

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2009-530434  
(P2009-530434A)

(43) 公表日 平成21年8月27日(2009.8.27)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
<b>C09K 3/00</b> (2006.01)	C09K 3/00	4D077
<b>A62D 3/34</b> (2007.01)	A62D 3/34	4H003
<b>A62D 3/30</b> (2007.01)	A62D 3/30	4H011
<b>B01F 17/42</b> (2006.01)	B01F 17/42	
<b>AO1N 25/04</b> (2006.01)	AO1N 25/04	101

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 26 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2008-558894 (P2008-558894)	(71) 出願人	390040604 イギリス国 THE SECRETARY OF STATE FOR DEFENCE IN HER BRITANNIC MAJESTY'S GOVERNMENT OF THE UNETED KINGDOM OF GREAT BRITAIN AND NORTHERN IRELAND イギリス国 ウィルシャー エスピー4 Oジエイキュー ソールズベリー ポート ンダウン ディーエスティーエル
(86) (22) 出願日	平成19年3月15日 (2007.3.15)		
(85) 翻訳文提出日	平成20年11月12日 (2008.11.12)		
(86) 国際出願番号	PCT/GB2007/000877		
(87) 国際公開番号	W02007/104971		
(87) 国際公開日	平成19年9月20日 (2007.9.20)		
(31) 優先権主張番号	0605157.7		
(32) 優先日	平成18年3月15日 (2006.3.15)		
(33) 優先権主張国	英国 (GB)		
		(74) 代理人	100082005 弁理士 熊倉 賢男
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】汚染除去処方物

## (57) 【要約】

本件特許出願は、表面を処理するための、特に化学戦略剤及び/又は生物戦略剤によつて汚染された表面を処理するための、相安定性マイクロエマルション型の汚染除去処方物に関するものである。

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

汚染除去処方物において使用するための組成物であって、少なくとも1種の界面活性剤及びジメチルアジペート、ジメチルグルタメート、ジメチルスクシネート及びアルキレングリコールアルキルエーテルの内の少なくとも1種を含み、該組成物が、第二の水を主成分とする溶媒と混合した際に、相安定性マイクロエマルションを与えることを特徴とする、前記組成物。

**【請求項 2】**

前記組成物が、第二の水を主成分とする溶媒及び汚染除去試薬と混合した際に、相安定性マイクロエマルションを与える、請求項1記載の組成物。

**【請求項 3】**

前記少なくとも1種の界面活性剤が、アルコールエトキシレートを含む、請求項1又は2記載の組成物。

**【請求項 4】**

前記アルコールエトキシレートが、C<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EOである、請求項3記載の組成物。

**【請求項 5】**

前記相安定性マイクロエマルションが、前記組成物の、5~30% (v/v) なる範囲を占める、請求項1~4の何れか1項に記載の組成物。

**【請求項 6】**

前記相安定性マイクロエマルションが、前記第一溶媒の、約20% (v/v) を占める、請求項5記載の組成物。

**【請求項 7】**

ジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートを含む溶媒を含有する、請求項1~6の何れか1項に記載の組成物。

**【請求項 8】**

前記ジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートの相対的割合が、夫々10~25% (v/v)、55~65% (v/v) 及び15~25% (v/v) なる範囲内にある、請求項7記載の組成物。

**【請求項 9】**

更に、アルキレングリコールアルキルエーテルをも含む、請求項7又は8記載の組成物。

**【請求項 10】**

請求項2に従属する場合において、約10~60% なる範囲のアルキレングリコールアルキルエーテル、約20~35% なる範囲のジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートを含む溶媒、及び約5~30% なる範囲のアルコールエトキシレートを含む、請求項9記載の組成物。

**【請求項 11】**

約40~60% なる範囲のアルキレングリコールアルキルエーテルを含む、請求項10記載の組成物。

**【請求項 12】**

前記アルキレングリコールアルキルエーテルが、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル又はジエチレングリコールモノブチルエーテルである、請求項1~11の何れか1項に記載の組成物。

**【請求項 13】**

更に、増粘剤をも含む、請求項1~12の何れか1項に記載の組成物。

**【請求項 14】**

前記増粘剤が、ザンタンガムである、請求項13記載の組成物。

**【請求項 15】**

前記汚染除去試薬を安定化するための、安定化剤を更に含む、請求項1~14の何れか1項に記載の組成物。

10

20

30

40

50

**【請求項 1 6】**

前記安定化剤が、ハイドロトロピー剤及び/又は石鹼を含む、請求項15記載の組成物。

**【請求項 1 7】**

請求項1~16の何れか1項に記載の組成物、水を主成分とする溶媒及び汚染除去試薬を含み、もって前記汚染除去処方物が、相安定性マイクロエマルションとなることを特徴とする、汚染除去処方物。

**【請求項 1 8】**

請求項1~16の何れか1項に記載の前記組成物を、約20% (v/v) なる量で含む、請求項18記載の汚染除去処方物。

**【請求項 1 9】**

前記汚染除去試薬が、ペルオキソ炭酸ナトリウム又はマグネシウムモノパーオキシフタレートである、請求項17又は18記載の汚染除去処方物。

**【請求項 2 0】**

請求項1~16の何れか1項に記載の組成物及び汚染除去試薬を含むことを特徴とする、汚染除去キット。

**【請求項 2 1】**

更に、水を主成分とする溶媒をも含む、請求項20記載の汚染除去キット。

**【請求項 2 2】**

更に、相安定性マイクロエマルションを製造し及び/又は分取するための装置手段をも含む、請求項20又は21記載の汚染除去キット。

**【請求項 2 3】**

表面の汚染除去を行って、有毒な化学物質を除去する方法であって、該方法が、請求項17~19の何れか1項に記載の汚染除去処方物を表面に適用する工程を含むことを特徴とする、前記方法。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0 0 0 1】**

本発明は、汚染除去処方物において使用するための組成物、及び表面及び特に化学戦略剤及び/又は生物戦略剤で汚染された表面を処理するための汚染除去処方物に関するものである。

**【背景技術】****【0 0 0 2】**

化学戦略剤及び/又は生物戦略剤に対する汚染除去(除毒)処方物は、一般的に攻撃的な溶媒、例えばキシレン及びトルエン、並びに攻撃的な汚染除去試薬を含んでいる。攻撃的な溶媒は、該戦略剤を溶媒和し、またしばしば化学戦略剤に添加して、該戦略剤の表面への接着を促進させるアクリル系ポリマーを溶媒和させるという、2つの機能を果たすために必要とされる。これら処方物は、環境的に不都合なものであり、高感度の表面及び装置を脱汚染するためには、しばしば相応しくないものである。従って、より毒性が低く、より苛酷度が低く、かつ環境的に都合のよい、化学戦略剤及び/又は生物戦略剤に対する効果的な汚染除去処方物を開発することが望ましい。高いNATOの除毒基準に適合する、除毒処方物も必要とされている。

**【発明の開示】****【0 0 0 3】**

そこで、本発明の一般的な目的は、より毒性が低く、より苛酷度が低く、かつ環境的に都合のよい、効果的な組成物及び汚染除去(除毒)処方物、並びにNATOの除毒(汚染除去)基準に適合する除毒(汚染除去)処方物を提供することにある。

従って、第一の局面において、本発明は、除毒処方物において使用するための組成物を提供するものであって、該組成物は、少なくとも1種の界面活性剤及びジメチルアジペート、ジメチルグルタメート、ジメチルスクシネート及びアルキレングリコールアルキルエーテルの内の少なくとも1種を含み、結果的に、該組成物が、水を主成分とする溶媒と混

10

20

30

40

50

合した際に、相安定性マイクロエマルションを与える。

好みの一態様において、該組成物は、水を主成分とする溶媒及び除毒試薬と混合した際に、相安定性のマイクロエマルションを与える。しかし、別の態様においては、該組成物は、更に除毒試薬を含むことができ、あるいは該水を主成分とする溶媒が、除毒試薬を含むことができる。

【0004】

該除毒試薬は、好みは化学戦略剤及び/又は生物戦略剤を除毒し、及び/又は失活することのできる試薬である。適当な試薬は、ペルオキソ炭酸ナトリウム(sodium percarbonate)又はマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む。

ここで使用する「相安定性マイクロエマルション」とは、少なくとも15分間及び好みは少なくとも30分間安定なマイクロエマルションである。

マイクロエマルションは、化学戦略剤を除毒する上で、特に理想的なものである。というのは、該有機物質を主成分とする組成物の存在が、該戦略剤を溶解し、またあらゆるアクリル系ポリマーを溶解するための環境を与え、一方該水を主成分とする溶媒は、該除毒試薬を溶解するための環境を提供するからである。更に、マイクロエマルションは、該戦略剤と該除毒試薬との間の迅速な反応を可能とする、大きな界面を持つ。しかし、マイクロエマルションは、一般的に後方業務に負担をもたらす可能性のある、水を高い比率で含有し、従って使用時点において水を主成分とする溶媒で希釈することのできる組成物を提供する。

