

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5676271号
(P5676271)

(45) 発行日 平成27年2月25日 (2015. 2. 25)

(24) 登録日 平成27年1月9日 (2015. 1. 9)

(51) Int. Cl.

F I

C O 8 F	299/02	(2006. 01)	C O 8 F	299/02
C O 8 K	5/00	(2006. 01)	C O 8 K	5/00
C O 8 L	71/02	(2006. 01)	C O 8 L	71/02
C O 8 J	5/00	(2006. 01)	C O 8 J	5/00
A 6 1 K	47/32	(2006. 01)	A 6 1 K	47/32

請求項の数 1 (全 34 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2010-538071 (P2010-538071)
(86) (22) 出願日	平成20年12月8日 (2008. 12. 8)
(65) 公表番号	特表2011-507992 (P2011-507992A)
(43) 公表日	平成23年3月10日 (2011. 3. 10)
(86) 国際出願番号	PCT/US2008/085809
(87) 国際公開番号	W02009/076267
(87) 国際公開日	平成21年6月18日 (2009. 6. 18)
審査請求日	平成23年12月1日 (2011. 12. 1)
(31) 優先権主張番号	61/013, 085
(32) 優先日	平成19年12月12日 (2007. 12. 12)
(33) 優先権主張国	米国 (US)
(31) 優先権主張番号	61/013, 300
(32) 優先日	平成19年12月12日 (2007. 12. 12)
(33) 優先権主張国	米国 (US)

(73) 特許権者	505005049
	スリーエム イノベイティブ プロパティ ズ カンパニー
	アメリカ合衆国, ミネソタ州 55133 -3427, セント ポール, ポスト オ フィス ボックス 33427, スリーエ ム センター
(74) 代理人	100099759
	弁理士 青木 篤
(74) 代理人	100077517
	弁理士 石田 敬
(74) 代理人	100087413
	弁理士 古賀 哲次
(74) 代理人	100111903
	弁理士 永坂 友康

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 成形された高分子材料の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

成形された高分子材料を製造する方法において、
前駆体組成物を提供することであって、

(a) 前記前駆体組成物の総重量に基づく少なくとも10重量パーセントの極性溶媒と

、
(b) 前記前駆体組成物の総重量に基づく90重量パーセント以下の重合可能な物質であって、前記重合可能な物質はフリーラジカル重合することができ、少なくとも1.2に等価なモノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基を有し、前記重合可能な物質は前記極性溶媒と単層を形成し、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基と少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含み、前記ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)は2,000g/mol未満の重量平均分子量を有する、前記重合可能な物質と、を含む、前駆体組成物を提供することと、

少なくとも2つの別個のウェルを有する成型型を提供することと、

前記前駆体組成物を前記成型型に添加して、前記前駆体組成物を少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置することと、

前記ウェル内の前記前駆体組成物を放射線に曝露して、前記重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させて第1の膨潤した成形された高分子材料を形成し、前記第1の膨潤した成形された高分子材料が球以外の形状を有することと、を含む、

前記成形型が、前記成形型の面内、前記成形型の面の外、及び前記成形型の面に沿った各寸法の、3つの可能な寸法のうちの少なくとも2つの寸法が200マイクロメートル以下であるような特徴の形状を含むミクロ構造化表面を有する、方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、成形された高分子材料の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

画定された形状を有する高分子材料についての数多くの応用を、生物学的な用途、医学的な用途及び工業的な用途で利用することができる。固有の物理特性、化学特性及び多用途性を備える、画定された形状を有する高分子材料に対して持続的な必要が存在する。画定された形状を有する高分子材料を製造するために数多くの方法が既知である。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

画定された形状を備える高分子材料を形成することを目的とする成形型が既知である。顕微鏡レベルで画定された形状を有する高分子材料を形成することに対する必要性が、多くの出願において必要とされている。

【課題を解決するための手段】

【0004】

本開示は成形された高分子材料を製造するための方法を記載する。より詳細には、方法は、極性溶媒と、極性溶媒に混和性である重合可能な物質とを含有している前駆体組成物から成形された高分子材料を製造するために提供される。前駆体組成物は成形型中で少なくとも部分的に重合させられる。

【0005】

第1の態様では、成形された高分子材料を製造するための方法が提供される。この方法は、前駆体組成物の総重量に基づいて少なくとも10重量パーセントの極性溶媒と、前駆体組成物の総重量に基づいて90重量パーセント以下の重合可能な物質と、を含む、前駆体組成物を提供することを含む。極性溶媒は水を含む。重合可能な物質は極性溶媒と単相を形成し、かつフリーラジカル重合することができる。重合可能な物質は、モノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基が、少なくとも1.2である。重合可能な物質は、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基と少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含む。この方法は更に、少なくとも2つの別個のウェルを有する成形型を提供することを含む。前駆体組成物は成形型へと加えられ、少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置される。前駆体組成物は、ウェル内で、重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させて第1の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、放射線に曝露される。

【0006】

第2の態様では、成形された高分子材料を製造するための方法が提供される。この方法は、前駆体組成物の総重量に基づいて少なくとも10重量パーセントの極性溶媒と、前駆体組成物の総重量に基づいて90重量パーセント以下の重合可能な物質と、を含む、前駆体組成物を提供することを含む。重合可能な物質は極性溶媒と単相を形成し、かつフリーラジカル重合することができる。重合可能な物質は、モノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基が、少なくとも1.2である。重合可能な物質は、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基と少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含む。ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)の平均分子量は2,000g/mol未満である。方法は更に、少なくとも2つの別個のウェルを有する成形型を提供することを含む。前駆体組成物は成形型へと加えられ、少

10

20

30

40

50

なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置される。前駆体組成物は、ウェル内で、重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させて第1の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、放射線に曝露される。

【図面の簡単な説明】

【0007】

【図1】実施例1の少なくとも2つのウェルを有する成形型の光学顕微鏡写真。

【図2】実施例1の成形された高分子材料の光学顕微鏡写真。

【図3】実施例8の金属工具の光学顕微鏡写真。

【図4】実施例8のフィルムの横断面の光学顕微鏡写真。

【発明を実施するための形態】

10

【0008】

本開示は具体的な実施形態に関して本明細書に記載されるが、本発明の趣旨から逸脱することなく様々な変更、再構成及び代替を行うことができることが当業者には容易に明らかになるであろう。したがって、本発明の範囲は本明細書に付け加えられる特許請求の範囲によってのみ制限される。

【0009】

端点による数の範囲の列举には、その範囲内に包括されるすべての数が含まれる（例えば、1～5は、1、1.5、2、2.75、3、3.8、4、及び5を含む）。

【0010】

本明細書及び添付の特許請求の範囲に含まれるとき、単数形「a」、「an」、及び「the」は、その内容について別段の明確な指示がない限り、複数の指示対象を包含する。したがって、例えば「化合物」を含有する組成物への言及は、2種以上の化合物の混合物を包含する。本明細書及び添付の特許請求の範囲において使用されるとき、用語「又は」は、その内容について別段の明確な指示がない限り、一般的に「及び／又は」を包含する意味で用いられる。

20

【0011】

特に指示がない限り、明細書及び特許請求の範囲に使用されている量又は成分量、性質の測定値などを表すすべての数は、すべての例において、用語「約」により修飾されていることを理解されたい。したがって、別途指示がない限り、先行の本明細書及び添付の特許請求の範囲に記載の数値的パラメータは、本開示の教示を利用して当業者により得ることが求められる所望の性質に応じて変化し得る近似値である。最低でも、各数値的パラメータは、報告された有効数字の数を考慮して、通常の丸め技法の適用によって少なくとも解釈されるべきである。本開示の広範囲に示す数値的範囲及びパラメータは、近似値であるが、具体例に記載の数値は可能な限り正確に報告する。しかし、いずれの数値もそれらの試験測定値それぞれにおいて見られる標準偏差から必然的に生じる誤差を本来含有する。

30

【0012】

成形された高分子材料を製造するために有用な前駆体組成物は、極性溶媒と、極性溶媒に混和性である重合可能な物質とを含む。重合可能な物質は、放射線に曝露した際に少なくとも部分的に重合され得る、エチレン性不飽和基を有する。前駆体組成物は少なくとも2つの別個のウェルを有する成形型に加えられ、次いで重合可能な物質を少なくとも部分的に重合するために放射線に曝露され、膨潤した成形された高分子材料を形成する。膨潤した成形された高分子材料は成形型のウェルに類似の形状及び寸法を有する。

40

【0013】

ヒドロゲルは一般に親水性ポリマー鎖の網状構造として参照され、非水溶性であり、水が分散媒質である場合にはコロイド状ゲルとして見出されることがある。ヒドロゲルは超吸収性の天然又は合成ポリマーであり、膨潤することができ、すなわち極性溶媒（例えば、水）で膨潤することができる。一部のヒドロゲルは水以外の極性溶媒で膨潤することができる。本開示の成形された高分子材料は、ヒドロゲルとして言及される。成形された高分子材料は、水又は水以外の極性溶媒で膨潤して、膨潤した成形された高分子材料を形成

50

することができる。膨潤した成形された高分子材料は、乾燥させて極性溶媒の少なくとも一部を除去することで、乾燥した成形された高分子材料を形成することができる。膨潤した成形された高分子材料及び乾燥した成形された高分子材料は、概して架橋されたポリマー鎖を含有している。

【0014】

前駆体組成物を、成形された高分子材料を製造するために成形型に加えることができる。前駆体組成物を、放射線の適用により少なくとも部分的に重合させることができる。少なくとも部分的に重合させた組成物は、膨潤した成形された高分子材料（例えば、架橋されたヒドロゲル）を形成することができる。いくつかの実施例においては、前駆体組成物は、完全に重合して、膨潤した成形された高分子材料を形成することができる。

10

【0015】

成形された高分子材料を製造するための前駆体組成物は、極性溶媒と重合可能な物質を含む。前駆体組成物は、前駆体組成物の総重量に基づいて少なくとも10重量パーセントの極性溶媒と、前駆体組成物の総重量に基づいて90重量パーセント以下の重合可能な物質とを含む重合可能な物質は、放射線に曝露された際にフリーラジカル重合することができる。重合可能な物質のエチレン性不飽和基は、モノマー分子当たり平均数少なくとも1.2であり、重合可能な物質は極性溶媒と単相を形成する。重合可能な物質は、少なくとも2つの（メタ）アクリロイル基と少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ（アルキレンオキシド（メタ）アクリレート）を含む。いくつかの実施形態では、極性溶媒は水を含む。他の実施形態では、極性溶媒が水を含まない場合もある。

20

【0016】

1つの態様において、前駆体組成物は水を含んでいる極性溶媒と重合可能な物質とを含有する。

【0017】

第2の態様において、前駆体組成物は極性溶媒と、少なくとも2つの（メタ）アクリロイル基及び少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有する平均分子量が2,000g/molであるポリ（アルキレンオキシド（メタ）アクリレート）を含有する重合可能な物質と、を含む。極性溶媒が必ずしも水を含むとは限らない。

【0018】

前駆体組成物の極性溶媒には、水、水混和性有機溶媒、又はこれらの混合物を含むことができる。極性溶媒は概して前駆体組成物中で不活性であり、そのような極性溶媒は、典型的には得られる成形された高分子材料を膨潤させる。場合によっては、極性溶媒は連鎖移動反応に関与し得る。重合可能な物質は極性溶媒の存在下で少なくとも部分的に重合し、極性溶媒で膨潤した成形された高分子材料をもたらす。膨潤した成形された高分子材料は、概して前駆体組成物の極性溶媒を少なくともある程度含有する。

30

【0019】

極性溶媒は、水道水、井戸水、脱イオン水、湧き水、蒸留水、滅菌水、海水、無機水性緩衝液、有機水性緩衝液、又は任意の他の適した種類の水であってもよい。水混和性有機溶媒とは、典型的には、23で水と混合した場合に水素結合することができ、かつ単相の溶液を形成する有機溶媒を指す。水混和性溶媒は多くの場合、ヒドロキシル基又はオキシ基を含有する。水混和性溶媒としては、多くの場合、重量平均分子量が約300g/mol以下のアルコール又はポリオール、重量平均分子量が300g/mol以下のエーテル又はポリエーテルが挙げられる。水混和性溶媒のいくつかの例としては、メタノール、エタノール、イソプロパノール、n-プロパノール、エチレングリコール、トリエチレングリコール、グリセロール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ポリプロピレングリコール、エチレンオキシドとプロピレンオキシドとのランダムコポリマー及びブロックコポリマー、ジメトキシテトラグリコール、ブトキシトリグリコール、トリメチレングリコールトリメチルエーテル、エチレングリコールジメチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレンカーボネート、ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン、尿素、及

40

50

びそれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。極性溶媒は液体であってもよく、又は23以上で溶解させた固体であってもよい。

【0020】

前駆体組成物中に存在する極性溶媒は、前駆体組成物の総重量に基づいて少なくとも10重量%である。いくつかの前駆体組成物においては、前駆体組成物中に存在する極性溶媒は、前駆体組成物の総重量に基づいて少なくとも15重量%、少なくとも20重量%、少なくとも25重量%、少なくとも40重量%、又は少なくとも50重量%であることができる。前駆体組成物中に存在する極性溶媒は、前駆体組成物の総重量に基づいて90重量%まで、85重量%まで、80重量%まで、65重量%まで、60重量%までの量であることができる。前駆体組成物中に存在する極性溶媒は、前駆体組成物の総重量に基づいて10~90重量%、10~85重量%、15~80重量%、又は20~65重量%の範囲であることができる。

10

【0021】

極性溶媒に加えて、前駆体組成物は極性溶媒に混和性である重合可能な物質を含む。重合可能な物質とは、概してモノマー又はモノマーの混合物を指す。用語「モノマー」と「モノマー分子」とは互換的に用いて、フリーラジカル重合が可能な少なくとも1個の重合性基を含有する化合物を指す。重合性基は通常、エチレン性不飽和基である。

【0022】

重合可能な物質には単一の化学構造のモノマーが含まれ、又は複数の異なるモノマー（すなわち、異なる化学構造を有するモノマーの混合物がある）を含むこともできる。重合可能な物質に含まれるのが1種のモノマーであろうとモノマーの混合物であろうと、重合可能な物質のモノマー分子当たり平均数の重合性基（例えば、エチレン性不飽和基）は、少なくとも1.2である。重合可能な物質には、例えば、2つ以上の重合性基を有する単1種のモノマーを包含することができる。あるいは、重合可能な物質に、複数の異なる種類のモノマーを、モノマー分子当たり平均数の重合性基が少なくとも1.2であるように含めることができる。いくつかの実施形態においては、モノマー分子当たり平均数の重合性基は、以下の値である。すなわち、少なくとも1.3、少なくとも1.4、少なくとも1.5、少なくとも1.6、少なくとも1.7、少なくとも1.8、少なくとも1.9、少なくとも2.0、少なくとも2.1、少なくとも2.2、少なくとも2.3、少なくとも2.4、少なくとも2.5、少なくとも2.6、少なくとも2.7、少なくとも2.8、少なくとも2.9、又は少なくとも3.0である。

