(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
2023年3月23日(23.03.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/042913 A1

(51) 国際特許分類:
A61K 6/30 (2020.01) *A61K 6/62* (2020.01)
A61K 6/58 (2020.01) *A61K 6/887* (2020.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2022/034823

(22) 国際出願日： 2022年9月16日(16.09.2022)

(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 2021-152634 2021年9月17日(17.09.2021) JP

(71) 出願人: クラレノリタケデンタル株式会社(**KURARAY NORITAKE DENTAL INC.**) [JP/JP]; 〒7100801 岡山県倉敷市酒津１６２１番地 Okayama (JP).

(72) 発明者: 鈴木 憲司(**SUZUKI, Kenji**); 〒9592653 新潟県胎内市倉敷町２番２８号 クラレノリタケデンタル株式会社内 Niigata (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人大谷特許事務所(**OHTANI PATENT OFFICE**); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目２５番２号 虎ノ門ＥＳビル７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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

WO 2023/042913 A1

(54) **Title:** METHOD FOR PRODUCING DENTURE

(54) 発明の名称： 義歯の製造方法

(57) **Abstract:** The present invention relates to a method for producing a denture, the method being characterized by bonding a denture floor material to an artificial tooth with an adhesive composition, in which the denture floor material is a stereolithographically formed product of a curable composition (I) that comprises a (meth)acrylic polymerizable monomer component (A) containing a (meth)acrylic polymerizable monomer (m) as a main monomer and a photopolymerization initiator, the artificial tooth comprises an acrylic resin (II), and the adhesive composition comprises a composition (III) that contains a (meth)acrylic polymerizable monomer component (C) containing the same (meth)acrylic polymerizable monomer (m) as that contained in the curable composition (I).

(57) 要約：主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）、及び光重合開始剤を含有する硬化性組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）を含有する接着剤組成物を用いて接着することを特徴とする、義歯の製造方法に関する。

明　細　書

発明の名称 ： 義歯の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、特定の接着剤組成物を用いて、光造形された義歯床と人工歯とを接着することを特徴とする、義歯の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、義歯の製作には、次のようなロストワックス法と言われる手法が用いられてきた。まず、患者の口腔内の型をとり、これを基に作製された石膏模型上に、ベースプレートを形成し、さらにその上に蝋提と呼ばれるワックス製の歯肉部分を築盛し、咬合床を作製する。次に、咬合採得した後、アクリル樹脂製の人工歯を排列し、咬合調整、歯肉形成を経て、蝋義歯を完成させる。続いて、埋没と呼ばれる蝋義歯と石膏模型をフラスコという枠の中に石膏で埋め込む作業の後、熱湯でワックスを溶融して除去し、プレートも除去した後、空壁部分にアクリル樹脂を流し込み、硬化させて、最後に、仕上げの作業を経て、義歯を完成させる。この方法は多数の製作ステップがかかるだけでなく、義歯作製には数μｍ単位の極めて高い寸法精度が要求されるため、多大な時間だけでなく、技工士の熟練を必要としていた。

[0003] 近年、一定品質の義歯を短時間で安定して供給できる方法として、コンピューターを利用して画面上で義歯の設計を行い、レジン材料やセラミックス製のブロックから切削加工によって義歯を製作するＣＡＤ／ＣＡＭシステムが注目され、セレックシステムに代表されるような義歯の設計・製作システムが普及している。中でも、光造形による３Ｄプリンターを使用したシステムが急速に拡大している。

光造形法では、床と人工歯部分が別々に作製されるため、それぞれを作製した後、接着させる必要がある。しかしながら、光造形法では光で瞬時に硬化させるため、特に硬化性の高い重合性化合物を使用する必要があり、架橋性モノマーや高い凝集力を発現するモノマーが使用される。そのため、光造

形法によって作製される義歯床材料は架橋密度が高く、凝集力が強い。一般的に、修復目的などの人工歯と床の接着には、重合開始剤を配合したメチルメタクリレート（ＭＭＡ）とアクリル樹脂粉からなる接着剤が使用されるが、光造形で作製された床には、浸透しにくく、十分な接着力が得られないという問題があった。

[0004] また、歯科用の接着性材料（接着性組成物）としては、歯質に対して適用されるもの、歯科用コンポジットレジンに対して適用されるもの、その他、金属やセラミックス製の歯科用補綴物に対して適用されるものが広く知られている。これらの用途を対象とした歯科用の接着性材料は、酸性モノマーやシランカップリング剤、含硫黄モノマー等、各被着体に対して、化学的結合を形成するものであるが、義歯床材料に対する接着性材料は、これらの用途における接着性材料と技術及び接着性の発現機構が全く異なる。

このような背景の中、特許文献１には、ＣＡＤ／ＣＡＭシステムを用いて作製された義歯床とアクリル樹脂製の人工歯を、ＭＭＡとＰＭＭＡからなる粉液型のレジンで接着させた義歯の作製例が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第２０１８／１５９５０７号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献１は、特定の形状に床をデザインした例であり、光造形で作製された義歯床と人工歯の接着性の課題については記載されていない。

そこで、本発明は、光造形によって作製される義歯床と、アクリル系樹脂製の人工歯とを強固に接着させることを特徴とする、義歯の製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] すなわち、本発明は、以下の発明を包含する。

［１］ 主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）、及び光重合開始剤を含有する硬化性組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、

前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）を含有する接着剤組成物を用いて接着することを特徴とする、義歯の製造方法。

［２］ 前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）が、多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）である、前記［１］に記載の義歯の製造方法。

［３］ 前記多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）が、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、及びウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物から選ばれる少なくとも１種である、前記［２］に記載の義歯の製造方法。

［４］ 前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）が、単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）を含有する、前記［１］～［３］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

［５］ 前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）が、単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）を含有する、前記［１］～［４］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

［６］ 前記単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）が、芳香環を含有する(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体である、前記［４］又は［５］に記載の義歯の製造方法。

［７］ 前記硬化性組成物（Ｉ）中、前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）の含有量が、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）１００質量％中、５０質量％以上である、前記［１］～［６］のいずれか１つに記

載の義歯の製造方法。

［８］　前記組成物（III）中、前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）の含有量が、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）１００質量％中、５０質量％以上である、前記［１］～［７］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

［９］　前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）を、前記硬化性組成物（Ｉ）１００質量％中、４０質量％以上含有する、前記［１］～［８］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

［１０］　前記（メタ）アクリル系重合性単量体（Ｃ）を、前記組成物（III）１００質量％中、４０質量％以上含有する、前記［１］～［９］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

［１１］　下記工程（１）及び（２）をこの順で有する、前記［１］～［１０］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

工程（１）：前記接着剤組成物を、前記義歯床及び前記人工歯から選ばれる少なくとも一方に塗布する工程

工程（２）：前記義歯床と、前記人工歯とを、前記接着剤組成物を介して互いに圧着する工程

［１２］　活性エネルギー光線を前記接着剤組成物に対して照射し、前記接着剤組成物を硬化させることによって、前記義歯床と、前記人工歯とを接着する、前記［１］～［１１］のいずれか１つに記載の義歯の製造方法。

発明の効果

[0008]　本発明によれば、光造形によって作製される義歯床と、アクリル系樹脂製の人工歯とを強固に接着させることを特徴とする、義歯の製造方法を提供することができる。

発明を実施するための形態

[0009]　以下、本発明について実施形態を用いて詳細に説明する。

本明細書において、数値範囲（各成分の含有量、各成分から算出される値及び各物性等）の上限値及び下限値は適宜組み合わせ可能である。

すなわち、本明細書において、同一事項に対する数値範囲について、段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、同一事項に対する「好ましくは１０～９０、より好ましくは３０～６０」という記載から、「好ましい下限値（１０）」と「より好ましい上限値（６０）」とを組み合わせて、「１０～６０」とすることもできる。

また、数値範囲について、例えば、「好ましくは１０～９０、より好ましくは３０～６０」との記載に基づいて、上限値は特に規定せずに下限値側だけ「１０以上」又は「３０以上」と規定することもでき、同様に、下限値は特に規定せずに上限値側だけ「９０以下」又は「６０以下」と規定することもできる。

なお、特に言及しない限り、数値範囲として単に「１０～９０」と記載する場合、１０以上９０以下の範囲を表す。

前記同様、例えば、同一事項に対する「好ましくは１０以上、より好ましくは３０以上」の記載と「好ましくは９０以下、より好ましくは６０以下」という記載から、「好ましい下限値（１０）」と「より好ましい上限値（６０）」とを組み合わせて、「１０以上６０以下」とすることもできる。また、前記同様、下限値側だけ「１０以上」又は「３０以上」と規定することもでき、同様に、上限値側だけ「９０以下」又は「６０以下」と規定することもできる。

また、本明細書において、「（メタ）アクリル」との表記は、「メタクリル」又は「アクリル」の両者を包含する意味で用いられる。「（メタ）アクリレート」、「（メタ）アクリルアミド」、「（メタ）アクリロイルオキシ」等のこれに類する表記も同様である。

また、本明細書において、特に言及しない限り、同一の符号を有する用語（例えば、「組成物（Ｉ）」、「アクリル系樹脂（II）」、「組成物（III）」、「単量体（ｍ）」、「単量体（ｏ）」、「単量体（ａ－１）」、「単量体（ａ－２）」、「成分（Ａ）」、「成分（Ｃ）」等）は、同一のものを指

す。

また、本明細書において、特に言及しない限り、「接着性」との表記は、義歯床と人工歯との接着性を指す。

[0010] ［義歯の製造方法］

本発明の一態様である義歯の製造方法は、主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）、及び光重合開始剤を含有する硬化性組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）を含有する接着剤組成物を用いて接着することを特徴とする。

[0011] 硬化性組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床に、前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）を含有する接着剤組成物を接着剤として用いることによって、前記硬化性組成物（Ｉ）から造形された義歯床表面に前記組成物(III)を含有する接着剤組成物が浸透し易くなる。そして、硬化性組成物（Ｉ）と組成物（III）に含まれる同一成分である（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）の相互作用、例えば、水素結合、疎水性相互作用、π電子相互作用が得られるため、より強固な接着性が得られるものと推測される。

また、前記組成物（III）は、アクリル系樹脂（II）とも親和性があることから、硬化性組成物（Ｉ）の光造形である義歯床とアクリル系樹脂(II)からなる人工歯とをより強く接着させることができると推測される。

以下、本発明の一態様である義歯の製造方法に用いることができる各成分について説明する。

[0012] ［硬化性組成物（Ｉ）］

前記硬化性組成物（Ｉ）（以下、単に「組成物（Ｉ）」ともいう。）は、主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）（以下、単に「単量

体（ｍ）」ともいう。）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）（以下、単に「成分（Ａ）」ともいう。）、及び光重合開始剤を含有する。組成物（Ｉ）は、光硬化性を有する。

[0013] ＜（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）＞

前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）は、（メタ）アクリル系重合性単量体１種単独で又は２種以上から構成される成分であって、主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む。

ここで、本明細書において、「主単量体」とは、成分（Ａ）を構成する（メタ）アクリル系重合性単量体のうち、最も含有量が多い（メタ）アクリル系重合性単量体を指す。

また、本明細書において、「（メタ）アクリル系重合性単量体成分」とは、（メタ）アクリル系重合性単量体１種単独又は２種以上から構成される成分のことを指し、前記成分（Ａ）、及び、後述する「（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）」についても同様である。

また、本明細書において、「（メタ）アクリル系重合性単量体」とは、「（メタ）アクリル系重合性単量体成分」を構成する具体的な１つの化合物、すなわち、特定の（メタ）アクリル系重合性単量体のことを指し、前記単量体（ｍ）、並びに、後述する「多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）」及び「単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）」についても同様である。

