架橋密度の不動性は、硬化系中の応力集中を増大させる。さらに悪いことに、ここで問題は終わらず、閉じ込められた応力が最終的に緩徐な弛緩によって緩和されることにより、修復系にさらなる損傷が生じるおそれがある。このため、本発明者らのアプローチは、ポストゲル段階において、任意の架橋系の「閉じた網」の幾つかを選択的に破壊されて応力緩和期間の延長を促し得る場合に、全応力集中が実質的に軽減されるといった概念に基づくものである。このような課題に応えるために、光重合性且つ光開裂性の樹脂を提案し、包括的な分子構造を設計する。かかる樹脂モノマーは、任意の他

40

50

の樹脂モノマーのように重合することができるが、そのメインフレームは、近UVが融合されているような付加的な光源を受けて破壊を誘起することができるかと予想された。これは典型的な光開裂性プロセスであるが、光重合され且つ架橋系中に包埋される性能はかかる樹脂モノマーを固有のものとする。加えて、光開裂性プロセスはまた、このような二次破壊による如何なる浸出可能な種も再生しないようにすることができる。

【0005】

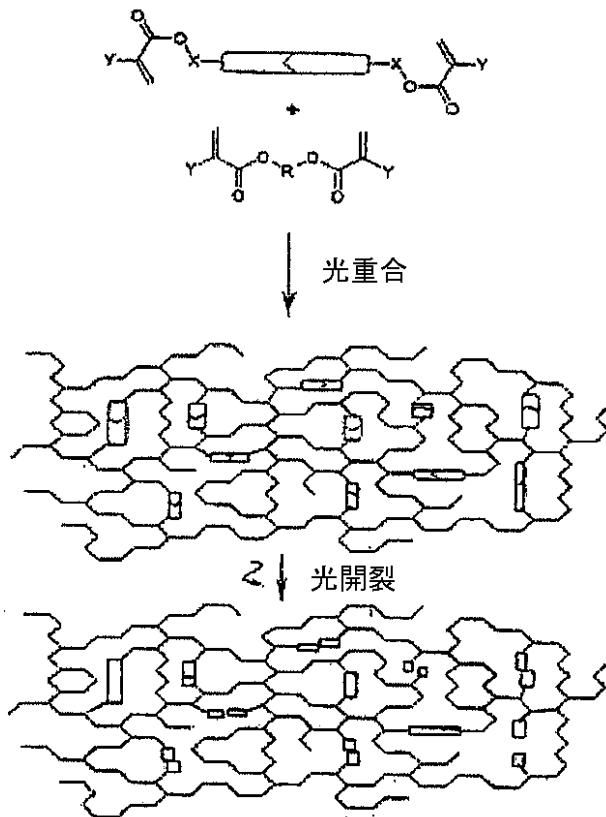
光開裂はペプチドの固相合成では新規のものでなく、これより、新たなペプチドを設計配列の或る特定の鑄型上に方向付けた後、その後の露光によってこれを鑄型から切断した。このようなプロセスを伴うときには化学物質によって汚染されない。他方で、光酸及び光塩基を光開裂の拡大応用とみなすことができる。酸成分又は塩基成分は、系中の他のものとのあらゆる望ましくない相互作用を避けるように一時的に潜伏し、露光等の要求により放出されて酸又は塩基の再生を誘起することができる。その後、これらの酸又は塩基は、次の工程の反応のための一般的な酸性触媒又は塩基性触媒として作用する。近年、MEMSにおける充填ポリマー、熱不安定性接着剤、熱スプレー（thermaspray）コーティング及び除去可能な封入等の容易に除去されるような用途のために、ポリマー又は高分子網目構造を脱重合性又は減成可能にするために、熱によって脱着可能であるか又は光化学的に可逆的な材料が開発されている。ごく最近では、薬剤送達の有効性を改善するために光開裂性 dendrimer（dentrimers）が研究されている。本発明者らの知識によれば、収縮応力の制御についての硬化網目構造中の光開裂性セグメントに関する先行技術は存在しない。しかしながら、この研究を正当化するために、それらの関連技術の全てを実用基準として使用することにした。

10

20

【0006】

【化1】



30

40

P & P樹脂及びそれから成る硬化網目構造のスキーム図

【発明を実施するための形態】

【0007】

50

理論的に言うと、熱開裂性又は光不安定性の結合等の環境に影響を受けやすい部位の何種類かが重合性樹脂モノマー中に組み込まれた場合、かかる樹脂又はその結果得られる高分子材料はコマンドに依存性 (command-responsible) になり、より詳細には、それらを熱開裂性又は光開裂性にすることができる。幾つかの従来の光開始剤の化学物質は、このような開始剤が重合性光開始剤又はマクロ開始剤 (macroinitiator) として研究されてきたことから、かかる光重合性且つ光開裂性の樹脂モノマーを設計する基剤として使用することができる。しかしながら、実際にはそれらのうちのいずれも、どうにかしてポリマー鎖又は網目構造を破壊可能にするようにポリマー鎖又は高分子網目構造中に組み込まれていなかった。

