



ESPAÑA

ES	NUMERO <b>470179</b>	A1
	FECHA DE PRESENTACION <b>24 MAYO 1978</b>	

- 5 DIC. 1978

Concedido el Registro de acuerdo con los datos que figuran en la presente descripción y según el tenor de la Memoria adjunta.

**PATENTE DE INVENCION**

30 PRIORIDADES: 31 NUMERO P 27 23 604.0			32 FECHA 25 de mayo de 1.977			33 PAIS República Federal Alemana.		
47 FECHA DE PUBLICIDAD		51 CLASIFICACION INTERNACIONAL A61C 13/22; C08L33/12			52 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA 75/04			
54 TITULO DE LA INVENCION PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION DE CUERPOS MOLDEADOS DENTALES A BASE DE POLIMETACRILATOS.								
71 SOLICITANTE (S) BAYER AKTIENGESELLSCHAFT.								
DOMICILIO DEL SOLICITANTE Leverkusen-Bayerwerk, República Federal Alemana.								
72 INVENTOR (ES) Dr. Carlhans Süling, Dr. Gerhard Ballé, Dr. Bernhard Leusner, Hans-Hermann Schulz, Dr. Michael Walkowiak.								
73 TITULAR (ES)								
74 REPRESENTANTE GOMEZ ACEBO.								

El objeto de la presente invención son cuerpos conformados dentales, tales como prótesis, coronas o puentes, con propiedades mecánicas mejoradas.

5 Las prótesis dentales de material sintético se preparan en la mayoría de los casos según el procedimiento de polvo-líquido [patente alemana 737.058].

10 En esta forma de trabajo se prepara un polímero perlado a base de polimetacrilatos con metacrilatos, tales como por ejemplo metilmetacrilato, a una masa agutando 2 hasta 3 partes de polvo con una parte de líquido. El monómero se ha mezclado, antes de la preparación de la masa, con un peróxido de manera que la masa, después de su introducción en un molde hueco se pueda endurecer por calentamiento bajo polimerización del monómero.

15 La fácil realización del procedimiento de obtención para prótesis dentales, corona y puentes hace que el procedimiento polvo-líquido sea una técnica standard para la obtención de las prótesis dentales de material sintético. Asimismo se conoce el mejorar la elaborabilidad de las perlas dentales en el procedimiento polvo-líquido empleando polvo de polimetilmetacrilato o, preferentemente perlas de polimetilmetacrilato de una granulometria determinada y, también es conocido mejorar la elaborabilidad de las perlas dentales no empleando perlas de polimetilenmetacrilato sino perlas de copolímeros del metilmetacrilato con una parte preponderante de metacrilato de metilo copolimerizado como polvo. Mediante estas variaciones se logra ajustar la elaborabilidad rapida deseada en el margen de elaboración grande asimismo deseado.

25 Es ventajoso en las prótesis dentales, coronas y puentes preparadas por el procedimiento de polvo-líquido.

a base de polimetilmetacrilato es que los valores mecánicos de la materia prima no satisfacen para muchas construcciones. Especialmente la tenacidad de los materiales sintéticos no alcanzan bajo solicitud en muchos casos el grado deseado para las prótesis, coronas y puentes. Una mejora de la resistencia al impacto del material sintético haría que la propensión a la rotura de las prótesis fuese más reducida y que por lo tanto en el proceso de limpieza se fuera a realizar con más seguridad.

Se ha descubierto que los cuerpos dentales preparados por el procedimiento de polvo-líquido, tales como prótesis, puentes y coronas a base de polimetacrilatos poseen propiedades mecánicas mejoradas si como polvo se emplean o se emplean simultáneamente polimetilmetacrilatos, que estén elastificados con poliuretanos.

Los mismo vale también para los dientes artificiales fabricados de esta manera. También como componente de materiales de reparación para prótesis dentales, puentes y coronas son adecuados los polimetilmetacrilatos elastificados con poliuretanos.

