

(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
2013 年 1 月 31 日(31.01.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/015294 A1

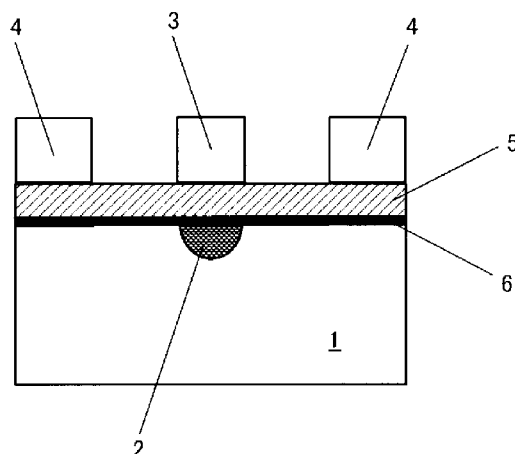
- (51) 国際特許分類:
G02F 1/035 (2006.01) G02B 6/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/068763
- (22) 国際出願日: 2012 年 7 月 25 日(25.07.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-162904 2011 年 7 月 26 日(26.07.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 住友大阪セメント株式会社(SUMITOMO OSAKA CEMENT CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町 6 番地 2 8 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 神力 孝 (SHINRIKI Takashi) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町 6 番地 2 8 住友大阪セメント株式会社内 Tokyo (JP). 藤野 哲也 (FUJINO Tetsuya) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町 6 番地 2 8 住友大阪セメント株式会社内 Tokyo (JP). 栗原 雅尚 (KURIHARA Masanao) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町 6 番地 2 8 住友大阪セメント株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 田村 爾, 外(TAMURA Chikashi et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂 1 丁目 3 番 1 9 号 芳明ビル 4 階 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, BN, 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, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: OPTICAL WAVEGUIDE ELEMENT

(54) 発明の名称 : 光導波路素子

[図2]



(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide an optical waveguide element that suppresses diffusion of carriers such as lithium ions into a buffer layer and for which a drive voltage is stable over a long period of time. The optical waveguide element has: a substrate (1) having an electrooptic effect; an optical waveguide pathway (2) formed in the substrate; a buffer layer (5) formed on the substrate; and modulation electrodes (3, 4) that are formed on the buffer layer and modulate light waves propagated in the optical waveguide pathway. The optical waveguide element is characterized by a maldistribution suppressing layer (6), which suppresses diffusion and maldistribution of metal ions included in the substrate into the buffer layer, provided between the optical waveguide pathway (2) and the buffer layer (5).

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2013/015294 A1



(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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

規則 4.17 に規定する申立て:

— 発明者である旨の申立て (規則 4.17(iv))

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

バッファ層中へのLi⁺イオン等のキャリアの拡散を抑制し、長期間に渡り駆動電圧が安定した光導波路素子を提供することを目的とする。電気光学効果を有する基板1と、該基板に形成された光導波路2と、該基板の上に形成されたバッファ層5と、該バッファ層上に形成され、該光導波路を伝搬する光波を変調する変調電極(3, 4)とを有する光導波路素子において、該光導波路2と該バッファ層5との間に、該基板に含まれる金属イオンが該バッファ層内に拡散し偏在することを抑制するための偏在抑制層6を設けることを特徴とする。

明 細 書

発明の名称：光導波路素子

技術分野

[0001] 本発明は光導波路素子に関し、特に、電気光学効果を有する基板に光導波路とバッファ層及び変調電極とを形成した光導波路素子に関する。

背景技術

[0002] 光通信分野や光計測分野において、ニオブ酸リチウム（ LiNbO_3 ）などの電気光学効果を有する基板上に光導波路と変調電極を形成した、光強度変調器などの光導波路素子は広く使われている。図1は、光導波路素子の一部を示す断面図であり、電気光学効果を有する基板1に、 Ti 等の熱拡散部を形成することで光導波路2を形成している。光導波路に電界を印加する変調電極として、信号電極3及び接地電極4が光導波路2の近傍に配置されている。