20

30

【0023】

分子当たり平均数の重合性基は、各モノマー分子の相対モル濃度とその官能性（重合性基の数）とを計算することで決定される。例えば、 n 個の重合性基を有する X モル・パーセントの第1のモノマーと m 個の重合性基を有する $(100 - X)$ モル・パーセントの第2のモノマーとを含有する重合可能な物質の、モノマー1分子当たり平均数の重合性基は、 $[n(X) + m(100 - X)] / 100$ である。別の例では、 n 個の重合性基を有する X モル・パーセントの第1のモノマーと、 m 個の重合性基を有する Y モル・パーセントの第2のモノマーと、 q 個の重合性基を有する $(100 - X - Y)$ モル・パーセントの第3のモノマーとを含有する重合可能な物質の1分子当たり平均数の重合性基は、 $[n(X) + m(Y) + q(100 - X - Y)] / 100$ である。

40

【0024】

前駆体組成物の重合可能な物質は、フリーラジカル重合することができるエチレン性不飽和基を備えたモノマーを含む。重合可能な物質は、23において極性溶媒と单相を形成し、かつ極性溶媒から相分離しない。重合可能な物質は極性溶媒と混和性であると考えられ、そのような重合可能な物質は大部分が極性溶媒に可溶性であり、すなわち極性溶媒に相溶性である。状況により、極性溶媒中に少量の溶解していない重合可能な物質が存在する場合がある。例えば、重合可能な物質が、極性溶媒に溶解しない不純物を有する場合がある。一般的に、重合可能な物質の少なくとも95重量%、少なくとも97重量%、少なくとも98重量%、少なくとも99重量%、少なくとも99.5重量%、少なくとも9

50

9.8重量%、又は少なくとも99.9重量%が極性溶媒に溶解する。前駆体組成物の硬化フィルムは、250マイクロメートルの厚さを有する硬化フィルムにおいて可視分光法によって測定されるように、本質的に透明である。前駆体組成物からの硬化フィルムは、500nmの波長で少なくとも85パーセント以上の光透過率を有する。

【0025】

重合可能な物質には、2個以上の重合性基を有する少なくとも1つのモノマーが包含される。同様に、モノマー分子当たり平均数の重合性基が少なくとも1.2である混合物を含有するという条件で、3つ以上の重合性基を有する第1のモノマーを、1つの重合性基を有する第2のモノマー、2つの重合性基を有する第2のモノマー、又はそれらの混合物と混合することができる。多くの場合、名目上の3つ以上の重合性基を有するモノマーには、2つの重合性基、1つの重合性基、又はこれらの混合物を有するモノマー不純物が含有される。

10

【0026】

重合可能な物質には、多くの場合、1つ以上の(メタ)アクリレートが包含される。本明細書で使用する時、用語「(メタ)アクリレート」とは、メタアクリレート、アクリレート、又はそれらの混合物を指す。(メタ)アクリレートには、(メタ)アクリロイル基が含有される。用語「(メタ)アクリロイル」は、式 $H_2C=CR^b-(CO)-$ で表される1価の基を指し、式中、 R^b は水素又はメチルであり、及び(CO)は炭素が酸素と二重結合によって結合していることを意味する。(メタ)アクリロイル基は、フリーラジカル重合が可能な(メタ)アクリレートの重合性基(すなわち、エチレン性不飽和基)である。すべての重合可能な物質を(メタ)アクリレートとすることもできるし、重合可能な物質に1つ以上の(メタ)アクリレートを、エチレン性不飽和基を有する他のモノマーと組み合わせて含めることもできる。

20

【0027】

前駆体組成物の重合可能な物質にはポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)が挙げられる。用語ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)と、ポリ(アルキレングリコール(メタ)アクリレート)と、アルコキシル化(メタ)アクリレートと、アルコキシル化ポリ(メタ)アクリレートとは、2つ以上のアルキレンオキシド残留単位(アルキレンオキシド単位とも称される)を含有する少なくとも1個の基を有する(メタ)アクリレートを指すために、互換的に用いることができる。多くの場合、少なくとも5個のアルキレンオキシド残留単位が存在する。アルキレンオキシド単位は、式 $-OR-$ の2価の基であり、

30

式中、Rは、最大で10個の炭素原子、最大で8個の炭素原子、最大で6個の炭素原子、又は最大で4個の炭素原子を有するアルキレンである。アルキレンオキシド単位は、多くの場合、エチレンオキシド単位、プロピレンオキシド単位、ブチレンオキシド単位、又はそれらの混合物から選択される。

【0028】

一部の実施形態では、重合可能な物質としては、モノマー1分子当たり少なくとも2個の(メタ)アクリロイル基を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)が挙げられる。モノマー分子当たり平均で少なくとも1.2であるエチレン性不飽和基を得るために、ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を単独で又は他のモノマーと組み合わせて用いることができる。アルコキシル化部分(すなわち、ポリ(アルキレンオキシド)部分)は、多くの場合、エチレンオキシド単位、プロピレンオキシド単位、ブチレンオキシド単位、又はそれらの組み合わせから選択される少なくとも5個のアルキレンオキシド単位を有している。すなわち、ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)1モル毎には、少なくとも5モルのアルキレンオキシド単位が含有される。これら複数のアルキレンオキシド単位によって、極性溶媒中でのポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)の溶解が促進される。一部の代表的なポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)は、少なくとも6個のアルキレンオキシド単位、少なくとも8個のアルキレンオキシド単位、少なくとも10個のアルキレンオキシド単位、少なくとも12個の

40

50

アルキレンオキシド単位、少なくとも15個のアルキレンオキシド単位、少なくとも20個のアルキレンオキシド単位、又は少なくとも30個のアルキレンオキシド単位を含有する。ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)は、ホモポリマー鎖、ブロックコポリマー鎖、ランダムコポリマー鎖、又はそれらの混合物である、ポリ(アルキレンオキシド)鎖を含有することもできる。一部の実施形態では、ポリ(アルキレンオキシド)鎖はポリ(エチレンオキシド)鎖である。

【0029】

前駆体組成物から成形された高分子材料を形成することが可能である限り、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基を有する任意の分子量のポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を用いることが可能である。ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)の重量平均分子量は、多くの場合2,000g/モル未満、1,800g/モル未満、1,600g/モル未満、1,400g/モル未満、1,200g/モル未満、又は1,000g/モル未満である。

【0030】

複数の(メタ)アクリロイル基を有するいくつかの代表的なポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)の調製が、米国特許第7,005,143号(Abueleyamánら)、並びに米国特許出願公開第2005/0215752 A1号(Poppら)、同第2006/0212011 A1号(Poppら)及び同第2006/0235141 A1号(Riegeleら)に記載されている。モノマー分子当たりの平均の(メタ)アクリロイル官能基が少なくとも2であるとともに、少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有する好適なポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)は、例えば、Sartomer(Exxon, PA)から、商品名「SR9035」(エトキシ化(15)トリメチロールプロパントリアクリレート)、「SR499」(エトキシ化(6)トリメチロールプロパントリアクリレート)、「SR502」(エトキシ化(9)トリメチロールプロパントリアクリレート)、「SR415」(エトキシ化(20)トリメチロールプロパントリアクリレート)及び「CD9038」(エトキシ化(30)ビス-フェノールAジアクリレート)で市販されている。括弧内の数は、モノマー1分子当たり平均数のアルキレンオキシド単位を指す。他の好適なポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)としては、ポリアルコキシル化トリメチロールプロパントリアクリレート、例えば、BASF(Ludwigshafen, Germany)から取引表記「LAROMER」として市販されている、少なくとも30個のアルキレンオキシド単位を有するものが挙げられる。

【0031】

いくつかの実施形態では、前駆体組成物には、モノマー分子当たり少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基を有し、少なくとも5つのエチレンオキシド単位を有し及び重量平均分子量が2,000g/モル未満であるポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)が含有される。この重合可能な物質は、前駆体組成物中の唯一の重合可能な物質であってもよく、又は極性溶媒と単層を形成する他のモノマーと組み合わせてもよい。ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)が、前駆体組成物中における唯一のモノマーであろうと、他のモノマーと組み合わせられようと、重合可能な物質のモノマー分子当たりの平均官能基数は少なくとも1.2である。

【0032】

より具体的な前駆体組成物には、モノマー1分子当たり少なくとも2個の(メタ)アクリロイル基を有し、少なくとも5個のアルキレンオキシド単位を有し、及び重量平均分子量が2000g/モル未満である、ポリ(エチレンオキシド)(メタ)アクリレートが含有される。更により具体的な代表的な前駆体組成物には、重量平均分子量が2000g/モル未満であるエトキシ化トリメチロールプロパントリアクリレートを含むこともできる。多くの場合、エトキシ化トリメチロールプロパントリアクリレートには、1個の(メタ)アクリロイル基を有する不純物、2個の(メタ)アクリロイル基を有する不純物、又は

それらの混合物が含有される。例えば、市販されている「SR415」（エトキシ化（20）トリメチロールプロパントリアクリレート）は、多くの場合、モノマー1分子当たりの平均官能価が3未満である（分析したところ、モノマー1分子当たりの平均官能価は約2.5であった）。不純物が存在する場合であっても、前駆体組成物中におけるモノマー分子当たりの平均官能基数は少なくとも1.2である。

【0033】

モノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基（例えば、（メタ）アクリロイル基）が少なくとも1.2である限りは、重合可能な物質には、単一の（メタ）アクリレート（すなわち、ポリ（アルキレンオキシド（メタ）アクリレート））又は（メタ）アクリレートの混合物を含めることができる。モノマー分子当たり平均数の（メタ）アクリロイル基が少なくとも1.2であるためには、重合可能な物質中に存在する（メタ）アクリレートの少なくとも一部が、モノマー分子当たり2つ以上の（メタ）アクリロイル基を有する。例えば、重合可能な物質は、モノマー1分子当たり2個の（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリレートを含有することができるか、又はモノマー1分子当たり2個の（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリレートと、モノマー1分子当たり1個の（メタ）アクリロイル基を有する1つ以上の（メタ）アクリレートとを組み合わせた混合物を含有することができる。別の例では、重合可能な物質はモノマー1分子当たり2つ以上の（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリレート及びモノマー1分子当たり3つの（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリレート、を含有することができ、又は重合可能な物質は、モノマー1分子当たり2つ以上の（メタ）アクリロイル基、モノマー1分子当たり3つの（メタ）アクリロイル基を有する（メタ）アクリレートの混合物を、モノマー1分子当たり1つの（メタ）アクリロイル基、モノマー1分子当たり2つの（メタ）アクリロイル基を有する、1つ以上の（メタ）アクリレート又はこれらの混合物との組み合わせで含有することができる。

【0034】

モノマー分子当たり1つのエチレン性不飽和基を有する好適な重合可能な物質の具体例には、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロニトリル、（メタ）アクリルアミド、カプロラクトン（メタ）アクリレート、ポリ（アルキレンオキシド（メタ）アクリレート）（例えば、ポリ（エチレンオキシド（メタ）アクリレート）、ポリ（プロピレンオキシド（メタ）アクリレート）、及びポリ（エチレンオキシド-co-プロピレンオキシド（メタ）アクリレート））、アルコキシポリ（アルキレンオキシド（メタ）アクリレート）、（メタ）アクリル酸、 α -カルボキシエチル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム、N-アルキル（メタ）アクリルアミド（例えば、N-メチル（メタ）アクリルアミド）、及びN,N-ジアルキル（メタ）アクリルアミド（例えば、N,N-ジメチル（メタ）アクリルアミド）が挙げられるが、これらに限定されない。

【0035】

モノマー1分子当たり2個のエチレン性不飽和基を有する好適な重合可能な物質としては、例えば、アルコキシ化ジ（メタ）アクリレートが挙げられる。アルコキシ化ジ（メタ）アクリレートの例としては、ポリ（アルキレンオキシドジ（メタ）アクリレート）、例えば、ポリ（エチレンオキシドジ（メタ）アクリレート）及びポリ（プロピレンオキシドジ（メタ）アクリレート）、アルコキシ化ジオールジ（メタ）アクリレート、例えば、エトキシ化ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、プロポキシ化ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、及びエトキシ化ヘキサジオールジ（メタ）アクリレート、アルコキシ化トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、例えば、エトキシ化トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート及びプロポキシ化トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、及びアルコキシ化ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート、例えば、エトキシ化ペンタエリスリトールジ（メタ）アクリレート及びブ

ロポキシ化ペンタエリスリトールジ(メタ)アクリレートが挙げられるが、これらに限定されない。

【0036】

モノマー1分子当たり3個のエチレン性不飽和基を有する好適な重合可能な物質の例としては、例えば、アルコキシ化トリ(メタ)アクリレートが挙げられる。アルコキシ化トリ(メタ)アクリレートの例としては、アルコキシ化トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、例えば、エトキシ化トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、プロポキシ化トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、及びエチレンオキシド/プロピレンオキシド共重合体トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレートと、アルコキシ化ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、例えば、エトキシ化ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレートとが挙げられるが、これらに限定されない。

【0037】

モノマー1個当たり少なくとも4個のエチレン性不飽和基を有する好適な重合可能な物質としては、例えば、アルコキシ化テトラ(メタ)アクリレート及びアルコキシ化ペンタ(メタ)アクリレートが挙げられる。アルコキシ化テトラ(メタ)アクリレートの例としては、アルコキシ化ペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート、例えば、エトキシ化ペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレートが挙げられる。

【0038】

前駆体組成物がモノマー1分子当たり少なくとも2個の(メタ)アクリロイル基を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含有することに加えて、前駆体組成物は成形された高分子材料に特定の特性を付与するために添加される他のモノマーを包含することも可能である。場合によっては、前駆体組成物は、アニオン性モノマーを含有することもできる。本明細書で使用する時、用語「アニオン性モノマー」とは、エチレン性不飽和基に加えて、カルボン酸(すなわち、カルボキシ)基($-COOH$)若しくははその塩、スルホン酸基($-SO_3H$)若しくははその塩、硫酸基($-SO_4H$)若しくははその塩、ホスホン酸基($-PO_3H_2$)若しくははその塩、リン酸基($-OPO_3H$)若しくははその塩、又はそれらの混合物から選択される酸性基をも含有するモノマーを指す。前駆体組成物のpHに応じて、アニオン性モノマーは、中性状態(酸性型)又は塩の形態(アニオン型)であり得る。アニオン型の対イオンは、多くの場合、アルカリ金属、アルカリ土類金属、アンモニウムイオン、又は種々のアルキル基で置換されたアンモニウムイオン、例えば、テトラアルキルアンモニウムイオンから選択される。

【0039】

カルボキシ基を有する好適なアニオン性モノマーとしては、アクリル酸、メタクリル酸、及び種々のカルボキシアルキル(メタ)アクリレート、例えば、2-カルボキシエチルアクリレート、2-カルボキシエチルメタクリレート、3-カルボキシプロピルアクリレート、及び3-カルボキシプロピルメタクリレートが挙げられるが、これらに限定されない。カルボキシ基を有する他の好適なアニオン性モノマーとしては、米国特許第4,157,418号(Heilmannら)に記載されているもののような、(メタ)アクリロイルアミノ酸が挙げられる。代表的な(メタ)アクリロイルアミノ酸としては、N-アクリロイルグリシン、N-アクリロイルアスパラギン酸、N-アクリロイル-L-アラニン、及び2-アクリルアミドグリコール酸が挙げられるが、これらに限定されない。スルホン酸基を有する好適なアニオン性モノマーとしては、種々の(メタ)アクリルアミドスルホン酸、例えば、N-アクリルアミドメタンスルホン酸、2-アクリルアミドエタンスルホン酸、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸、及び2-メタクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸が挙げられるが、これらに限定されない。リン酸基を有する好適なアニオン性モノマーとしては、(メタ)アクリルアミドアルキルリン酸、例えば、2-アクリルアミドエチルリン酸及び3-メタクリルアミドプロピルリン酸が挙げられるが、これらに限定されない。リン酸基を有する、いくつかの好適なアニオン性モノマーとしては、アルキレングリコール(メタ)アクリレートのリン酸塩、例えば、エチレ