【0005】

該水を主成分とする溶媒は、好みは除毒を要する場所、例えば戦場の近傍における、局所的な供給源により得ることのできる水であり、従って大容量の液体を輸送する必要性が減じられる。不純な水源、及び海水さえも、一般的には適当な水を主成分とする溶媒であることが示される。

ジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートは、化学戦略剤と混合して使用されることが知られている、アクリル系ポリマーを溶解するのに、特に良好である。これらは、また許容される環境上の及び毒性に関する側面をも有する。アルキレングリコールアルキルエーテルもこのような諸特性を持つが、これは、更にしばしば化学戦略剤を失活させるための除毒試薬の選択の基に、反応性のパーオキシ化合物の存在下において、最も安定なマイクロエマルションを生成する。該アルキレングリコールアルキルエーテルは、例えばジプロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル又はジエチレングリコールモノブチルエーテルであり得る。

【0006】

該少なくとも1種の界面活性剤は、マイクロエマルションの生成を可能とする。界面活性剤の例は、アルコールエトキシレート、カチオン性界面活性剤N-アルキルタロウトリメチルアンモニウムクロリド(ノラミウム(Noramium) MS 50)、及びドデシルベンゼンスルホン酸(DDBSA)(これはモノエタノールアミン又はトリエタノールアミンで中和されていてもよい)を含む。該少なくとも1種の界面活性剤は、好みは、化学戦略剤の保護を可能とする、オイル又はグリース等の任意の水-不溶性物質を乳化し得る、アルコールエトキシレートを含む。様々なエトキシル化度を持ち、また異なる鎖長を持つアルコールを含む、様々なアルコールエトキシレートを使用することができる。該アルコールエトキシレートは、パーオキシ化合物の存在下において、該マイクロエマルションの良好な安定性をもたらす、C<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EOであり得る。

好みの一態様において、該組成物は、その5~50%(v/v)なる範囲、より好みはその5~30%(v/v)なる範囲、及び最も好みはその約20%(v/v)を占める、相安定性マイクロエマルションを形成する。

【0007】

該組成物は、好みはジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートの内の少なくとも2種を含む溶媒及びより好みはジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートの3種全てを含む溶媒を含有する。これら3種

10

20

30

40

50

すべてを含む溶媒を含有する態様において、これら成分の該溶媒における相対的な割合は、夫々10～25% (v/v)なる範囲のジメチルアジペート、55～65% (v/v)なる範囲のジメチルグルタメート及び15～25% (v/v)なる範囲のジメチルスクシネートなる割合である。このような溶媒は、市販品として入手できる二塩基性エステル溶媒(デュポン(Dupont)社製)、環境的に好都合な、より苛酷な溶媒に対する代替溶媒である。これら範囲の割合は、それほど迅速に蒸発しないことから、広い範囲に及ぶ環境において有用である、揮発性の低い組成物を与え、高い揮発性は、キシレン及びトルエンを含む製品に関して公知の問題である。ジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートの3種全てを含む溶媒を含有する組成物の、比較的高い引火点は、発火に関する該製品の安全性を高める。

10

## 【0008】

該組成物は、好ましくは質量基準で、約10～60%なる範囲の量のアルキレングリコールアルキルエーテル、約20～35%なる範囲の量のジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネート、及び約5～30%なる範囲の量のアルコールエトキシレートを含む。該第一の溶媒は、より好ましくは約40～60%なる範囲の量でアルキレングリコールアルキルエーテルを含む。

一態様において、該組成物は、質量基準にて、20%のC<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EO、50%のジプロピレングリコールモノメチルエーテル、及び30%の、ジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートを含む溶媒を含有する。

20

一態様において、該組成物は、更に増粘剤をも含むことはできる。増粘処理されたマイクロエマルションは、表面、特に垂直表面に対する改善された接着性を与え、滞留時間を長くし、また周囲環境とは異なるものとしての、該汚染表面上での汚染除去の進行を可能とする。適当な増粘剤は、ザンタンガム及びウルトレツ(Ultrez<sup>TM</sup>) 10カーボマー(carbomer)を包含する。増粘剤は、該除毒試薬の活性阻害を回避するように選択すべきである。例えば、約5%までのザンタンガムを含むマイクロエマルションは、ペルオキソ炭酸ナトリウム試薬と共に使用するのに適しており、また約2.5%までのウルトレツ10カーボマーを含むマイクロエマルションは、マグネシウムモノパーオキシフタレート試薬と共に使用するのに適している。

## 【0009】

更なる態様において、該組成物は、更に該除毒試薬の安定化のために適した薬剤を含むことができる。例えば、ハイドロトロピー剤及びタル油脂肪酸を主成分とする石鹼等の薬剤は、ペルオキソ炭酸ナトリウム及びマグネシウムモノパーオキシフタレート等のパーオキシ試薬を安定化するのに適している。適当なハイドロトロピー剤は、15-30%のデカン酸のカリウム塩及び15-30%のオクタン酸のカリウム塩を含む、モノトローブ(MONOTROPE<sup>T</sup>M) 810[ユニケマ(Uniqema)社製]を含む。適当なタル油脂肪酸は、タル油脂肪酸1[トファ(TOFA) 1]及びタル油脂肪酸25[トファ(TOFA) 25]を含む。

30

一態様において、本発明の組成物は、質量基準で、40%のジエチレングリコールモノブチルエーテル、29%のジメチルアジペート、ジメチルグルタメート及びジメチルスクシネートを含む溶媒、19.3%のC<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EO、3.5%のトファ1、1.2%の99%トリエタノールアミン溶液及び7%のモノトローブ810を含む。この組成物は、該除毒試薬としての、5%のペルオキソ炭酸ナトリウム又は5%のマグネシウムモノパーオキシフタレート何れかの存在下で、上記第二の水を主成分とする溶媒で、20% (v/v)まで希釈した際に、相安定性エマルションを生成する。テスト結果は、該最終的な除毒処方物が、化学戦略剤、例えばマスター(ビス-(2-クロロエチル)サルファイド)、V神経剤及びG神経剤、及び生物戦略剤等を含有する表面の、NATOの除毒基準までの、十分な除毒を可能とすることを明らかにしている。

40

## 【0010】

第二の局面において、本発明は、上記第一の局面の組成物、水を主成分とする溶媒及び除毒試薬を含有する除毒処方物を提供するものであり、これら成分を含むことにより、該除毒処方物は、相安定性マイクロエマルションとなる。

50

該除毒処方物は、好ましくは該組成物の5~50%(v/v)なる範囲、より好ましくは該組成物の5~30%(v/v)なる範囲、及び最も好ましくは該組成物の約20%(v/v)を占めている。

適当な除毒試薬は、パーオキシ試薬、例えばペルオキソ炭酸ナトリウム及びマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む。

第三の局面において、本発明は、上記第一の局面の組成物及び除毒試薬を含む、除毒キットを提供する。

該除毒キットは、更に水を主成分とする溶媒、及び/又は相安定性マイクロエマルションを製造し及び/又は分取する(dispense)ための装置手段をも含むことができる。

第四の局面において、本発明は、表面を処理するための、該第二の局面の除毒処方物及び上記第三の局面の除毒キットを提供する。

10

#### 【0011】

該除毒処方物及び除毒キットは、好ましくは、化学戦略剤及び/又は生物戦略剤で汚染された表面を処理するためのものである。該化学戦略剤は、サルファーマスター、V神経剤及びG神経剤を含む。表面は、機械器具、自動車及び衣類の表面であり得る。

第五の局面において、本発明は、表面の汚染除去を行って、有害な化学物質を除去する方法を提供するものであり、該方法は、上記第二の局面の除毒処方物を表面に適用する工程を含む。

#### 【実施例】

#### 【0012】

二塩基性エステル溶媒(ESTA)及び/又はジプロピレングリコールモノメチルエーテルの何れかを含む組成物は、水を主成分とする溶媒で希釈した際に、化学戦略剤の模擬体を溶媒和するのに適した、相安定性のマイクロエマルションを製造するのに良好な溶媒であるものと確認された。これらの溶媒は、また化学戦略剤と混合して使用されることが知られているアクリル系ポリマーを溶解し得る。ESTAは、ジメチルアジペート(10~25%(v/v))、ジメチルグルタメート(55~65%(v/v))及びジメチルスクシネート(15~25%(v/v))を含む。また、これら3種の溶媒の何れも、相安定性マイクロエマルションの形成において、単独で使用できることも示された。

最初の組成物は、少なくとも1種の上記溶媒と、界面活性剤( $C_9$ - $C_{11}$ アルコールエトキシレート6EO)を含んでおり、これは、水で希釈(20%(v/v))した場合に、相安定性のマイクロエマルションを形成した。次に、水で希釈(20%(v/v))された該組成物を、多数の化学戦略剤の模擬体、サルチル酸メチル(MS)、増粘処理したMS(TMS)、トリエチルリン酸(TEP)、増粘処理したTEP(TTEP)、トリプロピルリン酸(TPP)、及び増粘処理したTPP(TTPP)を使用して、3つのテスト、即ち溶媒和テスト(テスト1)、浸漬テスト(テスト2)、及び噴霧テスト(テスト3)により評価した。各組成物は、除毒マイクロエマルションの有機相として使用するのに適した諸特性を持つ。