Es conocido que los polimetilmetacrilatos se pueden elastificar si la polimerización del metilmetacrilato se efectua según el procedimiento de una polimerización en masas con conformación simultánea, Sin embargo no era de esperar que se obtuviesen prótesis con propiedades mejoradas si se trabaja según el procedimiento de polvo-líquido y como polvo se emplea un polimetilenmetacrilato que como componente elastificante lleve un poliuretano.

Como es generalmente conocido, los materiales sintéticos dentales que se obtienen según el procedimiento de

polvo-líquido se caracterizan por una constitución especial. En el material sintético endurecido se encuentra, como se demuestra por métodos especiales, un sistema polifásico: el "líquido" original ha penetrado durante el proceso de esponjamiento solo parcialmente en las partículas de polvo. Una gran parte, sino la parte principal, del líquido polimeriza como fase por sí sola y llena los huecos entre las partículas de polvo originales esponjadas. Los cuerpos conformados de polimetacrilatos o de polimetacrilatos modificados, obtenidos por el procedimiento de polvo-líquido se diferencian en su constitución, por lo tanto esencialmente de los cuerpos conformados de polimetilmetacrilatos que se han obtenido a través de los procedimientos de conformación usuales.

Por la patente alemana 940.493 ya es conocido mejorar también los valores mecánicos de los cuerpos conformados de metilmetacrilatos, empleando mezclas de distintos polímeros o copolímeros como componente pulverulento. Para mejorar la resistencia a la flexión permanente, se emplean, por ejemplo, copolímeros de un 80% de metilmetacrilato y un 20% de butadieno. Tales copolímeros tienen sin embargo, debido al contenido en butadieno, una mala solidez a la luz.

Además se conoce por la patente alemana 940.493 el emplear como aditivo cloruro de polivinilo ulteriormente clorado para mejorar la resistencia a la flexión al impacto y la resistencia a la flexión continua de los cuerpos conformados a base de polímeros de metilmetacrilato que se han obtenido según el procedimiento de polvo-líquido. Los cloruros de polivinilo ulteriormente clorados como aditivo producen sin embargo una disminución de la estabilidad al coloreamiento. Además, al emplear peróxidos activos o temperaturas de polimeri-

zación más altas la estabilidad de los cloruros de polivinilo ulteriormente clorados no es suficiente.

Los cuerpos conformados para fines dentales, tales como prótesis dentales, puentes o coronas a base de materiales sintéticos, orgánicos se pueden obtener según distintos procedimientos.

Así, por ejemplo, el material sintético se puede transformar a través de procedimientos de inyección o de extrusión en los cuerpos conformados deseados.

Las prótesis dentales, puentes, coronas o dientes según la presente invención se obtienen según éste procedimiento conformando polimetacrilatos elastificados con poliuretano, en caso dado en mezcla con los polimetilmetacrilatos "inyectables" usuales a través de un dispositivo de inyección o a través de un dispositivo de extrusión.

Especialmente versátil para la obtención de prótesis dentales, coronas o puentes, es sin embargo el procedimiento de polvo-líquido. Los cuerpos conformados según la presente invención se obtienen según éste procedimiento empleando un polimetacrilato elastificado con poliuretano como polvo. Estos polvos se pueden obtener transformando los polimetacrilatos elastificados con poliuretano a través de un proceso de desmenuzación en un así llamado "acrilato astillado". Resultados especialmente buenos se obtienen sin embargo si se emplean aquellos polvos de metacrilato elastificados con poliuretano que se han obtenido según el procedimiento de una polimerización perlada.