ングリコール（メタ）アクリレートのリン酸塩及びプロピレングリコール（メタ）アクリレートのリン酸塩が挙げられる。これらの酸性モノマーのうちのいずれかの塩を用いることもできる。

【0040】

アニオン性モノマーは、前駆体組成物中に存在する場合に、成形された高分子材料の膨潤の程度、速度又はこれらの組み合わせに影響する場合がある。すなわち、膨潤の度合いは、多くの場合、アニオン性モノマーの量並びに前駆体組成物中の他の親水性モノマー（類）の量を変えることによって変更することができる。膨潤の度合いは通常、成形された高分子材料により収着することができる極性溶媒の総量に比例する。アニオン性モノマーの量を、重合可能な物質のモノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基が少なくとも1.2となるように制御する。アニオン性モノマーの存在量は、重合可能な物質の総重量に基づいて0から50重量パーセント未満の範囲である。重合可能な物質には、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、少なくとも3重量%、又は少なくとも5重量%のアニオン性モノマーが含有され得る。重合可能な物質には、最大50重量パーセント、最大25重量パーセント、最大15重量パーセント、又は最大10重量パーセントのアニオン性モノマーを含有することができる。重合可能な物質には、0～50重量パーセントの、0～25重量パーセントの、0～15重量パーセントの、又は0～10重量パーセントのアニオン性モノマーを含有することができる。いくつかの重合可能な物質は、アニオン性モノマーを含有しない。特定の生物学的に活性な薬剤を含有している前駆体組成物において、アニオン性モノマー（単数若しくは複数）が低濃度であるか又は全くないことが見出される場合がある。例えば、ある種のカチオン性抗微生物剤は、所望されるように成形された高分子材料から溶出又は拡散させるには、成形された高分子材料に緊密に結合し過ぎている場合がある。

【0041】

いくつかの実施形態においては、前駆体組成物がカチオン性モノマーを含有する場合がある。本明細書で使用する時、用語「カチオン性モノマー」とは、エチレン性不飽和基に加えて、アミノ基、アミノ基の塩、又はそれらの混合物を有するモノマーを指す。例えば、カチオン性モノマーは、アミノ（メタ）アクリレート又はアミノ（メタ）アクリルアミドであり得る。アミノ基は、第1級アミノ基若しくはその塩、第2級アミノ基若しくはその塩、第3級アミノ基若しくはその塩、又は第4級の塩であり得る。カチオン性モノマーには多くの場合に、第3級アミノ基若しくはその塩、又は第4級アミノ塩が含まれる。前駆体組成物のpHに応じて、一部のカチオン性モノマーは、中性状態（塩基性型）又は塩の形態（カチオン型）であることができる。カチオン型の対イオンは、多くの場合、ハロゲン化物（例えば、臭化物又は塩化物）、硫酸塩、アルキル硫酸塩（例えば、メトサルフェート又はエトサルフェート）、並びに種々のカルボン酸塩アニオン（例えば、酢酸塩）から選択される。

【0042】

いくつかのアミノ（メタ）アクリレートの例としては、N,N-ジアルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート及びN-アルキルアミノアルキル（メタ）アクリレート、例えば、N,N-ジメチルアミノエチルメタクリレート、N,N-ジメチルアミノエチルアクリレート、N,N-ジエチルアミノエチルメタクリレート、N,N-ジエチルアミノエチルアクリレート、N,N-ジメチルアミノプロピルメタクリレート、N,N-ジメチルアミノプロピルアクリレート、N-tert-ブチルアミノプロピルメタクリレート、及びN-tert-ブチルアミノプロピルアクリレート等が挙げられる。

【0043】

代表的なアミノ（メタ）アクリルアミドとしては、N-（3-アミノプロピル）メタクリルアミド、N-（3-アミノプロピル）アクリルアミド、N-[3-（ジメチルアミノ）プロピル]メタクリルアミド、N-（3-イミダゾリルプロピル）メタクリルアミド、N-（3-イミダゾリルプロピル）アクリルアミド、N-（2-イミダゾリルエチル）メタクリルアミド、N-（1,1-ジメチル-3-イミダゾリルプロピル）メタクリルアミド

、N - (1 , 1 - ジメチル - 3 - イミダゾリルプロピル) アクリルアミド、N - (3 - ベンゾイミダゾリルプロピル) アクリルアミド、及びN - (3 - ベンゾイミダゾリルプロピル) メタクリルアミドが挙げられる。

【 0 0 4 4 】

代表的なモノマーの第4級塩としては(メタ)アクリルアミドアルキルトリメチルアンモニウム塩(例えば、3 - メタクリルアミドプロピルトリメチルアンモニウムクロライド及び3 - アクリルアミドプロピルトリメチルアンモニウムクロライド)及び(メタ)アクリロキシアルキルトリメチルアンモニウム塩(例えば、2 - アクリロキシエチルトリメチルアンモニウムクロライド、2 - メタクリロキシエチルトリメチルアンモニウムクロライド、3 - メタクリロキシ - 2 ヒドロキシプロピルトリメチルアンモニウムクロライド、3 - アクリロキシ - 2 ヒドロキシプロピルトリメチルアンモニウムクロライド、及び2 - アクリロキシエチルトリメチルアンモニウムメチル硫酸塩)が挙げられるが、これらに限定されない。

10

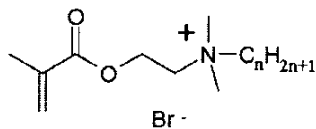
【 0 0 4 5 】

他の代表的なモノマーの第4級アミノ塩には、ジメチルアルキルアンモニウム基として、アルキル基が2 ~ 22個の炭素原子又は2 ~ 20個の炭素原子を有するものが挙げられる。すなわち、モノマーは式 - N (C H ₃) ₂ (C _n H _{2 n + 1}) ⁺ の基を含み、式中、nは2 ~ 22の値を有する整数である。代表的なモノマーとしては、以下の式のモノマーが挙げられるが、これらに限定されない。

【 0 0 4 6 】

20

【 化 1 】



【 0 0 4 7 】

上記のnは、2 ~ 22の範囲の整数である。これらのモノマーの合成は米国特許第5 , 437 , 932号(A l i ら) に記載されている。

30

【 0 0 4 8 】

一部のカチオン性モノマー、例えば、四級アミノ基を有するものは、成形された高分子材料に抗菌特性を付与することができる。カチオン性モノマーは、多くの場合、重合可能な物質の総重量に基づいて0 ~ 50重量%の範囲の量で存在する。重合可能な物質には、少なくとも0重量%、少なくとも1重量%、少なくとも2重量%、又は少なくとも5重量%のカチオン性モノマーが含有され得る。重合可能な物質には、最大50重量パーセント、最大30重量パーセント、最大20重量パーセント、最大15重量パーセント、又は最大10重量パーセントのカチオン性モノマーが含有され得る。重合可能な物質には、0 ~ 50重量パーセントの、1 ~ 30重量パーセントの、2 ~ 20重量パーセントの、又は5 ~ 10重量パーセントのカチオン性モノマーが含有され得る。いくつかの重合可能な物質はカチオン性モノマーを含有しない。

40

【 0 0 4 9 】

一部の代表的な重合可能な物質は、非イオン性モノマーのみを含有している。すなわち、重合可能な物質は、アニオン性モノマーとカチオン性モノマーの両方を実質的に有さない。アニオン性又はカチオン性モノマーに関して本明細書で用いる場合、「実質的にない」は、重合可能な物質が、重合可能な物質の総重量に基づいて、1重量パーセント未満、0.5重量パーセント未満、0.2重量パーセント未満、又は0.1重量パーセント未満のアニオン性モノマー又はカチオン性モノマーを含有することを意味する。

【 0 0 5 0 】

50

前駆体組成物には、概して前駆体組成物の総重量に基づいて、90重量パーセント以下の重合可能な物質が含有される。例えば、前駆体組成物には、少なくとも10重量%、少なくとも20重量%、少なくとも25重量%、少なくとも30重量%、少なくとも40重量%、又は少なくとも50重量%の重合可能な物質が含有される。前駆体組成物は、90重量%以下、80重量%以下、75重量%以下、70重量%以下、又は60重量%以下の重合可能な物質を含有する。いくつかの前駆体組成物において、重合可能な物質の量は、前駆体組成物の総重量に基づいて10～90重量パーセント以下、20～90重量パーセント以下、30～90重量パーセント以下、又は50～80重量パーセント以下の範囲である。

【0051】

10

極性溶媒及び重合可能な物質に加えて、前駆体組成物は、1つ以上の任意の添加剤、例えば、処理剤、活性剤、又はそれらの混合物を包含してもよい。任意の、これらの任意の添加剤は、前駆体組成物に溶解させるか又は分散させることができる。

【0052】

用語「処理剤」は、主に前駆体組成物又は成形された高分子材料のどちらかの物理的又は化学的な特性を変えるために添加される化合物又は化合物の混合物を指す。すなわち、処理剤は、前駆体組成物の性質を変えるためか又は成形された高分子材料の形成を促進するために添加される。添加する場合、処理剤は、典型的には、前駆体組成物に添加される。これら処理剤は、典型的には、活性剤とはみなされない。

【0053】

20

好適な処理剤としては、レオロジー変性剤、例えば、高分子増粘剤（例えば、ゴム、セルロース、ペクチン等）又は無機増粘剤（例えば、粘土、シリカゲル等）、表面張力を変更する界面活性剤、前駆体組成物を安定させる乳化剤、極性溶媒への重合可能な物質の溶解度を高める可溶化剤、重合可能な物質の重合を促進する開始剤、連鎖移動剤、すなわち遅延剤、結合剤、分散剤、定着剤、発泡剤、流動助剤、気泡安定剤、発泡促進剤、ゲル化剤、艶出し剤、噴射剤、ワックス、前駆体組成物の凝固点を下げるため、及び/又はその沸点を上げるための化合物、並びに可塑剤が挙げられるが、これらに限定されない。

【0054】

任意の処理剤は、前駆体組成物の総重量に基づいて20重量%以下、15重量%以下、10重量%以下、8重量%以下、6重量%以下、4重量%以下、2重量%以下、1重量%以下、又は0.5重量%以下の量で存在することができる。

30

【0055】

開始剤は、フリーラジカル重合反応のためのほとんどの前駆体組成物中に見られる、処理剤である。開始剤は、光開始剤、熱開始剤、又はレドックス対であり得る。開始剤は、前駆体組成物に可溶であるか、又は前駆体組成物中に分散可能である。

【0056】

好適な可溶性の光開始剤の例は、2-ヒドロキシ-1-[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]-2メチル-1-プロパノンであり、Ciba Specialty Chemicals (Tarrytown, NY) から商品名IRGACURE 2959として市販されている。好適な分散型光開始剤の例は、2,2'-ジメトキシ-1,2-ジフェニルアセトフェノンであり、Ciba Specialty Chemicals から商品名IRGACURE 651として市販されている。他の好適な光開始剤は、米国特許第5,506,279号(Babura)に記載されているアクリルアミドアセチル光開始剤であって、これには、重合性基の他に開始剤として機能し得る基も含有される。

40

【0057】

好適な熱開始剤としては、例えば、アゾ化合物、過酸化物若しくはヒドロペルオキシド、又は過硫酸塩等が挙げられる。代表的なアゾ化合物としては、2,2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]ジヒドロクロリド、2,2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)ジヒドロクロリド、及び4,4'-アゾビス-(4-シアノペンタン酸)が挙げられる。市販されている熱アゾ化合物開始剤の例には、DuPont S

50

pecialty Chemical (Wilmington, DE) から、例えば「VAZO 44」、「VAZO 56」及び「VAZO 68」などの商品名「VAZO」として市販されている物品が挙げられる。好適なペルオキシド及びヒドロペルオキシドには、酢酸過酸化物、*t*-ブチルヒドロペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、及び過酸化酢酸が挙げられる。好適な過硫酸塩としては、例えば、過硫酸ナトリウム、及び過硫酸アンモニウムが挙げられる。

【0058】

他の例において、フリーラジカル重合開始剤は、レドックス対であって、例えば過硫酸アンモニウム又は過硫酸ナトリウムとN, N, N', N'-テトラメチル-1, 2-ジアミノエタン、過硫酸アンモニウム又は過硫酸ナトリウムと硫酸第一鉄アンモニウム、過酸化水素と硫酸第一鉄アンモニウム、及びクメンヒドロペルオキシドとN, N-ジメチルアニリン、等である。

10

【0059】

一部の実施形態では、前駆体組成物は、重合可能な物質と、極性溶媒と、光開始剤などの開始剤とのみを包含する。ほとんどの実施形態において、開始剤の存在量は、前駆体組成物の総重量に基づいて4重量パーセント以下、3重量パーセント以下、2重量パーセント以下、1重量パーセント以下、又は0.5重量パーセント以下である。

【0060】

前駆体組成物は、1つ以上の任意の活性剤を包含することができる。活性剤は、成形された高分子材料にある程度の付加された官能基をもたらし。成形された高分子材料は、活性剤のための担体として機能する。存在する場合、活性剤の存在量は通常、前駆体組成物の総重量に基づいて30重量パーセント以下、25重量パーセント以下、20重量パーセント以下、15重量パーセント以下、10重量パーセント以下、又は5重量パーセント以下である。

20

【0061】

いくつかの実施形態では、活性剤は成形された高分子材料の中及び外へ移動することができる。他の実施形態では、活性剤は成形された高分子材料内で静止してとどまる傾向がある。例えば、活性剤の分子サイズが原因で、活性剤が成形された高分子材料の外に溶出又は拡散することが防止される場合がある。別の実施形態では、活性剤を成形された高分子材料に共有結合又はイオン結合で結合させてもよい。活性剤は、所望により、他のエチレン性不飽和基と反応することで、高分子材料の一部になるか又は成形された高分子材料の高分子材料と結合することになる可能性のある、1つ以上のエチレン性不飽和基を有することもできる。

