

(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2007-517875

(P2007-517875A)

(43) 公表日 平成19年7月5日(2007.7.5)

(51) Int. Cl.		F I	テーマコード (参考)
<b>CO7D 403/12</b>	<b>(2006.01)</b>	CO7D 403/12	4CO63
<b>CO7D 403/14</b>	<b>(2006.01)</b>	CO7D 403/14	CSP

審査請求 有 予備審査請求 未請求 (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2006-549217 (P2006-549217)	(71) 出願人	590000824
(86) (22) 出願日	平成16年1月16日 (2004. 1. 16)		ナショナル スターチ アンド ケミカル
(85) 翻訳文提出日	平成17年11月17日 (2005. 11. 17)		インベストメント ホールディング コ
(86) 国際出願番号	PCT/US2004/001192		ーポレイション
(87) 国際公開番号	W02005/077923		アメリカ合衆国, デラウェア 19720
(87) 国際公開日	平成17年8月25日 (2005. 8. 25)		, ニューキャッスル, ユニケマ ブールバ
			ード 1000
		(74) 代理人	100089705
			弁理士 社本 一夫
		(74) 代理人	100140109
			弁理士 小野 新次郎
		(74) 代理人	100075270
			弁理士 小林 泰
		(74) 代理人	100080137
			弁理士 千葉 昭男

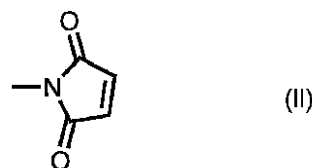
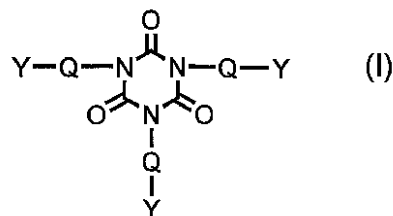
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シアヌレート核を有するマレイミド樹脂

## (57) 【要約】

構造(I) (式中、Yは、少なくとも1つマレイミド基が存在することを条件として、ヒドロキシル基、-OH又はマレイミド基、式(II)であり、Qは二価の有機基(脂肪族又は芳香族)である。)を有するイソシアヌレート化合物又は樹脂。

【化1】

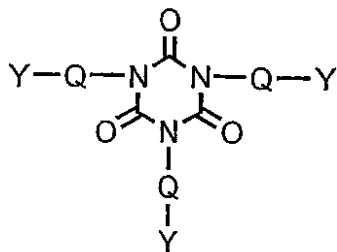


【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記構造：

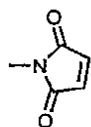
【化 1】



10

(式中、Yは、少なくとも1つのYがマレイミド基であることを条件として、ヒドロキシル基、-OH又はマレイミド基、

【化 2】



20

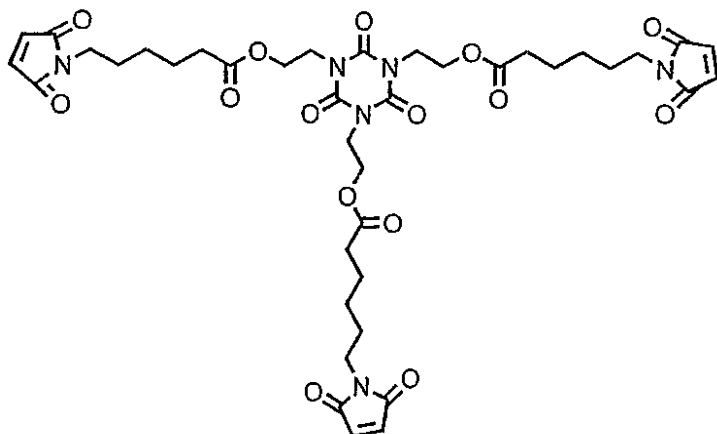
であり、Qは二価の有機基である。)