成分（Ａ）中、主単量体として含まれる単量体（ｍ）の含有量は、成分（Ａ）中で最も多く、単量体（ｍ）以外の（メタ）アクリル系重合性単量体（ｏ）（以下、単に「単量体（ｏ）」ともいう。）の含有量以上であれば特に制限はないが、例えば、成分（Ａ）１００質量％中、好ましくは２０質量％以上、より好ましくは３０質量％以上、更に好ましくは４０質量％以上、より更に好ましくは５０質量％以上、より更に好ましくは５５質量％以上、より更に好ましくは６０質量％以上、より更に好ましくは６５質量％以上であり、例えば、１００質量％以下、好ましくは９８質量％以下、より好ましく

は９５質量％以下、更に好ましくは９０質量％以下、より更に好ましくは８５質量％以下、より更に好ましくは８０質量％以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、成分（Ａ）中、単量体（ｍ）の含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、好ましくは２０～１００質量％、より好ましくは３０～１００質量％、更に好ましくは４０～９８質量％、より更に好ましくは５０～９５質量％、より更に好ましくは５５～９０質量％、より更に好ましくは６０～８５質量％、より更に好ましくは６５～８０質量％である。

前述のとおり、成分（Ａ）は、単量体（ｍ）単独で、又は、単量体（ｍ）と単量体（ｏ）とから構成される成分である。成分（Ａ）は、単量体（ｏ）を複数含有してもよい。したがって、成分（Ａ）中、単量体（ｍ）及び単量体（ｏ）の合計含有量は１００質量％である。

[0014] （（メタ）アクリル系重合性単量体）

成分（Ａ）を構成する（メタ）アクリル系重合性単量体としては、例えば、（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、（メタ）アクリルアミド系重合性単量体が挙げられる。

前記（メタ）アクリル系重合性単量体としては、重合性基を複数有する多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）（以下、単に「多官能性単量体（ａ－１）」ともいう。）、及び重合性基を１個有する単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）（以下、単に「単官能性単量体（ａ－２）」ともいう。）が挙げられる。

そして、接着性をより優れたものとする観点から、成分（Ａ）は、多官能性単量体（ａ－１）を含むことが好ましく、主単量体として含む（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）が、多官能性単量体（ａ－１）であることがより好ましい。

また、成分（Ａ）は、単官能性単量体（ａ－２）を含むことが好ましく、組成物（Ｉ）が硬化性に優れ、後述する接着剤の義歯床に対する浸透性が得

易く、優れた接着性をより発現し易くなる観点から、多官能性単量体（ａ－１）及び単官能性単量体（ａ－２）を共に含むことがより好ましく、主単量体として多官能性単量体（ａ－１）を含み、更に単官能性単量体（ａ－２）を含むことが更に好ましい。なお、後述する成分（Ｃ）が単量体（ａ－２）を含む場合も、組成物（III）の硬化性に優れ、接着剤組成物の義歯床と人工歯に対する浸透性が得やすく、優れた接着性をより発現し易くなる観点から、好適な態様について同様である。

また、成分（Ａ）は、多官能性単量体（ａ－１）を１種単独で又は２種以上含んでもよく、同様に、単官能性単量体（ａ－２）を１種単独で又は２種以上含んでもよい。

[0015]〔多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）〕

多官能性単量体（ａ－１）は、組成物（Ｉ）の硬化性向上、及び、接着性向上の観点から、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物、及び脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種が好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、及びウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物から選ばれる少なくとも１種がより好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物が更に好ましい。換言すれば、前記成分（Ａ）は、前述した多官能性単量体（ａ－１）として、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物、及び脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種を含むことが好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、及びウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物から選ばれる少なくとも１種を含むことがより好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物を含むことが更に好ましい。

また、前述のとおり、成分（Ａ）は、主単量体として含む（メタ）アクリル

系重合性単量体（ｍ）として、多官能性単量体（ａ－１）であるウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物、及び脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種を含むことが好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、及びウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物から選ばれる少なくとも１種を含むことがより好ましく、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物を含むことが更に好ましい。

ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の(メタ)アクリル酸エステル化合物の場合、当該化合物は、水酸基、１級アミノ基、及び２級アミノ基からなる群より選ばれる少なくとも１種を含有していることがより好ましい。

これらの化合物は、ウレタン結合、芳香族骨格、水酸基、１級アミノ基、２級アミノ基の誘電的効果によって、硬化を促進するだけでなく、水素結合やπ電子の作用などの化学的な結合を生成するものと推測される。中でもウレタン結合を有するウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物は、義歯に靭性を付与する効果も大きいため、接着界面及び塗膜からの破壊、ヒビが発生しにくく、得られる義歯が優れた曲げ強さを発現できるため好ましい。

[0016] {ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物}

ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物は、例えば、アルキレン骨格及びフェニレン骨格から選ばれる１種以上を含有し、かつ、イソシアネート基を有する化合物と、水酸基（－ＯＨ）を有する（メタ）アクリレート化合物とを付加反応させることにより、容易に合成することができる。

また、組成物（Ｉ）が低粘度で造形し易く、後述する接着剤組成物が浸透し易くなる観点から、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物の重量平均分子量は１０００以下であることが好ましい。また、後述する成分（Ｃ）がウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物を含む場合も、接着剤組成物が低粘度で塗布し易く、接着剤組成物の義歯床と人工歯に対する浸透性が得られやすくなる観点から、同様である。前述した観点から、前記重量平

均分子量は７５０以下であることがより好ましく、５００以下であることが更に好ましい。ここでいう重量平均分子量とは、ゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）で求めたポリスチレン換算の重量平均分子量を意味する。なお、ウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物がポリマー構造を含有しない場合、重量平均分子量の概念がないため、分子量を適用する。

更に、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物は、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリウレタン、ポリエーテル等のポリマー構造を含有していない化合物であることが好ましい。これらの構造を含有していないことで、極性を有する官能基濃度の上昇が抑えられ、口腔内のような水分存在下での接着性の低下を抑制することができる。とりわけウレタン結合は水分存在下での接着性の観点から１分子内に３個以下であることが好ましく、２個以下であることがより好ましい。換言すれば、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物中のウレタン結合は、好ましくは１分子内に１～３個であり、より好ましくは１分子内に１個又は２個である。

[0017] アルキレン骨格及びフェニレン骨格から選ばれる１種以上を含有し、かつ、イソシアネート基を有する化合物としては、例えば、メチレンジイソシアネート（略称「ＭＤＩ」）、ヘキサメチレンジイソシアネート（略称「ＨＤＩ」）、イソホロンジイソシアネート（略称「ＩＰＤＩ」）、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート（略称「ＴＭＨＭＤＩ」）、トリシクロデカンジイソシアネート（略称「ＴＣＤＤＩ」）、アダマンタンジイソシアネート（略称「ＡＤＩ」）、トリレンジイソシアネート（略称「ＴＤＩ」）、キシリレンジイソシアネート（略称「ＸＤＩ」）、及びジフェニルメタンジイソシアネート（略称「ＤＰＭＤＩ」）等が挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらの中でも、入手しやすさ、黄変しにくい観点から、ＨＤＩ、ＩＰＤＩ、ＴＭＨＭＤＩ、ＴＣＤＤＩが好ましく、ＩＰＤＩ、ＴＭＨＭＤＩがより好ましい。

[0018] 水酸基を有する（メタ）アクリレート化合物としては、例えば、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、２－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、６－ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、１０－ヒドロキシデシル（メタ）アクリレート、３－クロロ－２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシ－３－フェノキシプロピル（メタ）アクリレート、グリセリンモノ（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシ－３－アクリロイルオキシプロピル（メタ）アクリレート、２，２－ビス［４－〔３－（メタ）アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ〕フェニル］プロパン、１，２－ビス〔３－（メタ）アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ〕エタン、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールのトリ又はテトラ（メタ）アクリレート等のヒドロキシ（メタ）アクリレート化合物等が挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらの中でも、優れた接着性を発現し易くする観点から、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、２－ヒドロキシ－３－アクリロイルオキシプロピル（メタ）アクリレートが好ましく、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレートがより好ましい。

[0019] アルキレン骨格及びフェニレン骨格から選ばれる１種以上を含有し、かつ、イソシアネート基を有する化合物と、水酸基を有する（メタ）アクリレート化合物との付加反応は、公知の方法に従って行うことができ、特に限定はない。

[0020] ポリマー構造を含有しないウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物の例としては、２，２，４－トリメチルヘキサメチレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレート（略称「ＵＤＭＡ」）、２，４－トリレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレート、ビスヒドロキシエチルメタクリレート－イソホロンジウレタン、２，４－トリレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレート、Ｎ，Ｎ’－（２，２，４－トリメチルヘキサメチレン）ビス［２－（アミノカルボキシ）プロパン－１，３－ジオール］テトラメタクリレート、ヘキサメチレンビス｛２－カ

ルバモイルオキシ－3－フェノキシプロピル｝ジアクリレート、２，４－トリレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ヘキサアクリレート等が挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらの中でも、接着性向上の観点から、２，２，４－トリメチルヘキサメチレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレート、Ｎ，Ｎ’－（２，２，４－トリメチルヘキサメチレン）ビス［２－（アミノカルボキシ）プロパン－１，３－ジオール］テトラメタクリレートが好ましく、２，２，４－トリメチルヘキサメチレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレートがより好ましい。

[0021] 成分（Ａ）が、多官能性単量体（ａ－１）であるウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物を含有する場合、成分（Ａ）中、当該ウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物の含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、１０～１００質量％であることが好ましく、接着性がより優れる観点から、３０～９５質量％であることがより好ましく、５０～９０質量％であることが更に好ましく、６０～８０質量％であることがより更に好ましい。

また、本発明の一態様において、ウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物の含有量は、多官能性単量体（ａ－１）の合計１００質量％中、好ましくは５０～１００質量％、より好ましくは６０～１００質量％、更に好ましくは７０～１００質量％、より更に好ましくは８０～１００質量％、より更に好ましくは９０～１００質量％、より更に好ましくは９５～１００質量％である。

[0022] ｛ウレタン結合を有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物｝

ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物としては、２，２－ビス（（メタ）アクリロイルオキシフェニル）プロパン、２，２－ビス〔４－（３－アクリロイルオキシ）－２－ヒドロキシプロポキシフェニル〕プロパン、２，２－ビス〔４－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）フェニル〕プロパン（略称「Ｂｉｓ－

ＧＭＡ」）、２，２－ビス〔４－｛２－（３－アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）プロピル｝フェニル〕プロパン、２，２－ビス〔４－｛２－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）プロピル｝フェニル〕プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシポリエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシジエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシテトラエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシペンタエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシジプロポキシフェニル）プロパン、２－（４－（メタ）アクリロイルオキシジエトキシフェニル）－２－（４－（メタ）アクリロイルオキシエトキシフェニル）プロパン、２－（４－（メタ）アクリロイルオキシジエトキシフェニル）－２－（４－（メタ）アクリロイルオキシトリエトキシフェニル）プロパン、２－（４－（メタ）アクリロイルオキシジプロポキシフェニル）－２－（４－（メタ）アクリロイルオキシトリエトキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシプロポキシフェニル）プロパン、２，２－ビス（４－（メタ）アクリロイルオキシイソプロポキシフェニル）プロパン、１，４－ビス（２－（メタ）アクリロイルオキシエチル）ピロメリテート等が挙げられる。これらは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらの中でも、接着性が優れる観点から、水酸基を含有する化合物が好ましく、具体的には、２，２－ビス〔４－（３－アクリロイルオキシ）－２－ヒドロキシプロポキシフェニル〕プロパン、２，２－ビス〔４－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）フェニル〕プロパン、２，２－ビス〔４－｛２－（３－アクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）プロピル｝フェニル〕プロパン、２，２－ビス〔４－｛２－（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）プロピル｝フェニル〕プロパンが好ましい。これらの中でも、２，２－ビス〔４－（３－メタクリロイルオキシ