[0003] ニオブ酸リチウム等の電気光学効果を有する結晶を基板として利用する光導波路素子では、電気信号を伝搬させる電極により、光導波路を伝搬する信号光の吸収を防ぐため、 SiO_2 などのバッファ層5が形成されている。また、特許文献1に示すように、バッファ層の誘電損失やDCドリフト特性を両立させるため、スパッタ法などにより、 SiO_2 バッファ層中に In や Ti の酸化物を数％添加している。

[0004] しかしながら、バッファ層を形成した後に、アニール処理など製造プロセスの熱処理を行うと、基板1から Li イオンなどがバッファ層5中に拡散し易くなる。そして、このようなバッファ層を使用し、長期間に渡り電圧を印加し続けると、 Li イオン等のキャリアが導波路近傍に集積し、光導波路素子の駆動電圧が不安定になるという問題を生じていた。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平5－257105号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、上述した問題を解消し、バッファ層中へのLiイオン等のキャリアの拡散を抑制し、長期間に渡り駆動電圧が安定した光導波路素子を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] 上記課題を解決するため、請求項1に係る発明は、電気光学効果を有する基板と、該基板に形成された光導波路と、該基板の上に形成されたバッファ層と、該バッファ層上に形成され、該光導波路を伝搬する光波を変調する変調電極とを有する光導波路素子において、該光導波路と該バッファ層との間に、該基板に含まれる金属イオンが該バッファ層内に拡散し偏在することを抑制するための偏在抑制層を設けることを特徴とする。

[0008] 請求項2に係る発明は、請求項1に記載の光導波路素子において、該バッファ層は、In又はTiの少なくともいずれかを添加したSiO₂膜であることを特徴とする。

[0009] 請求項3に係る発明は、請求項1又は2に記載の光導波路素子において、該偏在抑制層は、SiO₂で形成されていることを特徴とする。

[0010] 請求項4に係る発明は、請求項1乃至3のいずれかに記載の光導波路素子において、該偏在抑制層の厚みは、30～200nmであることを特徴とする。

[0011] 請求項5に係る発明は、請求項1乃至4のいずれかに記載の光導波路素子において、該偏在抑制層の成膜は、スパッタ法又は化学気相成長法により形成することを特徴とする。

発明の効果

[0012] 請求項1に係る発明により、電気光学効果を有する基板と、該基板に形成された光導波路と、該基板の上に形成されたバッファ層と、該バッファ層上に形成され、該光導波路を伝搬する光波を変調する変調電極とを有する光導波路素子において、該光導波路と該バッファ層との間に、該基板に含まれる金属イオンが該バッファ層内に拡散し偏在することを抑制するための偏在抑

制層を設けるため、バッファ層を形成した後の熱処理などで、基板中の金属イオンがキャリアとしてバッファ層中に拡散するのを抑制でき、その後の駆動電圧の印加により該金属イオンが偏在するのも抑制できる。これにより、光導波路素子の駆動電圧を安定化することが可能となる。

[0013] 請求項2に係る発明により、バッファ層は、 In 又は Ti の少なくともいずれかを添加した SiO_2 膜であるが、バッファ層は、高周波信号の劣化を抑制するために形成した後にアニール処理などの熱処理によって緻密化する必要があり、特に基板からの Li イオン等の金属イオンがバッファ層中に拡散し易くなる。このため、本発明のように偏在抑制層を設けることで、このような金属イオンの拡散を抑制でき、光導波路素子の駆動電圧を安定化することが可能となる。

[0014] 請求項3に係る発明により、偏在抑制層は、 SiO_2 で形成されているため、基板からの金属イオンがバッファ層中に拡散するのを、効果的に抑制することが可能となる。