を有する化合物。

【請求項 2】

下記構造：

【化 3】



30

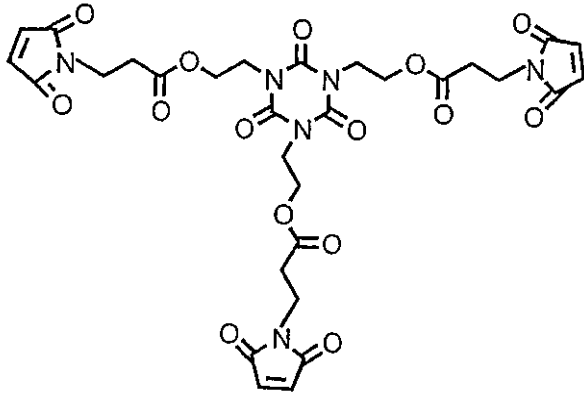
を有する請求項 1 の化合物。

【請求項 3】

下記構造：

40

【化 4】



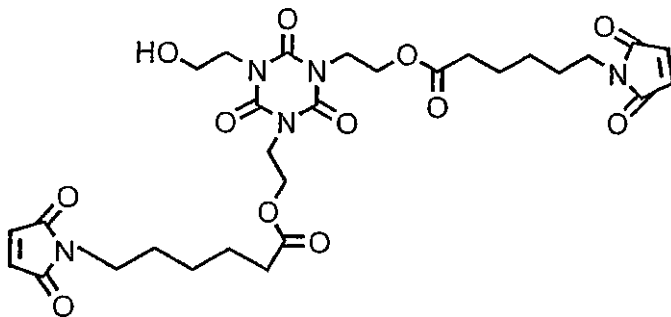
10

を有する請求項 1 の化合物。

【請求項 4】

下記構造：

【化 5】



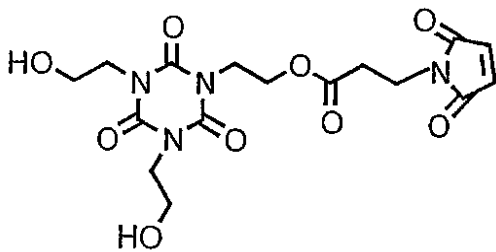
20

を有する請求項 1 の化合物。

【請求項 5】

下記構造：

【化 6】



30

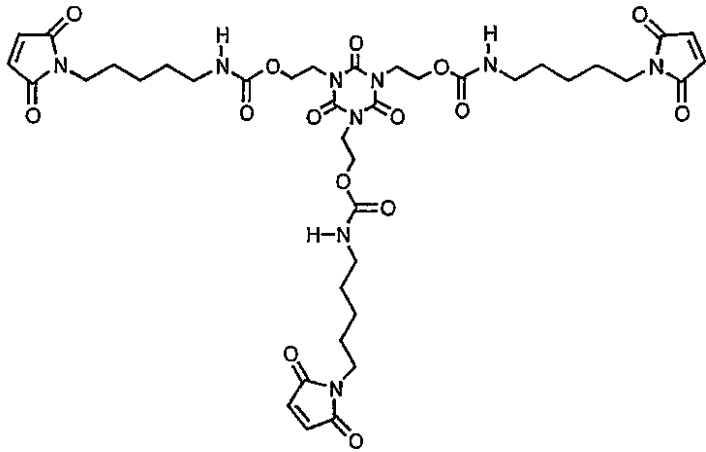
を有する請求項 1 の化合物。

【請求項 6】

下記構造：

40

## 【化 7】



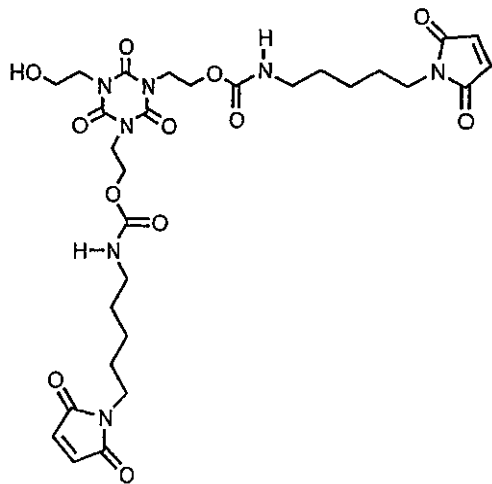
10

を有する請求項 1 の化合物。

## 【請求項 7】

下記構造：

## 【化 8】



20

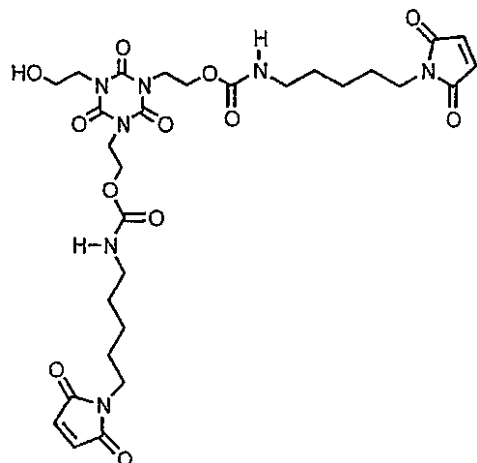
30

を有する請求項 1 の化合物。

## 【請求項 8】

下記構造：

## 【化 9】



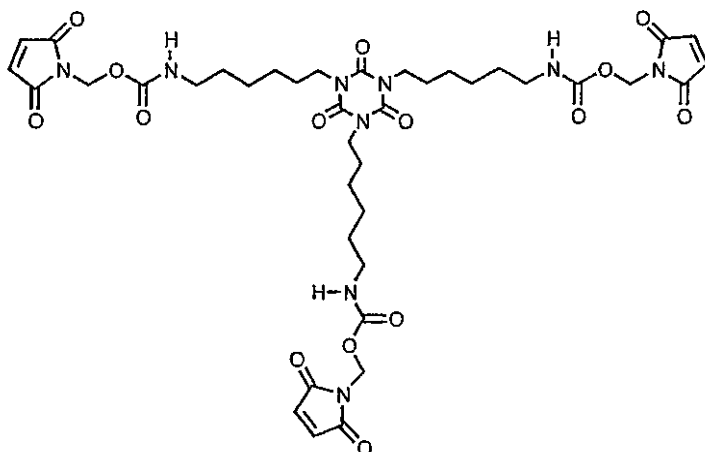
10

を有する請求項 1 の化合物。

## 【請求項 9】

下記構造：

## 【化 10】



20

30

を有する請求項 1 の化合物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

発明の分野

本発明は、シアヌレート核を含み、半導体パッケージにおける接着材又は封止材としての使用に適するマレイミド化合物又は樹脂に関する。

40

## 【0002】

発明の背景

マレイミド末端基及び芳香族核又はアルキレン主鎖を有する樹脂が知られている。またアクリレート末端基及びイソシアヌレート核を有する樹脂も知られている。このような樹脂は接着材、封止材 (encapsulant) 及びシーラントとして有用である。しかし、半導体パッケージの作製に使用される材料に対して厳格な要求が存在する半導体産業では、有用な性質を備えた新しい樹脂が常に求められている。本発明の樹脂に関しては、高温での改善された接着性及び改善されたモジュラスに起因する有用性が見出されている。

## 【0003】

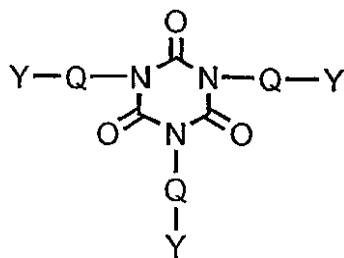
発明の概要

50

本発明は、イソシアヌレート核及びその核から放射状に延びる炭化水素アーム部の末端にある1以上のマレイミド基を有する化合物である。この化合物は下記構造：

【0004】

【化1】



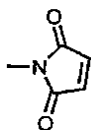