－２－ヒドロキシプロポキシ）フェニル〕プロパンがより好ましい。

[0023] 成分（Ａ）が、多官能性単量体（ａ－１）であるウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の(メタ)アクリル酸エステル化合物を含有する場合、成分（Ａ）中、当該ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の(メタ)アクリル酸エステル化合物の含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、５～９５質量％であることが好ましく、接着性がより優れる観点から、１０～９０質量％であることがより好ましく、２０～８５質量％であることが更に好ましく、３０～８０質量％であることがより更に好ましく、５０～７０質量％であることがより更に好ましい。

また、本発明の一態様において、ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の(メタ)アクリル酸エステル化合物の含有量は、多官能性単量体（ａ－１）の合計１００質量％中、好ましくは５０～１００質量％、より好ましくは６０～１００質量％、更に好ましくは７０～１００質量％、より更に好ましくは８０～１００質量％、より更に好ましくは９０～１００質量％、より更に好ましくは９５～１００質量％である。

[0024] {脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物}

脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物としては、トリシクロデカンジメタノールジ（メタ）アクリレート、シクロヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、アダマンタンジオールジ（メタ）アクリレート等が挙げられる。これらの中でも、トリシクロデカンジメタノールジ（メタ）アクリレートが好ましい。

[0025] 成分（Ａ）が、多官能性単量体（ａ－１）である脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物を含有する場合、成分（Ａ）中、当該脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物の含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、３０～１００質量％であることが好ましく、義歯の強度がより優れる観点から、５０～９８質量％であることがより好ましく、７０～９５質量％であることが更に好ましい。

また、本発明の一態様において、脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合

物の含有量は、多官能性単量体（ａ－１）の合計１００質量％中、好ましくは５０～１００質量％、より好ましくは６０～１００質量％、更に好ましくは７０～１００質量％、より更に好ましくは８０～１００質量％、より更に好ましくは９０～１００質量％、より更に好ましくは９５～１００質量％である。

[0026] {他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体}

前記ウレタン化(メタ)アクリル酸エステル化合物、ウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の(メタ)アクリル酸エステル化合物、脂環式（メタ）アクリル酸エステル化合物以外の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、すなわち、他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体（以下、「他の多官能性重合性単量体」ともいう。）としては、グリセロールジ（メタ）アクリレート、エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、プロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，３－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，４－ブタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、２－エチル－１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、１，１０－デカンジオールジ（メタ）アクリレート、１，２－ビス（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）エタン、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート等が挙げられる。これらの中でも、接着性がより優れる観点から、グリセロールジ（メタ）アクリレート、１，２－ビス（３－メタクリロイルオキシ－２－ヒドロキシプロポキシ）

エタン、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレートが好ましく、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレートがより好ましい。これらは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0027] 成分（Ａ）が、他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体を含有する場合、成分（Ａ）中、他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体の含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、１～５０質量％であることが好ましく、５～４０質量％であることがより好ましく、８～３５質量％であることが更に好ましい。

また、本発明の一態様において、成分（Ａ）が、他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体を含有する場合、他の多官能性の（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体の含有量は、多官能性単量体（ａ－１）の合計１００質量％中、好ましくは１～５０質量％、より好ましくは１～４０質量％、更に好ましくは１～３５質量％、より更に好ましくは１～３０質量％である。

[0028] 成分（Ａ）が、多官能性単量体（ａ－１）を含む場合、成分（Ａ）中、多官能性単量体（ａ－１）の合計含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、１０～１００質量％であることが好ましく、接着性をより優れたものとする観点から、５０～１００質量％であることがより好ましく、５０～９５質量％であることが更に好ましく、５５～８５質量％であることがより更に好ましく、６０～８０質量％であることがより更に好ましい。

[0029] 〔単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）〕

前述のとおり、成分（Ａ）は、単官能性単量体（ａ－２）を含むことが好ましい。単官能性単量体（ａ－２）は、樹脂組成物（Ｉ）を低粘度化し、かつ得られる造形物の架橋密度を低減し、後述する接着剤組成物の浸透性を高めることによって、接着性をより向上させることができる。

単官能性単量体（ａ－２）が有する１個の重合性基とは、（メタ）アクリロイル基を指す。

[0030] 単官能性単量体（ａ－２）としては、芳香環を含有する(メタ)アクリル酸

エステル系重合性単量体、脂環式(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体、窒素原子含有の環状(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体、鎖状(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体、環状（メタ）アクリルアミド化合物、鎖状（メタ）アクリルアミド化合物等が挙げられる。なお、取扱上、不快な臭気を感じにくい観点で、沸点が高い傾向にあり臭気を感じにくい、芳香環を含有する（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、脂環式（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、窒素原子含有の環状（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、環状（メタ）アクリルアミド化合物が好ましく、これらの中でも、得られる組成物の硬化性及び接着性向上の観点から、芳香環を含有する（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体がより好ましい。換言すれば、前記成分（Ａ）は、前述した単官能性単量体（ａ－２）として、芳香環を含有する（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、脂環式（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、窒素原子含有の環状（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、及び環状（メタ）アクリルアミド化合物からなる群より選ばれる少なくとも１種を含むことが好ましく、芳香環を含有する（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体を含むことがより好ましい。

芳香環を含有する（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、脂環式（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、窒素原子含有の環状（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体、環状（メタ）アクリルアミド化合物は、鎖状（メタ）アクリル酸エステル系重合性単量体と比較して、同等の分子量において、高沸点で低臭気となる傾向があるが、それぞれ、π電子相互作用、立体配座が固定されることによる微小な極性付与の効果によるものと推測される。

[0031] 芳香環を含有する(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体としては、例えば、ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化

－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、プロポキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、プロポキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、プロポキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ブトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ブトキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ブトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｏ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｍ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｐ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、２－（ｏ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、２－（ｍ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、２－（ｐ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、３－（ｏ－フェノキシフェニル）プロピル（メタ）アクリレート、３－（ｍ－フェノキシフェニル）プロピル（メタ）アクリレート、３－（ｐ－フェノキシフェニル）プロピル（メタ）アクリレート、４－（ｏ－フェノキシフェニル）ブチル（メタ）アクリレート、４－（ｍ－フェノキシフェニル）ブチル（メタ）アクリレート、４－（ｐ－フェノキシフェニル）ブチル（メタ）アクリレート、フェニル(メタ)アクリレート、４－ビフェニリル（メタ）アクリレート、（メタ）アクリル酸１－ナフチル、（メタ）アクリル酸２－ナフチル、（メタ）アクリル酸アントリル、（メタ）アクリル酸－ｏ－２－プロペニルフェニル、ベンズヒドロール（メタ）アクリレート、クミルフェノール（メタ）アクリレート、フルオレニル（メタ）アクリレート、フルオレニルメチル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0032] 脂環式(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体としては、例えば、（メタ）アクリル酸２－（１－アダマンチル）プロピル、（メタ）アクリル酸２－メチルアダマンチル－２－イル、（メタ）アクリル酸２－エチルアダマン

チル－２－イル、（メタ）アクリル酸２－ｎ－プロピルアダマンチル－２－イル、（メタ）アクリル酸２－イソプロピルアダマンチル－２－イル、（メタ）アクリル酸１－（アダマンタン－１－イル）－１－メチルエチル、（メタ）アクリル酸１－（アダマンタン－１－イル）－１－エチルエチル、（メタ）アクリル酸１－（アダマンタン－１－イル）－１－メチルプロピル、（メタ）アクリル酸１－（アダマンタン－１－イル）－１－エチルプロピル等が挙げられる。

[0033] 窒素原子含有の環状(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体としては、例えば、ペンタメチルピペリジニル（メタ）アクリレート、テトラメチルピペリジニル（メタ）アクリレート、４－（ピリミジン－２－イル）ピペラジン－１－イル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0034] 鎖状(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体としては、例えば、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、ウンデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、テトラデシル（メタ）アクリレート、ペンタデシル（メタ）アクリレート、セチル（メタ）アクリレート、パルミトレイル（メタ）アクリレート、ヘプタデシル（メタ）アクリレート、オレイル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、イソステアリル（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、６－ヒドロキシヘキシル（メタ）アクリレート、１０－ヒドロキシデシル（メタ）アクリレート、グリセロールモノ（メタ）アクリレート、エリスリトールモノ（メタ）アクリレート、イソボルニルシクロヘキシル（メタ）アクリレート等が挙げられる。

[0035] 環状（メタ）アクリルアミド化合物としては、例えば、Ｎ－（メタ）アクリロイルモルホリン、Ｎ－（メタ）アクリロイルピロリジン、Ｎ－（メタ）アクリロイルピペリジン、Ｎ－（メタ）アクリロイル－２－メチルピペリジン、Ｎ－（メタ）アクリロイル－２，２，６，６－テトラメチルピペリジン等が挙げられる。

[0036] 鎖状（メタ）アクリルアミド化合物としては、例えば、Ｎ，Ｎ－ジメチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジ－ｎ－プロピル（メタ）アクリルアミド、Ｎ－イソプロピル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジ－ｎ－ブチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジ－ｎ－ヘキシル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジ－ｎ－オクチル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジ－２－エチルヘキシル（メタ）アクリルアミド、Ｎ－（２－ヒドロキシエチル）（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ，Ｎ－ビス（２－ヒドロキシエチル）（メタ）アクリルアミド等が挙げられる。

[0037] 単官能性単量体（ａ－２）としては、これらの中でも、得られる組成物の硬化性向上及び接着性向上の観点から、ｏ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｍ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｐ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、２－（ｏ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、２－（ｍ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、２－（ｐ－フェノキシフェニル）エチル（メタ）アクリレート、ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、メトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、フルオレニル（メタ）アクリレート、フルオレニルメチル（メタ）アクリレート、４－ビフェニリル（メタ）アクリレートが好ましく、ｍ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｏ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｐ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｏ－フェニルフェ

ノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｍ－フェニルフェノール（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｐ－フェニルフェノール（メタ）アクリレートがより好ましく、ｍ－フェノキシベンジル（メタ）アクリレート、エトキシ化－ｏ－フェニルフェノール（メタ）アクリレートが更に好ましく、ｍ－フェノキシベンジルアクリレート、エトキシ化－ｏ－フェニルフェノールアクリレートがより更に好ましい。

[0038] 成分（Ａ）が、単官能性単量体（ａ－２）を含む場合、成分（Ａ）中、単官能性単量体（ａ－２）の合計含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、１～６０質量％であることが好ましく、接着性により優れたものとする観点から、５～５０質量％であることがより好ましく、１０～５０質量％であることが更に好ましく、１５～４５質量％であることがより更に好ましく、２０～４０質量％であることがより更に好ましい。

また、本発明の一態様において、芳香環を含有する(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体の含有量は、単官能性単量体（ａ－２）の合計１００質量％中、好ましくは５０～１００質量％、より好ましくは６０～１００質量％、更に好ましくは７０～１００質量％、より更に好ましくは８０～１００質量％、より更に好ましくは９０～１００質量％、より更に好ましくは９５～１００質量％である。

[0039] 本発明の一態様において、成分（Ａ）に含まれる（メタ）アクリル系重合性単量体は、実質的に多官能性単量体（ａ－１）、又は多官能性単量体（ａ－１）及び単官能性単量体（ａ－２）のみから構成されていてもよい。（メタ）アクリル系重合性単量体が、実質的に多官能性単量体（ａ－１）、又は多官能性単量体（ａ－１）及び単官能性単量体（ａ－２）のみから構成されるとは、多官能性単量体（ａ－１）、又は多官能性単量体（ａ－１）及び単官能性単量体（ａ－２）以外の他の（メタ）アクリル系重合性単量体の合計含有量が、成分（Ａ）の総量１００質量％中、１０．０質量％未満であり、好ましくは５．０質量％未満であり、より好ましくは１．０質量％未満であり、更に好ましくは０．１質量％未満であり、より更に好ましくは０．０１