20

#### 【0013】

##### テスト1：溶媒和能(容量)

化学戦略剤の模擬体を、希釈された組成物(処方物)に、攪拌しつつ、該処方物の容量に達するまで、即ち該溶液相が分離するまで、あるいは該模擬体が、最早溶液中に取込まれなくなるまで、滴添する。該容量を算出し、該実験を各模擬体に対して反復した。

30

##### テスト2：浸漬テスト

既知質量を持つ小さなガラス板(2×2cm)に、化学戦略剤の模擬体を添加(液滴：5×2 $\mu$ L)し、これを該ガラス板と、1時間に渡り接触状態に維持した。次いで、該板+模擬体を秤量する。該板を、水平で安定な表面上のペトリ皿に配置し、これに、処方物(40mL、あるいは該板を覆うのに十分な量)を添加するが、該処方物は、該板から離れた、該ペトリ皿の側部に注意深く流込む。該処方物を放置し、30分間浸漬させる。該板を、注意して該ペトリ皿から取出し、水に浸漬して濯ぎ、次いでイソプロピルアルコール(IPA)溶液(50mL)を含むビーカーに入れ、2時間放置する。該IPA溶液を攪拌して、溶媒和を促進する。次いで、該模擬体を含むIPA溶液を分析する。該IPA溶液における模擬体の、より高い回収率(%)は、該処方物による該模擬体のより低い溶解度及び/又はより低い汚染除去率に比例し

40

50

、かつこれらに対応する。

【0014】

テスト3：噴霧テスト

既知質量を持つ大きなプレート(10×16cm)に、化学戦略剤の模擬体を添加(液滴：TTEP及びTPPに対して夫々8×25μL及び4×50μL)し、これを該プレートと、1時間に渡り接触状態に維持した。次に、該プレート+模擬体を秤量する。該プレートを垂直配向で支持するため、該プレートをリグに取付け、処方物(50mL)を該プレートに噴霧した。放出体積、放出圧力(30秒間に渡り50mL)、該プレートからスプレイヘッドまでの距離(40cm)、及び噴霧回数(30)は、実施テスト間で一致させる必要がある。次いで、該プレートを30分間浸漬状態に置く。該プレートを該リグから取外し、一度水に浸漬して濯ぎ、次いでIPA(200mL)溶液中に2時間置く。該IPA溶液を攪拌して、溶媒和を促進させる。次いで、該模擬体を含むIPA溶液を分析する。該IPA溶液における模擬体の、より高い回収率(%)は、該処方物による該模擬体のより低い溶解度及び/又はより低い汚染除去率に比例し、かつこれらに對応する。

10

【0015】

実施例1

検討した組成物はE7、E12、E21、E22、E23、E24及び組成物Aであった。上記3種のテストは、各組成物の水による20%(v/v)希釈液を含む処方物を用いて行った。

組成物

20

特に述べない限り、組成物1Lを作成するための成分を、グラム単位で記録する。<sup>a</sup>E7及びE21は、テスト2及び3の目的のために、該汚染除去製品において、サリチル酸メチルの代わりに水を用いて製造した。というのは、サリチル酸メチルは、溶媒和すべき該CW(化学戦略)剤模擬体の一つであるからである。

30

E7

ユニケマ(Uniqema)溶媒	-255.4
水	-217.9
モノエタノールアミン	-111.8(MEA)
タル油脂肪酸	-107.4 (TOFA)
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	-101.2 (DPM)
アルコールエトキシレートc <sub>9</sub> -c <sub>11</sub> OH 9	-51
ココイミダゾリンベタイン	-29.8
ジプロピレングリコール	-29.8 (DPG)
ジエタノールアミン	-28.9 (DEA)
パイン油	-15.5
サリチル酸メチル <sup>a</sup>	-10.6
ブチル化ヒドロキシトルエーテル	-1

【0016】

30

E12

水	-374
ヒドロキシエチレンジアミン三酢酸(Na塩)	-50.7
DPM	-51.1
ドデシルベンゼンスルホン酸	-112.4 (DDBSA)
MEA	-57.9
アルコールエトキシレートc <sub>9</sub> -c <sub>11</sub> OH 9E	-75
ユニケマ溶媒	-58.3
ブチル化ヒドロキシトルエン	-1
E21	
水	-277.2
D'リモネン	-259.2
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	-96

40

50

MEA	-95	
TOFA	-91.7	
アルコールエトキシレート $c_9 - c_{11}$ OH 9 EO	-43.2	
DPG	-34.7	
DEA	-24.8	
ココイミダゾリンベタイン	-19.2	
パイン油	-13	
サリチル酸メチル <sup>a</sup>	-8.6	
トリルトリアゾール	-1.9	
ブチル化ヒドロキシトルエン	-1.0	10
【 0 0 1 7 】		
E22		
水	-603.9	
アルコールエトキシレート $C_{12}$ OH 7 EO	-168.3	
ヘキシレングリコール	-128.7	
ソルベッソ(Solvesso)150	-55 ( $C_{10}-C_{11}$ アルキルベンゼン)	
TOFA	-23.9	
トリエタノールアミン		
E23		20
水	-607.5	
イソパラフィン	-108.2	
ソルベッソ(Solvesso)150	-93.3	
DDBSA	-74.3	
ココナツジエタノールアミン	-44.8	
プロピレングリコールn-ブチルエーテル	-27.5	
リン酸三ナトリウム	-27.5	
DPM	-11.8	
MEA	-9.8	
アルコールエトキシレート $C_{12}-C_{15}$ OH 2.5EO	-6.9	30
トリルトリアゾール	-3.9	
珪酸ナトリウム	-2	
【 0 0 1 8 】		
E24		
ナトリウムキシレンスルホネート(30%水性溶液)	-153	
ソルベッソ(Solvesso)150	-104.3	
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	-93.8	
DDBSA	-89	
トリポリリン酸ナトリウム	-20.9	
水酸化ナトリウム(47%)	-27.47	40
アルコールエトキシレート $c_9-c_{11}$ OH 9 EO	-8.9	
珪酸ナトリウム	-6.3	
トリルトリアゾール	-4.2	
アンモニア	-2.1	
組成物A(質量%(wt%))		
二塩基性エステル溶媒	37	
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	22	
C9-11アルコールエトキシレート6EO	15	
【 0 0 1 9 】		
テスト1においては、7種全ての处方物が、容易に1.5% (w/v) のTEPを溶媒和した。該処		50

方物の大部分が、1.1%のTPPを溶媒和した組成物A及びE7を除いて、1.8%のTEPを溶媒和した。MSは、最も溶媒和が困難な未増粘模擬体であり、E24は0.7%を越えて溶媒和するが、他の全ての処方物は、0.3%未満であった。50mLの処方物に、0.1%のTTEP又はTTTPを添加した後に、全ての処方物において、白色固体(恐らくポリマーの増粘剤)が出現した。組成物Aのみが、TMSを溶媒和できたが、0.2%のTMSの添加後に、該処方物は相分離し始めた。

テスト2における、TEP及びTPPを適用したプレートの全ては、30分後に該処方物から分離した際に清浄化されたものと思われた。無色の模擬体が添加されていた、MSと接触させたプレートは、白色の液滴を含んでいたが、これらは、該プレートを水に浸漬して濯いだ際に分離した。該無色の増粘処理した模擬体TTEP、TTTP及びTMSも、該プレート上に白色の斑点を生成したが、MSと異なり、水で洗い流されることはなかった。あらゆる残留模擬体の抽出のために使用した、該IPA溶液を分析し、これを、該プレートからの模擬体の回収率(%)として算出したところ、該組成物Aを主成分とする処方物は、特にTMSに関して、該プレートから殆どの模擬体を除去することが示された。

#### 【0020】

テスト3において、希釀(20% (v/v)された組成物Aを除き、全てのプレートは、該処方物を適用した後、10分以内に完全に乾燥した。組成物Aを含む処方物を噴霧したプレートは、他の全ての模擬体よりも一層長期間に渡り湿潤状態に保たれた。該他の模擬体の大多数は、即座に消失し、従って30分間の該プレートの被覆は、達成されなかった。MS、TEP又はTPPを添加した全てのプレートは、該30分間の浸漬/排液期間の終了時点でにおいて、清浄となった。しかし、増粘処理した該模擬体は、テスト期間中ずっと、全てのプレート上に明確に見ることができ、該汚染除去物質の噴霧後に、その無色の外観は失われた。水中での該プレートの濯ぎにより、模擬体が除去されることはなかった。組成物Aを含む処方物を噴霧した、該TMSを添加したプレートでは、他の処方物を使用した場合と比較して、30分後に、低度に増粘処理した模擬体をかなり良く観測することができた。該テストの終了時点後に、該プレートからの模擬体の回収率は、一般的にテスト2に対するよりもかなり高いものであった。