【0008】

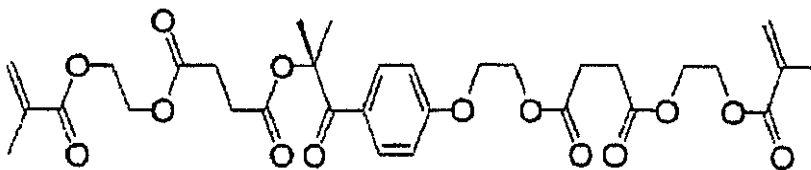
本研究の別の目的は、光開裂性又は熱不安定性の部位を光重合性樹脂モノマーの一部として組み込むことによって、低収縮及び低応力の次世代修復材料用の新規の樹脂系を開発することである。このような独特のアプローチを用いて、従来の重合網目構造が選択的に開裂され、これにより、重合後に応力が分散し、さらに自己応力の緩和がもたらされ、最終的には全応力集中が最小限に抑えられるようにすることができると予想した。

【0009】

光によるコマンドに応じた重合網目構造の開裂性、又は光開裂性をもたらすために、光応答性部位は、エネルギーレベルが顕著な特定の光に対するさらなる露光まで、可視光硬化等の標準露光プロセスに対して安定であるものとする。詳細には、かかるエネルギー源は、標準可視青色光以外の任意のものであり得る。近UV光は、多くの可能な選択肢の典型的な例の1つである。さらに、オルト-ニトロベンジルセグメント又は -ヒドロキシアルキルフェノンに由来の化合物が、可視光によって光重合され且つ必要に応じてさらなるUV光によって破壊可能になるよう誘起されるこの新規のクラスの樹脂モノマーの理想的な候補であると予想された。

【0010】

【化2】



スキーム I : -ヒドロキシアルキルフェノンに基づく典型的な重合性且つ光開裂性の樹脂モノマー

【0011】

このアプローチの実行可能性により、新規なクラスの樹脂に対する多用性についての迅速な研究が可能になる。したがって、多様なかかる重合性且つ光開裂性の樹脂モノマーを、スキーム I I に示すように広範な粘度を伴って首尾良く調製した。

【0012】

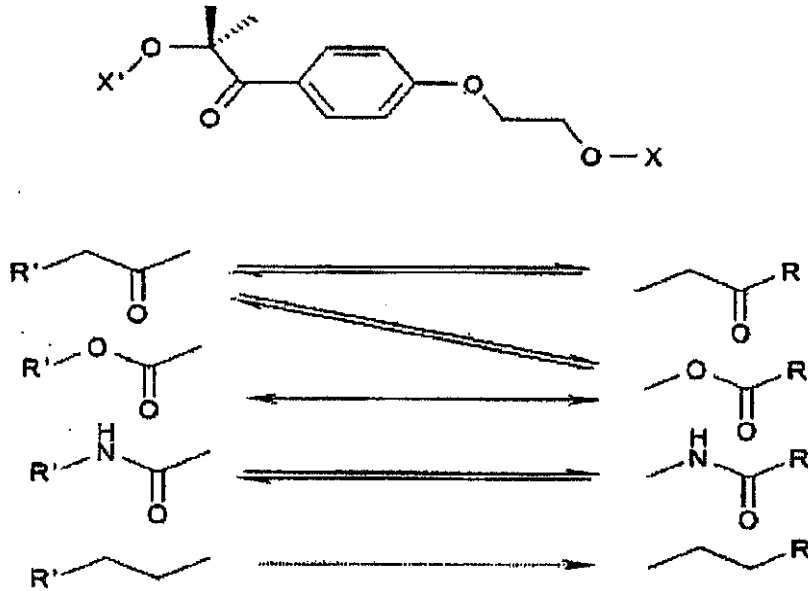
10

20

30

40

【化3】



10

スキームII：P & P樹脂モノマーへの一般的な反応経路

【0013】

20

さらに、得られる複合体にとってバランスのとれた全体性能を有するために、かかる新規の樹脂モノマーを、他の従来の樹脂モノマー（例えばBisGMA、TEGDMA、UDMA）、又は実験用樹脂モノマー（例えば大環状樹脂）と共に多様な比率で配合した。以下の実施例に示されるように、かかる新規なクラスのP & P樹脂モノマーに基づくそれらの複合体により、顕著な低収縮、低応力及び優れた機械特性、並びに良好なハンドリング特徴が示された。