質量％未満であることを意味する。

[0040] 本発明の一態様において、成分（Ａ）中、多官能性単量体（ａ－１）及び単官能性単量体（ａ－２）の合計含有量は、成分（Ａ）１００質量％中、好ましくは８０～１００質量％、より好ましくは９０～１００質量％、更に好ましくは９５～１００質量％、より更に好ましくは９９～１００質量％、より更に好ましくは９９．９～１００質量％、より更に好ましくは９９．９９～１００質量％である。

[0041] 接着性をより優れたものとする観点から、組成物（Ｉ）中、成分（Ａ）の含有量は、組成物（Ｉ）１００質量％中、好ましくは４０質量％以上、より好ましくは４５質量％以上、更に好ましくは５０質量％以上、より更に好ましくは６０質量％以上、より更に好ましくは８０質量％以上、より更に好ましくは９０質量％以上であり、そして、好ましくは９９．９９質量％以下、より好ましくは９９．５質量％以下、更に好ましくは９９質量％以下、より更に好ましくは９８質量％以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、組成物（Ｉ）中、成分（Ａ）の含有量は、組成物（Ｉ）１００質量％中、好ましくは４０～９９．９９質量％、より好ましくは４５～９９．９９質量％、更に好ましくは５０～９９．５質量％、より更に好ましくは６０～９９．５質量％、より更に好ましくは８０～９９質量％、より更に好ましくは９０～９８質量％である。

[0042] ＜光重合開始剤＞

前記光重合開始剤は、一般工業界で使用されている重合開始剤から選択して使用でき、中でも歯科用途に使用されている光重合開始剤が好ましい。

[0043] 光重合開始剤としては、（ビス）アシルホスフィンオキシド類、チオキサントン類又はチオキサントン類の第４級アンモニウム塩、ケタール類、α－ジケトン類、クマリン類、アントラキノン類、ベンゾインアルキルエーテル化合物、α－アミノケトン系化合物等が挙げられる。光重合開始剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

これらの光重合開始剤の中でも、（ビス）アシルホスフィンオキシド類と、α－ジケトン類とからなる群より選択される少なくとも１種を用いることが好ましい。これにより、紫外領域及び可視光域での光硬化性に優れ、レーザー、ハロゲンランプ、発光ダイオード（ＬＥＤ）、及びキセノンランプのいずれの光源を用いても十分な光硬化性を示す組成物が得られる。

[0044] （ビス）アシルホスフィンオキシド類のうち、アシルホスフィンオキシド類としては、例えば、２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、２，６－ジメトキシベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、２，６－ジクロロベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、２，４，６－トリメチルベンゾイルメトキシフェニルホスフィンオキシド、２，４，６－トリメチルベンゾイルエトキシフェニルホスフィンオキシド、２，３，５，６－テトラメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、ベンゾイルジ（２，６－ジメチルフェニル）ホスホネート、２，４，６－トリメチルベンゾイルフェニルホスフィンオキシドナトリウム塩、２，４，６－トリメチルベンゾイルフェニルホスフィンオキシドカリウム塩、２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシドのアンモニウム塩が挙げられる。

（ビス）アシルホスフィンオキシド類のうち、ビスアシルホスフィンオキシド類としては、例えば、ビス（２，６－ジクロロベンゾイル）フェニルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジクロロベンゾイル）－２，５－ジメチルフェニルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジクロロベンゾイル）－４－プロピルフェニルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジクロロベンゾイル）－１－ナフチルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）フェニルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，４，４－トリメチルペンチルホスフィンオキシド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，５－ジメチルフェニルホスフィンオキシド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）フェニルホスフィンオキシド、ビス（２，５，６－トリメチルベンゾイル）－２，４，４－トリメチルペン

チルホスフィンオキシド等が挙げられる。さらに、特開２０００－１５９６２１号公報に記載されている化合物を挙げることができる。

[0045] これらの（ビス）アシルホスフィンオキシド類の中でも、２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、２，４，６－トリメチルベンゾイルメトキシフェニルホスフィンオキシド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）フェニルホスフィンオキシド、及び２，４，６－トリメチルベンゾイルフェニルホスフィンオキシドナトリウム塩からなる群より選ばれる少なくとも１種を光重合開始剤として用いることが好ましい。

[0046] α－ジケトン類としては、例えば、ジアセチル、ベンジル、カンファーキノン、２，３－ペンタジオン、２，３－オクタジオン、９，１０－フェナントレンキノン、４，４’－オキシベンジル、アセナフテンキノンが挙げられる。これらのα－ジケトン類の中でも、可視光域の光源を使用する場合には、カンファーキノンが好ましい。

[0047] 組成物（Ｉ）中、光重合開始剤の含有量は、特に限定されないが、得られる組成物の硬化性等の観点から、成分（Ａ）１００質量部に対し、光重合開始剤が０．０１～２０質量部が好ましい。光重合開始剤の含有量が０．０１質量部以上の場合、重合を十分に進行させることができる。このような観点から、組成物（Ｉ）中、光重合開始剤の含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、０．０５質量部以上がより好ましく、０．１質量部以上が更に好ましく、０．５質量部以上がより更に好ましく、１．０質量部以上がより更に好ましい。一方、光重合開始剤の含有量が２０質量部以下の場合、光重合開始剤自体の溶解性が低い場合にも、組成物からの析出が抑えられる。このような観点から、組成物（Ｉ）中、光重合開始剤の含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、１５質量部以下がより好ましく、１０質量部以下が更に好ましく、５．０質量部以下がより更に好ましい。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、組成物（Ｉ）中、光重合開始剤の含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、好ましくは０．０１～２０質

量部、より好ましくは０．０５～１５質量部、更に好ましくは０．１～１０質量部、より更に好ましくは０．５～５．０質量部、より更に好ましくは１．０～５．０質量部である。

[0048] ＜その他成分＞

組成物（Ｉ）は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、必要に応じて、前述の成分（Ａ）、及び光重合開始剤以外の成分を含んでいてもよい。組成物（Ｉ）は、公知の方法に準じて製造できる。

[0049] （重合促進剤）

組成物（Ｉ）は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、光硬化性の向上を目的として、重合促進剤を含むことができる。重合促進剤としては、例えば、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸エチル、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸メチル、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸ｎ－ブトキシエチル、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸２－（メタクリロイルオキシ）エチル、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）ベンゾフェノン、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸ブチルが挙げられる。これらの中でも、組成物（Ｉ）に優れた硬化性を付与する観点から、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸エチル、４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）安息香酸ｎ－ブトキシエチル、及び４－（Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノ）ベンゾフェノンからなる群より選択される少なくとも１つが好ましく用いられる。重合促進剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0050] （フィラー）

組成物（Ｉ）には、例えば、組成物の粘度調整、義歯床への強度付与、抗菌性付与の観点等から、必要に応じて、フィラーが配合されていてもよい。当該フィラーとして、例えば、有機フィラー、無機フィラー、有機－無機複合フィラー等が挙げられる。フィラーは、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0051] 有機フィラーの材料としては、例えば、ポリメタクリル酸メチル、ポリメタクリル酸エチル、メタクリル酸メチル－メタクリル酸エチル共重合体、架

橋型ポリメタクリル酸メチル、架橋型ポリメタクリル酸エチル、ポリエステル、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテル、ポリオキシメチレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、クロロプレンゴム、ニトリルゴム、エチレン－酢酸ビニル共重合体、スチレン－ブタジエン共重合体、アクリロニトリル－スチレン共重合体、アクリロニトリル－スチレン－ブタジエン共重合体が挙げられる。これらは１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。有機フィラーの形状は特に限定されず、フィラーの粒子径を適宜選択して使用できる。

[0052] 無機フィラーの材料としては、例えば、石英、シリカ、アルミナ、シリカ－チタニア、シリカ－チタニア－酸化バリウム、シリカ－ジルコニア、シリカ－アルミナ、ランタンガラス、ホウケイ酸ガラス、ソーダガラス、バリウムガラス、ストロンチウムガラス、ガラスセラミック、アルミノシリケートガラス、バリウムボロアルミノシリケートガラス、ストロンチウムボロアルミノシリケートガラス、フルオロアルミノシリケートガラス、カルシウムフルオロアルミノシリケートガラス、ストロンチウムフルオロアルミノシリケートガラス、バリウムフルオロアルミノシリケートガラス、ストロンチウムカルシウムフルオロアルミノシリケートガラスが挙げられる。これらもまた、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。無機フィラーの形状は特に限定されず、不定形フィラー又は球状フィラー等を適宜選択して使用できる。

[0053] 有機－無機複合フィラーとしては、有機系フィラーに無機系フィラーを分散させたもの、無機系フィラーを種々の重合性単量体にてコーティングした有機－無機複合フィラーが挙げられる。

[0054] 組成物（Ｉ）がフィラーを含有する場合、例えば、組成物の粘度調整、義歯床への強度付与等の観点から、組成物（Ｉ）中、フィラーの含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対して、好ましくは０．１質量部以上、より好ましくは０．５質量部以上、更に好ましくは１質量部以上である。また、組成物（Ｉ）の粘度上昇による造形性に対する影響を抑える観点からは、組成物（

Ｉ）中、フィラーの含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、好ましくは２０質量部以下、より好ましくは１０質量部以下、更に好ましくは５質量部以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、組成物（Ｉ）がフィラーを含有する場合、組成物（Ｉ）中、フィラーの含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、好ましくは０．１～２０質量部、より好ましくは０．５～１０質量部、更に好ましくは１～５質量部である。

[0055]（重合体）

組成物（Ｉ）には、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、柔軟性、流動性等の改質を目的として重合体を添加することができる。例えば、天然ゴム、合成ポリイソプレンゴム、液状ポリイソプレンゴム及びその水素添加物、ポリブタジエンゴム、液状ポリブタジエンゴム及びその水素添加物、スチレン－ブタジエンゴム、クロロプレンゴム、エチレン－プロピレンゴム、アクリルゴム、イソプレン－イソブチレンゴム、アクリロニトリル－ブタジエンゴム、又はスチレン系エラストマーを添加することができる。添加可能な他の重合体の具体例としては、ポリスチレン－ポリイソプレン－ポリスチレンブロック共重合体、ポリスチレン－ポリブタジエン－ポリスチレンブロック共重合体、ポリ（α－メチルスチレン）－ポリブタジエン－ポリ（α－メチルスチレン）ブロック共重合体、ポリ（ｐ－メチルスチレン）－ポリブタジエン－ポリ（ｐ－メチルスチレン）ブロック共重合体、又はこれらの水素添加物等が挙げられる。これらの重合体は１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0056]（軟化剤）

組成物（Ｉ）には、必要に応じて、軟化剤を含有していてもよい。軟化剤としては、例えば、パラフィン系、ナフテン系、芳香族系のプロセスオイル等の石油系軟化剤、及び、パラフィン、落花生油、ロジン等の植物油系軟化剤が挙げられる。これらの軟化剤は１種を単独で用いてもよく、２種以上を

併用してもよい。軟化剤を用いる場合、組成物（Ｉ）中、軟化剤の含有量は、本発明の趣旨を損なわない限り特に制限はないが、通常、成分（Ａ）１００質量部に対して、好ましくは１～３０質量部、より好ましくは５～２０質量部である。

[0057]（安定剤）

また、組成物（Ｉ）には、劣化の抑制、又は光硬化性の調整を目的として、公知の安定剤を配合することができる。前記安定剤としては、例えば、重合禁止剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤が挙げられる。