10

【0005】

(式中、Yは、少なくとも1つのマレイミド基が存在することを条件として、ヒドロキシル基、-OH又はマレイミド基、

【0006】

【化2】



20

【0007】

であり、Qは二価の有機基、脂肪族基又は芳香族基である。) )

を有する。この有機基は線状又は環状であってもよく、炭素-炭素不飽和結合又は酸素、窒素及び硫黄などのヘテロ原子を含んでもよい。有機基はまた、アミド基、カルバメート基、カルボキシル基、エステル基、チオ基、尿素基などの官能基を含んでもよい。Qとしては、ポリエステル類、ポリウレタン類、ポリシロキサン類、単純アルキレン又はアルケニレン基等が挙げられる。核から放射状に延びるアーム部の構造は、作業者の必要に応じて変えることができる。アーム部の構造及びその合成法の例は、本明細書において後述する。

30

【0008】

発明の詳細な記述

本発明において接着材組成物に使用されるイソシアヌレート化合物は、硬化性の化合物である。硬化性の化合物とは、架橋を伴う又は架橋を伴わない重合反応を行うことができる化合物を意味する。本明細書に使用されるように、硬化とは架橋を伴う又は架橋を伴わない重合反応を意味する。当業界で理解されているように、架橋は、元素、原子団 (molecular group) 又は化合物によって二つのポリマー鎖が付着することであり、一般に加熱又は放射線で引き起こされる。架橋密度を増加させると、材料の性質を熱可塑性から熱硬化性に変化させることができる。

40

【0009】

接着材組成物は更に少なくとも1つのフリーラジカル開始剤を含む。この開始剤は、1以上の不対電子を有する分子断片に分解する化学種であると定義され、反応性が高く、通常、寿命が短い。開始剤は、連鎖反応機構によって化学反応を開始することができる。フリーラジカル開始剤は、有機化合物(全ての充填材を除く)の0.1~10重量%、好ましくは0.1~3.0重量%の量で存在する。フリーラジカル硬化機構は、速い硬化をもたらし、硬化前の長い貯蔵寿命を有する組成物を与える。好ましいフリーラジカル開始剤としては、ブチルペルオクトエート、ジクミルペルオキシドなどのペルオキシド類、2、

50

2'-アゾビス(2-メチル-プロパンニトリル)、2,2'-アゾビス(2-メチル-ブタンニトリル)などのアゾ化合物などが挙げられる。

【0010】

別の態様として、接着材組成物はフリーラジカル開始剤の代わりに光開始剤を含むことができ、硬化プロセスをUV照射によって開始することができる。光開始剤は、有機化合物(全ての充填材を除く)の0.1~10重量%、好ましくは1~5.0重量%の量で存在する。いくつかの場合において熱開始剤及び光開始剤の両方を好ましく用いることができる。例えば、その硬化プロセスはUV照射によって開始し、その後の加工工程において硬化を加熱によって完了してフリーラジカル硬化を達成することもできる。