#### 【0021】

#### 実施例2：改善された組成物及び処方物

#### 開発された組成物

以下の組成は、全て、特に述べない限り、質量% (wt %) 単位で掲載されている。二塩基性エステル溶媒<sup>b</sup>は、10-25%のジメチルアジペート、55-65%のジメチルグルタメート及び15-25%のジメチルスクシネートを含み；カルバポール(Carbapol<sup>TM</sup>)ウルトレッソ10を含有する汚染除去処方物<sup>b</sup>は、攪拌しつつ、該ウルトレッソ10及び汚染除去試薬を水に添加し、次いで該組成物を添加することにより製造する。

F9

二塩基性エステル溶媒	37
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	22

C9-11アルコールエトキシレート6EO

15

DDBSA

14

トリエタノールアミン

12

F11

二塩基性エステル溶媒	34
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	20
C9-11アルコールエトキシレート6EO	13.5
DDBSA	27
モノエタノールアミン	5.5

#### 【0022】

F12

二塩基性エステル溶媒	30.3
------------	------

10

20

30

40

50

ジプロピレングリコールモノメチ	18	
DDBSA	24.3	
モノエタノールアミン	4.9	
ノラミウム(Noramium)MS 50	22.5 (NMS50)	
F20		
二塩基性エステル溶媒	30.7	
THFアルコール	18.9	
C9-11アルコールエトキシレート 6E	12.2	
DDBSA	17.3	
モノエタノールアミン	3.8	10
NMS50	17.1	
【0023】		
F21		
二塩基性エステル溶媒	28.6	
エチル時グリコール	17	
DDBSA	26.8	
モノエタノールアミン	6.3	
NMS50	21.3	
F22		
二塩基性エステル溶媒	28.6	20
ブチルグリコール	17	
DDBSA	26.8	
モノエタノールアミン	6.3	
ノラミウム(Noramium)MS 5	21.3	
F23		
二塩基性エステル溶媒	28.6	
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	17	
DDBSA	26.8	
モノエタノールアミン	6.3	
NMS50	21.3	30
【0024】		
F24		
二塩基性エステル溶媒	28.5	
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	12.9	
モノエタノールアミン	12.7	
タル油脂肪酸 (TOFA25)	12.3	
イソトリデカノール 5EO	20.0	
ジプロピレングリコール	4.6	
ジエタノールアミン	3.3	
ココイミダゾリンベタイン	2.6	40
パイン油	1.7	
サリチル酸メチル	1.2	
ナトリウムトリトリアゾール(tolytriazole)	0.2	
F31		
二塩基性エステル溶媒	30	
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	50	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	20	

次いで、該マイクロエマルション(組成物の20% (v/v)水希釈物)に、増粘剤カルボポール(Carbopol<sup>TM</sup>)ウルトレツツ10<sup>°</sup> (2.75%) (ノベオンヨーロッパ(Noveon Europe))を、添加する。

## 【 0 0 2 5 】

F32

二塩基性エステル溶媒	30
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	50
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	20

次いで、該マイクロエマルション(組成物の20% (v/v) 水希釈物)に、増粘剤カルボポールウルトレツツ10<sup>c</sup> (2.5%)を添加する。

F33

二塩基性エステル溶媒	30	
エチレングリコールモノブチルエーテル	50	10
C9-11アルコールエトキシレート 6E	20	

次いで、該マイクロエマルション(組成物の20% (v/v) 水希釈物)に、増粘剤カルボポールウルトレツツ10<sup>c</sup> (2.5%)を添加する。

変性F12

二塩基性エステル溶媒	28.2	
ジプロピレングリコールモノメチルエーテル	16.8	
DDBSA	22.3	
モノエタノールアミン	7.1	
C9-11アルコールエトキシレート 6EO	4.6	
NMS50	21.0	20

## 【 0 0 2 6 】

F32/F12ハイブリッド

二塩基性エステル溶媒	22.3
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	31.5
C9-11アルコールエトキシレート 6EO	7.4
DDBSA	14.8
MEA	6.4
NMS50	10.4

次いで、該マイクロエマルション(組成物の20% (v/v) 水希釈物)に、増粘剤カルボポールウルトレツツ10<sup>c</sup> (2.5%)を添加する。

F36

ジエチレングリコールモノブチルエーテル	40	
二塩基性エステル溶媒	24	
C9-11アルコールエトキシレート 6EO	16	
(モノプロピレングリコール中の20% w/v クザン(KZAN))	20	

ここで、クザン(KZAN<sup>d</sup>)は、ケルザン(Kelzan S<sup>TM</sup>(fCPKelco)であり、一種のザンタンガムである。

## 【 0 0 2 7 】

F48

ジエチレングリコールモノブチルエーテル	40	40
二塩基性エステル溶媒	30	
C9-11アルコールエトキシレート 6EO	20	
石鹼(2.54 トファ(TOFA)25:1 99% TEA)	10	

ここで、トファ25は、25-30% のロジン酸を含む、タル油脂肪酸である。

F49

ジエチレングリコールモノブチルエーテル	50	
二塩基性エステル溶媒	30	
C9-11 アルコールエトキシレート 6EO	10	
石鹼(2.54 トファ25:1 99% TEA)	10	

F50

50

ジエチレングリコールモノブチルエーテル	50	
二塩基性エステル溶媒	25	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	25	
F51		
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	50	
二塩基性エステル溶媒	20	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	30	
【 0 0 2 8 】		
F52		
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	50	10
二塩基性エステル溶媒	22	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	28	
F53		
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	40	
二塩基性エステル溶媒	29.9	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	20	
TOFA1	3.35	
99% TEA	1.7	
モノトロープ(MONOTROPE <sup>TM</sup> )810	5.05	
F54		20
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	40	
二塩基性エステル溶媒	29	
C9-11 アルコールエトキシレート6EO	19.3	
TOFA1	3.5	
99% TEA	1.2	
モノトロープ(MONOTROPE <sup>TM</sup> ) 810	7	
ここで、モノトロープ(MONOTROPE <sup>TM</sup> ) 810は、15-30%のデカン酸のカリウム塩及び15-30%のオクタン酸のカリウム塩(ユニケマ)である。		
【 0 0 2 9 】		
F55(発泡処方物)		30
ジエチレングリコールモノブチルエーテル	45	
C9-11 アルコールエトキシレート 6EO	18	
二塩基性エステル溶媒	30	
アルキルエトキシ硫酸ナトリウム 3EO	2	
アルキルジメチルアミンオキサイド	5	

実施例1の上記3種のテストにおける、組成物Aに関する好ましい結果に従って、この組成物に対する改良を検討した。組成物Aは、10-25%のジメチルアジペート、55-65%のジメチルグルタメート及び15-25%のジメチルスクシネートを含む二塩基性エステル溶媒(30wt%)、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル(50wt%)及びC<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EO(20wt%)を含む。該改良は、高い溶媒和能、該組成物及び該水で希釈(20%(v/v))された組成物両者の増粘、及び汚染除去試薬、特に該水で希釈(20%(v/v))された組成物における、ペルオキソ炭酸ナトリウム及びマグネシウムモノパーオキシフタレートの安定性に注目した。

【 0 0 3 0 】

該溶媒和特性は、組成物Aにおいては、該ジプロピレングリコールモノメチルエーテルを犠牲にして、該二塩基性エステル溶媒の割合を高めることによって改善された。しかし、これは水で希釈(20%(v/v))した組成物の不安定化を招いた。しかし、この安定性は、該界面活性剤のドデシルベンゼンスルホン酸を、該組成物に配合し、モノエタノールアミン(F11)又はトリエタノールアミン(F9)で中和することによって回復した。従って、該ア

40

50

ルコールエトキシレートを除去した。というのは、このものが、最早該マイクロエマルションの安定性にとって不要であることが分かったからである。該最終的な処方物(組成物の20%(v/v)水希釈物))の増粘は、カチオン性の界面活性剤である、ノラミウム(Noramium) MS50(IPA/水中の、N-アルキルタロウトリメチルアンモニウムクロリド)を、組成物(F12)に添加することにより達成された。従って、組成物F12は、二塩基性エステル溶媒(30.3wt%)、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル(18%)、ドデシルベンゼンスルホン酸(24.2wt%)、モノエタノールアミン(4.9wt%)及びノラミウムMS50(22.5wt%)を含んでいた。

#### 【0031】

次に、TMS、TTEP及びTPPを用いたテスト1~3において、水で希釈(20%(v/v))したF12の処方物を、水で希釈(20%(v/v))した組成物Aを含む処方物と比較した。該F12を含む処方物は、該30分の浸漬期間全体に渡り、テスト3の該垂直なテストプレートに粘着することが観測された。以前の処方物を用いた場合よりも、30分間なる期間の経過後、該プレート上にはより少量の模擬体が存在した。最終的なIPA溶液を分析したところ、該F12を含む処方物によるTMSの除去は、組成物Aを含む処方物の場合ほど良好ではなかったが、TTEP及びTPPの除去は、大幅に改善された。

これらの組成物は、新鮮な水及び海水中で、相安定性マイクロエマルションを形成し得ることが望ましい。組成物A、F12、F9、F11及び更に組成物(F20、F21、F23及びF24)を含む汚染除去処方物は、海水で希釈(20%(v/v))した際に、相安定性マイクロエマルションの形成を可能とした。唯一の組成物(F22)のみが、海水で希釈(20%(v/v))した際に、相安定性マイクロエマルションを形成しなかった。組成物F20は、テスト3において、該垂直なプレートからの完全な流れ落ちを防止するのに十分な粘度を維持する、唯一の組成物であった。