[0058] 重合禁止剤としては、例えば、ヒドロキノン、ヒドロキノンモノメチルエーテル、ジブチルヒドロキノン、ジブチルヒドロキノンモノメチルエーテル、４－ｔ－ブチルカテコール、２－ｔ－ブチル－４，６－ジメチルフェノール、２，６－ジ－ｔ－ブチルフェノール、３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシトルエンが挙げられる。重合禁止剤の含有量は、成分（Ａ）１００質量部に対し、０．００１～５．０質量部が好ましく、０．０１～３．０質量部がより好ましく、０．１～２．０質量部が更に好ましい。

[0059]（着色剤）

また、組成物（Ｉ）には、例えば、義歯床の色調を歯肉色等に調色したい場合等に、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、着色剤を含有してもよい。着色剤としては、例えば、顔料又は染料等を用いることができる。前記顔料は、無機顔料と有機顔料に大別されるが、混合して使用しても構わない。

[0060] 無機顔料としては、酸化物、水酸化物、硫化物、クロム酸塩、珪酸塩、硫酸塩、炭酸塩、フェロシアン化合物、リン酸塩、炭素等が挙げられ、中でも酸化物が好適に用いられる。酸化物としては、具体的には、赤酸化鉄、黄酸化鉄、黒酸化鉄、酸化チタン（TiO_2）、アルミナ、ジルコニア等が挙げられる。赤酸化鉄とは、ベンガラ、ヘマタイトであり、化学式Fe_2O_3で示される酸化鉄であり、黄酸化鉄とは、ゲーサイトであり、化学式ＦｅＯＯＨで示される酸化鉄であり、黒酸化鉄とは、マグネタイトであり、化学式Fe_3O_4で示される酸化鉄である。

[0061] 有機顔料としては、アゾ系顔料、フタロシアニン顔料、縮合多環顔料、ニトロ系顔料、ニトロソ系顔料、蛍光顔料等が挙げられ、中でもアゾ系顔料とフタロシアニン顔料が好適に用いられる。アゾ系顔料の具体例として、ノボパームイエロー４Ｇ、クロモフタールイエロー３Ｇ、クロモフタールイエロー３ＲＬＰ、ノボパームレッドＢＮ、クロモフタルスカーレットＲＮ、クロモフタールブルー４ＧＮＰ、青色２号アルミニウムレーキ等が挙げられる。フタロシアニン顔料の具体例として、フタロシアニンブルー、フタロシアニングリーン等が挙げられる。

[0062] 例えば、組成物（Ｉ）の色調を歯肉色に調色したい場合には、好ましくは、赤酸化鉄が主に使用することができる顔料として例示される。

組成物（Ｉ）が着色剤を含有する場合、組成物（Ｉ）中、着色剤の合計含有量は、特に限定されないが、成分（Ａ）１００質量部に対し、例えば、好ましくは０．０００５～５．０質量部である。前記着色剤が顔料である場合、その合計含有量の好適範囲も同様である。

[0063] （その他添加剤）

また、組成物（Ｉ）には、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、例えば、ペースト性状の調整等、必要に応じて、前述した成分以外にその他公知の添加剤を配合することができる。前記その他添加剤としては、例えば、増粘剤、プレポリマー（オリゴマー）、アリール化合物（例えば、アリールヨードニウム塩）が等挙げられる。当該その他添加剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0064] また、組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床を得る方法は、光造形法であれば、特に制限はなく、公知の方法及び装置を使用できる。当該光造形法については、公知の方法及び装置を用いることができ、例えば、前述した光造形による３Ｄプリンターを使用する方法等のＣＡＤ／ＣＡＭシステム等を用いる方法を用いることができる。

また、組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床は、その一部が組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床であってもよく、全体が組成物（Ｉ）の光造形物で

ある義歯床であってもよいが、後述する接着剤組成物と接触する部分の少なくとも一部が組成物（Ｉ）の光造形物であり、後述する接着剤組成物と接触する部分の全部が組成物（Ｉ）の光造形物であることが好ましい。

[0065] ［アクリル系樹脂（II）］

前記アクリル系樹脂（II）は、人工歯を構成する成分であり、（メタ）アクリル系重合性単量体の重合体であり、好ましくは(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体の重合体である。

アクリル系樹脂（II）に用いることができる(メタ)アクリル系重合性単量体としては、前述の硬化性組成物（Ｉ）の欄に記載の各種(メタ)アクリル酸エステル系重合性化合物、及び、それ以外の例として、メチルメタクリレート、エチルメタクリレートなどが挙げられる。

[0066] アクリル系樹脂（II）には、人工歯に強度や抗菌性を付与するために、フィラーがさらに配合されていてもよい。フィラーとしては、前述の硬化性組成物（Ｉ）の欄に記載の有機フィラー、無機フィラー、有機－無機複合フィラー等が挙げられる。フィラーは１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0067] また、組成物（II）には、例えば、人工歯の色調を歯冠色等に調色する観点から、着色剤が更に配合されていてもよい。着色剤としては、前述の組成物（Ｉ）の欄に記載の各種着色剤が挙げられる。着色剤は１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

また、組成物（II）には、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、その他の人工歯用に用いられる各種添加剤が配合されていてもよい。

[0068] 人工歯はアクリル系樹脂（II）の硬化物であり、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯を得る方法は、特に制限はなく、公知の方法及び装置のいずれも使用できるが、アクリル系樹脂（ＩＩ）を人工歯形状に賦形したのち、光又は加熱重合する方法、予めブロック又はディスク状に成型重合したものを切削する方法、ＰＭＭＡを主材としたものを重合し熱可塑性樹脂としたものを射出成型する方法がある。

また、アクリル系樹脂（II）の硬化物からなる人工歯は、その一部がアクリル系樹脂（II）の硬化物である人工歯であってもよく、全体がアクリル系樹脂（II）の硬化物である人工歯であってもよいが、後述する接着剤組成物と接触する部分の少なくとも一部はアクリル系樹脂（II）の硬化物であり、後述する接着剤組成物と接触する部分の全部がアクリル系樹脂（II）からなる硬化物であることが好ましい。

[0069] アクリル系樹脂（II）からなる人工歯としては、市販の製品を用いることもでき、例えば、株式会社松風製のレジン歯「ベラシア（登録商標）」シリーズ、株式会社ジーシー製のレジン歯「サーパス（登録商標）」シリーズ等が挙げられる。

[0070] ［接着剤組成物］

前記接着剤組成物は、前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）（以下、単に「組成物（III）」ともいう。）を含有する。

前述のとおり、前記接着剤組成物は、組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを接着する接着剤として用いられる。そして、前述した理由から、組成物（III）を接着剤として用いることで、組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床に対して、より強固な接着性が得られるものと推測される。更に、アクリル系樹脂（II）とも親和性があることから前記義歯床と人工歯とをより強く接着させることができると推測される。

[0071] ＜組成物（III）＞

前記組成物（III）は、前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）（以下、単に「成分（Ｃ）」ともいう。）を含有する。

組成物（III）は、硬化性を有することが好ましく、光硬化性を有することがより好ましい。

[0072] （（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ））

前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）は、（メタ）アクリル系重合性単量体１種単独で又は２種以上から構成される成分であって、前記組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記単量体（ｍ）を含む。

前述のとおり、成分（Ｃ）が、前記成分（Ａ）を構成する（メタ）アクリル系重合性単量体のうち、主単量体として含まれる（メタ）アクリル系重合性単量体である単量体（ｍ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体を含むことで、優れた接着性が得られる。

ここで、「単量体（ｍ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体」とは、具体的な化合物として、単量体（ｍ）と同じであることを指す。例えば、成分（Ａ）中の単量体（ｍ）がＵＤＭＡである場合、成分（Ｃ）において含む必要がある単量体（ｍ）とは、当該ＵＤＭＡのことを指す。

したがって、例えば、成分（Ａ）における単量体（ｍ）が、多官能性単量体（ａ－１）であるＵＤＭＡである場合に、成分（Ｃ）が、同じ多官能性単量体（ａ－１）の範疇であるＢｉｓ－ＧＭＡを含んでいたとしても、それだけでは「単量体（ｍ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体」を含んでいることにはならない。

また、成分（Ａ）中、主単量体となる単量体（ｍ）が複数存在する場合、例えば、成分（Ａ）中に、２種の（メタ）アクリル系重合性単量体が、それぞれ、５０質量％含まれている場合、成分（Ｃ）は、成分（Ａ）中のいずれか一つの単量体（ｍ）を含んでいればよく、成分（Ａ）中の全ての単量体（ｍ）を含まなくてもよい。

[0073] 接着性をより優れたものとする観点から、成分（Ｃ）中、単量体（ｍ）の含有量は、成分（Ｃ）１００質量％中、好ましくは２０質量％以上、より好ましくは３０質量％以上、更に好ましくは４０質量％以上、より更に好ましくは５０質量％以上、より更に好ましくは５５質量％以上、より更に好ましくは６０質量％以上、より更に好ましくは６５質量％以上であり、例えば、１００質量％以下、好ましくは９８質量％以下、より好ましくは９５質量％

以下、更に好ましくは９０質量％以下、より更に好ましくは８５質量％以下、より更に好ましくは８０質量％以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、成分（Ｃ）中、単量体（ｍ）の含有量は、成分（Ｃ）１００質量％中、好ましくは２０～１００質量％であり、より好ましくは３０～１００質量％、更に好ましくは４０～９８質量％、より更に好ましくは５０～９５質量％、より更に好ましくは５５～９０質量％、より更に好ましくは６０～８５質量％、より更に好ましくは６５～８０質量％である。

[0074] 成分（Ｃ）を構成する（メタ）アクリル系重合性単量体としては、成分（Ａ）について前述したものと同様の（メタ）アクリル系重合性単量体を用いることができ、その好適な（メタ）アクリル系重合性単量体の種類も、成分（Ａ）について前述した内容と同様である。また、成分（Ｃ）が含んでよい各（メタ）アクリル系重合性単量体の含有量及びその好適な範囲も、単量体（ｍ）を含む必要があることを満たす限り、「成分（Ａ）１００質量％中」との表記を「成分（Ｃ）１００質量％中」と変更すること以外は、成分（Ａ）について前述した内容と同様である。また、好適な態様及び範囲の設定理由も、特に言及していない限り、前述した内容と同様である。

また、前述のとおり、成分（Ｃ）は、単量体（ｍ）単独で、又は、単量体（ｍ）と単量体（ｏ）とから構成される成分である。成分（Ｃ）は、単量体（ｏ）を複数含有してもよい。したがって、成分（Ｃ）中、単量体（ｍ）及び単量体（ｏ）の合計含有量は１００質量％である。

[0075] 本発明の一態様において、成分（Ｃ）は、単量体（ｍ）が成分（Ａ）と共通するだけでなく、単量体（ｏ）としても成分（Ａ）が含む単量体（ｏ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体を含むことが好ましい。ここで、「単量体（ｏ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体」とは、前述した「単量体（ｍ）と同じ（メタ）アクリル系重合性単量体」に関する説明と同様である。また、成分（Ａ）が単量体（ｏ）として複数の化合物を含む場合、成分

（Ｃ）もそれら複数の化合物の全てを単量体（ｏ）として含むことがより好ましい。

更に、本発明の一態様において、成分（Ｃ）中の単量体（ｍ）の含有量と成分（Ａ）中の単量体（ｍ）の含有量との差の絶対値が、１０質量％以下であることが好ましく、５質量％以下であることがより好ましく、３質量％以下であることが更に好ましく、１質量％以下であることがより更に好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、成分（Ｃ）中の単量体（ｍ）の含有量と成分（Ａ）中の単量体（ｍ）の含有量との差の絶対値は、好ましくは０～１０質量％、より好ましくは０～５質量％、更に好ましくは０～３質量％、より更に好ましくは０～１質量％である。