El empleo según la presente invención de las perlas de polímero elastificadas aporta, además de una mejor elaboración en comparación con los acrilatos astillados adi-

5 cionalmente la ventaja de que los componentes elastificantes quedan mejor protegidos contra una disociación por y en general contra los efectos de los componentes del medio de la boca. En las perlas dentales se envuelve el poliuretano existente como fase independiente por la sustancia básica de las perlas dentales, el polimetacrilato, protegiéndose así contra tal acción. Además, las mismas perlas dentales se encaman en una matriz de polimetacrilato quedando así protegidas.

10 Una forma de ejecución especial en el procedimiento de la presente invención para la obtención de prótesis, coronas o puentes por el procedimiento de polvo-líquido consiste en ajustar el margen de elaborabilidad necesario empleando perlas dentales elastificadas de una granulometría determinada, o ajustando el comportamiento al esponjamiento de  
15 las perlas de polímero mediante el empleo de comónómeros en la polimerización de las perlas. Especialmente ventajoso es, sin embargo, ajustar las magnitudes características de la elaborabilidad y el margen de elaboración, que es especialmente importante para una manipulación dental, mediante la adición  
20 de perlas no elastificadas. Era sorprendente que la buena eficacia elastificante de las perlas dentales no quede reducida cuando estas últimas se emplean en mezcla con las perlas dentales usuales. Las proporciones de mezcla técnicamente favorables se han de determinar sin embargo para cada caso y dependen de la construcción y de la función de la prótesis o del  
25 puente.

30 Bajo polimetacrilatos en el sentido de la presente invención se entienden los productos de polimerización de ésteres de ácido metacrílico. En la mayoría de los casos el metacrilato de metilo es el componente principal pero

resultados útiles se logran también con ésteres polifunciona-  
les del ácido metacrílico y, para fines especiales, dan por  
ejemplo bis-GMA o sus productos de modificación, así como tam-  
bién los comonomeros mencionados en la patente US 3.730.947  
buenos resultados.

Bajo poliuretanos en el sentido de la pre-  
sente invención se entienden los productos de reacción de po-  
lioles y poliisocianatos. Interes técnico tienen especialmente  
aquellos poliuretanos que se obtienen de los diisocianatos  
mencionados a continuación:

- A) Diisocianatos alifáticos con un armazón de carbono ramifica-  
do de 7 hasta 36 átomos de carbono, por ejemplo 2,2,4- ó  
2,4,4-trimetilhexano-1,6-diisocianato, o las mezclas indus-  
triales de estos, los diisocianatos derivados de ésteres de  
la lisina, o los diisocianatos a base de ácidos grasos di-  
merizados, que, en forma conocida, se preparan por trans-  
formación de tales ácidos dicarboxílicos con hasta 36 áto-  
mos de carbono en las correspondientes diaminas y ulterior  
fosgenación,
- B) los diisocianatos cicloalifáticos, por ejemplo, 1,3-ciclo-  
butan-diisocianato, 1,3- y 1,4-ciclohexandiisocianato,  
2,4- ó 2,6-diisocianato-1-metilciclohexano ó 4,4'-diisocia-  
natodieciclohexilmetano, bien en forma de los isómeros geo-  
métricos puros o las mezclas industriales de los mismos,  
además, el 1-isocianato-3,3,5-trimetil-5-isocianatometilci-  
clohexano (isoforondiisocianato), así como finalmente
- C) los diispcianatos alifáticos o cicloalifáticos modificados  
por copolimerización de injerto radical con monómeros de  
vinilo, que se obtienen polimerizando en presencia de 100  
partes del diisocianato de 10 a 100 partes, preferentemente

metacrilato de metilo, con ayuda de un iniciador de polimerización radical, por ejemplo, de un peróxido orgánico, tal como peróxido benzóilico, peroctoato de terc.-butilo, etc, ó de un compuesto azóico alifático, tal como azoisobutironitrilo. Como sustrato de injerto son adecuados, además de los diisocianatos ya mencionados, también los diisocianatos alifáticos con cadena de carbono lineal, por ejemplo, el hexametilendiisocianato. Se ha demostrado que los diisocianatos alifáticos modificados de esta menra conducen a elastómeros de poliuretán-  
úreas que se disuelven claramente en metilmetacrilato monómero y, bajo adaptación correcta de los índices de refracción entre fase polímero y fase viscosa, dan polímeros claros.