#### 【0032】

該F12を含む汚染除去試薬の安定性、特に該組成物の水希釈液(20%(v/v))中の、ペルオキソ炭酸ナトリウム及びマグネシウムモノパーオキシフタレートの安定性をも、検討した。F12の水希釈液(20%(v/v))に対する、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートの添加は、相分離をもたらしたが、相安定性マイクロエマルションは、F12の1%ポリメタリン酸ナトリウムによる25%希釈液を用いて製造することができた。しかし、相安定性マイクロエマルションは、また5%のアルコールエトキシレートを含む組成物(変性F12組成物)を用いた場合にも製造することができた。水道水で希釈した変性F12の処方物は、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレート及び5%のペルオキソ炭酸ナトリウムの何れを用いた場合にも、相安定性のマイクロエマルションを製造し得る。変性F12は、また海水を用いて製造した場合に、また5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートを添加した場合に、室温にて30分間の安定性を持つ。

#### 【0033】

カルバポール(Carbapol<sup>TM</sup>)ウルトレツツ(Ultrez)10(ノベオンヨーロッパ)、メトセル(Methocel) TM K15-DGS-Eヒドロキシプロピルメチルセルロース(ダウヨーロッパ(Dow Europe) SA)及びザンタンガムを含む、様々な増粘剤をも検討した。組成物Aに添加されたカルバポールウルトレツツ10は、分散することのない塊状物を形成したが、試薬マグネシウムモノパーオキシフタレートとの混合前に、その後に、又は該混合物として該増粘剤(マイクロエマルションの3%(w/v))を添加することにより、増粘化をもたらし、この増粘化は、組成物Aを添加した際に大幅に高められた。マグネシウムモノパーオキシフタレートが存在しない場合には、組成物Aを添加した際に粘度の増大は発生しなかった。2.75%のカルバポールウルトレツツ10を含有する処方物は、垂直表面に付着するのに要する粘度を持つ、マイクロエマルションを与えた。テスト3におけるTMSで汚染された垂直プレートに適用した場合、この処方物は、30分間全体に渡り、該表面上に、ゲル状の外観を持つ厚い層として維持され、該プレートからTMSを引き摺り下ろすとは考えられなかった。該TMSの大部分が、該処方物に溶解したものと考えられた。汚染除去後に該プレートから回収されたTMSは、17.5%及び24.2%(2回の実験)であり、これは、粘性のために適用圧力はより低か

10

20

30

40

50

ったものの、最低の回収率、即ち最良の処方物であることを示した。この高い粘度は、より低い拡散速度のために、水平浸漬テストプレートからの模擬体の回収率を高めることができたが、汚染除去後のテスト2におけるプレートからのTMS回収率は、26.8%であったが、事実、これは希釀(20% (v/v))された組成物Aに関する回収率を除き、全ての以前の処方物に関する値よりも低いものであった。

#### 【0034】

ジプロピレングリコールモノメチルエーテルではなく、寧ろジエチレングリコールモノブチルエーテル(F32)又はエチレングリコールモノブチルエーテル(F33)を含有する組成物は、マイクロエマルションを増粘するのに、僅かに2.5%のカルバポールウルトレツツ10を必要とするに過ぎなかった。これらの処方物は、またF31を主成分とする処方物よりも多量のTMSを、テスト3におけるプレートから除去した。TMSの最大の回収率は3.9%であった。F32を主成分とする処方物も、テスト1におけるTMSの液滴を溶媒和することができた。

希釀(20% (v/v))されたF32と、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートとを含む処方物における、カルバポールウルトレツツ10の量は、水に近い粘度を持つ1.2%から、粘稠過ぎて噴霧できないために、該プレート上に流し込む必要のある2.8%までの範囲内で変動させた。マグネシウムモノパーオキシフタレートの存在下における、増粘剤の最適濃度は、約2.5%であることが分かり、これはまた垂直表面に対する優れた粘着特性を示す処方物を与えることが分かっている量である。

#### 【0035】

テスト2及びテスト3を、また様々な希釀率でF32を含む処方物を用いて行った。その粘度は、F32の10% (v/v)水希釀液について最大値に達し、F32の希釀率の減少に伴って該粘度は低下した。この効果を打消すために、また該粘度を一定に維持するために、カルバポールウルトレツツ10の割合をも変化させた。かくして、F32の40% (v/v)希釀液に、可能な最大濃度の増粘剤及びマグネシウムモノパーオキシフタレート(MMPA)を含む溶液を添加した。全ての低希釀率が、これ(表1)に適合する粘度を示した。その結果は、F32の希釀率の減少が、該TMSの溶媒和の増加と比例しないことを示した。

#### 【0036】

##### 【表1】

表1: F32含有組成物を含む汚染除去処方物				
F32の希釀率(%) (v/v)	水(mL)	F32(mL)	MMPA(g)	カルバポールウルトレツツ10(g)
20	80	20	5	2.000
25	75	25	5	2.375
30	70	30	5	2.750
35	65	35	5	3.125
40	60	40	5	3.500

#### 【0037】

カルバポールウルトレツツ10は、利用可能な全てのカルバポールの中で、最小の湿潤時間を持ち、また数分以内に増粘されたマイクロエマルションを形成し得るが、該増粘剤成分を、粉末として別途添加することは望ましくなかった。しかし、カルバポールウルトレツツ10は、攪拌された組成物の渦流中に徐々に添加し、また数時間攪拌を継続することにより、塊状物を生成することなしに、F32含有組成物に導入することができた。該増粘剤は湿潤し、また結果的に数日間に渡り該組成物を増粘し、これは5%の水の添加により助長された。該F32含有組成物をポンプ輸送可能な状態に維持するために、該組成物に含めることのできる増粘剤の最大量は、1.8% (w/v)であることが分かり、これは該マイクロエマルション(組成物濃度20%において)中の、0.36%と等価であった。しかし、20% (v/v)なる水希釀率において、該マイクロエマルションの粘度は、増粘剤処理されていない処方物の粘度よりも大幅に高いものとは思われず、またマグネシウムモノパーオキシフタレー

10

20

30

40

50

トの添加は、相分離を生じた。しかし、この相分離は、水の代わりに0.5%クエン酸溶液を使用して、該マイクロエマルションを製造することにより、回避することができた。

【0038】

該F32含有組成物を添加する僅か数分前に、該水にカルバポールウルトレツツ10を添加することにより、該マイクロエマルションを製造する場合、該増粘剤は、十分に湿潤しておらず、このことが、該マイクロエマルションが、放置した場合に、数時間に渡り増粘し続ける理由、及びこのように大量の(マイクロエマルションにおいて2.5%)増粘剤が必要とされる理由を、説明するものであった。水を含む該組成物に、カルバポールウルトレツツ10を導入することによって、少量の増粘剤の使用によって、十分に湿潤させ、結果としてより効果的なものとすることが可能であると考えられた。

F32含有組成物は、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む、相安定性マイクロエマルションを形成する。しかし、該汚染除去試薬としてマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む、マイクロエマルションを製造するために、該水道水の代わりに海水を用いた場合には、該薬剤の表面への付着を可能とするために必要とされる粘度は達成されず、また大量の泡が発生した。その上、マグネシウムモノパーオキシフタレートをペルオキソ炭酸ナトリウム又はバッファーで置換すると、該カルバポールウルトレツツ10の水道水溶液のゲル形成をもたらし、これはF32含有組成物を添加した際に、迅速に構造を喪失する。F32の溶解度特性及び変性F12の安定性を得るための試みにおいて、これら2種のハイブリッド(F32/F12ハイブリッド)を形成した。F32と比較して、該ハイブリッド処方物の高い界面活性剤濃度は、海水又はペルオキソ炭酸ナトリウムの存在下において、該処方物の安定性を改善することはなかった。

【0039】

安定性の比較テストを、室温にて行った。変性F12、ウルトレツツ10で増粘したF32、及びF32/F12ハイブリッドを含む処方物は、全て5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートの存在下において、該所要の短期安定性を持つものと思われた。主な相として水道水を用いて製造した、これら3種のマイクロエマルションの中で、該変性F12を主成分とする処方物のみが、該試薬として5%のペルオキソ炭酸ナトリウムを添加した際に、安定性を維持していた。主な相として海水を用いた場合には、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートの存在下において、変性F12は、これら3種の中で最も安定であると思われた。該F32/F12ハイブリッド及びF32含有マイクロエマルション両者は、該汚染除去試薬としてペルオキソ炭酸ナトリウムを、また該水性相として海水を用いた場合、30分後に相分離を開始した。変性F12は、最初の30分間は一相を維持したが、その後短期間の間に相分離した。