30

【0062】

一部の活性剤は、生物学的な活性剤である。本明細書で使用する時、用語「生物学的な活性剤」及び「生物活性剤」は、互換的に用いられるものであって、生物系、例えば、バクテリア若しくは他の微生物、植物、魚、昆虫、又は哺乳動物に対して何らかの既知の効果を発揮する化合物又は化合物類の混合物を指す。生物活性剤は、生物系の代謝へ影響を及ぼすように、生物系に影響を及ぼす目的で添加される。生物活性剤の例としては、薬剤、除草剤、殺虫剤、抗菌剤、消毒剤及び防腐剤、局所麻酔剤、収れん剤、抗真菌剤、抗菌剤、成長因子、ビタミン、ハーブ抽出物、酸化防止剤、ステロイド又は他の抗炎症剤、創傷治療を助長する化合物、血管拡張薬、剥離剤（例えば、 α -ヒドロキシ酸又は β -ヒドロキシ酸）、酵素、栄養素、タンパク質、及び炭水化物が挙げられるが、これらに限定されない。更に他の生物活性剤としては、人工的な日焼け剤、日焼け促進剤、皮膚鎮静剤、皮膚引き締め剤、しわ抑制剤、皮膚回復剤、皮脂抑制剤、皮脂刺激物質、プロテアーゼ阻害剤、かゆみ止め成分、発毛抑制剤、発毛促進剤、皮膚感覚剤、抗にきび治療剤、脱毛剤、除毛剤、魚の目除去剤、タコ除去剤、イボ除去剤、日焼け止剤、防虫剤、脱臭剤及び制汗剤、染毛剤、脱色剤、及び抗ふけ剤が挙げられる。当該技術分野において既知のあらゆる他の好適な生物活性剤を使用することができる。

40

【0063】

50

その他の活性剤は生物学的に活性ではない。これらの活性剤は、ある程度の非生物学的な官能を成形された高分子材料にもたすために加えられる。すなわち、これらの活性剤は、生物系の代謝へ影響を及ぼすように、生物系に影響を及ぼす目的のために添加するのではない。例えば、好適な活性剤を、成形された高分子材料の臭い、電荷、色彩、密度、pH、浸透圧モル濃度、水分活性、イオン強度又は屈折率を変えるために選択することができる。活性剤は更に、反応性基又は化合物を生じさせるように選択することもできる。生物学的に活性ではない薬剤の例としては、乳化剤又は界面活性剤（アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、双極性界面活性剤、非イオン性界面活性剤、及びこれらの組み合わせを包含するもの）、顔料、無機酸化物（例えば、二酸化ケイ素、チタニア、アルミナ、及びジルコニア）、芳香剤、例えば、アロマセラピー剤及び香料、臭気吸収剤、保湿剤、潤滑剤、染料、漂白剤又は着色剤、着香剤、装飾剤、例えば、光沢剤、皮膚軟化剤、酸、塩基、緩衝剤、指示薬、可溶性塩、キレート化剤、等が挙げられる。使用量に含まれる、室温で液体で水と混和性であるいくつかの湿潤剤（例えば、グリコール及び他のポリオール）は、膨潤した成形された高分子材料又は乾燥した成形された高分子材料の前駆体組成物を計算する際に、極性溶媒の一部であるとみなされる。

10

【0064】

一部の実施形態では、活性剤は指示薬である。指示薬には、あらゆる好適な化学反応が利用可能である。指示薬は例えば、特定のpH範囲、又は特定種の化合物の存在を検出することができる。いくつかの特定種の化合物が存在することによって、色変化を生じさせることができる。ニンヒドリンは、例えば、タンパク質又はアミノ基の存在を検出するために利用することができる。指示薬は更に、典型的なpH指示薬、例えば、メチルブルー又はフェノールフタレインでもあり得る。

20

【0065】

成形された高分子材料に無機酸化物ナノ粒子を加えて、成形された高分子材料の屈折率を増加させてもよい。例えば、成形された高分子材料にジルコニアナノ粒子又はチタニアナノ粒子を充填してもよい。ジルコニアナノ粒子類は、例えば、米国特許第6,376,590号(Kolb et al.)、米国特許出願公開第2006/0148950A1号(Davidson et al.)に記載されている方法を用いて調製することができる。

【0066】

どの活性剤も重合性基を有してもよい。活性剤上の重合性基は、成形された高分子材料から活性剤が外へ移動するのを防止するために用いることができる。エチレン性不飽和基並びに第四級アミノ基を有するカチオン性モノマーは、抗菌剤として機能する場合があります、及び、前駆体組成物の重合可能な物質中に含むこともできる。カチオン性モノマーは、多くの場合、第四級アミノ基を有する（メタ）アクリレートである。

30

【0067】

場合によっては、成形された高分子材料は未反応の重合性基を有する場合がある。成形された高分子材料の未反応の重合性基は、重合性基を有する活性剤との形成後に反応させることができる。例えば、エチレン性不飽和基及び第四級アミノ基を有するカチオン性モノマーは、未反応のエチレン性不飽和基を有する成形された高分子材料と反応させることができる。成形された高分子材料とカチオン性モノマーと光開始剤とを含有する混合物を化学線に曝露して、カチオン性モノマーのエチレン性不飽和基を、成形された高分子材料の未反応のエチレン性不飽和基と反応させることができる。反応生成物は、結合された第四級アミノ基を備える成形された高分子材料である。

40

【0068】

成形された高分子材料は、少なくとも2つの別個のウェルを有する成形型の中で形成することができる。成形型は、成形された高分子材料の大きさ及び形状を画定するために提供される。前駆体組成物は成形型のウェル内に加えられ、保持される次いで前駆体組成物は、重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させるために放射線に曝露される。ウェル内の少なくとも部分的に重合した材料は、第1の膨潤した成形された重合可能な物質を形

50

成する。

【0069】

成型型は、フィルム、シート、ウェブ、ベルト、ローラー、ドラム、リボン、別個の粒子又は他の三次元形状若しくは構造あるいはこれらの組み合わせであってもよく、型には流動性の又は部分的に流動性の材料、例えば、前駆体組成物を適用することができる。成型型は、重合可能な物質、金属材料、セラミックス材料又はこれらの組み合わせから形成することができる。成型型用に選択される材料は、概して特定の用途について好適な特性を有する。成型型を形成するにあたって考慮されるいくつかの特性には、物理的、化学的、光学的、電氣的及び熱的特性が挙げられる。

【0070】

成型型は、その表面に特徴を有するように形成され得る。そのような特徴は、成型型上に適用されたか又は成型型上にコーティングされた流動性の又は部分的に流動性の材料に、成型型から移すことができる。成型型の表面は、平滑、部分的に平滑、非平滑、又はこれらの組み合わせであり得る。ナノ - 、ミクロ - 及びマクロ - 複製された特徴及びパターンを含む、非平滑化表面又は構造化表面の例は、米国特許第 6,649,249 号 (Engle) 及び同第 7,105,809 号 (Wood) に記載されている。成型型は更に、その表面にわたって空間的に配置された規則的な又はランダムな特徴を有する構造化表面を内包してもよい。

【0071】

成型型は更に、ウェルとして一般に知られる特徴を内包する。ウェルは、空洞、領域、ポケット、隆起部、チャネルなどのように呼ぶこともできる。ウェルは、流動性又は部分的に流動性の材料を保持するための表面上の配置を提供する。ウェルは概して直径、半径、高さ、幅及び丈などの寸法による容量を有する。ウェル中の材料は、壁及び/又は成型型上若しくは成型型内に配置された他の特性によって保持することができる。一実施形態では、ウェルは成型型の構造化表面内に配置され得る。成型型のウェルは、ウェルを分離するランド部 (例えば、領域) により互いから離して配置することができる。

【0072】

ウェルは異なる形状を有していてもよい。ウェルの形状の例には、円錐形、立方形、三角形、長方形、角錐形、及び材料の容量を保持するのに好適な他の形状を挙げることができる。ウェルの底は、概してウェルの頂部から離間している、ウェル内部の位置を指す。ウェルの頂部は、個々のウェルを互いから区別するためのランド部又は表面を指すことができる。少なくとも 2 つの別個のウェルを有する成型型において、第 1 のウェルは第 2 のウェルと同じ形状を有していてもよい。別の成型型において、第 1 のウェルは第 2 のウェルと異なる形状を有していてもよい。

【0073】

同様に、ウェルはウェルの壁上に、ランド領域上に及びウェル内に配置された、ランダムに、一部ランダムに又は正確に間隔をあけられた特徴を有することができる。これらの特徴のいくつかには、凸部及び凹部を挙げることができる。これらの特徴は一般にトポグラフィ的な特徴と呼ばれる。

【0074】

ウェルのトポグラフィ的な特徴のいくつかの例は、平行で垂直な平面壁を有する立方ウェルの例から、半球ウェルの例までの範囲におよび、これらの例の間には任意の可能な立体幾何学的形状の壁が存在する。トポグラフィ又はトポグラフィ的な特徴の他の例には、角度を備える円錐形ウェル、平面壁、角度を備える切頭された角錐形ウェル、平面壁、及びコーナーキューブ形状のウェルが挙げられる。

【0075】

ウェル中の、又はウェル自体におけるトポグラフィ的な特徴のいくつかは、ナノ - 、ミクロ - 、又はマクロスケールで形成することができる。同様に、トポグラフィ的な特徴のいくつかを成型型上に又は少なくともウェルの間のランド領域上に見出すことができる。これらの特徴の寸法は、かかる特徴を製造するための工具又は装置に制限される場合

10

20

30

40

50

がある。概して、例えば、ミクロ構造化表面を有する成型型は、少なくとも1つの表面上に所望のトポグラフィを有し得る。これらのミクロ構造には、特徴の少なくとも2つの寸法がミクロであるような、特徴の形状が挙げられる。ミクロの特徴は、肉眼でその形状を判別するのに視覚補助具が必要であるほどに十分に小さい。トポグラフィ的な特徴の寸法は、3つの可能性のある寸法（成型型の平面の中／外、及び成型型の平面に沿った各寸法）のうちの少なくとも2つにおいて、約200マイクロメートル以下の範囲である。トポグラフィ的な特徴は、所望の特徴サイズ（例えば任意の寸法に沿って測定された長さなど）及び特徴密度（成型型表面の単位面積当たりの特徴）を有する。上記のような特徴は、平滑平面表面からのずれ又は偏差を示す任意のものであることができる。いくつかの特徴には突出（小塊、柱、塊、隆起）又は陥凹（くわ（hoes）、くぼみ、亀裂、隙間）を内包することができる。ミクロ構造化表面はまた、突出及び陥凹特徴の組み合わせ（例えば、溝部及び隆起部、突出角錐形及び陥凹角錐形）を保有し得る。隆起部、溝部、又は交差平面について言えば、特徴はかかる隆起部、溝部又は平面の、コーナー又は直線交差部であってもよい。

10

【0076】

特徴は、その特徴長さが3つの寸法（すなわちフィルムの平面の中及び外へ、並びにフィルムの平面に沿った各直角な方向において）すべてで同様であるようなものであってもよい。反対に、1つ以上の寸法における特徴長さが他の寸法におけるものよりも幾分長い、又はずっと長くてもよい（すなわち、特徴が隆起部又は溝部などである場合）。

【0077】

20

いくつかの実施形態においては、ミクロ構造化された特徴には、1つ以上の寸法において200マイクロメートルの最大特徴長さを保有しているものが挙げられる。いくつかの実施形態においては、最大特徴長さは50マイクロメートルであり、別の実施形態においては、特徴長さは10マイクロメートル未満である。いくつかの実施形態においては、1つ以上の寸法における最小特徴長さは1ナノメートルである。他では、最小特徴長さは10ナノメートルであり、別の実施形態においては、最小特徴長さは100ナノメートルである。同様に、いくつかの実施形態では、成型型中のミクロ構造化された特徴密度は、平方ミリメートル（ mm^2 ）当たり100個以上の特徴の分布として存在し得る。いくつかの実施形態においては、成型型は1,000個以上の特徴密度、すなわち mm^2 当たり1,000個以上の特徴密度を有することができ、他の実施形態においては、10,000個以上の特徴密度すなわち mm^2 当たり10,000個以上の特徴密度を有することができる。図1は、少なくとも2つの別個のウェルを有し、特徴がウェル内に配置された成型型を示す。

30

【0078】

いくつかの実施形態においては、特徴は規則的な繰り返しで存在してもよく、又はそれらはランダムであってもよい。他の実施形態において、特徴は、その中に流動性の又は部分的に流動性の材料が付着させられることになる成型型の領域全体にわたって存在してもよく、又はそれらはウェル若しくは所望によりランド領域上などの領域のみに存在してもよい。

【0079】

40

成型型の少なくとも2つの別個のウェルを、例えば、前駆体組成物などの流動性の材料又は部分的に流動性の材料を保持するために使用することができる。前駆体組成物は、概して成型型と接触している間に硬化される、硬化性の、重合性の又は架橋性の分子からなる液体組成物である。前駆体組成物は、概して、かかる組成物を成型型の少なくとも2つの別個のウェルに流し込むのに、及び加えるのに十分な粘度を有する。

【0080】

前駆体組成物は、異なる方法によって成型型の少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置することができる。いくつかの配置又は加える方法には、重力充填、圧力充填又は真空充填が挙げられるが、これらに限定されない。一例においては、前駆体組成物を、毛管作用によってウェルの少なくとも一部に配置することができる。前駆体組成物

50

を、ウェルの少なくとも一部に配置してもよく、そのような前駆体組成物を、少なくとも2つの別個のウェルの容量の少なくとも5パーセントで配置される。いくつかの実施形態においては、前駆体組成物は、少なくとも2つの別個のウェルの容量の、少なくとも15パーセント、少なくとも25パーセント、又は少なくとも35パーセントで配置することができる。前駆体組成物は、少なくとも2つの別個のウェルの容量の、最高100パーセント、最高90パーセント、最高80パーセント、又は最高70パーセントで配置することもできる。前駆体組成物は、少なくとも2つの別個のウェルの容量の、5～100パーセント、15～90パーセント、25～80パーセント、又は35～70パーセントの範囲で、少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置してもよい。

【0081】

いくつかの実施形態においては、前駆体組成物は、配置されて、少なくとも2つの別個のウェルの容量の100パーセントを超えて充填され得る。この容量では、前駆体組成物はウェル間のランド領域を覆い、2つの別個のウェル間の接続を提供する。成形された高分子材料は、フィルム又はシートに結合したウェルの重合可能な物質を有するフィルム又はシートの形態であってもよい。

【0082】

成形型のウェル中への前駆体組成物の配置の後、前駆体組成物は、前駆体組成物を2つの別個のウェル内への放射線に曝露することによって、少なくとも部分的に固化できる。放射線は、モノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基が少なくとも1.2である重合可能な物質を、少なくとも部分的に重合させる。重合可能な物質は、フリーラジカル重合過程により重合する。重合した材料は、成形型の2つの別個のウェル内部の形状及び特徴を呈する。ウェル内部の特徴又は成形型のマイクロ構造化表面上の特徴のほとんどは、成形された高分子材料上にデザインされる又は提示される特徴の、反転像であるだろう。例えば、成形型の表面上の、ウェルを有する隆起部は、成形された高分子材料の表面上にチャンネルとして現れることになる。

【0083】

重合可能な物質を重合させるために使用する放射線には、化学線（例えば、スペクトルの紫外又は可視領域の波長を有する放射線）、加速粒子（例えば、電子ビーム照射）、熱線（例えば、熱又は赤外線）などを参照することができる。放射線は、化学線又は加速粒子であることが多い。なぜならば、これらのエネルギー源が、重合の開始や重合速度を良好に制御する傾向があるためである。加えて、化学線及び加速粒子は、比較的低い温度の硬化にも使用できる。このことにより、熱線を用いて重合反応を開始するためには避けることのできない比較的高い温度に対して反応し易い構成成分を劣化させないようにする。所望の電磁スペクトル領域のエネルギーを生成することができる、いずれかの好適な化学線源を用いることができる。代表的な化学線源には、水銀ランプ、キセノンランプ、カーボンアークランプ、タングステンフィラメントランプ、レーザー、太陽光、発光ダイオード（LED）などが挙げられる。