[0015] 請求項4に係る発明により、偏在抑制層の厚みは、 $30\sim200\text{nm}$ であるため、金属イオンの拡散を効果的に抑制しながら、DCドリフト特性が大きくなるのを抑制することが可能となる。

[0016] 請求項5に係る発明により、偏在抑制層の成膜は、スパッタ法又は化学気相成長法により形成するため、偏在抑制層の成膜とバッファ層の成膜とを、同一の製造装置で連続して行うことができ、基板の汚染を防ぎ、製造時間の短縮を図ることが可能となる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]従来の光導波路素子の一例を示す断面図である。

[図2]本発明の光導波路素子を示す断面図である。

[図3]偏在抑制層の厚みとDCドリフト特性との関係を示すグラフである。

[図4]偏在抑制層の厚みと駆動電圧劣化との関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の光導波路素子について、以下に詳細に説明する。

図2に示すように、本発明の光導波路素子は、電気光学効果を有する基板1と、該基板に形成された光導波路2と、該基板の上に形成されたバッファ層5と、該バッファ層上に形成され、該光導波路を伝搬する光波を変調する変調電極（3，4）とを有する光導波路素子において、該光導波路2と該バッファ層5との間に、該基板に含まれる金属イオンが該バッファ層内に拡散し偏在することを抑制するための偏在抑制層6を設けることを特徴とする。

[0019] 本発明に利用される基板としては、電気光学効果を有する材料を用いた基板が利用でき、例えば、ニオブ酸リチウム、タンタル酸リチウム、PLZT（ジルコン酸チタン酸鉛ランタン）、及び石英系の材料、並びにこれらの材料を組み合わせた基板が利用可能である。特に、電気光学効果の高いニオブ酸リチウム（LN）結晶が好適に利用される。また、Zカット型の基板では、光導波路の真上に変調電極が配置されるため、後述するバッファ層が必要となる。

[0020] 基板に光導波路を形成する方法としては、Tiなどの熱拡散法やプロトン交換法などで基板表面に拡散させることにより形成することができる。また、光導波路以外の基板をエッチングしたり、光導波路の両側に溝を形成するなど、基板に光導波路に対応する部分を凸状としたリッジ形状の導波路を利用することも可能である。

[0021] 光導波路素子では、基板1上に信号電極3や接地電極4などの変調電極が形成される。このような電極は、Auの電極パターンの形成及び金メッキ方法などにより形成することが可能である。

[0022] 光導波路2と変調電極（3，4）の間には、バッファ層5が設けられている。バッファ層には、誘電損失とDCドリフト特性を改善するため、SiO₂層中にスパッタ法などで、InやTi又はこれらの酸化物を数%添加している。バッファ層の厚みは、光波の電極による吸収を抑制し、電極が形成する電界が光導波路に効果的に印加されるような条件を考慮して、500nm～1000nm、特に、600nm程度に設定することが好ましい。

[0023] 本発明の光導波路素子の特徴は、光導波路2を形成した基板1に、偏在抑

制層 6 を設けていることである。これにより、バッファ層を形成した後の熱処理などで、基板中の金属イオンがキャリアとしてバッファ層中に拡散するのを抑制でき、その後の駆動電圧の印加により該金属イオンが偏在するのを抑制できる。これにより、光導波路素子の駆動電圧を安定化することが可能となる。

[0024] 特に、バッファ層 5 に、 In 又は Ti の少なくともいずれかを添加した SiO_2 膜を利用する場合には、スパッタ法などでバッファ層 5 を形成した後にアニール処理（例えば、 600°C での熱処理）などの熱処理を行う必要がある。ここで、 In 又は Ti の少なくともいずれかを添加した SiO_2 膜をスパッタ法で形成する場合は、予め所望の組成に調整された混合焼結体ターゲットを使用するのが組成の再現性の点から有効であるが、この場合は、ターゲットの密度を高くすることが困難であるため、形成された膜も、低密度なものとなる傾向があり、結果として高周波信号の劣化が生じる。さらに、この膜を熱処理することにより、基板からの Li イオン等の金属イオンがバッファ層中に拡散し易くなるため、本発明のように偏在抑制層 6 を設けることで、このような金属イオンの拡散を抑制できる。