【0040】

ザンタンガム、特にクザン(KZAN)[ケルザン(Kelzan S<sup>TM</sup>; CPKelco)]は、増粘剤としてのカルバポールウルトレツツ10であると見做された。モノプロピレングリコールに分散されたクザンの分散液(20% (w/v))を、F32含有(20% (w/w))組成物に添加して、組成物(F36)を得たが、これは水で希釈(20% (v/v))した際に即座に増粘し、また5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートによって安定化された。結果として、該マイクロエマルション中において、必要とされる2.5%というカルバポールウルトレツツ10よりも大幅に低い、0.8%なるレベルであり、また該汚染除去試薬を、別途粉末として供給/添加する必要性がなくなるであろう。放置した場合に、クザンは該処方した組成物の底部に沈降するが、攪拌又は振とうにより容易に再分散した。該クザンの該F32含有組成物への直接的な添加(3.4% (w/w))は、放置した場合に沈降する該増粘剤の分散液を与え、また一旦再分散され、水で20% (v/v)に希釈されると、即座に増粘されたマイクロエマルションを与えた。該マイクロエマルションにおける0.5%に等価な、該F32含有組成物に分散された2.5%のクザンも、垂直表面に付着することのできる、増粘処方物を与えた。カルバポールウルトレツツ10で増粘されたマイクロエマルションとは異なり、この系は、放置した後に粘度の増加を示さなかつたが、温度依存性を示した。より高い温度においては、より多量のクザンが、粘度維持のための必要とされた。しかし、これらの処方物は、該組成物の添加前に、該水

10

20

30

40

50

にマグネシウムモノパーオキシフタレートを添加した場合には、粘度増加を示さなかつたが、ペルオキソ炭酸ナトリウムは、該組成物の添加前又はその後に、該水に添加することができた。該処方物中の23%を越える組成物の割合において、粘度が失われ、またこのことは、該組成物又はその個々の成分における増加ではなく、寧ろ含水率の低下によるものであることが分かった。

#### 【0041】

該クザンで増粘した処方物は、試薬の存在下で、カルバポールウルトレツツ10で増粘した処方物よりも高い安定性を有していた。海水を含む該マイクロエマルションは、増粘されないが、安定性が重要である最初の30分間に分離することはなかった。

該ザンタンで増粘した処方物における、TMSの安定性を、テスト2及びテスト3を利用して検討した。この処方物は、30分間の浸漬に対して、テスト3の該垂直テストプレートの表面に付着していた。ザンタンで増粘したマイクロエマルションを用いて汚染除去した後の、該プレートからのTMSの回収率は、未増粘の処方物又はウルトレツツ10で増粘したマイクロエマルション(テスト3を除き、流失を結果する未増粘の処方物を使用した)を用いて得た、匹敵する結果よりも著しく高いものであった。

TMSを用いた浸漬テストは、変動する量のクザン増粘剤を使用して行い、閾値レベルにおいて、溶解度に及ぼす負の影響が作用し始めるか否かを検討した。これらのテストは、該処方物によるTMSの除去率が、1.5%未満のクザン(マイクロエマルションでは0.3%)を使用した場合に、高いことを示した。しかし、このレベルは、垂直プレートを30分間に渡り覆い得るのに十分に、該処方物を増粘しなかった。増粘剤を使用しなかった、該F32を主成分とするマイクロエマルション相は、5%のペルオキソ炭酸ナトリウムを添加した際に即座に分離した。該組成物における、ジエチレングリコールモノブチルエーテル、二塩基性エステル溶媒、及びC<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EOの割合を変化させ、その安定性を測定した(表2)。

#### 【0042】

##### 【表2】

表2: F32含有組成物の改良、及び組成物の20%(v/v)希釈液とペルオキソ炭酸ナトリウムとを含む汚染除去処方物に及ぼす効果			
グリコール (%)	塩基性エステル 溶媒(%)	エトキシレート(%)	ペルオキソ炭酸ナトリウムに対するマイクロエマルションの安定性
50	30	20	3%で相分離
45	30	25	4%で相分離
55	30	15	4%で即座に相分離
55	25	20	4%で安定、5%で相分離
50	25	25	4%で安定、5%で相分離
50	20	30	5%で安定
45	25	30	5%で相分離

#### 【0043】

ペルオキソ炭酸ナトリウムを安定化する最適の組成物は、従って50%のジエチレングリコールモノブチルエーテル、20%の二塩基性エステル溶媒、及び30%のC<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルコールエトキシレート6EOを含むものであった(F51)。また、トファ25(25-30%のロジン酸を含むタル油脂肪酸)及びトリエタノールアミンを含む石鹼(F48; F49)が、5%のペルオキソ炭酸ナトリウムの存在下において安定性を与えることが分かった。該F32、F48又はF49を主成分とするマイクロエマルション(20%(v/v))の何れも、これらにマグネシウムモノパーオキシフタレートを添加した際に、3時間の放置時間以内に相分離を引起了。

ザンタンガムは、予想されるように、マグネシウムモノパーオキシフタレートが添加されるまでに、また該増粘効果が失われるまでに、該石鹼を含有する処方物の粘度を高めた。従って、この処方物は、TMSを溶解するに十分な長さの期間に渡り、垂直なテストプレ

10

20

30

40

50

ートに付着することはなかった。しかし、その粘度は、組成物を20%(v/v)ではなく、寧ろ15%(v/v)にて使用して、該マイクロエマルションを製造した場合に、マグネシウムモノパーオキシフタレートの存在下で、粘度が維持された。しかし、該マイクロエマルションは、該トファ25石鹼を、トファ1(タル油脂肪酸1)含有石鹼に置換した場合には、より一層粘度が維持されるものと思われた。カルバポールウルトレツ10増粘剤も、石鹼が存在する場合に、F32と組み合わせた場合に、石鹼が存在しない場合と同様に、良好に機能した。

#### 【0044】

5%のペルオキソ炭酸ナトリウムの存在により、該石鹼含有マイクロエマルションは、pH9.5を有していた。このpHを高めて、該処方物の反応性を高めるための、炭酸ナトリウムの添加は、相分離を引起した。しかし、この問題は、一つの安定な相を形成するために、少量のハイドロトロピー剤を添加することによって排除された。オクタン酸及びデカン酸のカリウム塩のブレンドである、モノトローブ(Monotrope<sup>TM</sup>) 810(ユニケマ(Uniquema)社製)を選択し、該リン酸エステルカリウム塩又はモノトローブ(Monotrope<sup>TM</sup>) 1620アルキルポリサッカライドの何れに必要とされるよりも少量で、該組成物に配合した。モノトローブ(Monotrope<sup>TM</sup>) 810の該組成物への配合は、該石鹼の含有率を半分にし(F53及びF54)、またペルオキソ炭酸ナトリウムを含む、20%(v/v)希釈液の安定性も維持された。

未増粘の処方物を用いてテスト2を実施して、組成物F32、F48、F49、F51及びF53の、TMSの溶解度に及ぼす効果を評価した(表3)。

#### 【0045】

##### 【表3】

表3：テスト2におけるTMSの溶解度			
組成物(20%(v/v)水希釈液)	F32組成物との差異	テスト2；%TMS回収率	テスト2；%TMS回収率-rpt
F32		15.9	12.8
F48	10%の石鹼でグリコールを置換	17.6	15.2
F49	10%の石鹼でアルコールエトキシレートを置換	44.3	37.8
F51	10%の更なるアルコールエトキシレートで二塩基性エステル溶媒を置換	36.3	33.1
F53	5%の石鹼、5%のモノトローブ810で、グリコールを置換	34.1	35.5

#### 【0046】

従って、該F48を主成分とする処方物は、殆ど該F32を主成分とする処方物と同程度に、TMSの除去において有効であったが、このことは、該処方物におけるグリコール濃度の低下が、化学戦略剤の溶解度に対して殆ど影響しないことを示唆している。しかし、他の組成物を主成分とする処方物は、大幅に低下したTMSの溶解度を示した。

F54の20%(v/v)水希釈液を含む汚染除去処方物は、化学戦略剤で汚染された表面の、十分な汚染除去に必要とされる溶解度特性を持つことが示された(実施例3を参照のこと)。該F54含有マイクロエマルションは、マグネシウムモノパーオキシフタレートが存在する場合には、該F32含有処方物と同程度ではないが、カルバポールウルトレツ10で増粘した。クザン(KZAN)の配合は、該マイクロエマルションに殆ど増粘作用を及ぼさないが、垂直表面に適用した際には、薄層が付着した。この問題は、該組成物におけるクザンの量を2倍の5%とすることによって改善できた。

#### 【0047】

石鹼のハイドロトロピー剤を添加したF32である組成物F54は、20%まで希釈し、更に5%のマグネシウムモノパーオキシフタレート又は5%のペルオキソ炭酸ナトリウムを添加した場合に、相安定性を示す。マグネシウムモノパーオキシフタレートは、マスター