【0084】

放射線源は、単一の放射線源であっても、又は同一の若しくは異なる複数種の放射線源であってもよい。放射線源によって、エネルギー、例えば、赤外放射線、可視放射線、紫外放射線、電子ビーム放射線、マイクロ波放射線、又は高周波放射線が得られる。使用する特定のエネルギー源は、特定の前駆体組成物によって決まることになる。好適な非イオン化放射線源には、連続したパルス状の供給源が包含され、及び、広帯域供給源であっても、単色光源などの狭帯域供給源であってもよい。代表的な非イオン化放射線源としては、水銀ランプ（例えば、低圧型、中圧型、及び高圧型、並びにそれらの付加型又はドープ型）、蛍光灯、殺菌灯、ハロゲン化金属ランプ、ハロゲンランプ、発光ダイオード、レーザー、エキシマランプ、パルス化キセノンランプ、タングステンランプ、及び白熱灯が挙げられるが、これらに限定されない。赤外線源及びマイクロ波放射線源のみならず、電子線などのイオン化放射線源を利用してもよい。更には、これら放射線源の組み合わせを利用してもよい。

【0085】

いくつかの代表的な方法においては、100～1000ナノメートル(nm)、100～800ナノメートル、又は100～700ナノメートルの範囲にある波長を有する電磁放射線を用いることができる。いくつかの方法では、100～400ナノメートル又は200～400ナノメートルの範囲の波長を有する紫外線を用いることができる。例えば、エキシマ源からの200ナノメートル未満の波長の紫外線を用いることができる。いくつかの実施形態では、放射線源は、高発光の紫外線源、例えば、少なくとも40W/cm(100W/インチ)の中圧水銀ランプである。殺菌灯などの低圧水銀ランプを包含する低発光ランプを用いることも可能である。

【0086】

前駆体組成物を放射線に曝露する時間は、概して30秒以下、15秒以下、10秒以下、5秒以下、3秒以下、2秒以下、1秒以下、又は0.5秒以下である。放射線への曝露により、重合可能な物質は少なくとも部分的に重合して、膨潤した、成形された高分子材料を形成することができる。放射線に曝露している間に重合可能な物質は架橋することができ、又は高分子鎖は生長することができる。

【0087】

成形された高分子材料は、ウェル内で前駆体組成物を放射線に曝し、重合可能な物質のフリーラジカル重合を生じさせることにより形成される。重合した高分子材料は、成型型のウェルの形状を呈する。前駆体組成物には重合可能な物質に加えて極性溶媒も包含されるため、成形された高分子材料は極性溶媒で膨潤している。成形された高分子材料は、第1の膨潤した成形された高分子材料、成形された高分子材料のヒドロゲル、溶媒で膨潤した成形された高分子材料、又は膨潤した成形された高分子材料として記載することができる。これらの用語はすべて、本明細書では互換的に用いることができる。

【0088】

膨潤した成形された高分子材料中の高分子材料は概して架橋されているが、未反応の重合性基又は反応基をある程度含有していてもよい。未反応の重合性基としては、典型的に、更にフリーラジカル反応可能なエチレン性不飽和基が挙げられる。縮合反応又は求核置換反応が可能な他の種類の重合性基、例えば、ヒドロキシル基又はアミノ基が存在する可能性もある。

【0089】

図2は、実施例1で形成された、膨潤した成形された高分子材料を示す。膨潤した成形された高分子材料は、図1に示されている少なくとも2つの別個のウェルを有する成型型の、反転トポグラフィを含んでいる。

【0090】

いくつかの実施形態においては、膨潤した成形された高分子材料はまた、活性剤も含有することができる。活性剤は、膨潤した成形された高分子材料を作成するために用いられる前駆体組成物中に存在することができる。あるいは、膨潤した成形された高分子材料を乾燥して、ソルベートによって2回目の膨潤を行うこともできる。すなわち、乾燥した成形された高分子材料はソルベートを収着して、第2の膨潤した成形された高分子材料を形成することができる。ソルベートには活性剤が包含されていることが多い。活性剤は、生物学的に活性な薬剤、生物学的に活性ではない薬剤、又はそれらの混合物であり得る。好適な活性剤類については先に記載している。

【0091】

前駆体組成物に包含される場合、活性剤類は、好ましくは、放射線に対して安定であり及び/又は耐性があり、材料を重合させるために用いられる。活性剤が放射線に対して安定でなく耐性もない場合でも、成形された高分子材料が形成された後に添加すれば、より良好に進展する場合がある(すなわち、成形された高分子材料を乾燥させた後に、活性剤を含むソルベートに曝露することができる)。多くの場合、前駆体組成物に添加でき、又は成形された高分子材料の形成後にも添加できる活性剤とは異なり、処理剤は通常、前駆体組成物に含まれている。

【 0 0 9 2 】

活性剤の量は、膨潤した成形された高分子材料の重量に基づいて 0 ~ 7 0 重量%までの範囲内であり得る。いくつかの代表的な膨潤した成形された高分子材料においては、活性剤の量は、膨潤した成形された高分子材料の 5 0 重量パーセント以下、4 0 重量パーセント以下、3 0 重量パーセント以下、2 0 重量パーセント以下、1 0 重量パーセント以下、5 重量パーセント以下、2 . 5 重量パーセント以下、又は 1 重量パーセント以下である。

【 0 0 9 3 】

いくつかの代表的な膨潤した成形された高分子材料は、膨潤した成形された高分子材料の総重量に基づいて、9 0 重量パーセント以下の高分子材料、少なくとも 1 0 重量パーセントの極性溶媒、及び 0 ~ 3 0 重量パーセントの活性剤を含有する場合がある。

10

【 0 0 9 4 】

膨潤した成形された高分子材料は、概して均質であり、典型的には成形型によって付与されるものの他には識別できる特徴を含まない。膨潤した成形された高分子材料上のチャネル又は特徴の発現は、ウェル表面からもたらされ得る。極性溶媒及び高分子材料を含む高分子マトリックスは通常、膨潤した成形された高分子材料内で単一の相として存在し、溶媒と高分子材料との間に識別できる境界は存在しない。ただし、活性剤が存在する場合には、活性剤は、成形された高分子材料全体に均質に分散されていても、されていなくてもよい。更に活性剤は、高分子マトリックスとは別個の相内に存在していてもよい。

【 0 0 9 5 】

概して、成形された高分子材料の均質性（すなわち、活性剤は除く）は、例えば 5 0 倍まで上げた倍率で環境制御型走査電子顕微鏡などの顕微鏡下で観察した場合に、識別できる多孔性や空隙を有していないことを特徴とする。成形された高分子材料は多くの場合、電界放射線型走査電子顕微鏡を使って倍率を 5 0 , 0 0 0 倍まで上げて観察した場合でも、識別可能な多孔性も空隙も有さない。

20

【 0 0 9 6 】

膨潤した成形された高分子材料は、多くの場合、光を散乱し得る不透明な構成成分を使用することなく調製される。これらの材料は、透き通っているか又は透明なものであって、不透明度又はヘイズがほとんど又は全くないことがある。いくつかの実施形態においては、膨潤した成形された高分子材料が透き通っていることが好ましい。他の実施形態においては透き通っていることが必要とされない場合があり、成形された高分子材料の外観に影響を与え得る様々な構成成分を添加することができる。

30

【 0 0 9 7 】

用語「透明な」は、成形された高分子材料について使用するとき、成形された高分子材料が、視覚的に検出可能な量で可視光の有意な分散を示さないことを意味する。いくつかの実施形態においては、成形された高分子材料中に空気又は他のガスを混入させてもよい。空気又は他のガスは、界面において不透明さを作り出すことができるが、これは極性溶媒中の高分子材料が相分離しているわけではない。滑らかな又は平滑な平行面（すなわち、パターンがない）を含んでいる 2 5 0 マイクロメートルの厚さを有する無色の視覚的に空隙を含まない硬化フィルムが、5 5 0 ナノメートルの波長に対して少なくとも 8 5 パーセントの透過率を有する場合、成形された高分子材料は透明であるとみなすことができる。一部の実施形態では、5 5 0 ナノメートルの波長を有する光のうちの少なくとも 8 8 %、少なくとも 9 0 %、少なくとも 9 5 % が成形された高分子材料を透過する。

40

【 0 0 9 8 】

ヘイズ又は不透明度は、広帯域光源を有するヘイズメーター、例えば、B Y K - G a r d n e r H a z e g a r d P l u s ヘイズメーターを用いて特性評価することができる。成形された高分子材料の透過性は、少なくとも 8 5 %、少なくとも 8 8 %、少なくとも 9 0 %、又は少なくとも 9 5 % であり、ヘイズは、1 5 % 未満、1 2 % 未満、1 0 % 未満、又は 5 % 未満である。多くの実施形態において、前記ヘイズ成分は相分離を表す。

【 0 0 9 9 】

成形された高分子材料は剛性であっても弾性であってもよく、容易に破砕されてもされ

50

なくてもよい（例えば、脆い）。高分子材料の含有量が高くなると、成形された高分子材料の弾性率及び破壊強度が増加する傾向がある。より高い平均官能基数を有する前駆体組成物を用いることによって、より大きな量の架橋を実現した場合も、成形された高分子材料の弾性率及び破壊強度が増加する傾向がある。平均官能価とは、モノマー 1 分子当たり平均数の重合性基（エチレン性不飽和基）を指す。

【 0 1 0 0 】

成形された高分子材料は、幅広い様々な大きさを有し得る。成形された高分子材料の寸法は、放射線硬化に先立って前駆体組成物の形状を作り出すために使用される成型型内部のウェル（ウェルの表面上の特徴を含む）の大きさによって決められ、任意の大きさであることができる。いくつかの実施形態においては、成形された高分子材料の寸法は、1 マイクロメートル未満から、数千マイクロメートル又はそれ以上までの範囲であることができる。他の実施形態においては、例えば、成形された高分子材料の高さ又は深さなどの、特に適した寸法は、0.5 ～ 約 5000 マイクロメートルの範囲、1 ～ 1000 マイクロメートルの範囲、10 ～ 1000 マイクロメートルの範囲、又は 100 ～ 1000 マイクロメートルの範囲である。成形された高分子材料の長さ又は幅は、0.5 ～ 5000 マイクロメートルの範囲、1 ～ 1000 マイクロメートルの範囲、又は 100 ～ 1000 マイクロメートルの範囲である。

10

【 0 1 0 1 】

前駆体組成物を放射線に曝露された後、重合可能な物質は少なくとも部分的に重合して、第 1 の膨潤した成形された高分子材料を形成する。第 1 の膨潤した成形された高分子材料は、成型型から取り外すことができる。膨潤した成形された高分子材料は、概して成型型のウェルの寸法を有する。通常、成形された高分子材料は重力の手法又は振動の手法によって成型型から取り外すことができる。

20

【 0 1 0 2 】

一実施形態においては、第 1 の膨潤した成形された高分子材料は極性溶媒を適用することにより取り外すことができる。膨潤した成形された高分子材料を成型型の外に解放するために、膨潤した成形された高分子材料に極性溶媒（例えば、水）を適用することができる。極性溶媒は、成型型のウェルから持ち上げた又はひねり出した成形された高分子材料の寸法を変化させる（例えば、膨潤させる）場合がある。ウェルから出た後、膨潤した成形された高分子材料は図 2 のウェルに示される反転した特徴を保持することができる。

30

【 0 1 0 3 】

成形された高分子材料及び成形された高分子材料の製造方法の、いくつかの実施形態においては、乾燥した成形された高分子材料を形成するために、第 1 の膨潤した成形された高分子材料から、極性溶媒の少なくとも一部を除去することができる。乾燥した成形された高分子材料は、次いで乾燥した成形された高分子材料が溶媒の少なくとも一部を吸着するのに十分な時間にわたって、溶媒と接触させることができる。すなわち、第 1 の膨潤した成形された高分子材料は、乾燥した成形された高分子材料を形成するために乾燥させることができ、乾燥した成形された高分子材料は、第 2 の膨潤した成形された高分子材料を形成させるために、次いで溶媒と接触させることができる。溶媒には、少なくとも 1 種の活性剤を含有することができる。活性剤に加えて、溶媒は、流体、例えば、液体又は超臨界流体を包含することもできる。一部の代表的な溶媒には、活性剤に加えて極性溶媒が包含されている。

40

【 0 1 0 4 】

本明細書で使用する時、用語「吸着する」とは、吸着する、吸収する、又はそれらの組み合わせを指す。同様に、用語「吸着」は、吸着、吸収、又はそれらの組み合わせを指す。吸着は、化学プロセス（すなわち、化学反応が生じるもの）であるか、物理プロセス（すなわち、化学反応が生じないもの）であるか、又はそれら両方であることも可能である。用語「溶媒」は、乾燥した成形された高分子材料などの、成形された高分子材料によって吸着することができる、組成物を指す。

【 0 1 0 5 】

50

より具体的には、活性剤を含む成形された高分子材料を製造する方法が提供される。本方法には、(a)極性溶媒と、(b)極性溶媒と单相を形成する重合可能な物質と、を含有する前駆体組成物を形成する工程が包含される。重合可能な物質は、フリーラジカル重合が可能であるとともに、モノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基が1.2よりも大きい。方法は更に、前駆体組成物の少なくとも一部を少なくとも2つの別個のウェルを有する成型型に加える工程を包含し、前駆体組成物はウェル内で保持される。前駆体組成物は、2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置される。ウェル内の前駆体組成物を、重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させ、第1の膨潤した成形された高分子材料を形成するのに十分な時間にわたって放射線に曝露する。この方法は更に、第1の膨潤した成形された高分子材料から極性溶媒の少なくとも一部を除去して乾燥した成形された高分子材料を形成する工程を包含する。次いで、乾燥した成形された高分子材料を溶媒の少なくとも一部を収着して、第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するのに十分な時間にわたって、乾燥した成形された高分子材料を溶媒と接触させる。溶媒は典型的に活性剤を含有している。

【0106】

乾燥した成形された高分子材料を形成するために第1の膨潤した成形された高分子材料から除去された極性溶媒の量は、最大で元の前駆体組成物中に存在している量の、任意の所望される量であってもよい。乾燥した成形された高分子材料は、多くの場合、成形された高分子材料中に残存する少なくとも少量の極性溶媒を含有している。また、成形された高分子材料を溶媒と接触させて成形された高分子材料内又は成形された高分子材料上に活性剤を収着させる場合、乾燥した成形された高分子材料中に存在する極性溶媒の量は、概して乾燥した成形された高分子材料の重量に基づいて25重量パーセント以下である。乾燥した成形された高分子材料中の極性溶媒の量は、乾燥した成形された高分子材料の重量の20重量%未満、15重量%未満、10重量%未満、5重量%未満、2重量%未満、又は1重量%未満であり得る。概して、第1の膨潤した成形された高分子材料からより多くの溶媒を除去すると、乾燥した成形された高分子材料によって収着され得る溶媒の量がより多くなる。