[0025] 偏在抑制層 6 としては、 SiO_2 膜が好適に利用可能である。偏在抑制層の成膜方法は、スパッタ法、蒸着法、化学気相成長（CVD）法などいずれの成膜方法でも良いが、例えば、 In や Ti を添加した SiO_2 層のようなバッファ層まで、同一製造装置内で連続して成膜できる方法が、基板 1 の汚染を防ぐ観点や、製造プロセスの時間を短縮する観点からも有効である。また、 SiO_2 ターゲットは、焼結体と異なり、高密度なものを得ることが出来るため、形成された膜も高密度に保つことが出来、 Li イオン等の金属イオンの拡散をより効果的に抑制出来る。具体的には、異なる組成を連続して成膜できるスパッタ法が望ましい。

[0026] 偏在抑制層の膜厚は、偏在抑制効果と DC ドリフト特性の二つを両立させるため、 $30 \sim 200 \text{ nm}$ 程度とする。図 3 は、偏在抑制層の厚みを $10 \text{ nm} \sim 600 \text{ nm}$ の範囲で変化させた際に、DC ドリフト特性の変化の様子を

示している。図3のグラフからも明らかなように、偏在抑制層の厚みが増すに従ってDCドリフト特性が大きくなり、特に300nm以上の厚みでは、DCドリフトの許容範囲を超え、光導波路素子としての性能が大幅に低下していることが容易に理解される。

[0027] 図4は、偏在抑制層の厚みの変化に対する駆動電圧劣化の様子を示すグラフである。駆動電圧劣化は、専ら、基板1中のLiなどの金属イオンがバッファ層5中に拡散することにより発生しているため、駆動電圧の劣化が少ないことは、金属イオンの拡散を効果的に抑制できていることを意味する。図4から偏在抑制層の厚みが30nm以上の場合には、駆動電圧劣化を効果的に改善していることが理解される。

[0028] 図3及び図4の結果からも、偏在抑制層の厚みは、30～200nmが適切であり、特に、100nm程度が最も好ましい。

[0029] 本発明の偏在抑制層は、熱処理などにより、基板中の金属イオンがバッファ層へ拡散するのを効果的に抑制できる。仮に、InやTiを添加したバッファ層を成膜した後、熱処理条件を緩和（処理温度を下げる又は、処理時間を短縮）して、基板中のLiなどのキャリアがバッファ層中に混入することを抑制した場合にも、駆動電圧の劣化を抑制できる。しかしながら、駆動電圧が劣化しない程度まで、キャリアの混入が抑制できるような熱処理条件に緩和した場合には、DCドリフト特性が劣化するため、本発明のように、駆動電圧の劣化抑制とDCドリフト特性の改善を両立させることはできない。

産業上の利用可能性

[0030] 以上説明したように、本発明によれば、バッファ層中へのLiイオン等のキャリアの拡散を抑制し、長期間に渡り駆動電圧が安定した光導波路素子を提供することが可能となる。