10

20

30

40

50

ビス-(2-クロロエチル)スルフィド(サルファーマスターD)及び生物戦略剤の汚染除去に適しており、一方ペルオキソ炭酸ナトリウムは、V神経剤及びG神経剤の汚染除去に適している。組成物F54+5%ザンタンガム増粘剤は、最初、ペルオキソ炭酸ナトリウム溶液を添加した際に、粘稠なマイクロエマルションを生成する。単独の水に添加した場合、より高い粘度が観測され、これは、マグネシウムモノパーオキシフタレートを添加した際に、その大部分が保持される。該マグネシウムモノパーオキシフタレートは、該水/F54/ザンタンガム混合物を増粘処理した後に、該組成物に添加する必要がある。F54の希釈液は、カルバポールウルトレツツ10で増粘(マイクロエマルション中2.5%；該組成物の添加に先立って、該活性試薬と共に水に添加される)することができるが、F32の場合ほどには、該マイクロエマルションに高い粘度を与えない。未増粘のF54は、5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む海水で、20%(v/v)に希釈した場合に、室温にて30分間に渡り相安定性を維持する。生成するマイクロエマルションは、環境的に良性のものである。

10

## 【0048】

高い発泡性及び泡安定性を持つ組成物(F55)を開発した。未増粘のF32を主成分とするマイクロエマルションを含む組成物は、栓をした計量シリンド内で振とうすることにより製造し、これを、泡の量及びその安定性について観察した。少量の増粘剤の配合、例えばF32含有組成物への1%のウルトレツツ10の添加も、泡の安定性を助長するであろう。泡状の未増粘F32を主成分とするマイクロエマルションを、テスト3のプレートに適用すると、TM Sの高い回収率(32.5及び34.1%)がもたらされた。これらの回収率は、熟練者による装置の操作により改善されるものと予想されるが、該泡は、増粘処理された処方物ほどには、該汚染除去すべき表面との良好な接触状態を与えないであろう。

20

実施例3：化学戦略剤としての、5%K125メタクリレートポリマーの添加により増粘処理した、サルファーマスターD(ビス-(2-クロロエチル)サルファイド；純度>99%) (tHD)；5%K125メタクリレートポリマーの添加により増粘処理した、神経剤GD(O-ピナコリルメチルホスホノフルオリデート；純度>99%) (tGD)；神経剤VX(O-エチル-S-2-ジイソプロピルアミノエチル)メチルホスホノチオレート；純度>97%)を使用した、F54の20%(v/v)希釈液、及び5%のペルオキソ炭酸ナトリウム又は5%のマグネシウムモノパーオキシフタレートの何れかを含む汚染除去処方物の性能の評価：

20

## 【0049】

実験は、該汚染除去処方物を使用して、30にて行い、該処方物は、約100mL/minにて、手持ち式のスプレイから分配した。初期の実験は、各々4分間に及ぶ、15分間隔の2回の適用、30分後の水による濯ぎからなる噴霧プロトコールは、終始一貫して、十分な汚染除去をもたらすことを示した。

30

各実験においては、3個のトレーが使用され、各トレーには2つのサンプルプレート(160×100mm)が収容されていた。信頼度の高い限界を決定するのに十分な反復実験を行うために、これら3つのトレー全てを同等に処理した。該汚染除去剤+水による洗液(流出液)をも、残留する、そのままの薬剤につき分析した。平坦なポリウレタン-塗装されたプレートを、1.25 μL/cm<sup>2</sup>(12.5mL/m<sup>2</sup>)なる公称初期汚染密度を与えるように、等体積のtHD、tGD及びVXで汚染させた。該12.5mL/m<sup>2</sup>なる公称密度は、増粘剤の質量に関する補正後、VXに対して12.6g/m<sup>2</sup>、tGDに対して12.2g/m<sup>2</sup>、及びtHDに対して15.2g/m<sup>2</sup>に相当する。

40

## 【0050】

実験は、該プレートの2つの配向、即ち垂直及びほぼ水平(5°)を用いて行った。ほぼ水平なる配向は、真に水平な配向が、汚染除去剤によるテスト表面の冠水を結果し、従って人為的に長い接触時間をもたらすであろうとの理由から選択した。これは、また新たな汚染除去剤の、該表面への放出を防止するであろう。

汚染除去及び濯ぎの後、該プレートを、溶媒抽出のために取出した。最後に、該トレイを、あらゆる残留薬剤の捕獲及び除去の各期間経過後、溶媒(酢酸エチル)で濯いだ。残留汚染物は、200mLのプロパン-2-オール溶媒を用いて、該プレートから抽出した。残留汚染物は、液/液溶媒抽出により、全ての汚染除去流出液及び水洗水サンプルから採取した。1:1容の酢酸エチルを導入し、該サンプルを十分に振とうした。次いで、該相を10分間に渡

50

り分離させた後に、該溶媒相のサンプルを採取した。定量的なCW(化学戦略)剤の分析は、十分に確立された技術を利用して、火炎光度法検出器(FPD)及びスプリット/スプリットレス/カラム注入口を備えた、アジーレント(Agilent) 6890シリーズのガスクロマトグラフィー上で行った。これら研究室テストの結果を、以下の表4~6に示す。

【0051】

【表4】

表4: 増粘HDの汚染除去					
tHDの%回収率、垂直			tHDの%回収率、ほぼ水平(5°)		
トレイ1	トレイ2	トレイ3	トレイ1	トレイ2	トレイ3
<0.02	<0.02	<0.02	0.20	0.21	0.069
<0.02	<0.02	<0.02	0.026	0.041	0.018
平均<0.02			平均0.094 (SD 0.088)		

10

【0052】

【表5】

表5: 増粘GDの汚染除去					
tGDの%回収率、垂直			tGDの%回収率、ほぼ水平(5°)		
トレイ1	トレイ2	トレイ3	トレイ1	トレイ2	トレイ3
<0.003	<0.003	<0.003	<0.003	<0.003	<0.003
<0.003	<0.003	<0.003	<0.003	<0.003	<0.003
平均<0.003			平均<0.003		

20

【0053】

【表6】

表6: VXの汚染除去					
VXの%回収率、垂直			VXの%回収率、ほぼ水平(5°)		
トレイ1	トレイ2	トレイ3	トレイ1	トレイ2	トレイ3
0.042	0.043	0.028	0.061	0.011	0.055
0.010	0.22	0.028	0.011	0.07	0.061
平均0.062 (SD 0.078)			平均0.045 (SD 0.028)		

30

【0054】

「完璧な」汚染除去に対する $<10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 残留マスターD剤なる、NATOの基準は、これら実験室テストで使用した初期値 $15.2\text{g}/\text{m}^2$ の $<0.66\%$ に相当する。「完璧な」汚染除去に対する $<1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 残留VX剤なる、NATOの基準は、同様な初期値 $12.6\text{g}/\text{m}^2$ の $<0.079\%$ に相当する。「完璧な」汚染除去に対する $<1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 残留GDなる、控え目に想定した基準は、初期値 $12.2\text{g}/\text{m}^2$ の $<0.082\%$ に相当する。

従って、これらテストの結果は、2度の各4分間の噴霧なる適用プロトコールが、増粘マスターD及び増粘GDの、同様に矛盾のない「完璧な」汚染除去を達成したことを見ている。VXに関する結果は、限界に近いものであり、その結果の平均は、該「完璧な」基準を満足するが、幾つかの個々の結果は、許容レベルを越えた。

また、5%のペルオキソ炭酸ナトリウムを含む組成物Aの20% (v/v) 希釈液が、VXの汚染除去を達成したことも示された。該ペルオキソ炭酸塩の濃度は、臨界的であり、該ペルオキシアニオンに加えて、5%なるペルオキソ炭酸塩濃度において、真のペルオキソ炭酸塩(percarbonate)イオンも生成された。ペルオキソ炭酸塩は、酸化性の触媒であり、これはVXの硫黄原子を酸化し、その後の過加水分解(perhydrolysis)を促進する可能性がある。

40

50

## 【0055】

## 実施例4:

生物戦略剤模擬体の汚染除去は、F54の20% (v/v) 希釀液+5% のマグネシウムモノパーオキシフタレートを含む汚染除去処方物を使用して行った。テストプレートは、標準的な軍需用ポリウレタン塗料被膜で被覆された、80×40mmのアルミニウムプレートからなっていた。これらプレートは、クラスIII生物学的に安全な実験室中で、バチルスアトロフェウス (*Bacillus atrophaeus*) (BG) の胞子を含む水性懸濁液の液滴を、該プレート表面にピペットで落下させ、次いで乾燥させることにより調製した。この工程は、該テスト片を、偶発的な汚染から保護し、一方該胞子で該実験室が汚染されるのを防止する。該胞子懸濁液は、 $3 \times 10^8$  /mLなる胞子を与えるように標準化され、またテスト片当たり0.1mLなる濃度で適用され、これは、約 $3 \times 10^7$  個の胞子なる最終的な濃度を与える。この胞子の最終的な濃度(公称 $9.4 \times 10^9$  胞子/m<sup>2</sup>)は、実質的にNATOの推奨する、 $10^9$  胞子(1mg)/m<sup>2</sup>なる「基本的な」攻撃濃度を越えるものである。汚染されたテストプレートを、その垂直及び水平位置両者の状態で、テストリグに取付け、15分間隔での、2回の各4分間に渡る汚染除去剤の適用、その後の水洗により処理した。該汚染除去処方物は、ホゼロックポリスプレー (Hozelock Polyspray) スプレーを用いて放出した。処理後、該プレートを、サンプルポット中のカゼインペプトンレシチンポリソルベートプロス(メルク(Merck)社製)のアリコート150mL中に懸垂することにより、停止させた。5分間以上の停止浸漬後、1時間以内の期間、該サンプルを十分に混合し、1mLのサンプルを取出した。次いで、トリプカーゼソヤプロス (Trypcase Soya Broth; バイオメリュー(Biomerieux))で、一連の希釀液を調製し、トリプカーゼソヤ寒天 (Trypcase Soya Agar; バイオメリュー) 上で、展開プレート(spread plate)法により計数した。次いで、残留プロスを、その場で、テストプレートを用いてインキュベートすることにより、存在確認テストを行った。寒天プレート及びプロスは、両者とも37 ℃にて3日間インキュベートした。これらテスト由来の汚染除去剤流出液のサンプルを集め、1/100なる希釀率にて停止させ、同様にテストした。これらテストの結果を、以下の表7及び8に示す。