【0107】

極性溶媒を除去した場合、第1の膨潤した成形された高分子材料は縮小し、成型型のウェルに基づく潰れた、変形した又はしぼんだ形状に似る場合があり、乾燥した成形された高分子材料の一部は、断面を観察したときに異なる形状を有する場合がある。乾燥した成形された高分子材料の断面形状は、第1の膨潤した成形された高分子材料の断面形状によって決まる。縮小量は、第1の膨潤した成形された高分子材料中に当初存在する極性溶媒の量と、乾燥によって極性溶媒が除去される割合によって決まる。成形された高分子材料は、3つの寸法すべてにおいて別個に又は一様に縮小を経験し得る。

【0108】

乾燥した成形された高分子材料(特に、活性剤又は他の不溶性の添加剤が非存在である状態)は概して均質のままであり、顕微鏡で見える(すなわち、100nmを超える)内部細孔又はチャネルを含有しない。概して、成形された高分子材料は、顕微鏡下で観察した場合に識別できる多孔性や空隙を有さない。典型的には、成形された高分子材料を環境制御型走査電子顕微鏡を用いて倍率を50倍まで上げて観察しても、識別できる孔はない。いくつかの成形された高分子材料は、電界放射型走査電子顕微鏡を用いて倍率を50,000倍まで上げて観察しても、識別できる孔はない。乾燥した成形された高分子材料は、高弾性率、高破壊強度、又はこれらの組み合わせを有する。これらの特徴は、膨潤した成形された高分子材料と同様であるか、又はそれらを超える場合がある。

【0109】

膨潤した成形された高分子材料を、種々の方法のうちの任意のものによって乾燥させることができ(すなわち、膨潤した成形された高分子材料から少なくとも一部の極性溶媒を除去することができる)、これらの方法には、対流式オープンなどの従来のオープン内で加熱すること、電子レンジ内で加熱すること、空気乾燥させること、凍結乾燥させること

10

20

30

40

50

、又は減圧乾燥させることが挙げられる。所与の成形された高分子材料組成物を乾燥させるための最適な方法は、膨潤した成形された高分子材料中に存在する極性溶媒の素性及び量、並びに成形された高分子材料中の、例えば生物活性剤などの構成成分の熱安定性によって決まる。水が存在する場合、好ましい乾燥方法には、従来のオープン類、例えば、対流式オープン類、電子レンジ類、真空オープン類、及び凍結乾燥が包含される。水の場合、大気圧で乾燥させるのに好適な温度は、100 近辺又は100 超であることが多い。場合によっては、乾燥した成形された高分子材料をより高い温度に加熱することが望ましい場合がある。この操作は、縮合又は他の化学反応を介して、成形された高分子材料の強度を向上させる場合がある。例えば、成形された高分子材料を、140 を超えて、160 を超えて、又は更には180 を超えて加熱することができる。成形された高分子材料は、例えば、フィルム又はシートを形成するために乾燥させた場合にも合着しない。むしろ、乾燥した成形された高分子材料は、別個の成形された高分子材料のままである傾向がある。

10

【0110】

乾燥した成形された高分子材料は、例えば、溶媒を含浸させることによって容易に再膨潤して、当初のサイズとほぼ同じであり得る膨潤状態に戻すこともできる。典型的には、第2の膨潤した高分子の成形された高分子材料を形成するために、乾燥した成形された高分子材料によって収着され得る溶媒の量は、乾燥プロセスの間に、第1の膨潤した成形された高分子材料から除去された極性溶媒及び他の非重合性成分の量とほぼ等しい。前駆体組成物中及びもたらされる第1の膨潤した成形された高分子材料中に存在する極性溶媒が、成形された高分子材料を2回目に膨潤させる（例えば、乾燥した成形された高分子材料を膨潤させる）のに使用される溶媒中との溶媒と異なっている場合、乾燥した成形された高分子材料は極わずかに膨潤するか又はその物質を重合したときの元の寸法以上に膨潤する場合がある。例えば、非極性溶媒を含む溶媒は、乾燥した成形された高分子材料をその最終的な大きさに再膨潤させるのに1日乃至は1日以上の間を要する場合がある。

20

【0111】

乾燥した成形された高分子材料を、活性剤と共に、特に膨潤した成形された高分子材料が形成される間に生じる熱又は放射線に感受性の活性剤、例えば、薬剤、調合薬、殺虫剤、除草剤、染料、芳香成分、又はこれらの混合物などと共に充填することができる。活性剤と共に成形された高分子材料を提供するためには、乾燥した成形された高分子材料を、活性剤を含有する溶媒と接触させる。活性剤が液体ではない場合、溶媒は典型的には、極性溶媒又は超臨界流体（例えば、二酸化炭素）などの流体をも含有する。溶媒は溶液、懸濁液、エマルジョン（例えば、マクロエマルジョン、マイクロエマルジョン又はナノエマルジョン）又は分散体であってもよい。多くの実施形態において、溶媒は溶液である。乾燥した成形された高分子材料は、典型的には溶媒の少なくとも一部を収着する。乾燥した成形された高分子材料を溶媒に曝露すると、溶媒は、活性剤での成形された高分子材料の含浸をもたらす。

30

【0112】

溶媒には、多くの場合、活性剤と、極性溶媒などの液体とが含まれている。液体の収着は、多くの場合、成形された高分子材料の膨潤を引き起こす。液体は、典型的には、成形された高分子材料中への活性剤の移送を促進する。液体は、多くの場合、成形された高分子材料全体に活性剤を運び、均質な、膨潤した成形された高分子材料を形成する。ただし、一部の実施形態では、活性剤が、成形された高分子材料の表面上にとどまっている場合もあり、又は成形された高分子材料全体において、表面上がより高濃度であるような、活性剤の勾配が存在する場合もある。例えば、活性剤のサイズ（例えば、分子の大きさ）、成形された高分子材料に対するその電荷、並びに極性溶媒組成物は、乾燥した成形された高分子材料中への活性剤の移動（例えば、拡散）に影響を及ぼす場合がある。

40

【0113】

乾燥した成形された高分子材料は、多くの場合、乾燥した成形された高分子材料の重量

50

に基づいて少なくとも10重量%、少なくとも20重量%、少なくとも40重量%、少なくとも50重量%、少なくとも60重量%、少なくとも80重量%、少なくとも100重量%、少なくとも120重量%、少なくとも140重量%、少なくとも160重量%、少なくとも180重量%、又は少なくとも200重量%に等しい量のソルベートを収着することができる。いくつかの実施形態においては、重量の増加は、乾燥した成形された高分子材料の重量に基づいて300重量%未満、275重量%未満、又は250重量%未満である。

【0114】

成形された高分子材料は、活性剤の担体となり得、活性剤は成形された高分子材料の内部に又は成形された高分子材料の表面の少なくとも一部上に存在することができる。活性剤は、成形された高分子材料を形成するために使用される、前駆体組成物中に包含させることもできる。あるいは、活性剤は、少なくとも部分的に乾燥させた成形された高分子材料によって収着させることもできる。成形された高分子材料は、活性剤の、バルク中への及びバルクからの両方の拡散制御された移送を提供することができる。すなわち、多くの実施形態において、活性剤は成形された高分子材料の中へ、成形された高分子材料の外へ、又はその両方へ拡散することができる。拡散速度は、例えば、高分子材料とその架橋密度とを変えることにより、極性溶媒を変えることにより、極性溶媒中の活性剤の溶解度を変えることにより、活性剤の分子量を変えることにより制御することができる。拡散は、数時間にわたって、数日にわたって、数週間にわたって、又は数ヶ月にわたって生じる可能性がある。

【0115】

いくつかの用途では、活性剤を含有している成形された高分子材料が乾燥状態にあることが望ましい場合がある。活性剤を含有する第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、ソルベートに乾燥した成形された高分子材料を曝露することで、活性剤を添加した後、第2の膨潤した成形された高分子材料は再度乾燥させることができる。この乾燥した成形された高分子材料を湿気に曝露した場合、活性剤は成形された高分子材料から拡散する場合がある。活性剤は湿気に曝露されるまでの間、成形された高分子材料中に休止状態でとどまることができる。すなわち、活性剤は、成形された高分子材料が湿気に曝露されるまでの間、乾燥した成形された高分子材料中に保存されることができる。この結果、不必要時に活性剤が浪費又は損失されるのを防止することができ、及び、加水分解、酸化、又は他のメカニズムによって劣化するかもしれない、水分に敏感な多数の活性剤の安定性を改善することもできる。活性剤の拡散制御された取り込み又は送達を利用する可能性のある用途としては、例えば、薬物送達、創傷管理、及び持続放出型の抗菌及び抗真菌保護、空気フレッシュニング剤、時間放出型(time-released)殺虫剤、及び高等動物(例えば魚又は哺乳動物)に対する時間放出型(time-released)誘引物質が挙げられる。

【0116】

いくつかの実施形態においては、成形された高分子材料をソルベートに曝露し、乾燥した成形された高分子材料を形成するために乾燥させ、再び湿気に再曝露することができる。成形された高分子材料は、収着及び乾燥の工程によって、複数回再生することもできる。成形された高分子材料は、ソルベートで複数回再生することもできる。別の実施形態では、第1の活性剤を含有している成形された高分子材料は、第2の活性剤か又は他の材料の、濃縮された溶液に曝露される場合がある。第2の活性剤は、成形された高分子材料中に収着されて、1つ以上の活性剤を有する成形された高分子材料を形成することができる。第2の活性剤は、成形された高分子材料中に収着されて、成形された高分子材料から第1の剤を排除することもできる。活性剤の混合物が、成形された高分子材料に収着され、所望により乾燥されてもよい。

【0117】

創傷包帯の場合には、成形された高分子材料に、治療機能をもたらす種々の活性剤を充填することができる。これらの活性剤を含有する創傷包帯によって、創傷の感染が軽減さ

10

20

30

40

50

れるか又は撲滅される場合がある。加えて、これらの創傷包帯は、抗炎症剤、成長因子、
- ヒドロキシ酸、酵素阻害物質、例えば、マトリックスメタロプロテナーゼ (MMP) 阻害物質、酵素活性化剤、血管拡張剤、走化性剤、止血剤 (例えば、トロンビン)、抗菌剤、抗ヒスタミン剤、抗毒素、麻酔薬、鎮痛剤、ビタミン、栄養素、又は組み合わせ等、の治療活性剤を成形された高分子材料に添加すると、創傷治療の速度を速めることができる。創傷包帯に用いる場合、成形された高分子材料は典型的には、非常に滲出している創傷において使用する前には乾燥しているが、乾燥した創傷には、水分を加えるために膨潤した状態で用いてもよい。

【0118】

いくつかの実施形態においては、膨潤した成形された高分子材料を、哺乳類の組織への又は成形された高分子材料の外側にある他の環境へのいずれかに抗菌剤を送達するために使用することができる。成形された高分子材料に添加することができるいくつかの代表的な抗菌剤としては、ヨウ素及び一般的にヨードフォアと呼ばれるヨウ素の種々の複合形態が挙げられる。ヨードフォアはヨウ素元素又は他のヨウ素種 (例えば、三ヨウ化物) と、特定の担体との複合物である。ヨードフォアは、ヨウ素元素又は他のヨード種、及びそれ自体の高分子マトリックス間で形成され得る。例えば、ポリエチレングリコールのような担体が既知である。これらのヨードフォアは、ヨウ素の可溶性を増加させることによってのみならず、溶液中の自由分子であるヨウ素の濃度を低下させることによって、ヨウ素を持続放出させる1種のリザーバを供給することによっても、機能する。ヨードフォアの形成は、以下のポリマー担体を用いて行うことができる。すなわち、例えばポリビニルピロリドン (PVP)、N-ビニルラクタムと他の不飽和モノマー例えば、これらに限定されないが、アクリレート及びアクリルアミドとの共重合体、ポリエーテル含有界面活性剤、例えばノニルフェノールエトキシレートなどを含む、種々のポリエーテルグリコール (PEG)、ポリビニルアルコール; ポリカルボキシ酸、例えばポリアクリル酸; ポリアクリルアミド、及び多糖類例えばデキストロースである。他の好適なヨードフォアとしては、米国特許第4,597,975号 (Woodward et al.) に記載されているプロトン化アミノオキシド界面活性剤 - 三ヨウ化物錯体が挙げられ、一部の用途では、ヨードフォアはポピドン - ヨードである。これは、ポピドン - ヨード USPとして商業的に入手可能であって、K30ポリビニルピロリドンとヨウ化物との錯体であり、この中には、利用可能なヨウ素が約9重量% ~ 約12重量%存在する。

【0119】

一部の実施形態では、抗菌剤の種々の組み合わせを前駆体組成物又は溶媒中で用いることができる。前駆体組成物と相溶性であり又は得られる成形された高分子材料と適合性である、任意の他の既知の抗菌剤を使用することができる。これらとしては、クロルヘキシジン塩 (例えば、グルコン酸クロルヘキシジン (CHG))、パラクロロメタキシレノール (PCMX)、トリクロサン、ヘキサクロロフェン、グリセリン及びプロピレングリコールの脂肪酸モノエステル及びモノエーテル (例えば、モノラウリン酸グリセロール、モノカプリル酸グリセロール、モノカプリン酸グリセロール、モノラウリン酸プロピレングリコール、モノカプリル酸プロピレングリコール、モノカプリン酸プロピレングリコール)、フェノール、($C_{12} \sim C_{22}$) 疎水性物質及び4級アンモニウム基又はプロトン化3級アミノ基を包含する界面活性剤及びポリマー、4級シランとポリ4級アミンのような4級アミノ含有化合物 (例えば、ポリヘキサメチレンピグアニド)、銀含有化合物 (例えば、金属銀、銀塩 (例えば、塩化銀、酸化銀、及びスルファジジン銀)、メチルパラベン、エチルパラベン、プロピルパラベン、ブチルパラベン、オクテニジン、2-ブロモ-2-ニトロプロパン-1,3ジオール、又はそれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。他の抗菌剤は、米国特許出願公開第2006/0052452号 (Scholzら)、同第2006/0051385号 (Scholzら)、及び同第2006/0051384号 (Scholzら) に記載されている。

【0120】

いくつかの実施形態においては、極性溶媒中での溶解度に制限がある抗菌剤は揮発性溶

10

20

30

40

50

媒中に溶解させることができ、続いて成形された高分子材料によって収着させることができる。揮発性溶媒を、次いで蒸発により除去することができる。

【0121】

いくつかの実施形態においては、活性剤は、任意の上記の活性剤を皮膚に送達するために、成形された高分子材料中に収着させて、真皮中へと経皮的に送達することができる。経皮的な送達の一例としては、創傷包帯と類似である貼付剤形態が挙げられる。活性剤を含んでいる成形された高分子材料は、皮膚と直接接触していても、していなくてもよいが、活性剤の貯留部として提供される。

【0122】

更に成形された高分子材料を用いて、種々の材料、例えば汚染物質又は毒素などを濃縮することができる。例えば、成形された高分子材料を用いて、水系又は生態系から汚染物質を除去することができる。種々の官能基、例えば、キレート化剤などを、成形された高分子材料中に組み込むことによって、重金属及び放射性汚染物質などを除去できる場合がある。