符号の説明

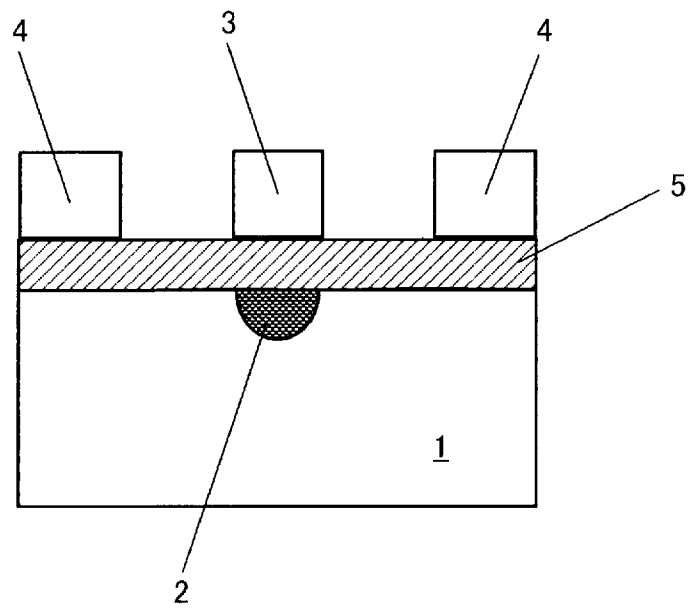
- [0031] 1 電気光学効果を有する基板
2 光導波路
3 信号電極

- 4 接地電極
- 5 バッファ層
- 6 偏在抑制層

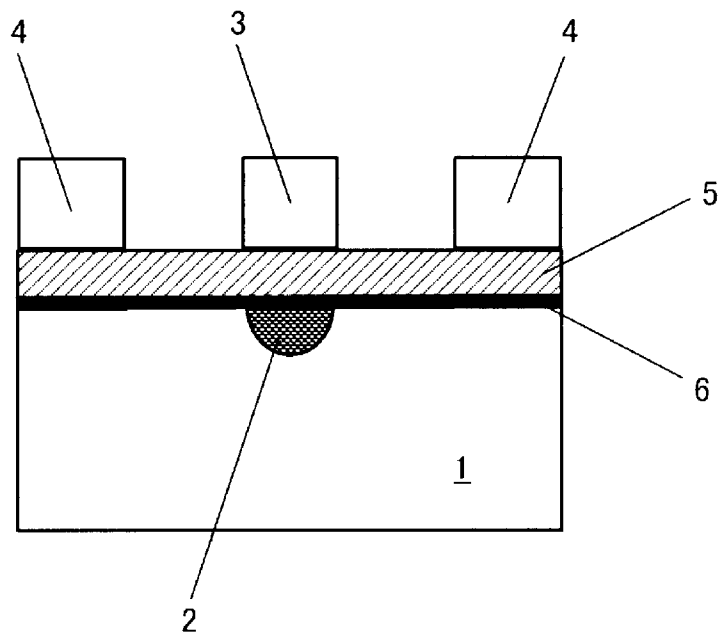
請求の範囲

- [請求項1] 電気光学効果を有する基板と、該基板に形成された光導波路と、該基板の上に形成されたバッファ層と、該バッファ層上に形成され、該光導波路を伝搬する光波を変調する変調電極とを有する光導波路素子において、
- 該光導波路と該バッファ層との間に、該基板に含まれる金属イオンが該バッファ層内に拡散し偏在することを抑制するための偏在抑制層を設けることを特徴とする光導波路素子。
- [請求項2] 請求項1に記載の光導波路素子において、該バッファ層は、In又はTiの少なくともいずれかを添加したSiO₂膜であることを特徴とする光導波路素子。
- [請求項3] 請求項1又は2に記載の光導波路素子において、該偏在抑制層は、SiO₂で形成されていることを特徴とする光導波路素子。
- [請求項4] 請求項1乃至3のいずれかに記載の光導波路素子において、該偏在抑制層の厚みは、30～200nmであることを特徴とする光導波路素子。
- [請求項5] 請求項1乃至4のいずれかに記載の光導波路素子において、該偏在抑制層の成膜は、スパッタ法又は化学気相成長法により形成することを特徴とする光導波路素子。

[図1]