同様に、成分（Ｃ）中の単量体（ｏ）の含有量と、当該単量体（ｏ）の成分（Ａ）中の含有量との差の絶対値が、１０質量％以下であることが好ましく、５質量％以下であることがより好ましく、３質量％以下であることが更に好ましく、１質量％以下であることがより更に好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、成分（Ｃ）中の単量体（ｏ）の含有量と、当該単量体（ｏ）の成分（Ｃ）中の含有量との差の絶対値は、好ましくは０～１０質量％、より好ましくは０～５質量％、更に好ましくは０～３質量％、より更に好ましくは０～１質量％である。また、成分（Ａ）が単量体（ｏ）として複数の化合物を含み、かつ、成分（Ｃ）も単量体（ｏ）として成分（Ａ）と同じ複数の化合物を含む場合、対応する各化合物の成分（Ａ）中の含有量と成分（Ｃ）中の含有量との差の絶対値も、それぞれ独立に、１０質量％以下であることが好ましく、５質量％以下であることがより好ましく、３質量％以下であることが更に好ましく、１質量％以下であることがより更に好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、成分（Ａ）が単量体（ｏ）として複数の化合物を含み、かつ、成分（Ｃ）も単量体（ｏ）として成分（Ａ）と同じ複数の化合物を含む場合、対応する各化合物の成分（Ａ）中の含有量と成分（Ｃ）中の含有量との差の絶対値も、それぞれ独立に、好ましくは０～１０質量％、より好ましくは０～５質量％、更に好ましくは０～３質量％

、より更に好ましくは０～１質量％である。

ただし、前述のとおり、成分（Ｃ）中、単量体（ｍ）及び単量体（ｏ）の合計含有量は、１００質量％である。

[0076] また、本発明の一態様において、接着性をより優れたものとする観点から、成分（Ｃ）は、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）を、（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）１００質量％中、７０質量％以上含有することが好ましく、８０質量％以上含有することがより好ましく、９０質量％以上含有することが更に好ましく、そして、１００質量％以下含有することが好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、成分（Ｃ）は、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）を、（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）１００質量％中、好ましくは７０～１００質量％、より好ましくは８０～１００質量％、更に好ましくは９０～１００質量％の範囲で含有する。また、当該一態様において、成分（Ｃ）は、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）を、（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）１００質量％中、１００質量％含有することがより更に好ましい。すなわち、成分（Ｃ）として、成分（Ａ）を用いることがより更に好ましい。

本発明の一態様において、成分（Ｃ）の組成（（メタ）アクリル系重合性単量体の組み合わせ及びその含有量比（質量比））は、成分（Ａ）の組成（（メタ）アクリル系重合性単量体の組み合わせ及びその含有量比（質量比））と同一であることがより更に好ましい。

[0077] 接着性をより優れたものとする観点から、組成物（III）中、成分（Ｃ）の含有量は、組成物（III）１００質量％中、好ましくは４０質量％以上、より好ましくは４５質量％以上、更に好ましくは５０質量％以上、より更に好ましくは６０質量％以上、より更に好ましくは８０質量％以上、より更に好ましくは９０質量％以上、より更に好ましくは９５質量％以上であり、そして、１００質量％以下、好ましくは９９．９９質量％以下、より好ましくは９９．５質量％以下、更に好ましくは９９質量％以下、より更に好ましくは９８質量％以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び

上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、組成物（III）中、成分（Ｃ）の含有量は、組成物（III）１００質量％中、好ましくは４０～１００質量％、より好ましくは４５～９９．９９質量％、更に好ましくは５０～９９．９９質量％、より更に好ましくは６０～９９．５質量％、より更に好ましくは８０～９９質量％、より更に好ましくは９０～９９質量％、より更に好ましくは９５～９８質量％である。

[0078]（組成物（III）が含有してもよいその他成分）

組成物（III）は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、必要に応じて、前述の成分（Ｃ）以外の成分を含んでいてもよい。組成物（III）は、公知の方法に準じて製造できる。

[0079] 組成物（III）は、接着性をより優れたものとする観点から、光重合開始剤を含むことが好ましい。

組成物（III）に用いることができる光重合開始剤としては、組成物（Ｉ）が含む光重合開始剤について前述したものと同様の光重合開始剤が挙げられ、その好適な光重合開始剤の種類も、組成物（Ｉ）の欄で前述した内容と同様である。

また、組成物（III）が光重合開始剤を含む場合、その好適な含有量範囲も、「組成物（Ｉ）」との表記を「組成物（III）」と変更すること、及び、「成分（Ａ）１００質量部」の表記を「成分（Ｃ）１００質量部」と変更すること以外は、組成物（Ｉ）が含む光重合開始剤について前述した内容と同様である。

[0080] 組成物（III）は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、重合促進剤を含有してもよい。組成物（III）に用いることができる重合促進剤としては、組成物（Ｉ）が含んでもよい重合促進剤として前述したものと同様の重合促進剤が挙げられる。重合促進剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0081] 組成物（III）には、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、組成物の粘度を

調整するために、フィラーが配合されていてもよい。

組成物（III）に用いることができるフィラーとしては、前述の硬化性組成物（Ｉ）の欄に記載の有機フィラー、無機フィラー、有機－無機複合フィラー等が挙げられる。フィラーは１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0082] 組成物（III）がフィラーを含有する場合、例えば、組成物の粘度調整の観点から、組成物（III）中、フィラーの含有量は、成分（Ｃ）１００質量部に対して、好ましくは０．１質量部以上、より好ましくは０．３質量部以上、更に好ましくは０．５質量部以上である。また、接着剤組成物の粘度上昇による塗布性に対する影響を抑える観点からは、組成物（III）中、フィラーの含有量は、成分（Ｃ）１００質量部に対し、好ましくは１０質量部以下、より好ましくは５質量部以下、更に好ましくは３質量部以下である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明の一態様において、組成物（III）がフィラーを含有する場合、組成物（III）中、フィラーの含有量は、成分（Ｃ）１００質量部に対し、好ましくは０．１～１０質量部、より好ましくは０．３～５質量部、更に好ましくは０．５～３質量部である。

[0083] 組成物（III）は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、重合体を含有してもよい。組成物（III）に用いることができる重合体としては、組成物（Ｉ）が含んでもよい重合体として前述したものと同様の重合体が挙げられる。重合体は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0084] 組成物（III）には、劣化の抑制、又は硬化性の調整を目的として、公知の安定剤を配合することができる。前記安定剤としては、例えば、重合禁止剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤が挙げられる。

組成物（III）に用いることができる重合禁止剤としては、組成物（Ｉ）が含んでもよい重合禁止剤として前述したものと同様の重合体が挙げられる。重合禁止剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

組成物（III）が重合禁止剤を含む場合、重合禁止剤の含有量は、成分（Ｃ

）１００質量部に対し、０．００１～５．０質量部が好ましく、０．０１～３．０質量部がより好ましく、０．１～２．０質量部が更に好ましい。

[0085] また、組成物（III）は、例えば、接着剤組成物の色調を、義歯床又は人工歯の色調に近づけることによって、得られる義歯の美観性をより向上するため、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、着色剤を含有してもよい。着色剤としては、例えば、前述の組成物（Ｉ）の欄に記載の各種着色剤が挙げられる。着色剤は１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0086] 例えば、接着剤組成物の色調を、義歯床の色調、例えば、歯肉色に調色したい場合には、好ましくは、赤酸化鉄が主に使用することができる顔料として例示される。また、接着剤組成物を人工歯の色調、例えば、歯冠色に調色したい場合には、好ましくは酸化チタンやアルミナを主成分として、調整したい色調によって、赤酸化鉄、黄酸化鉄、黒酸化鉄の配合量を調節することが好ましい。ここで、「酸化チタンやアルミナを主成分として」とは、組成物に配合される前記着色剤中、配合量が最も多い着色剤が酸化チタン又はアルミナであることを指す。

[0087] 組成物（III）が着色剤を含有する場合、組成物（III）中、着色剤の合計含有量は、特に限定されないが、成分（Ｃ）１００質量部に対し、例えば、好ましくは０．０００５～５．０質量部である。前記着色剤が顔料である場合、その合計含有量の好適範囲も同様である。

[0088] また、組成物（III）には、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、例えば、ペースト性状の調整等、必要に応じて、前述した成分以外にその他公知の添加剤を配合することができる。前記その他添加剤としては、例えば、増粘剤、軟化剤、プレポリマー（オリゴマー）、アリール化合物（例えば、アリールヨードニウム塩）が等挙げられる。当該その他添加剤は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。

[0089] また、本発明の一態様において、接着性をより優れたものとする観点から、組成物（III）は、組成物（Ｉ）を、組成物（III）１００質量％中、７０質量％以上含有することが好ましく、８０質量％以上含有することがより好

ましく、９０質量％以上含有することが更に好ましく、そして、１００質量％以下含有することが好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、組成物（III）は、組成物（Ｉ）を、組成物（III）１００質量％中、好ましくは７０～１００質量％、より好ましくは８０～１００質量％、更に好ましくは９０～１００質量％の範囲で含有する。また、当該一態様において、接着性をより優れたものとする観点から、組成物（Ｉ）を、組成物（III）１００質量％中、１００質量％含有することがより更に好ましい。すなわち、組成物（III）として、組成物（Ｉ）を用いることがより更に好ましい。

[0090] ＜その他成分＞

前記接着剤組成物は、本発明の趣旨を損なわない範囲内で、必要に応じて、前述の組成物（III）以外の成分を含んでいてもよい。例えば、義歯床及び人工歯への接着剤組成物の塗布性や浸透性を調整するため、組成物（III）に含まれていない重合性単量体や有機溶媒、及びその他の添加物を配合されていてもよい。

有機溶媒としては、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、塩化メチレン、アセトン、エタノール、イソプロパノール、メチルメタクリレート等が挙げられる。有機溶媒は１種を単独で用いてもよく、２種以上を併用してもよい。これらの中でも、安全性、適度な揮発性の観点から、酢酸エチル、エタノール、イソプロパノールが好ましい。

[0091] 前記接着剤組成物が、前記有機溶媒を含む場合、前記有機溶媒の含有量は、前記接着剤組成物１００質量％中、好ましくは９０質量％以下、より好ましくは８０質量％以下、更に好ましくは６０質量％以下、より更に好ましくは５０質量％以下、より更に好ましくは４０質量％以下、より更に好ましくは２０質量％以下、より更に好ましくは１０質量％以下である。また、前記接着剤組成物が、前記有機溶媒を含む場合、前記有機溶媒の含有量の下限は、特に制限はないが、例えば、前記接着剤組成物１００質量％中、好ましくは１質量％以上である。前述のとおり、これら段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、本発明

の一態様において、前記接着剤組成物が、前記有機溶媒を含む場合、前記有機溶媒の含有量は、前記接着剤組成物１００質量％中、好ましくは１～９０質量％、より好ましくは１～８０質量％、更に好ましくは１～６０質量％、より更に好ましくは１～５０質量％、より更に好ましくは１～４０質量％、より更に好ましくは１～２０質量％、より更に好ましくは１～１０質量％である。

[0092] 接着性をより優れたものとする観点から、組成物（III）の含有量は、前記接着剤組成物１００質量％中、好ましくは１０質量％以上であり、より好ましくは２０質量％以上、更に好ましくは４０質量％以上、より更に好ましくは５０質量％以上、より更に好ましくは６０質量％以上、より更に好ましくは８０質量％以上、より更に好ましくは９０質量％以上であり、そして、１００質量％以下含有することが好ましい。換言すれば、本発明の一態様において、組成物（III）の含有量は、前記接着剤組成物１００質量％中、好ましくは１０～１００質量％、より好ましくは２０～１００質量％、更に好ましくは４０～１００質量％、より更に好ましくは６０～１００質量％、より更に好ましくは８０～１００質量％、より更に好ましくは９０～１００質量％である。また、本発明の一態様において、前記接着剤組成物は、組成物（III）を、前記接着剤組成物１００質量％中、１００質量％含有することがより更に好ましい。すなわち、接着剤組成物として、組成物（III）を用いることがより更に好ましい。