Preferentemente se emplean el isofofondiisocianato o el hexametilendiisocianato modificado por copolimerización de injerto con metacrilato de metilo o isofofondiisocianato con un contenido en polímero de hasta un 50%, preferentemente hasta un 40%.

Como polioles que entran en consideración para la preparación de los poliuretanos según la presente invención son adecuados los dioles de cadena larga con dos grupos hidroxilo en posición final. Tienen preferencia los poliésteres, poliéteres, poliacetales, policarbonatos con pesos moleculares de 400 hasta 6000, que tienen una temperatura de transición de cristal  $\leq 20^{\circ}\text{C}$ .

Poliésteres conteniendo grupos hidroxilo adecuados son, por ejemplo, los productos de reacción de alcoholes divalentes con ácidos carboxílicos divalentes.

Para la preparación de los poliuretanos a emplear según la presente invención el componente hidroxilo y el componente isocianato no se emplean en cantidades equiva-

lentes sino se utiliza un exceso de uno u otro de los componentes. Especialmente en el procedimiento de prepolímero se obtiene en la primera etapa un prepolímero de poliuretano libre de grupos OH y que tienen grupos NCO funcionales y que aún puede contener diisocianato libre, y éste se hace reaccionar en una segunda etapa con el prolongador de cadena hasta alcanzar el peso molecular deseado. Generalmente queda en el producto un resto de grupos NCO libres que convenientemente se cierran con ayuda de un interruptor de cadena monofuncional [componente (C)]. Interruptores de cadena adecuados son, por ejemplo, los alcoholes alifáticos inferiores, tales como metanol, etanol, butanol o alcohol alílico.

Prolongadores de cadena de los poliuretanos de compuestos de cadena corta adecuados con dos compuestos hidroxilo a emplear según la presente invención son, por ejemplo:

Etilenglicol, propilenglicol-(1,2) y-(1,3), butilenglicol-(1,4), -(1,3) y -(2,3), pentadiol-(1,5), hexandiol-(1,6), octandiol-(1,8), neopentilglicol, 1,4-bis-hidroximetilciclohexano, 2-metil-1,3-propandiol, dietilenglicol, trietilenglicol, tetraetilenglicol, polietilenglicoles con un peso molecular  $\leq 400$ , dipropilenglicol, polipropilenglicoles con un peso molecular  $\leq 400$ , dibutilenglicol, polibutilenglicoles con un peso molecular  $\leq 400$ , 4,4'-dihidroxi-difenilpropano o hidroquinon-bis(2-hidroxi-etiléter).

Los polimetacrilatos elastificados con poliuretanos se mezclan para su elaboración en la técnica dental según el procedimiento de polvo-líquido con un monómero hasta obtener una masa. Como monómero sirve preferentemente el metilmetacrilato. Para elevar la estabilidad a los disolventes

y la resistencia a la abrasión de agregan monómeros que contienen 2 ó más enlaces dobles en la molécula y que con ello conducen a una reticulación. Como reticuladores se pueden emplear, por ejemplo, los siguientes compuestos en cantidades de un 0,1% en peso hasta 30% en peso, preferentemente un 1 hasta 15% en peso:

Etilenglicoldimetacrilato, trietilenglicoldimetacrilato, butandioldimetacrilato, trimetilolpropantrimetacrilato, bis-GMA, metilénbisacrilamida, triacrilformal así como los comonómeros bifuncionales mencionados en la patente US 3.730.947.