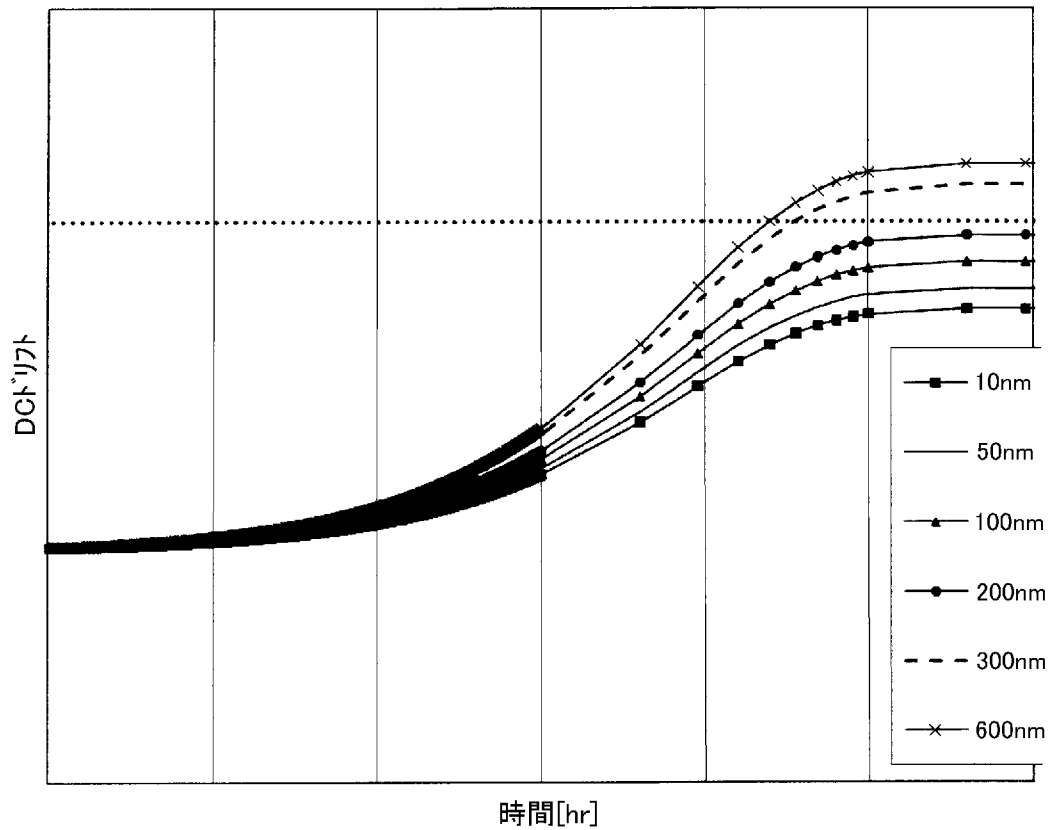


[図2]