【0011】

一般に、これらの組成物は80~200の温度範囲で硬化し、硬化反応は1分未満~60分の時間で行われる。理解できるように、各接着材の時間及び温度の硬化プロフィールは異なっており、特定の工業的製造工程に適する硬化プロフィールを与えるような異なる組成物を設計することができる。

【0012】

接着材用の好ましい導電性充填材は、銀、銅、金、パラジウム、白金である。いくつかの状況では、例えばレオロジーを調整するためには、アルミナ、シリカ、テフロン(登録商標)などの非導電性充填材が必要である。

【0013】

接着促進剤などの他の添加剤を、当業界で知られている種類と量で添加することもできる。

これらの組成物はダイ取り付け用接着材として商業的に許容できる範囲内で性能を発揮する。80×80mil<sup>2</sup>シリコンダイの接着に関して、ダイせん断力の商業的に許容される値は室温で1kg以上、240で0.5kg以上であり、500×500mil<sup>2</sup>ダイのそり用の商業的に許容される値は室温で70µm以下である。

【0014】

これら材料を製造するための典型的な合成スキームは、マレイン酸無水物をアミノ酸と反応させてアミック酸付加物を形成することを含む。その付加物は脱水、閉環してカルボキシル官能基を有するマレイミド環となる。マレイミド上のカルボキシル官能基は更に1,3,5-トリス(2-ヒドロキシエチル)シアヌル酸上のヒドロキシル基と反応してシアヌレート核を有するマレイミド樹脂を与える。

【0015】

アミック酸付加物の形成は、アセトニトリルなどの適切な溶媒中のマレイン酸無水物と、酢酸中の6-アミノカプロン酸、アラニンなどのモル当量のアミノ酸との反応を通じて起こる。この反応は、一般に、室温で、3~4時間かけて起こる。生成物は、ろ過により集めて、冷アセトニトリルで洗浄し、乾燥してアミック酸付加物を得る。アミック酸付加物は、トルエン中トリエチルアミンと混合し、数時間加熱(110~150の範囲内)して脱水、閉環反応を起こす。反応によって生成した水は集めて除去し、有機溶媒を減圧留去し、そのpHを2MのHClで2に調整して生成物を中和する。得られたカルボキシル官能基を有するマレイミドは酢酸エチルで抽出し、MgSO<sub>4</sub>で乾燥し、溶媒を留去した。マレイミドとしては、6-マレイミドカプロン酸、3-マレイミドプロピオン酸などが挙げられる。

【0016】

イソシアヌレート核を有するマレイミドを形成するために、マレイミドは硫酸及びトルエンなどの適切な溶媒中で1,3,5-トリス(2-ヒドロキシエチル)シアヌル酸と反応させる。モル当量はシアヌレート上の置換基が所望のレベルになるように調整する。反応液は、反応液から生成する理論量の水が除去されるまで加熱還流される。反応液はろ過され、ろ過液を1時間トリエチルアミン中で洗浄し、20%NaCl溶液で3回洗浄する。有機相を集め、シリカで乾燥し、溶媒を留去してシアヌレート核を有するマレイミド得る。これら生成物にはアーム部とシアヌレート核とを連結するエステル官能基が存在する

10

20

30

40

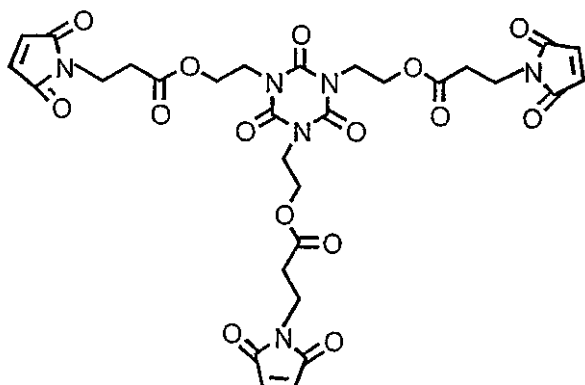
50

## 【0017】

実施例1で開示した化合物の他に、上記の方法はマレイミドでキャップされたアーム部の異なる置換数及び長さを有する様々な化合物を製造することに使用できる。追加の例示的化合物としては以下のものが挙げられる。