【0014】

【表1】

表I：様々な活性化された樹脂混合物の重合収縮及び応力

30

	ヘリウム比重計による収縮 (%)	張力計による応力 (MPa)
Denfortex樹脂	10.2	4.1
TPH樹脂/999446	6.8	4.5
TPH樹脂/999447	7.3	4.3
Harpoon樹脂/xj5-12	5.5	3.1
Harpoon樹脂/xj5-26	5.8	3.2
LB5-158-1	5.2	1.4
LB5-158-2	5.7	2.0
LB5-167-2	6.5	1.9
LB5-167-3	6.2	1.5
LB5-167-4	6.9	1.5

40

【0015】

【表 2】

表 11 : 様々な複合体の重合収縮、応力及び微小歪み

	ヘリウム比重計による収縮 (%)	歪み計による微小歪み (uc)	張力計による応力 (MPa)
TPH/A2	3.10	1600	2.9
EsthetX/A2	2.92	1995	2.5
SureFil/A	2.09	1840	2.7
Supreme/A2B	2.65	1720	N/A
Supreme/YT	2.39	2005	N/A
Harpoon/A2	1.34	1000	1.7
Harpoon/A3.5	1.70	N/A	1.8
Harpoon/B1	1.31	N/A	1.5
Harpoon/B2	1.61	N/A	1.9
Harpoon/CE	1.70	N/A	1.9
LB5-156	0.87	N/A	1.5
LB5-153	0.93	N/A	1.4
LB5-160	0.36	N/A	1.4

10

20

【0016】

本発明によれば、物質の新規の組成物中に第2のエネルギー源に反応性であるいくらかの部分を含む、第1のエネルギー源を介して重合され得る物質の組成物が提供される。本発明はまた、第2のエネルギー源に反応性であり且つ第2のエネルギー源を活性化すると、脱重合及び/又は減成するいくらかの部分を含む物質の新規の組成物中に含有する、第1のエネルギー源を介して重合され得る物質の組成物を提供する。第2のエネルギー源に反応性であり且つ第2のエネルギー源を活性化すると、第1のエネルギー源によって重合される材料の構造特性に実質的に影響することなく脱重合及び/又は減成するいくらかの部分を含む物質の新規の組成物中に含有する、第1のエネルギー源を介して重合され得る物質の組成物が提供される。第2のエネルギー源に反応性であり、且つ第2のエネルギー源を活性化すると、第1のエネルギー源によって重合される材料の構造特性に実質的に影響することなく脱重合及び/又は減成して、第1のエネルギー源を介して生成される物質の組成物の重合中に生じる応力を増大させるいくらかの部分を含む物質の新規の組成物中に含有する、第1のエネルギー源を介して重合され得る物質のさらなる組成物が提供される。本発明の別の態様によれば、第2のエネルギー源（熱、光化学、化学、超音波、マイクロ波等）に反応性であるいくらかの部分を含む物質の新規の組成物中に含有する、第1のエネルギー源（熱、光化学、化学、超音波、マイクロ波等）を介して重合され得る、モノマー、プレポリマー及び/又はポリマーを含む物質の組成物が提供される。

30

【0017】

これにより、これまで既知の技術の或る特定の制限が克服された。架橋を有する高分子網目構造が強度特性のために望まれるが、より高度な収縮及び応力がもたらされる。本発明によって架橋が形成されるが、同時に、生じた応力を緩和させる機構（エネルギー適用の第2の形態）がもたらされると共に、作製される高分子網目構造の構造的完全性が維持される。高分子網目構造が確立され、より剛性な状態に起因して架橋硬化されて応力が生じる「ポストゲル」段階前に、重合中の応力の緩和が望まれ、重合の「プレゲル」段階中に応力を緩和させるよう努めることによって典型的に取り組みされる。本発明は実質的に、この「ポストゲル」段階中に応力を排除する。可逆的であり、即ち、仮に重合しても、後重合エネルギーの何らかの形態を適用して、材料を不安定にさせる状態にまで高分子網目構造を完全に分解又は減成させる材料用のこれまでに既知の系が存在する。本発明において、高分子網目構造の一部を減成又は分解すること、及び高分子網目構造の完全性を維持