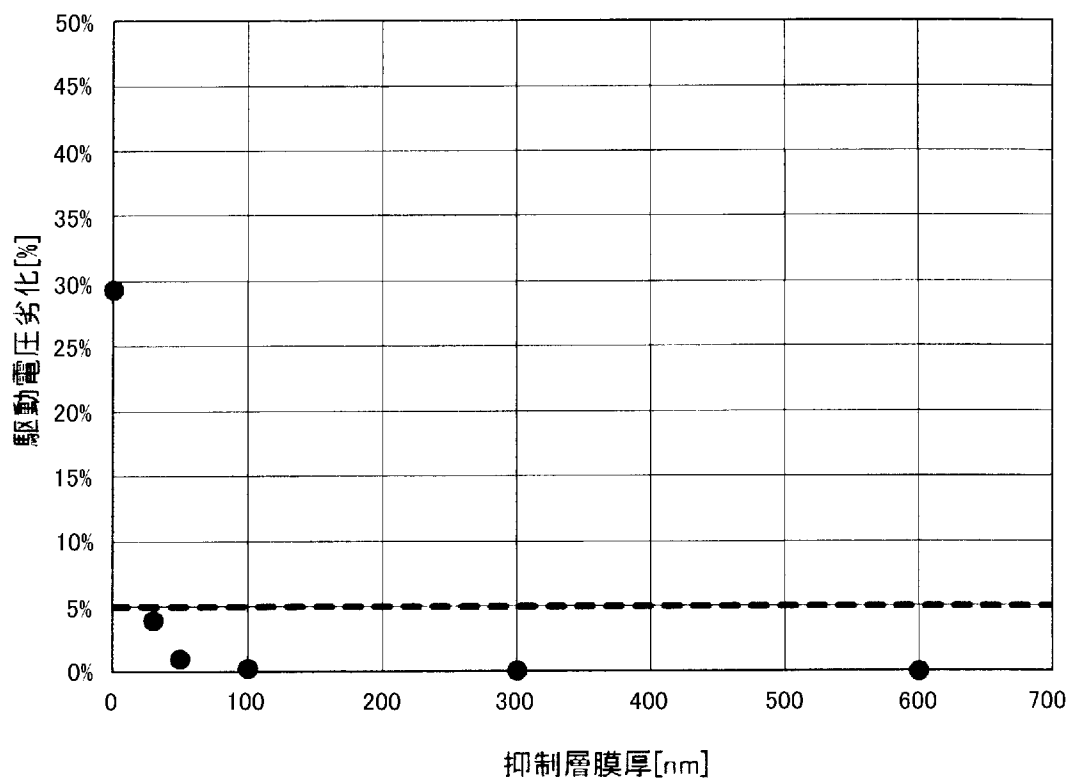
[図3]

キャリア偏在抑制層膜厚とDCドリフトの関係



[図4]

キャリア偏在抑制層膜厚と駆動電圧劣化の関係



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/068763

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02F1/035(2006.01) i, G02B6/12(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)

G02F1/035, G02B6/12

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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 2008-233513 A (Anritsu Corp.), 02 October 2008 (02.10.2008), paragraphs [0129] to [0143]; fig. 9 to 13 (Family: none)	1-5
X A	JP 6-75195 A (NEC Corp.), 18 March 1994 (18.03.1994), paragraph [0015]; fig. 1 (Family: none)	1 2-5
X A	US 5949944 A (Lucent Technologies Inc.), 07 September 1999 (07.09.1999), page 4, column 2, lines 40 to 67; fig. 1 (Family: none)	1, 3 2, 4-5

☒ 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
13 August, 2012 (13.08.12)

Date of mailing of the international search report
21 August, 2012 (21.08.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/068763

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2005-515499 A (Codeon Corp.), 26 May 2005 (26.05.2005), paragraph [0023]; fig. 4 & US 2003/0128930 A1 & US 2003/0128954 A1 & US 2005/0047720 A1 & EP 1463973 A & EP 1463974 A & WO 2003/060605 A1 & WO 2003/058336 A1	1, 3, 4 2, 5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. G02F1/035 (2006.01)i, G02B6/12 (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 (I P C))

Int.Cl. G02F1/035, G02B6/12

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 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 2008-233513 A (アンリツ株式会社) 2008. 10. 02, 【0129】-【0143】、 【図 9】 - 【図 13】 (ファミリーなし)	1-5
X A	JP 6-75195 A (日本電気株式会社) 1994. 03. 18, 【0015】、【図 1】 (フ ァミリーなし)	1 2-5
X A	US 5949944 A (Lucent Technologies Inc.) 1999. 09. 07, 第 4 頁第 2 カラム第 40-67 行、Fig. 1 (ファミリーなし)	1, 3 2, 4-5

☒ 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

1 3 . 0 8 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

2 1 . 0 8 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

植田 高盛

2 X

2 9 1 2

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 2 9 4

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
X A	JP 2005-515499 A (コディオン コーポレーション) 2005.05.26, 【0023】、【図4】 & US 2003/0128930 A1 & US 2003/0128954 A1 & US 2005/0047720 A1 & EP 1463973 A & EP 1463974 A & WO 2003/060605 A1 & WO 2003/058336 A1	1, 3, 4 2, 5