【0123】

成形された高分子材料は、多くの場合、未反応のエチレン性不飽和基を含有する。これらのエチレン性不飽和基は、他のモノマー、例えば、コーティング組成物中のモノマーと反応することができる。成形された高分子材料は、重合して最終コーティングになることができる。更に、いくつかの成形された高分子材料は、更なる反応が可能である、他の官能基をも有する。例えば、前駆体組成物中に包含されるポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)のいくつかは、種々の求核置換反応又は縮合反応を引き起こす可能性があるヒドロキシ基を有している。

【0124】

成形された高分子材料組成物を使用することができる、例示の化粧品用途及びパーソナルケア用途には、創傷ケア製品(例えば、過剰な滲出物を吸収させるための吸収性の創傷包帯及び創傷パッキング); 応急手当用包帯、ホット/コールドパック、ベビー用品(例えば、ベビESHャンプー、ローション、パウダー及びクリーム)、浴用剤(例えば、バスオイル、浴用剤錠剤及びバスソルト、バブルバス、バス香料及びバスカプセル)、アイメイクアップ用調剤(例えば、アイブロウペンシル、アイライナー、アイシャドウ、アイローション、アイメイクアップリムーバ及びマスカラ)、フレグランス調剤(例えば、オーデコロン及び化粧水、パウダー、並びにサッシュェ)、無着色ヘア調剤(例えば、ヘアコンディショナー、ヘアスプレー、縮毛矯正剤、パーマ剤、リンス、シャンプー、トニック、整髪料、及び化粧用品)、カラー化粧品、ヘアカラーリング調剤(例えば、染毛剤、毛髪着色剤、ヘアシャンプー、ヘアカラースプレー、ヘアライトナー、及び毛髪脱色剤)、メイクアップ用調剤(例えば、おしろい、ファンデーション、レッグペイント及びボディペイント、口紅、化粧下地、頬紅、及びメイクアップ定着剤)、マニキュア調剤(例えば、ベースコート、及びアンダーコート、キューティクルソフナー、ネイルクリーム及びローション、ネイルエクステンダー、ネイルポリッシュ及びエナメル、並びにネイルポリッシュリムーバー及びエナメルリムーバ)、口腔衛生用製品(例えば、歯磨剤、及び洗口剤、及び持続放出性歯周製品並びに歯肉炎の予防及び治療の為の各種口腔製品、パーソナル清浄用製品(例えば、浴用の石鹸及び洗剤、脱臭剤、腔洗浄器具及び女性用衛生製品)、シェイピング用調剤(例えば、アフターシェイブローション、髭軟化剤、男性用タルカムパウダー、シェイピングクリーム、シェイピングソープ及びプリシェイブローション)、スキンケア調剤(例えば、クレンジング用調剤、皮膚消毒剤、除毛剤、顔及び首用のクレンザー、ボディ及びハンドクレンザー、脚用のパウダー及びスプレー、保湿剤、夜用調剤、ペースト状のマスク、及び皮膚清浄剤)、並びに、日焼け止め調剤(例えば、日焼け止めクリーム、ジェル及びローション、及び室内日焼け用調剤)が挙げられるが、これらに限定されない。

【0125】

いくつかの用途においては、成形された高分子材料は、対象とする別の化合物の有無を

10

20

30

40

50

検出することができる指示薬を含有している。指示薬は、前駆体組成物又は乾燥した成形された高分子材料のいずれかに、指示薬と、極性溶媒（例えば、水又はジメチルホルムアミドなど）などの所望の液体を含有するソルベートを用いて添加することができる。成形された高分子材料は、検出されることになる化合物を含有している可能性のある試料と接触させることができる。その結果、指示薬は、検出すべき化合物が試料に含有されている場合には、変色することができる。試料に曝露した際に指示薬が成形された高分子材料の外へ移動しない場合には、成形された高分子材料の色が変化する場合がある。試料に曝露した際に指示薬が物質の外へ移動する場合には、試料自体が変色する場合がある。

【0126】

より詳細には、成形された高分子材料に、アミノ含有物質の存在を検出できるニンヒドリン等の指示薬を充填することができる。多くの場合、透明であり、無色である、乾燥した成形された高分子材料にニンヒドリンを充填することで、黄色を有する成形された高分子材料を形成することができる。ニンヒドリンに加えて極性溶媒を含有するソルベートを用いて、成形された高分子材料に活性剤を添加することができる。ニンヒドリンを含有している成形された高分子材料がアミノ含有材料と接触すると、ニンヒドリンは黄色から鮮やかな紫色へと変化する。ニンヒドリンと、アミノ含有材料との相対的な拡散速度に応じて、成形された高分子材料の色は黄色から紫色に変化でき、又はニンヒドリンは成形された高分子材料の外へ移動してアミノ含有材料の色を変えることができる。例えば、少量のアミノ含有材料を、ニンヒドリンを含有している成形された高分子材料中に拡散させて、成形された高分子材料の色を黄色から紫色に変化させることができる。しかしながら、相対的に大きなたんぱく質は、ニンヒドリンが成形された高分子材料の外に移動できるような容易さで物質の中に拡散することはできない。タンパク質を含有する試料の色が紫色に変化できる一方で、成形された高分子材料が紫色に変化しない場合がある。アミノ含有物質の混合物を含むいくつかの他の例では、成形された高分子材料及びアミノ含有試料の両方が紫色に変化する場合がある。

【0127】

染料を充填された成形された高分子材料は、飽和度指示薬として使用することができる。染料を含有している成形された高分子材料を乾燥させることができる。成形された高分子材料を水と接触させた場合、染料は成形された高分子材料の外に拡散して、水の色を変えることができる。あるいは、水が存在しない場合は無色であるが、成形された高分子材料中に水が収着された場合には色が変わる染料を組み込むことも可能である。例えば、特定のpH指示薬、例えば、フェノールフタレインは、乾燥時は無色であるが、濡れると色が変わる。

【0128】

本開示は、例示的なものであり、本開示の範囲を制限することを意図しない以下の実施例により、更に明らかになるであろう。

【実施例】

【0129】

本開示について以下の実施例でより具体的に説明するが、本開示の範囲内の多数の修正及び変更が当業者には明らかとなるため、以下の実施例は例示のみを目的としたものである。特に注釈がない限り、以下の実施例において記載するすべての割合、百分率、及び比率は重量を基準としたものであり、又、実施例において使用するすべての試薬は、下記の化学薬品供給業者から得られた若しくは入手可能なものであり、従来技法によって合成されてもよい。

【0130】

試験方法及び手順

阻害ゾーンアッセイ法

黄色ブドウ球菌(ATCC 6538)(American Type Culture Collection, Manassas, VA)のグラム陽性(+)試験。

【0131】

0.5マックファーランド標準比濁液を用いて、EMD Biosciences (Darmstadt, Germany) から得たリン酸緩衝生理食塩水 (PBS) 1ミリリットル (mL) 当たり、約 1×10^8 コロニー形成単位 (CFU) の濃度を含有するように接種材料懸濁液を調製した。菌叢 (すなわち、プレートの表面を覆う細菌の層) は、無菌の木綿アプリケータを、接種材料懸濁液中に浸して Mueller Hinton II プレートの乾燥表面に3つの異なる方向で塗布することによって調製した。1 mL PBS 中に成形された高分子材料を1グラム含有している、成形された高分子材料の懸濁液を形成した。6 mm の各ペーパーディスクに10マイクロリットル (10 μ L) の成形された高分子材料の懸濁液 (0.01 g の成形された高分子材料を含有) を適用して、濡れたペーパーディスクを形成した。各 (Mueller Hinton II) プレートについて濡れたペーパーディスクを使用した。各試料について3枚の濡れたペーパーディスクを調製し、各培地型の接種プレート上に配置し、寒天との完全な接触を確実にするために、寒天に対して無菌鉗子でしっかりと押し付けた。プレートを、28 + / - 1 で24時間インキュベートした。細菌の増殖について、ディスクの下の領域とディスクを囲む領域とを調べて、阻害ゾーンの直径を記録した。

10

【0132】

緑膿菌 (ATCC 9027) (American Type Culture Collection, Manassas, VA) のグラム陰性 (-) 試験。

【0133】

0.5マックファーランド標準比濁液を用いて、EMD Biosciences (Darmstadt, Germany) から得たリン酸緩衝生理食塩水 (PBS) 1ミリリットル当たり、約 1×10^8 コロニー形成単位 (CFU) の濃度を含有するように接種材料懸濁液を調製した。菌叢 (すなわち、プレートの表面を覆う細菌の層) は、無菌の木綿アプリケータを、接種材料懸濁液中に浸して Mueller Hinton II プレートの乾燥表面に3つの異なる方向で塗布することによって調製した。1 mL PBS 中に成形された高分子材料を1グラム含有している、成形された高分子材料の懸濁液を形成した。6 mm の各ペーパーディスクに10マイクロリットル (10 μ L) の成形された高分子材料の懸濁液 (0.01 g の成形された高分子材料を含有) を移して、濡れたペーパーディスクを形成した。各 (Mueller Hinton II) プレートについて濡れたペーパーディスクを使用した。各試料について3枚の濡れたペーパーディスクを調製し、各培地型の接種プレート上に配置し、寒天との完全な接触を確実にするために、寒天に対して無菌鉗子でしっかりと押し付けた。プレートを、28 + / - 1 で24時間インキュベートした。細菌の増殖についてディスクの下の領域とディスクを囲む領域とを調べて、阻害ゾーンの直径を記録した。

20

30

【0134】

(実施例1)

Sartomer (Exeter, Pennsylvania) から市販されている20モルエトキシ化トリメチロールプロパントリアクリレート ((TMPTA), SR-415) 16グラムと、脱イオン水24グラムと、CIBA Specialty Chemicals (Tarrytown, New York) から市販されているIRGACURE 2959光開始剤0.32グラムとを、容器の中で組み合わせて混合することによって、均質な前駆体組成物を調製した。この実施例及び以後のすべての実施例で用いるエトキシ化TMPTAの平均官能基数を、HPLCデータから決定した。HPLCデータによれば、モノマーは、53.6質量パーセントの3官能性アクリレート (52.5モル・パーセント)、45.3質量パーセントの2官能性アクリレート (46.5モル・パーセント)、及び1.0質量パーセントの単官能性のアクリレート (1.1モル・パーセント) であった。この情報を用いて、またそれぞれの種に対して20モルエトキシ化の平均値を想定して、平均官能基数は約2.5であると計算した。前駆体組成物を対流オープン中で70 で2分加熱し、光開始剤を溶解させた。

40

【0135】

50

ミクロ複製されたポリプロピレンフィルム上に前駆体組成物をコーティングした。実施例 1 のミクロ複製されたポリプロピレンフィルムは国際公開第 2007/070310 号 (Halverson ら) に記載され、図 1 に示されている。フィルムは前駆体組成物を保持するための少なくとも 2 つの別個のウェルを有していた。フィルムはウェルの底に短いワッフル形状のパターンを有していた。成形型内部の正方形の壁の幅は、約 250 マイクロメートルであり、各ウェル間のランド部の幅は約 20 マイクロメートルであった。各ウェルの深さは約 50 マイクロメートルであった。前駆体組成物が毛管作用で成形型のウェル内に引き込まれるように、前駆体組成物をガラス棒でフィルムに添加した。前駆体組成物は、Fusion UV Systems (Gaithersburg, Maryland) から入手可能なベルトプロセッサ (belt processor) を用いて、コーティングしたフィルムに紫外線の下を通過させることで硬化された。ベルトプロセッサは、前駆体組成物の重合可能な物質を少なくとも部分的に重合するために、総 UVA エネルギー投与量 700 mJ/cm^2 (ミリジュール/平方センチメートル) を 2 つの経路で送達する、H バルブを備えていた。プロセス全体は、周囲条件の下で操作した。UV 源から出た後、曝露された高分子材料はウェル中にとどまった。

【0136】

フィルムのウェル中にとどまっている膨潤した成形された高分子材料を、水でスプレーした (すなわち、スプレーボトルで)。水和時に、膨潤した成形された高分子材料をウェルからひねり出し、膨潤した成形された高分子材料を形成するために回収した。

【0137】

図 2 は、フィルム中のウェルの寸法及び特徴を複製している膨潤した成形された高分子材料を示す。第 1 の膨潤した成形された高分子材料をすすぎ水中に回収し、任意のとどまっている物質を容器の底にゆっくりと沈ませた。透明な、膨潤した成形された高分子材料は多孔性の証拠は有さず、光沢のある外観を有していた。膨潤した成形された高分子材料は 222 マイクロメートル ~ 238 マイクロメートルの範囲の寸法及びウェルの底部に見られるような短いワッフル形状のパターンを有していた。膨潤した成形された高分子材料は弾性であったが、破壊することができ、その構成全体が均質の組成を有することが見出された。乾燥前の膨潤した成形された高分子材料の光学顕微鏡写真が図 2 に示されている。膨潤した成形された高分子材料を回収した後、これらの材料をトレイに配置し、対流オープン中で 85 °C で 2 時間乾燥させた。

【0138】

(実施例 2)

実施例 1 の乾燥した成形された高分子材料を、McCormick Foods (Spark, Maryland) から入手可能な赤色食品染料と混合した。乾燥した成形された高分子材料 0.12 グラムを赤色食品染料 0.375 グラムと混合して混合物を形成した。混合物を約 5 分間連続的に攪拌し、赤色食品染料を分配した。次いで成形された高分子材料に約 1 時間赤色食品染料を吸収させた。赤い、膨潤した成形された高分子材料を粉末様物質として観察した。赤色食品染料を含む膨潤した成形された高分子材料は、約 240 マイクロメートルの幅寸法を有した。

【0139】

(実施例 3)

実施例 1 において形成された、乾燥した成形された高分子材料を抗菌成分と組み合わせた。乾燥した成形された高分子材料 0.102 グラムを、Arch Chemicals (Norwalk, Connecticut) から市販の VANTOCIL P (抗菌活性剤、水中の 20 重量パーセント固体) 0.463 グラムと混合して混合物を形成した。混合物を約 1 分攪拌し、次いで約 1 時間置いた。残留している VANTOCIL P を除去するために混合物をろ過し、脱イオン (DI) 水ですすぎ、抗菌性の膨潤した成形された高分子材料を形成した。

【0140】

膨潤した成形された高分子材料の抗菌性は、上記のような阻害ゾーン試験法を用いて、

抗菌活性を判定するために評価された。黄色ブドウ球菌（グラム陽性（+））に関して10.7mmの阻害ゾーンを測定した。緑膿菌（グラム陰性（-））に関して18.7mmの阻害ゾーンを測定した。

【0141】

（実施例4～7）

実施例1において形成された、乾燥した成形された高分子材料に活性抗菌剤を充填した。調製物1を、実施例1からの乾燥した成形された高分子材料0.5グラムとArch Chemicals（Norwalk, Connecticut）から市販のVANTOCIL 100（抗菌活性剤、水中20パーセント固体）1グラムを混合することによって調製した。調製物2を、実施例1からの乾燥した成形された高分子材料0.5グラムとArch Chemicals（Norwalk, Connecticut）から市販のVANTOCIL P-A（抗菌活性剤、水中20パーセント固体）1グラムを混合することによって調製した。