[0093] ［接着工程］

前記製造方法では、組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、前記接着剤組成物を用いて、接着する工程（以下、単に「接着工程」ともいう。）を有する限り、特に制限されない。

すなわち、前記組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、前記アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、前記接着剤組成物を用いて、接着することを特徴とする、義歯床と人工歯との接着方法も、本発明の一態様に含まれる。

[0094] 前記接着工程において、前記接着剤組成物を、義歯床と人工歯のいずれか一方の接着面又は両方の接着面に対して塗布し、前記接着剤組成物を介して義歯床と人工歯とを互いに貼合して、接着剤組成物を硬化させることにより、義歯床と人工歯とを接着することができる。当該接着工程において、前記接着剤組成物を光硬化させることにより接着させることが好ましい。

すなわち、例えば、前記製造方法の一態様として、下記工程（１）及び（２）をこの順で有することが好ましい。

工程（１）：前記接着剤組成物を、前記義歯床及び前記人工歯から選ばれる少なくとも一方に塗布する工程

工程（２）：前記義歯床と、前記人工歯とを、前記接着剤組成物を介して互いに圧着する工程

[0095] 更に、前記工程（２）の後に、下記工程（３）を有することがより好ましい。

工程（３）：前記接着剤組成物を光硬化させることによって、前記義歯床と、前記人工歯とを接着する工程

[0096] 前記接着剤組成物の義歯床及び／又は人工歯への塗布方法は、特に制限はなく、公知の方法及び器具又は装置を用いることができる。例えば、筆等を用いて手作業で塗布することもできる。

また、義歯床の接着剤組成物と接触する面を、予め、研磨して用いてもよい。

同様に、人工歯の接着剤組成物と接触する面を、予め、研磨して用いてもよい。

[0097] 本発明の一態様である義歯の製造方法によって、義歯床及び人工歯が強固に接着し、義歯床と人工歯が一体化した義歯の作製が可能である。

ここで、光造形では、通常、光造形物の造形後に、光造形物を形成する組成物由来の未反応の重合性単量体を重合させるために、２次重合が実施される。当該２次重合を行う方法は、特に制限はなく、従来公知の方法及び装置を用いることができ、歯科用光照射器、光造形用の２次重合装置等を用いる

方法によって実施してもよい。

本発明の一態様である義歯の製造方法では、前記光造形物である義歯床及び／又は人工歯を光造形物として得る場合、前記義歯床及び／又は人工歯の２次重合を行う前に、前記接着剤組成物を前記義歯床及び／又は人工歯に塗布して、接着操作を実施することによって、より高い接着性を得ることができる。

したがって、前記義歯床及び人工歯とは、２次重合前である場合も含む。

前記２次重合の前に、前記接着剤組成物を塗布し、その後、前記２次重合を行うことで、義歯床及び／又は人工歯の未反応の重合性単量体と接着剤組成物を構成する重合性単量体とを共重合させることができるため、より高い接着性が得られやすいと考えられる。

さらに、本発明の一態様である義歯の製造方法は、前述の２次重合後及び光造形から長時間経過後の重合が高度に進んだ状態においても、接着性に優れるという特長を有しており、義歯床及び／又は人工歯の製造から長時間経過後であっても、十分に接着性に優れた義歯の製造が可能である。

[0098] 前記接着剤組成物を用いて、前記義歯床及び人工歯を接着するに当たっては、従来公知の歯科用光照射器（例えば、株式会社モリタ製「α－ライトＶ」）、光造形用のポストキュア装置（例えば、ＥｎｖｉｓｉｏｎＴＥＣ社製「Ｏｔｏｆｌａｓｈ（登録商標）　Ｇ１７１」）の等が使用できる。また、前記接着剤組成物を硬化させるための光エネルギーとして、活性エネルギー光線を用いるのが好ましい。すなわち、活性エネルギー光線を前記接着剤組成物に対して照射し、前記接着剤組成物を硬化させることによって、前記義歯床と、前記人工歯とを接着するのが好ましい。

[0099] したがって、前記工程（３）は、以下の工程（３Ａ）であることがより好ましい。

工程（３Ａ）：活性エネルギー光線を前記接着剤組成物に対して照射し、前記接着剤組成物を硬化させることによって、前記義歯床と、前記人工歯とを接着する工程。

ここで「活性エネルギー光線」とは、紫外線、電子線、Ｘ線、放射線、高周波などのような光造形用樹脂組成物を硬化させ得るエネルギー線を意味する。活性エネルギー光線の光源としては、ハロゲンランプ、キセノンランプ、メタルハライドランプ、ＬＥＤ、水銀灯、蛍光灯などの照明などが挙げられ、これらの中では、ハロゲンランプ、ＬＥＤが好ましい。

実施例

[0100] 次に、実施例を挙げて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例により何ら限定されるものではない。

[0101] 実施例又は比較例で用いた各成分を略号とともに以下に説明する。

[0102] ［（メタ）アクリル系重合性単量体］

＜多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）＞

「ＵＤＭＡ」：２，２，４－トリメチルヘキサメチレンビス（２－カルバモイルオキシエチル）ジメタクリレート（共栄社化学株式会社製、分子量４７１）

「Ｂｉｓ－ＧＭＡ」：２，２－ビス〔４－（３－メタクリロイルオキシ）－２－ヒドロキシプロポキシフェニル〕プロパン（新中村化学工業株式会社製）

「ＴＣＤＤＭＡ」：トリシクロデカンジメタノールジメタクリレート（共栄社化学株式会社製）

「ＴＥＧＤＭＡ」：トリエチレングリコールジメタクリレート（新中村化学工業株式会社製）

[0103] ＜単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）＞

「ＰＯＢＡ」：ｍ－フェノキシベンジルアクリレート（共栄社化学株式会社製）

「ＥＰＰＡ」：エトキシ化－ｏ－フェニルフェノールアクリレート（新中村化学工業株式会社製）

[0104] ［光重合開始剤］

「ＴＰＯ」：２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオ

キシド

[0105] ［重合禁止剤］

「ＢＨＴ」：３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシトルエン

[0106] ＜参考例１＞［硬化性組成物（Ｉ）－１の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、ＵＤＭＡ　７００ｇ、ＰＯＢＡ　３００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－１とした。硬化性組成物（Ｉ）－１の組成を、下記表１に示す。

[0107] ＜参考例２＞［硬化性組成物（Ｉ）－２の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、Ｂｉｓ－ＧＭＡ　６００ｇ、ＰＯＢＡ　４００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－２とした。硬化性組成物（Ｉ）－２の組成を、下記表１に示す。

[0108] ＜参考例３＞［硬化性組成物（Ｉ）－３の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、ＴＣＤＤＭＡ　９００ｇ、ＥＰＰＡ　１００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－３とした。硬化性組成物（Ｉ）－３の組成を、下記表１に示す。

[0109] ＜参考例４＞［硬化性組成物（Ｉ）－４の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、ＵＤＭＡ　７００ｇ、ＴＥＧＤＭＡ　３００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－４とした。硬化性組成物（Ｉ）－４の組成を、下記表１に示す。

[0110] ＜参考例５＞［硬化性組成物（Ｉ）－５の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、ＴＣＤＤＭＡ　９００ｇ、ＴＥＧＤＭＡ　１００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－５とした。硬化性組成物（Ｉ）－５の組成を、下記表１に示す。

[0111] ＜参考例６＞［硬化性組成物（Ｉ）－６の製造］

２Ｌの褐色広口ポリエチレン製の瓶に、ＵＤＭＡ　４００ｇ、ＴＥＧＤＭＡ　３００ｇ、ＰＯＢＡ　３００ｇ、ＴＰＯ　３０ｇ、ＢＨＴ　５．０ｇを投入し、メカニカル撹拌機を挿入して、２５℃で４８時間撹拌して、完全に溶解したことを確認した。得られた組成物を硬化性組成物（Ｉ）－６とした。硬化性組成物（Ｉ）－６の組成を、下記表１に示す。

[0112] [表1]

表1

			単位	参考例1	参考例2	参考例3	参考例4	参考例5	参考例6
組成物No.				(I)-1	(I)-2	(I)-3	(I)-4	(I)-5	(I)-6
成分(A)(*1)	単量体(a-1)(*2)	UDMA	g	700	-	-	700	-	400
		Bis-GMA	g	-	600	-	-	-	-
		TCDDMA	g	-	-	900	-	900	-
		TEGDMA	g	-	-	-	300	100	300
	単量体(a-2)(*3)	POBA	g	300	400	-	-	-	300
		EPPA	g	-	-	100	-	-	-
その他成分	光重合開始剤	TPO	g	30	30	30	30	30	30
	重合禁止剤	BHT	g	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0

(*1)：（メタ）アクリル系重合性単量体成分（A）

(*2)：多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体(a-1)

(*3)：単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体(a-2)

[0113] ［アクリル系樹脂（II）からなる人工歯］

「ＢＶ」：レジン歯「ベラシア（登録商標）」（株式会社松風製）

「ＢＳ」：レジン歯「サーパス（登録商標）」（株式会社ジーシー製）

[0114] ［義歯床用接着剤］

「ユニファスト（登録商標）III」：株式会社ジーシー製、メチルメタクリレート（ＭＭＡ）とポリメチルメタクリレート（ＰＭＭＡ）の粉液型接着剤

[0115] ［実施例１～９及び比較例１～６］

以下で説明するように、各参考例で得られた硬化性組成物（Ｉ）の光造形物と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、下記表２及び３に示す組み合わせで、以下で説明する接着剤を用い、後述する方法により接着し、光硬化させた試験片を作製して、接着性評価を行った。

実施例１～６及び比較例１～５では、それぞれ、表２及び３に示す硬化性組成物（Ｉ）と同一の組成である組成物（III）を接着剤として用いた。

実施例７では使用した硬化性組成物（Ｉ）－１と同一の組成である組成物（III）を、酢酸エチル（富士フィルム和光純薬株式会社製）で３０質量％に希釈した接着剤組成物を接着剤として用いた。

実施例８では使用した硬化性組成物（Ｉ）－１と同一の組成である組成物（III）を、酢酸エチル（富士フィルム和光純薬株式会社製）で１５質量％に希釈した接着剤組成物を接着剤として用いた。

実施例９では参考例１で得られた硬化性組成物（Ｉ）－１をＰＭＭＡ（ポリメタクリル酸メチル「ハイパール（登録商標）Ｄ－２５０ＭＬ」、根上工業株式会社製）で４０質量％に希釈した硬化性組成物の光造形物とし、硬化性組成物（Ｉ）－１と同一の組成である組成物（III）を、酢酸エチル（富士フィルム和光純薬株式会社製）で１５質量％に希釈した接着剤組成物を接着剤として用いた。

比較例６では、「ユニファスト（登録商標）III」を接着剤として用いた。

[0116] ＜義歯床と人工歯の接着性＞

参考例で得られた硬化性組成物（Ｉ）－１、（Ｉ）－２、（Ｉ）－３、（Ｉ）－４、（Ｉ）－５、及び（Ｉ）－６について、光造形機（ＤＷＳ社製、「ＤＩＧＩＴＡＬＷＡＸ（登録商標）　０２０Ｄ」）を用いて、φ５．０ｍｍ×高さ５．０ｍｍの試験片を造形し、光照射機（ＥｎｖｉｓｉｏｎＴＥＣ社製、「Ｏｔｏｆｌａｓｈ（登録商標）Ｇ１７１」）で２０００回フラッシュして、硬化を完了させた後、一方の平面を流水下にて＃６００のシリコン・カーバイド紙（日本研紙株式会社製）でさらに研磨した後、表面の水を歯科用エアシリンジで吹き飛ばし、義歯床に相当する被着体を得た。