## 【0018】

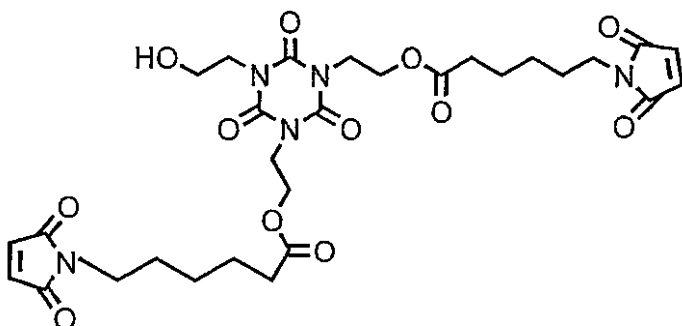
## 【化3】



10

## 【0019】

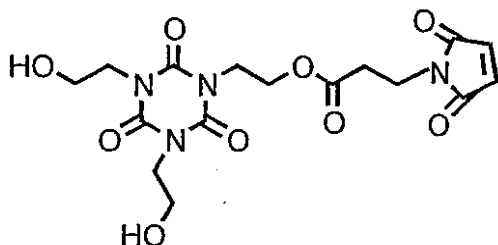
## 【化4】



30

## 【0020】

## 【化5】



40

## 【0021】

別の態様において、シアヌレート核を有するマレイミドはカルバメート官能基を含む。これら化合物を製造するための合成スキームはカルボキシル官能基を有するマレイミドの酸クロライド類似体を調製し、その酸クロライドをアジ化ナトリウムと反応してイソシアネート官能基を有するマレイミドを形成し、最後にそのイソシアネートを1,3,5-トリス(2-ヒドロキシエチル)シアヌル酸と反応することを含む。

## 【0022】

カルボキシル官能基を有するマレイミドを過剰量の塩化チオニルと代表的な条件(例えば50 3時間)で反応させて酸クロライドを形成する。残余の塩化チオニルは留去して

50

酸クロライド官能基を有するマレイミドを残す。酸クロライド官能基を有するマレイミドを、予め激しく攪拌して調製した水、トルエン及び触媒量のベンジルトリエチルアンモニウムクロライド中のアジ化ナトリウムのチルド(10)溶液にゆっくりと滴下する。その溶液を数時間、最初約15でその後約20で攪拌を続ける。有機相を分離し、2Nの炭酸水素ナトリウム水溶液で洗浄し、水で洗浄し、MgSO<sub>4</sub>で乾燥し、ろ過する。ろ過液を還流温度までゆっくりと加熱し、窒素の発生が止むまで還流を続ける。その溶液を還流下、更に30分間加熱し、冷却後ロータリーエバポレータを使用して濃縮する。残留物を高真空下蒸留して、イソシアネート官能基を有するマレイミドを生成する。

## 【0023】

シアヌレート核上の所望の置換数に応じて(1, 3, 5-トリス(2-ヒドロキシエチル)シアヌル酸当たりの)イソシアネート官能基を有するマレイミドの1~3モル当量をトルエンに溶解し、その溶液を窒素下70に加熱する。トルエンに溶解した1モル当量の1, 3, 5-トリス(2-ヒドロキシエチル)シアヌル酸を数分間かけてイソシアネート溶液に加え、得られた混合物を更に3~4時間70で加熱する。反応液を室温に放冷した後、その混合物を蒸留水で3回乾燥し、有機層を分離し、MgSO<sub>4</sub>で乾燥し、ろ過し、溶媒を真空下除去して生成物を得る。