10

【0142】

調製物1及び2は別個に混合され、室温で2時間均衡化された。2時間後、調製物1及び2に水を添加し、任意の吸収されていない殺生物剤を洗い流すために振盪した。次いで調製物1及び2をろ過し、水で2回洗浄し、抗菌性の成形された高分子材料を形成した。調製物1及び2からの抗菌性の成形された高分子材料を室温（23）で約5分、わずかに乾燥させた。

【0143】

調製物1～2及び上記の他の抗菌活性剤を実施例4～7の抗菌コーティングを調製するのに使用した。抗菌コーティングは、DSM Neorelins（Wilmington, Massachusetts）から商品名XK-90として市販されているアクリレート樹脂と、表1に挙げたような上記のように調製した抗菌組成物及び水を混合することで調製した。実施例4～7は、Mitsubishi Chemical（Japan）から市販されているポリエチレンテレフタレート（PET）フィルム上にコーティングした。抗菌コーティングを26番のメイヤーロッドを用いてPETフィルムに塗布した。実施例4～7を60で10分乾燥させた。実施例6及び7を、成形された高分子材料は除いて調製した。実施例4及び5は均一なコーティングを形成した。実施例6及び7は後退した領域で不均一なコーティングと泥のような外観を形成した。

20

【0144】

表1の実施例4及び5を阻害ゾーン試験法を用いて抗菌活性について評価した。実施例6と7についてはコーティングの均一さが乏しかったために阻害ゾーンの結果を記録しなかった。実施例4及び5においては、7ミリメートル（mm）の円をカットし、各寒天プレート上に3つの円を配置した。寒天プレートには黄色ブドウ球菌（グラム陽性（+））又は緑膿菌（グラム陰性（-））を接種した。実施例4～7の組成物及び阻害ゾーンアッセイの結果を表1に示す。

30

【0145】

【表 1】

表 1 (抗菌コーティング)

実施例	水 (グラム)	樹脂 (グラム)	抗菌剤組成物	阻害ゾーン (mm)
4	3 部 (部分)	5 部 X K-90	調製物 1	9. 1 (グラム+) 10. 2 (グラム-)
5	3 部	5 部 X K-90	調製物 2	8. 5 (グラム+) 9 (グラム-)
6	3 部	5 部 X K-90	VANTOCIL 100	-----
7	3 部	5 部 X K-90	VANTOCIL P-A	-----

10

【0146】

実施例 4 及び 5 は成形された高分子材料を用いたコーティングに抗菌特性を示した。

【0147】

(実施例 8)

20 モルエトキシ化トリメチロールプロパントリアクリレート ((T M P T A , S R - 415)) 3. 96 グラムと、脱イオン水 6 グラムと、光開始剤 (I R G A C U R E 2959) 0. 4 グラムとを容器の中で組み合わせて混合することによって前駆体組成物を調製した。前駆体組成物を 70 で 2 分加熱して光開始剤を溶解させた。

20

【0148】

前駆体組成物を、60 マイクロメートルの間隔で 90 ° に起立した角柱状のパターンを有する金属工具上に注いだ。金属工具は米国特許第 5, 175, 030 号 (L u ら) の実施例 1 及び 2 に記載され、図 3 に示されている。前駆体組成物を、ランド部を覆っている金属工具表面上に均一に広げ、40 番のメイヤーロッドを用いてウェルに過充填した。前駆体組成物でコーティングした金属工具に、窒素雰囲気中、6 m / 分 (メートル / 分) の速度で 240 W / c m F u s i o n H バルブ下を通過させた。硬化フィルムを、フィルムの表面上に形成されたウェルの反転した特徴を含有している連続表面を有している成形された高分子材料を形成している金属工具から取り外した。過充填されたウェルのランド領域上の物質に、成形された高分子材料を接合した。減圧下で 80 で一晩乾燥させると、水分の損失からもたらされた縮小に起因して、単位面積当たりの線 (l i n e) の数が減少した。図 4 は、フィルムを形成するために、乾燥後にランド領域によって連結された硬化した前駆体組成物の表面上にとどまっている、互いに隣接している成形された高分子材料の存在を示す。

30

【0149】

(実施例 9)

実施例 8 の前駆体組成物を図 3 の金属工具上にコーティングした。金属工具は、米国特許第 5, 175, 030 号 (L u ら) の実施例 1 及び実施例 2 に記載されている。金属工具上にコーティングした前駆体組成物を、3 M D y n e o n (S t . P a u l , M i n n e s o t a) から得た商品名が T H V 200 である 50 マイクロメートルのフッ化コポリマーフィルムで覆い、多層構造を形成した。多層構造を固定式のギャップ全体に引っ張り、前駆体組成物を金属工具表面に対して広げた。多層構造に 6 m / 分の速度で 240 W / c m F u s i o n H バルブ下を通過させた。多層構造の硬化フィルムを形成した。フッ化コポリマーフィルムを取り除き、ランド領域によって接合されている成形された高分子材料を回収することによって、多層構造を解体した。

40

【0150】

本出願では、以下の態様が提供される。

1. 成形された高分子材料を製造する方法において、前駆体組成物を提供することであって、(a) 前記前駆体組成物の総重量に基づく少なくとも 10 重量パーセントの極性溶

50

媒であって、前記極性溶媒が水を含む前記極性溶媒と、(b)前記前駆体組成物の総重量に基づく90重量パーセント以下の重合可能な物質であって、前記重合可能な物質はフリーラジカル重合することができ、少なくとも1.2に等価なモノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基を有し、前記重合可能な物質は前記極性溶媒と単層を形成し、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基を有し、少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含む、前記重合可能な物質と、を含む前駆体組成物を提供することと、少なくとも2つの別個のウェルを有する成型型を提供することと、前記前駆体組成物を前記成型型に添加することであって、前記前駆体組成物を少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置することと、前記ウェル内の前記前駆体組成物を放射線に曝露して、前記重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させて第1の膨潤した成形された高分子材料を形成することと、を含む、方法。

10

2. 前記重合可能な物質が、少なくとも3つの(メタ)アクリロイル基を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含む、態様1に記載の方法。

3. 前記前駆体組成物が更に光開始剤を含み、前記放射線が化学線を含む、態様1又は2に記載の方法。

4. 前記第1の膨潤した成形された高分子材料を前記成型型から取り外すことを更に含む、態様1～3のいずれか一項に記載の方法。

5. 取り外すことが前記第1の膨潤した成形された高分子材料に極性溶媒を適用することを含む、態様4に記載の方法。

20

6. 前記第1の膨潤した成形された高分子材料から前記極性溶媒の少なくとも一部を除去して、乾燥した成形された高分子材料を形成することを更に含む、態様1～4のいずれか一項に記載の方法。

7. 第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、前記乾燥した成形された高分子材料がソルベートの少なくとも一部を収着するのに十分な時間にわたって、前記乾燥した成形された高分子材料を前記ソルベートと接触させることを更に含む、前記ソルベートが少なくとも1つの活性剤を含む、態様1～4又は6のいずれか一項に記載の方法。

8. 前記少なくとも1つの活性剤が生物活性剤を含む、態様7に記載の方法。

9. 前記第2の膨潤した成形された高分子材料を乾燥させることを更に含む、態様7又は8に記載の方法。

30

10. 前記前駆体組成物を前記成型型に添加することが、少なくとも2つの別個のウェルを過充填することを含み、前記前駆体組成物が前記ウェル間の前記成型型の第1表面上にとどまる、態様1～9のいずれか一項に記載の方法。

11. 前記前駆体組成物が更に活性剤を含む、態様1～10のいずれか一項に記載の方法。

12. 前記活性剤が生物活性剤を含む、態様11に記載の方法。

13. 乾燥した成形された高分子材料を形成するために前記第1の膨潤した成形された高分子材料から前記極性溶媒の少なくとも一部を除去することと、第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、前記乾燥した成形された高分子材料がソルベートの少なくとも一部を収着するのに十分な時間にわたって、前記乾燥した成形された高分子材料を前記ソルベートと接触させることを更に含む、前記ソルベートが少なくとも1つの活性剤を含む、態様1～4又は10のいずれか一項に記載の方法。

40

14. 前記少なくとも1つの活性剤が生物活性剤を含む、態様13に記載の方法。

15. 成形された高分子材料を製造する方法において、前駆体組成物を提供することであって、(a)前記前駆体組成物の総重量に基づく少なくとも10重量パーセントの極性溶媒と、(b)前記前駆体組成物の総重量に基づく90重量パーセント以下の重合可能な物質であって、前記重合可能な物質はフリーラジカル重合することができ、少なくとも1.2に等価なモノマー分子当たり平均数のエチレン性不飽和基を有し、前記重合可能な物質は前記極性溶媒と単層を形成し、少なくとも2つの(メタ)アクリロイル基と少なくとも5つのアルキレンオキシド単位を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含み、前記ポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)は2,000g/モ

50

ル未満の重量平均分子量を有する、前記重合可能な物質と、を含む、前駆体組成物を提供することと、少なくとも2つの別個のウェルを有する成型型を提供することと、前記前駆体組成物を前記成型型に添加して、前記前駆体組成物を少なくとも2つの別個のウェルの少なくとも一部に配置することと、前記ウェル内の前記前駆体組成物を放射線に曝露して、前記重合可能な物質を少なくとも部分的に重合させて第1の膨潤した成形された高分子材料を形成することと、を含む、方法。

16. 前記重合可能な物質が、少なくとも3つの(メタ)アクリロイル基を有するポリ(アルキレンオキシド(メタ)アクリレート)を含む、態様15に記載の方法。

17. 前記前駆体組成物が更に光開始剤を含み、前記放射線が化学線を含む、態様15又は16に記載の方法。

18. 前記第1の膨潤した成形された高分子材料を前記成型型から取り外すことを更に含む、態様15～17のいずれか一項に記載の方法。

19. 取り外すことが前記第1の膨潤した成形された高分子材料に極性溶媒を適用することを含む、態様18に記載の方法。

20. 前記第1の膨潤した成形された高分子材料から前記極性溶媒の少なくとも一部を除去して、乾燥した成形された高分子材料を形成することを更に含む、態様15～18のいずれか一項に記載の方法。

21. 第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、前記乾燥した成形された高分子材料が溶媒の少なくとも一部を収着するのに十分な時間にわたって、前記乾燥した成形された高分子材料を前記溶媒と接触させることを更に含み、前記溶媒が少なくとも1つの活性剤を含む、態様15～18又は20のいずれか一項に記載の方法。

22. 前記少なくとも1つの活性剤が生物活性剤を含む、態様21に記載の方法。

23. 前記第2の膨潤した成形された高分子材料を乾燥させることを更に含む、態様21又は22に記載の方法。

24. 前記前駆体組成物を前記成型型に添加することが少なくとも2つの別個のウェルを過充填することを含み、前記前駆体組成物が前記ウェル間の前記成型型の第1表面上にとどまる、態様15～23のいずれか一項に記載の方法。

25. 前記前駆体組成物が更に活性剤を含む、態様15～24のいずれか一項に記載の方法。

26. 前記活性剤が生物活性剤を含む、態様25に記載の方法。

27. 乾燥した成形された高分子材料を形成するために前記第1の膨潤した成形された高分子材料から前記極性溶媒の少なくとも一部を除去することと、第2の膨潤した成形された高分子材料を形成するために、前記乾燥した成形された高分子材料が溶媒の少なくとも一部を収着するのに十分な時間にわたって、前記乾燥した成形された高分子材料を前記溶媒と接触させることを更に含み、前記溶媒が少なくとも1つの活性剤を含む、態様15～18又は24のいずれか一項に記載の方法。

28. 前記少なくとも1つの活性剤が生物活性剤を含む、態様27に記載の方法。

本開示の範囲及び趣旨から逸脱することなく本開示の様々な修正形態及び変更形態が、当業者には、明らかとなる。また、本開示は、本明細書に記載した例示的な要素に限定

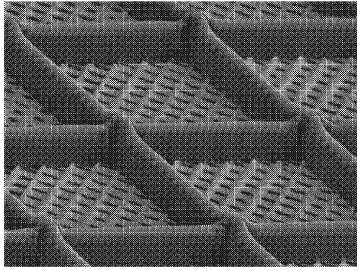
10

20

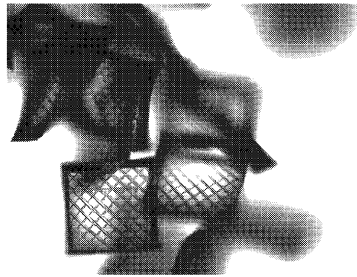
30

40

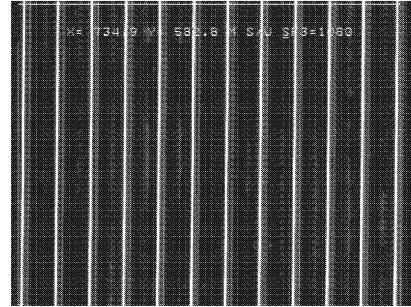
【図 1】

*Fig. 1*

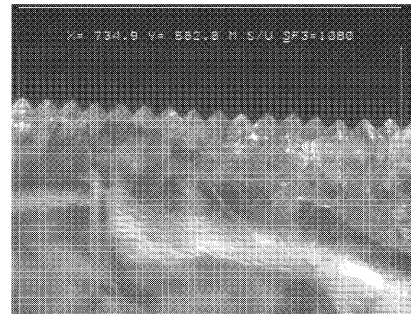
【図 2】

*Fig. 2*

【図 3】

*Fig. 3*

【図 4】

*Fig. 4*

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I
A 6 1 K 47/34	(2006.01)	A 6 1 K 47/34
A 6 1 K 8/81	(2006.01)	A 6 1 K 8/81
A 6 1 K 8/84	(2006.01)	A 6 1 K 8/84

(31)優先権主張番号 61/015,255

(32)優先日 平成19年12月20日(2007.12.20)

(33)優先権主張国 米国(US)

(74)代理人 100102990

弁理士 小林 良博

(74)代理人 100098486

弁理士 加藤 憲一

(72)発明者 イリタロ, キャロライン エム.

アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7, スリーエム センター

(72)発明者 ライト, ロビン イー.

アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7, スリーエム センター

(72)発明者 ショルツ, マシュー ティー.

アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7, スリーエム センター

(72)発明者 ステパノファ, ナリナ ウー.

アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス 3 3 4 2 7, スリーエム センター

(72)発明者 ブッチホルツ, ジェシカ エム.

アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 0 1, セント ポール, テンペランス ストリート 4 9 0, ユニット 3 0 2

審査官 河野 隆一郎

(56)参考文献 特開平06-322051(JP,A)

特開昭52-047883(JP,A)

特表2009-540063(JP,A)

特表2004-536626(JP,A)

特表2003-522596(JP,A)

特表2003-502493(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 8 F 2 8 3 / 0 1

C 0 8 F 2 9 0 / 0 0 - 2 9 0 / 1 4

C 0 8 F 2 9 9 / 0 0 - 2 9 9 / 0 8

C 0 8 C 1 9 / 0 0 - 1 9 / 4 4

C 0 8 F 6 / 0 0 - 2 4 5 / 0 0

C 0 8 F 3 0 1 / 0 0

C 0 8 J 5 / 0 0 - 5 / 0 2

C 0 8 J 5 / 0 4 - 5 / 1 0

C 0 8 J 5 / 2 4