El endurecimiento de las masas obtenidas de polímero perlado y monómero se puede lograr mediante sistemas iniciadores suministradores de radicales a base de peróxidos o de compuestos azóicos alifáticos. Iniciadores de la polimerización adecuados son, por ejemplo, los peróxidos diazíflicos, tales como por ejemplo dibenzoilperóxido, los peróxidos alquilacíflicos, tales como por ejemplo el terc.-butilperpivalato, en caso dado en presencia de aceleradores, tales como aminas terciarias aromáticas, tales como por ejemplo anilinas alquiladas, toluilinas, xilidinas. Como aceleradores se pueden emplear además las sales de cobalto o de cobre, así como los compuestos del grupo de los barbiturators, así como los ácidos sulfínicos y sulfonas.

Mientras el endurecimiento a temperatura más elevada se puede efectuar solo por peróxidos, tales como dibenzoilperóxido, clorobenzoilperóxido, toluilperóxido o laurilperóxido, por iniciadores radicales, tales como por ejemplo nitrilo de ácido azoisobutírico o éster de ácido azoisobutírico, exige un endurecimiento a temperaturas bajas la adición de aceleradores. En el endurecimiento a temperatura elevada se nece-

sita de un 0,01% en peso hasta un 2% en peso de iniciador de la polimerización. Al endurecer a temperaturas bajas se necesita un 0,02% en peso hasta un 5% en peso de iniciadores de la polimerización, así como un 0,02% en peso hasta 5% en peso de aceleradores.

EJEMPLO 1.-

Perlas dentadas se preparan por un procedimiento de polimerización a perlas de metilmetacrilato en presencia de un poliuretano.

Como agente de dispersión en la polimerización de perlas se emplea  $MgCO_3$ , como iniciador peroxídico una mezcla de lauroilperóxido y dicitclohexilpercarbonato en proporción 1:1 en una cantidad de un 0,73%, referido al metilmetacrilato empleado (% en peso). El metilmetacrilato contenía un 9,9% de poliuretano disuelto.

En el poliuretano se trata de un poliéster poliuretano prolongado con "diol" a base de una mezcla de dos poliésterdioles A y B.

El poliésterdiol A se compone de un poliéster a base de ácido adípico, 1,6-hexandiol y neopentilglicol con un índice hidroxilo 66.

El poliéster B es un poliéster a base de etilenglicol, ácido adípico y anhídrico de ácido ftálico con un índice hidroxilo de 64.

El poliéster A (0,35 equivalentes) y el poliéster B (0,15 equivalentes) se hacen reaccionar con isoforon-diisocianato (0,75 equivalentes), se ajusta con butandiol-1,4 a un grado de prolongación de un 85% y se para con 2-hidroxi-etilmetacrilato. La formación de poliuretano se cataliza con dioctoato de estaño.

5 15 partes en peso de las perlas dentales obtenidas de esta manera se mezclan con 0,25% de peróxido dibenzofílico y se amasa con 5,36 partes en peso de un líquido de un 94% en peso de metilmetacrilato y un 6% en peso de etilenglicoldimetacrilato. De esta masa se prensan placas de 2 mm de espesor y a continuación se polimeriza.

10 La polimerización se realiza de la manera siguiente: En el transcurso de 30 minutos se calienta el baño María a 70°C, se mantiene constante durante 30 minutos a esta temperatura, después se calienta a 100°C y esta temperatura se mantiene constante durante otros 30 minutos. El enfriamiento de la cubeta se efectúa en el baño María.

15 Después de desencamar se cortan de la placa las probetas sin calentar la placa. Los cuerpos de muestra así obtenidos se someten al ensayo de Dynstat según DIN 53.452. Resultado de los ensayos: (en cada caso valor medio de 5 muestras de ensayo)

Resistencia al impacto	30,4 kp/cm <sup>2</sup>
Angulo de flexión	12,6°
20 Resistencia a la flexión	981 kp/cm <sup>2</sup>
Dureza a la presión de bola 10"	1355 kp/cm <sup>2</sup>
60"	1249 kp/cm <sup>2</sup>

25 En los ejemplos 2, 3 y 4 se emplearon asimismo perlas dentales elastificadas por poliuretano. Estas perlas dentales se diferencian en que en la polimerización a perlas se emplearon distintos poliuretanos como agentes elastificantes.