10

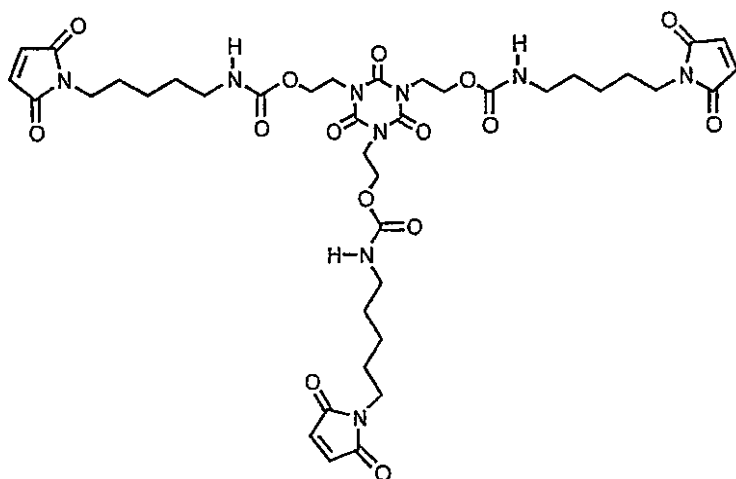
## 【0024】

上記の方法で調製される例示的化合物としては、以下のものが挙げられる。

## 【0025】

## 【化6】

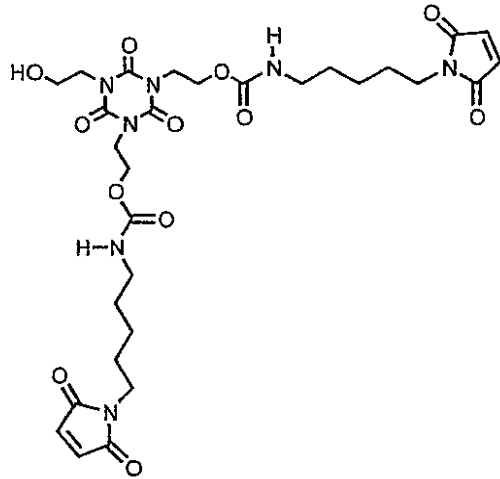
20



30

## 【0026】

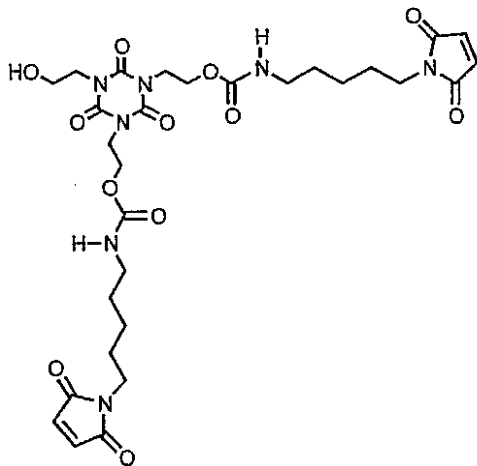
## 【化7】



10

## 【0027】

## 【化8】



20

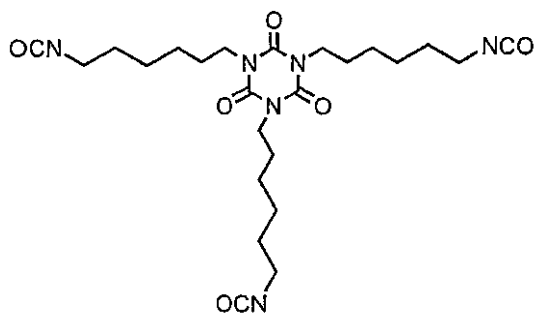
30

## 【0028】

別の態様において、シアヌレート核を有するマレイミド類はカルバメート官能基を含む。そのようなマレイミド類は、例えば、

## 【0029】

## 【化9】



40

## 【0030】

で示される出発化合物（Bayerから市販されているDesmodur N3300）中のシアヌレート上のイソシアネート官能基から始めて製造することができる。

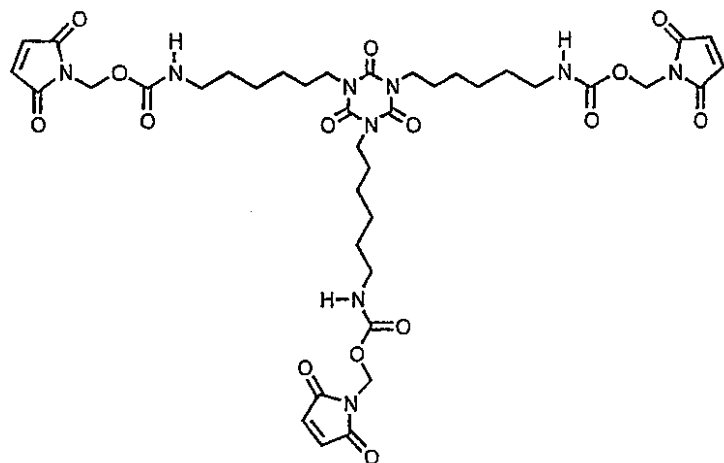
その出発化合物の1モル当量をトルエンに溶解し、窒素下に置き、その溶液を70℃に

50

加熱する。その後、所望の置換数に応じて、トルエンに溶解した 1 ~ 3 モル当量の N - アルキロール - マレイミド ( J. Bartus, W. L. Simonsick 及び O. Vogl, J. M. S. - Pure Appl. Chem., A36(3), 355, 1999 に従って調製 ) を数分間かけてイソシアネート溶液に加え、得られた混合物を更に 3 ~ 4 時間 70 ° で加熱する。反応液を室温に放冷した後、その混合物を蒸留水で 3 回乾燥し、有機層を分離し、MgSO<sub>4</sub> で乾燥し、ろ過し、溶媒を真空下除去して生成物を得る。この方法で調製される例示的化合物としては、以下のものが挙げられる。

【 0 0 3 1 】

【 化 1 0 】



10

20

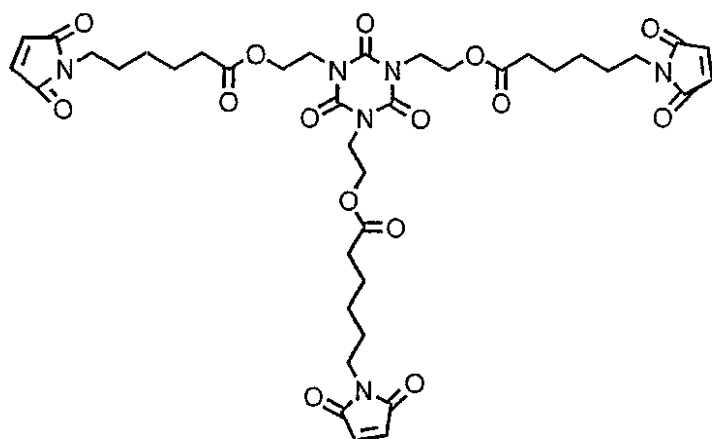
【 0 0 3 2 】

実施例

( 実施例 1 )