[0117] 一方、レジン歯「ＢＶ」及び「ＢＳ」のベース面を、＃６００のシリコン・カーバイド紙（日本研紙株式会社製）で研磨して、平面を形成した。ＪＩＳ　Ｔ６６１１：２００９の方法Ｂを準用し、当該レジン歯を、包埋用材料として歯科印象用トレー用レジン（商品名：「トレーレジン（登録商標）II」、株式会社松風製）を使用して、剪断試験用ジグにはめ込むためのステンレスリングホルダ内に包埋した。この時、レジン歯の前記研磨面を下底部としてステンレスリングホルダ内に設置した後に、包埋用材料を充填することで、レジン歯の前記研磨面が、前記ステンレスリングホルダの接地面と平行になるように、かつ、前記包埋用材料から露出させた状態で固定されるように包埋した。その後、ステンレスリングホルダ内のレジン歯及び包埋用材料を、流水下にて＃６００のシリコン・カーバイド紙（日本研紙株式会社製）で研磨した。なお、前記レジン歯の研磨面は、ステンレスリングホルダの前記接地面より高くなく、かつ、包埋用材料の表面から１ｍｍよりも高くならないように研磨した。

研磨終了後、レジン歯の表面の水をエアブローすることで乾燥し、人工歯に相当する被着体を得た。

[0118] 実施例及び比較例の硬化性組成物（Ｉ）、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯及び接着剤との組み合わせで、得られた義歯床に相当する被着体の研磨面に、接着剤約０．０１を筆で塗布し、人工歯に相当する被着体の研磨面を圧着し、余剰の接着剤をふき取った後、光照射機（ＥｎｖｉｓｉｏｎＴＥＣ社製、「Ｏｔｏｆｌａｓｈ（登録商標）Ｇ１７１」）で１０００回フラッシュ照射した。試験サンプルは、計５個作製し、３７℃の水中で１日保管し、水中から取り出し、水分を拭き取った後、万能試験機（株式会社島津製作所製、「オートグラフ（登録商標）ＡＧ－Ｉ　１００ｋＮ」）を用いて、試験サンプルのステンレスリングホルダをＪＩＳ　Ｔ６６１１：２００９に準拠した剪断接着試験用のジグにはめ込み、人工歯と硬化物組成物（Ｉ）のφ５．０ｍｍ×高さ５．０ｍｍの試験片との接着面に対して平行方向に剪断をかけて剪断接着強さを測定した。剪断接着強さの測定は、クロス・ヘッドス

ピードを１ｍｍ／分に設定して行った。５個の試験片の測定値の平均値を剪断接着強さとした。

この試験で、接着強さが５ＭＰａ以上であれば臨床において使用可能で、１０ＭＰａ以上であると従来法並みの良好な接着強度、１５ＭＰａ以上であると従来法を超える極めて優れた接着強さである。また、測定後の試験片の界面状態を観察し、硬化性組成物（Ｉ）から光造形された義歯床に相当する被着体、接着剤のいずれかが破壊していた場合を、接着性に優れるとして「Ａ」、硬化性組成物（Ｉ）から光造形された義歯床に相当する被着体、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯のいずれかの界面で剥離した場合を、接着性に劣るとして「Ｆ」とした。

結果を、下記表２及び３に示す。

[0119] [表2]

表2

		単位	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9
硬化性組成物(I)	(I)-1	質量%	100	-	-	-	-	-	100	100	40
	(I)-2	質量%	-	100	-	-	-	-	-	-	-
	(I)-3	質量%	-	-	100	-	-	-	-	-	-
	(I)-4	質量%	-	-	-	100	-	-	-	-	-
	(I)-5	質量%	-	-	-	-	100	-	-	-	-
	(I)-6	質量%	-	-	-	-	-	100	-	-	-
	PMMA (*5)	質量%	-	-	-	-	-	-	-	-	60
アクリル系樹脂(II)からなる人工歯		BV	BS	BV	BV	BV	BV	BV	BV	BV	
接着剤組成物	(I)-1 (*4)	質量%	100	-	-	-	-	-	30	15	30
	(I)-2 (*4)	質量%	-	100	-	-	-	-	-	-	-
	(I)-3 (*4)	質量%	-	-	100	-	-	-	-	-	-
	(I)-4 (*4)	質量%	-	-	-	100	-	-	-	-	-
	(I)-5 (*4)	質量%	-	-	-	-	100	-	-	-	-
	(I)-6 (*4)	質量%	-	-	-	-	-	100	-	-	-
	酢酸エチル	質量%	-	-	-	-	-	-	70	85	70
評価	接着強さ	MPa	16.7	16.1	12.5	11.4	9.1	12.6	12.8	12.0	7.8
	界面状態	-	A	A	A	A	A	A	A	A	A

(*4)：接着剤組成物が含む組成物(III)の組成と同じ組成物(I)のNo.を表記。

(*5)：PMMA（ポリメタクリル酸メチル「ハイパール(登録商標) D-250ML」、根上工業株式会社製）

[0120]

[表3]

表3

		単位	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
硬化性組成物(I)	(I)-1	質量%	100	-	-	-	-	100
	(I)-2	質量%	-	100	-	-	-	-
	(I)-3	質量%	-	-	100	-	-	-
	(I)-4	質量%	-	-	-	100	-	-
	(I)-5	質量%	-	-	-	-	100	-
アクリル系樹脂(II)からなる人工歯			BV	BV	BV	BV	BV	BV
接着剤組成物	(I)-1 (*4)	質量%	-	100	-	-	-	-
	(I)-2 (*4)	質量%	-	-	100	-	-	-
	(I)-3 (*4)	質量%	-	-	-	100	-	-
	(I)-4 (*4)	質量%	-	-	-	-	100	-
	(I)-5 (*4)	質量%	100	-	-	-	-	-
	ユニファストIII	質量%	-	-	-	-	-	100
評価	接着強さ	MPa	2.3	3.6	1.7	1.8	2.3	4.6
	界面状態	-	F	F	F	F	F	F

(*4)：接着剤組成物が含む組成物(III)の組成と同じ組成物(I)のNo.を表記。

[0121] 表２及び表３に示す通り、実施例１～９における接着剤組成物を用いた場合、硬化性組成物（Ｉ）から作製された義歯床に相当する被着体とアクリル系樹脂(II)からなる人工歯との接着強さは、比較例１～６における接着剤組成物を用いた場合の接着強さに比べて、優れていることが確認された。

請求の範囲

[請求項1] 主単量体として（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）、及び光重合開始剤を含有する硬化性組成物（Ｉ）の光造形物である義歯床と、アクリル系樹脂（II）からなる人工歯とを、

前記硬化性組成物（Ｉ）に含まれるのと同じ前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）を含む（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）を含有する組成物（III）を含有する接着剤組成物を用いて接着することを特徴とする、義歯の製造方法。

[請求項2] 前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）が、多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）である、請求項１に記載の義歯の製造方法。

[請求項3] 前記多官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－１）が、ウレタン化（メタ）アクリル酸エステル化合物、及びウレタン結合を含有しない芳香族化合物系の（メタ）アクリル酸エステル化合物から選ばれる少なくとも１種である、請求項２に記載の義歯の製造方法。

[請求項4] 前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）が、単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）を含有する、請求項１～３のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

[請求項5] 前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）が、単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）を含有する、請求項１～４のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

[請求項6] 前記単官能性の（メタ）アクリル系重合性単量体（ａ－２）が、芳香環を含有する(メタ)アクリル酸エステル系重合性単量体である、請求項４又は５に記載の義歯の製造方法。

[請求項7] 前記硬化性組成物（Ｉ）中、前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）の含有量が、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）１００質量％中、５０質量％以上である、請求項１～６のいずれか１

項に記載の義歯の製造方法。

[請求項8] 前記組成物（III）中、前記（メタ）アクリル系重合性単量体（ｍ）の含有量が、前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ｃ）１００質量％中、５０質量％以上である、請求項１～７のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

[請求項9] 前記（メタ）アクリル系重合性単量体成分（Ａ）を、前記硬化性組成物（Ｉ）１００質量％中、４０質量％以上含有する、請求項１～８のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

[請求項10] 前記（メタ）アクリル系重合性単量体（Ｃ）を、前記組成物（III）１００質量％中、４０質量％以上含有する、請求項１～９のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

[請求項11] 下記工程（１）及び（２）をこの順で有する、請求項１～１０のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

工程（１）：前記接着剤組成物を、前記義歯床及び前記人工歯から選ばれる少なくとも一方に塗布する工程

工程（２）：前記義歯床と、前記人工歯とを、前記接着剤組成物を介して互いに圧着する工程

[請求項12] 活性エネルギー光線を前記接着剤組成物に対して照射し、前記接着剤組成物を硬化させることによって、前記義歯床と、前記人工歯とを接着する、請求項１～１１のいずれか１項に記載の義歯の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2022/034823

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

A61K 6/30(2020.01)i; ***A61K 6/58***(2020.01)i; ***A61K 6/62***(2020.01)i; ***A61K 6/887***(2020.01)i
FI: A61K6/30; A61K6/58; A61K6/62; A61K6/887

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)

A61K6/30; A61K6/58; A61K6/62; A61K6/887

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII); CAplus/REGISTRY/MEDLINE/EMBASE/BIOSIS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2018-89011 A (MITSUI CHEMICALS INC) 14 June 2018 (2018-06-14) claims 1-6, paragraphs [0013], [0014], [0019], [0020], [0030]-[0038], [0057]	1-5, 11, 12
Y		6-10
Y	WO 2019/189566 A1 (KURARAY NORITAKE DENTAL INC) 03 October 2019 (2019-10-03) paragraphs [0031]-[0034]	6-10
Y	JP 2019-521188 A (DENTSPLY SIRONA INC) 25 July 2019 (2019-07-25) claim 1, paragraphs [0010], [0011], [0084]	6-10
Y	WO 2021/054458 A1 (KURARAY NORITAKE DENTAL INC) 25 March 2021 (2021-03-25) paragraphs [0014], [0017], [0020], [0024]	6-10

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

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
22 November 2022	**06 December 2022**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2022/034823

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2018-89011 A	14 June 2018	(Family: none)	
WO 2019/189566 A1	03 October 2019	US 2021/0024682 A1 paragraphs [0042]-[0046]	
JP 2019-521188 A	25 July 2019	US 2017/0360534 A1 claim 1, paragraphs [0010], [0011], [0096]	
WO 2021/054458 A1	25 March 2021	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/034823

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

A61K 6/30(2020.01)i; A61K 6/58(2020.01)i; A61K 6/62(2020.01)i; A61K 6/887(2020.01)i
FI: A61K6/30; A61K6/58; A61K6/62; A61K6/887

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））

A61K6/30; A61K6/58; A61K6/62; A61K6/887

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII); CAplus/REGISTRY/MEDLINE/EMBASE/BIOSIS (STN)

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 2018-89011 A (三井化学株式会社) 14.06.2018 (2018-06-14) 請求項1-6,[0013],[0014],[0019],[0020],[0030]-[0038],[0057]	1-5,11,12
Y		6-10
Y	WO 2019/189566 A1 (クラレノリタケデンタル株式会社) 03.10.2019 (2019-10-03) [0031]-[0034]	6-10
Y	JP 2019-521188 A (デンツプライ シロナ インコーポレイテッド) 25.07.2019 (2019-07-25) 請求項1,[0010],[0011],[0084]	6-10
Y	WO 2021/054458 A1 (クラレノリタケデンタル株式会社) 25.03.2021 (2021-03-25) [0014],[0017],[0020],[0024]	6-10

☐ 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抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日
22.11.2022	06.12.2022

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
篭島　福太郎 4C 4800
電話番号 03-3581-1101 内線 3452

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2022/034823

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2018-89011 A	14.06.2018	（ファミリーなし）	
WO 2019/189566 A1	03.10.2019	US 2021/0024682 A1 [0042]-[0046]	
JP 2019-521188 A	25.07.2019	US 2017/0360534 A1 請求項1,[0010],[0011], [0096]	
WO 2021/054458 A1	25.03.2021	（ファミリーなし）	