## 【0056】

## 【表7】

表7: バチルスアトロフェウス (*Bacillus atrophaeus*) (BG) の汚染除去、水平配向; 偶発的な汚染による可能な人為的結果

サンプル	プレート当たりの残留生菌数	存在確認テスト
プレート1	$5 \times 10^2$ *	A*
プレート2	ナシ	A
プレート3	ナシ	P(<500のレベル)
プレート4	ナシ	A
プレート5	ナシ	A
プレート6	ナシ	A
コントロール	c. $3 \times 10^7$	
流出液	ナシ	A

## 【0057】

10

20

30

40

【表8】

表8: バチルスアトロフェウス(BG)の汚染除去、垂直配向		
サンプル	プレート当たりの残留生菌数	存在確認テスト
プレート1	ナシ	A
プレート2	ナシ	A
プレート3	ナシ	A
プレート4	ナシ	A
プレート5	ナシ	A
プレート6	ナシ	A
コントロール	c. $3 \times 10^7$	
流出液	ナシ	A

10

20

## 【0058】

バチルスアトロフェウス(*Bacillus atrophaeus*)の汚染除去に関する、上記NATOの「基本的な」要件は、<1000コロニー形成単位(Colony Forming Units; CFU/m<sup>2</sup>)なる残留汚染であり、また「望ましい」要件は、<20CFU/m<sup>2</sup>である。これらテストにおいて使用した、3.2×10<sup>-3</sup>m<sup>2</sup>なるプレートに対して、該「基本的な」レベルは、プレート当たり<3.2CFUに等しく、あるいは全数において、5種のプレート当たり全体として16個をテストした。該「望ましい」レベルは、このテスト系においては、測定不能である。しかし、これらテストを該NATOの「基本的な」レベルを越える大きさの、初期汚染密度にて行ったという事実、またそのままのテストプレート及び該汚染除去流出液両者について行った、存在確認テストにおける多数の負の結果は、このものが著しく効果的な処方物であることの強力な指標を与える。一つの水平サンプル由来の正の結果は、恐らく汚染によるものであり、従って無視することができる。上記結果から、水平及び垂直テスト両者において、該NATOの「基本的な」レベルが満たされているものと理解することができ、また該処方物は、上記「望ましい」レベルを満足する可能性を持つものと推定できる。

## 【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/GB2007/000877

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. A62D3/38

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)

A62D

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

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

EPO-Internal, WPI Data, CHEM ABS Data

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category <sup>a</sup>	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2002/142928 A1 (MACHAC JAMES R [US] ET AL MARQUIS EDWARD T [US] ET AL) 3 October 2002 (2002-10-03) column 2, lines 11-14 column 2, paragraph 22 column 3, paragraph 29 - column 4, paragraph 33 column 4, paragraph 34 claims	1-23
Y	US 2005/109981 A1 (TUCKER MARK D [US] ET AL) 26 May 2005 (2005-05-26) claims	20
Y	US 2005/109981 A1 (TUCKER MARK D [US] ET AL) 26 May 2005 (2005-05-26) claims	20
		-/-

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 document but published on or after the International filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

\*T\* later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

\*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

\*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

\*&\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the International search	Date of mailing of the International search report
9 July 2007	24/07/2007
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer  DALKAFOUKI, A

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/GB2007/000877

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 6 369 009 B1 (MACHAC JR JAMES R [US] ET AL) 9 April 2002 (2002-04-09) column 4, lines 5-32,59-67 column 5, lines 21-24,42-63 column 12; claims; example 6	1-23
X	US 5 712 237 A (STEVENS EDWIN B [US]) 27 January 1998 (1998-01-27) column 4, lines 39-59 column 7, line 44- -- column 8, line 15 column 28, lines 21-67	1,3,6-8
X	EP 0 412 475 A2 (DU PONT [US]) 13 February 1991 (1991-02-13) page 6, lines 22-32,49,50	1-18,23
A	US 6 743 828 B1 (KATZ HARVEY [US] ET AL) 1 June 2004 (2004-06-01)	
A	JP 2003 226757 A (STYLO JAPAN SHIZUOKA KK) 12 August 2003 (2003-08-12)	1
A	DATABASE WPI Week 200414 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 2004-136953 XP002440983 & JP 2003 226757 A (STYLO JAPAN SHIZUOKA KK) 12 August 2003 (2003-08-12) abstract	1
A	JP 2000 095893 A (FUKAI H) 4 April 2000 (2000-04-04)	1
A	DATABASE WPI Week 200027 Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 2000-313043 XP002440984 & JP 2000 095893 A (FUKAI H) 4 April 2000 (2000-04-04) abstract	1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT				International application No	
Information on patent family members				PCT/GB2007/000877	
Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date	
US 2002142928 A1	03-10-2002	NONE			
US 2005109981 A1	26-05-2005	NONE			
US 6369009 B1	09-04-2002	US	6395103 B1	28-05-2002	
US 5712237 A	27-01-1998	NONE			
EP 0412475 A2	13-02-1991	AU	628614 B2	17-09-1992	
		AU	6017490 A	07-02-1991	
		BR	9003840 A	03-09-1991	
		DE	69004521 D1	16-12-1993	
		DE	69004521 T2	05-05-1994	
		HK	6694 A	28-01-1994	
		JP	2007010 C	11-01-1996	
		JP	3143999 A	19-06-1991	
		JP	7037639 B	26-04-1995	
US 6743828 B1	01-06-2004	US	2005032917 A1	10-02-2005	
JP 2003226757 A	12-08-2003	NONE			
JP 2000095893 A	04-04-2000	NONE			

## フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
A 0 1 N 37/10 (2006.01)	A 0 1 N 37/10	
A 0 1 N 37/04 (2006.01)	A 0 1 N 37/04	
A 0 1 N 31/14 (2006.01)	A 0 1 N 31/14	
C 1 1 D 3/20 (2006.01)	C 1 1 D 3/20	
C 1 1 D 3/43 (2006.01)	C 1 1 D 3/43	
C 1 1 D 1/72 (2006.01)	C 1 1 D 1/72	
C 1 1 D 17/00 (2006.01)	C 1 1 D 17/00	
C 1 1 D 3/33 (2006.01)	C 1 1 D 3/33	
C 1 1 D 3/37 (2006.01)	C 1 1 D 3/37	
C 1 1 D 1/04 (2006.01)	C 1 1 D 1/04	
C 1 1 D 3/39 (2006.01)	C 1 1 D 3/39	
A 0 1 P 3/00 (2006.01)	A 0 1 P 3/00	
A 6 2 D 101/02 (2007.01)	A 6 2 D 101:02	
A 6 2 D 101/22 (2007.01)	A 6 2 D 101:22	
A 6 2 D 101/28 (2007.01)	A 6 2 D 101:28	

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

- (74) 代理人 100084009  
弁理士 小川 信夫
- (74) 代理人 100084663  
弁理士 箱田 篤
- (74) 代理人 100093300  
弁理士 浅井 賢治
- (74) 代理人 100114007  
弁理士 平山 孝二
- (72) 発明者 プラウドロック ケヴィン  
イギリス国 ピー66 1ピーティー ウエスト ミッドランズ スメスウィック スプリング  
ロード グラモス アプライド リミテッド内
- (72) 発明者 ステュアート アマンダ  
イギリス国 ピー66 1ピーティー ウエスト ミッドランズ スメスウィック スプリング  
ロード グラモス アプライド リミテッド内
- (72) 発明者 ゴヴァン ノーマン  
イギリス国 ウィルシャー エスピ-4 0ジェイキュー ソールズベリー ポートン ダウン  
ディーエスティーエル内
- (72) 発明者 ミッセル スティーヴン ジェイムズ  
イギリス国 ウィルシャー エスピ-4 0ジェイキュー ソールズベリー ポートン ダウン  
ディーエスティーエル内
- (72) 発明者 マケヴォイ ハリー  
イギリス国 ウィルシャー エスピ-4 0ジェイキュー ソールズベリー ポートン ダウン  
ディーエスティーエル内

4H003 AB03 AB19 AC08 AD04 BA12 DB01 EA20 EB09 EB10 EB13  
EB14 EB41 EB43 EB46 ED02 ED03 ED29 ED32  
4H011 AA02 BA04 BB06 BC03 BC06 DA16 DD01 DG16