【 0 0 3 3 】

【 化 1 1 】



30

40

【 0 0 3 4 】

アミック酸付加物 ( 6 - マレイミドカプロン酸 ) の形成 :

アセトニトリル中 1 モル当量のマレイン酸無水物の溶液を、酢酸中 1 モル当量の 6 - アミノカプロン酸に加える。この混合物を、室温で 3 時間反応させる。生成した白色結晶をろ過し、冷アセトニトリルで洗浄し、乾燥してアミック酸付加物を得る。アミック酸付加物は、トルエン中トリエチルアミンと混合する。その混合物を 2 時間 130 ° に加熱し、水をデーンスタークトラップに集める。有機溶媒を留去し、2 M の HCl で pH 2 に調整する。酢酸エチルで抽出し、MgSO<sub>4</sub> で乾燥し、溶媒を留去して 6 - マレイミドカプロン酸を得る。

50

ン酸 (MCA) を得た。

【0035】

シアヌレートの形成：

1 リットルのフラスコに 1, 3, 5 - トリス (2 - ヒドロキシエチル) シアヌル酸 (25.00 g、96 mmol)、6 - マレイミドカブロン酸 (60.65 g、287 mmol)、硫酸 (1.00 g、10 mmol) 及びトルエン (400 mL) を仕込んだ。この反応容器に上部攪拌機、ディーンスタークトラップ及びコンデンサーを取り付けた。内容物を 115 に加熱して還流させた。計算量の水が生成するまで反応を続けた。反応フラスコを室温に冷却した後、その混合物をろ過した。そのフラスコにトリエチルアミン (12.4 g、123 mmol) を加え、1 時間攪拌した。この後、混合物を 20% NaCl 溶液 (3 × 400 mL) で洗浄した。有機相を集め、シリカゲル (50 g) を加え、1 時間攪拌し、ろ過し、溶媒を真空下除去して、透明であるがやや黄色い液体を得た。収率は約 50% であった。この 3 官能性マレイミド樹脂の粘度は 50 で 26, 000 cPs であり、その揮発性は TGA 分析に基づいて 200 で 0.12% であった。その NMR を図 1 として添付した。

10

【0036】

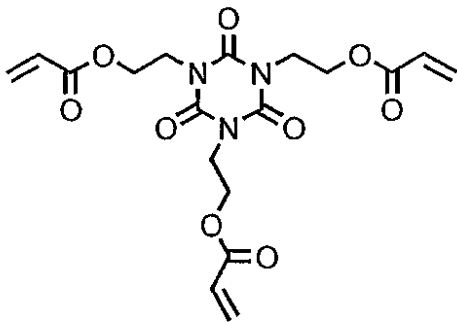
(実施例 2)

10 重量部のビスマレイミド樹脂、10 重量部のエポキシ樹脂、10 重量部のアクリレート樹脂及び 15 重量部のエチレングリコールジエチルメタクリレートを含む樹脂配合物を有効量の硬化剤及び接着促進剤と共に 45 重量% の銀フレークとブレンドした。この配合物に 2.5 重量部の実施例 1 からの化合物を加えた。対照例においては、上記配合物に 2.5 重量部の下記構造：

20

【0037】

【化 12】



30

【0038】

のシアヌレート核を有するアクリレート化合物を加えた。

対照例の配合物及びシアヌレート核を有するマレイミドを含む配合物を体積抵抗率及びダイセン断強度について試験した。各配合物の体積抵抗率は約 0.00002 ohm-cm であった。各配合物の接着強度は、200 で 2 分間硬化後、260 での、銀コートリードフレーム上の 500 × 500 mil シリコンダイを使用するダイセン断強度として試験した。対照例の配合物は 0.25 kg のダイセン断強度を有しており、これと比較して、本発明のマレイミド配合物は 0.36 kg の優れたダイセン断強度を有した。

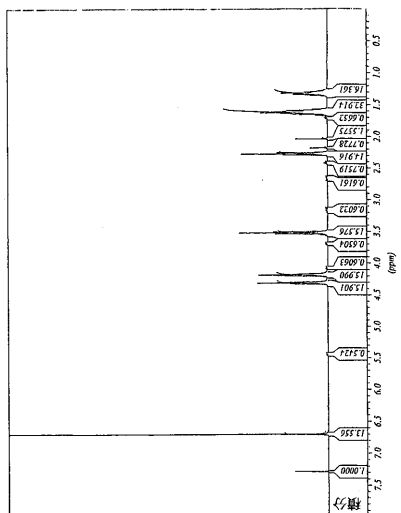
40

【図面の簡単な説明】

【0039】

【図 1】実施例 1 の NMR スペクトルである。

【図 1】



## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International Application No  
 PCT/US2004/001192