40

50

することが一部分でのみ制御可能に提供される。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

		International application No PCT/US2007/013702
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. A61K6/00 C08F8/50 C08F2/48		
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) C08F		
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 practical, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2005/182148 A1 (GAUD VINCENT [FR] ET AL) 18 August 2005 (2005-08-18) paragraph [0331] - paragraph [0352]; claims 39,40; examples -----	1-13
X	JP 53 099292 A (SUMITOMO CHEMICAL CO) 30 August 1978 (1978-08-30) abstract -----	1-13
A	EP 0 373 662 A (SEIKISUI CHEMICAL CO LTD [JP]) 20 June 1990 (1990-06-20) claims ----- -/--	1-13
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 10 December 2007		Date of mailing of the International search report 19/12/2007
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5616 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Kaumann, Edgar

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/US2007/013702

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	BOGDAL D ET AL: "Application of diol dimethacrylates in dental composites and their influence on polymerisation shrinkage" JOURNAL OF APPLIED POLYMER SCIENCE, JOHN WILEY AND SONS INC. NEW YORK, US, vol. 66, 1997, pages 2333-2337, XP002346645 ISSN: 0021-8995 abstract	1-13
A	WO 2006/044795 A (TUFTS COLLEGE [US]; D ALARCAO MARC [US]; CALIAS PERICLES [US]) 27 April 2006 (2006-04-27) claims	1-13
A	EP 0 282 827 A (BAYER AG [DE]) 21 September 1988 (1988-09-21) claims	1-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US2007/013702**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

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

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: 1-13
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:
see FURTHER INFORMATION sheet PCT/ISA/210

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

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.

2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.

3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. 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 claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No. PCT/US2007/013702

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

Continuation of Box II.2

Claims Nos.: 1-13

Claim 1 is the only independent claim and reads " A photopolymerizable and photocleavable resin monomer is derived from a reactive photoresponsible moiety via various linkages to form photopolymerizable monomers and/or oligomers".

From the claim it is not clear what should be the subject-matter that is claimed.

Formally, any photopolymerizable and photocleavable monomer is claimed. The expression " is derived from" appears to be the "product-by-process" form of a product claim. However, a process is not described in the claim.

From the description, specially pages 8 and 9, it appears that a composition is provided which can be polymerized by a first energy source and then partly depolymerized via a second energy source.

The applicant's attention is drawn to the fact that claims relating to inventions in respect of which no international search report has been established need not be the subject of an international preliminary examination (Rule 66.1(e) PCT). The applicant is advised that the EPO policy when acting as an International Preliminary Examining Authority is normally not to carry out a preliminary examination on matter which has not been searched. This is the case irrespective of whether or not the claims are amended following receipt of the search report or during any Chapter II procedure. If the application proceeds into the regional phase before the EPO, the applicant is reminded that a search may be carried out during examination before the EPO (see EPO Guideline C-VI, 8.2), should the problems which led to the Article 17(2)PCT declaration be overcome.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2007/013702

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2005182148 A1	18-08-2005	AU 2003240983 A1	13-10-2003
		CN 1649559 A	03-08-2005
		EP 1490014 A2	29-12-2004
		FR 2838048 A1	10-10-2003
		WO 03082218 A2	09-10-2003
		JP 2005533754 T	10-11-2005
JP 53099292 A	30-08-1978	JP 1352929 C	11-12-1986
		JP 61018561 B	13-05-1986
EP 0373662 A	20-06-1990	DE 68907397 D1	05-08-1993
		DE 68907397 T2	09-12-1993
		JP 2160802 A	20-06-1990
		JP 2604453 B2	30-04-1997
WO 2006044795 A	27-04-2006	AU 2005295472 A1	27-04-2006
		CA 2583746 A1	27-04-2006
		EP 1812480 A2	01-08-2007
EP 0282827 A	21-09-1988	DE 3730065 A1	22-09-1988

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, 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, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100091889

弁理士 藤野 育男

(74)代理人 100101498

弁理士 越智 隆夫

(74)代理人 100102808

弁理士 高梨 憲通

(74)代理人 100128646

弁理士 小林 恒夫

(74)代理人 100128668

弁理士 齋藤 正巳

(74)代理人 100134393

弁理士 木村 克彦

(72)発明者 シャオミン, ジン

アメリカ合衆国 1 9 7 0 9 デラウェア, ミドルタウン, ウイロー グローヴ ミル ドライヴ
6 2

(72)発明者 ハンメスファー, ポール ディー.

アメリカ合衆国 1 9 9 3 4 デラウェア, ワイオミング, クエイル ラン 6 0 5

Fターム(参考) 4H006 AA01 AB46 BJ50 BP30 KC14

4J011 AC04 QA12 QA15 UA01 WA02 WA06 WA08 WA09

4J100 AL62Q AL66P BA15P BC43P CA04 HA51 JA03 JA52 JA53