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 C07D251/30		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C07D		
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, BEILSTEIN Data, PAJ, WPI Data, CHEM ABS Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E	EP 1 411 081 A (NAT STARCH CHEM INVEST) 21 April 2004 (2004-04-21) paragraph '0009!; compound (A)	1-9
A	WO 92/07904 A1 (AKZO N.V., NETH.) 14 May 1992 (1992-05-14) page 12, lines 14,15	1-9
X	DATABASE CHEMABS 'Online! CHEMICAL ABSTRACTS SERVICE, COLUMBUS, OHIO, US; FUJII, KEIICHI ET AL: "Spacers and liquid-crystal displays using them" XP002298898 retrieved from STN Database accession no. 2004:32897 abstract	1
-/-		
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C.		<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in 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 5 November 2004		Date of mailing of the international search report 15/11/2004
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Zellner, A

2

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/US2004/001192

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	& JP 2004 012671 A (DAINIPPON INK AND CHEMICALS, INC., JAPAN) 15 January 2004 (2004-01-15) -----	
X	JP 2003 327662 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD., JAPAN) 19 November 2003 (2003-11-19) paragraph '0069! -----	1
X	JP 2003 040939 A (DAINIPPON INK AND CHEMICALS, INC., JAPAN) 13 February 2003 (2003-02-13) paragraph '0125! -----	1
X	JP 2001 348375 A (NIPPON KAYAKU CO., LTD., JAPAN) 18 December 2001 (2001-12-18) paragraph '0069! -----	1
X	JP 11 352683 A (DAINIPPON INK AND CHEMICALS, INC., JAPAN) 24 December 1999 (1999-12-24) pages 32-33; compounds 52,55,57 -----	1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No PCT/US2004/001192
---

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 1411081	A	21-04-2004	US 2004075161 A1 EP 1411081 A1 JP 2004165647 A	22-04-2004 21-04-2004 10-06-2004
WO 9207904	A1	14-05-1992	AR 247412 A1 AT 128967 T AT 139550 T AU 1656592 A AU 650692 B2 AU 8745891 A AU 648837 B2 AU 8765691 A BR 9107013 A BR 9107014 A CA 2095135 A1 CA 2095136 A1 CN 1061230 A ,B CN 1061229 A CZ 289800 B6 DE 69113810 D1 DE 69120428 D1 DK 556203 T3 DK 555288 T3 WO 9207828 A1 EP 0556203 A1 EP 0555288 A1 ES 2077869 T3 ES 2088505 T3 FI 931936 A FI 931937 A GR 3018216 T3 GR 3020382 T3 HU 65508 A2 HU 64991 A2 JP 6502150 T JP 3176367 B2 JP 6502208 T KR 192077 B1 PL 300609 A1 PL 300612 A1 RU 2067974 C1 RU 2118333 C1 SK 40493 A3 SK 40593 A3 US 5426155 A US 5405918 A US 5610240 A ZA 9108605 A ZA 9108607 A	29-12-1994 15-10-1995 15-07-1996 07-06-1993 30-06-1994 26-05-1992 05-05-1994 26-05-1992 28-09-1993 28-09-1993 30-04-1992 30-04-1992 20-05-1992 20-05-1992 17-04-2002 16-11-1995 25-07-1996 05-02-1996 15-07-1996 14-05-1992 25-08-1993 18-08-1993 01-12-1995 16-08-1996 29-04-1993 29-04-1993 29-02-1996 30-09-1996 28-06-1994 28-03-1994 10-03-1994 18-06-2001 10-03-1994 15-06-1999 21-03-1994 21-03-1994 20-10-1996 27-08-1998 06-10-1993 06-10-1993 20-06-1995 11-04-1995 11-03-1997 26-08-1992 26-08-1992
JP 2004012671	A	15-01-2004	NONE	
JP 2003327662	A	19-11-2003	NONE	
JP 2003040939	A	13-02-2003	NONE	
JP 2001348375	A	18-12-2001	NONE	

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International Application No  
PCT/US2004/001192

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 11352683	A	NONE	

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, 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, IT, LU, MC, NL, 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, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(74) 代理人 100096013  
弁理士 富田 博行

(74) 代理人 100102727  
弁理士 細川 伸哉

(72) 発明者 ムサ, オサマ・エム  
アメリカ合衆国ニュージャージー州 0 8 8 4 4 , ヒルズバロウ, メドウブルック・ドライブ 2 4  
Fターム(参考) 4C063 AA03 AA05 BB08 CC43 DD04 EE05

## 【要約の続き】