#### EJEMPLO 2.-

30 Las perlas dentales contienen un poliuretano en el que para su obtención en lugar de 0,75 equivalentes de iso-

forondiisocianato. Para prolongar se ajustó con butandiol a un grado de prolongación de un 90%.

Las perlas obtenidas de esta manera se mezclaron con 0,5% en peso de peróxido lauroílico y se polimerizó con un líquido compuesto de un 97% en peso de metilmetacrilato y un 3% en peso de trietilenglicol dimetacrilato y se sometió a la comprobación de la resistencia según DIN 53.452.

Resistencia al impacto	32,0 kp/cm <sup>2</sup>
Angulo de flexión	23,4°
Resistencia a la flexión	1315 kp/cm <sup>2</sup>
Dureza a la presión de bola 10"	1249 kp/cm <sup>2</sup>
60"	1137 kp/cm <sup>2</sup> .

### EJEMPLO 3.-

Las perlas dentales empleadas se obtienen igual a como descrito en el ejemplo 1; como poliuretano elastificante se emplea un poliéster poliuretano preparado con 1,25 equivalentes de isoforondiisocianato y ajustado con butandiol-1,4 a un grado de prolongación de 90%.

Las perlas obtenidas de esta manera se mezclan con un 0,1% en peso de peróxido diclorodibenzofílico y se polimeriza con un líquido compuesto de un 90% en peso de metilmetacrilato y un 10% de trimetilolpropantrimetacrilato y se sometió a la comprobación de la resistencia según DIN 53.452:

Resistencia al impacto	49,1 kp/cm <sup>2</sup>
Angulo de flexión	16,6°
Resistencia a la flexión	1086 kp/cm <sup>2</sup>
Dureza a la presión de bola 10"	1360 kp/cm <sup>2</sup>
60"	1252 kp/cm <sup>2</sup>

EJEMPLO 4.-

Las perlas dentales se han elastificado con un poliuretano que se ha obtenido empleando 1,5 equivalentes de isoforondiisocianato y con butandiol-1,4 se ha llevado a un grado de prolongación del 90%.

Los polímeros perlados obtenidos de esta manera se mezclaron con un 1% en peso de peróxido ditolúfico y se polimerizó con un líquido compuesto de un 88% en peso de metilmetacrilato y un 12% en peso de butandioldimetacrilato y se sometió a la comprobación de las resistencias según DIN 53.452:

Resistencia al impacto	27,3 kp/cm <sup>2</sup>
Angulo de flexión	16,8°
Resistencia a la flexión	1267 kp/cm <sup>2</sup>
Dureza a la presión de bola 10"	1517 kp/cm <sup>2</sup>
60"	1385 kp/cm <sup>2</sup>

EJEMPLO 5.-

4 partes en peso de perlas dentales obtenidas según el ejemplo 1 se mezclan con un 1% en peso de peróxido de bis-4-cloro-benzoilo y se amasa con 3 partes en peso de un líquido compuesto del 94% en peso de metilmetacrilato, 6% en peso de etilenglicoldimetacrilato y 0,7% en peso de N,N'-dimetil-p-toluidina. Con esta proporción de mezcla se obtiene una consistencia fluida. Una consistencia amasable se obtiene con una proporción de mezcla de 4,7 partes en peso de polvo con 2 partes en peso de líquido. La polimerización ha terminado a 23°C después de 16-17 minutos.

Los cuerpos de ensayo descritos en el ejemplo 1 se someten según DIN 53.452 a una comprobación de Dynstat. Resultados de la comprobación: (en cada caso valor medio)

de 5 cuerpos de ensayo)

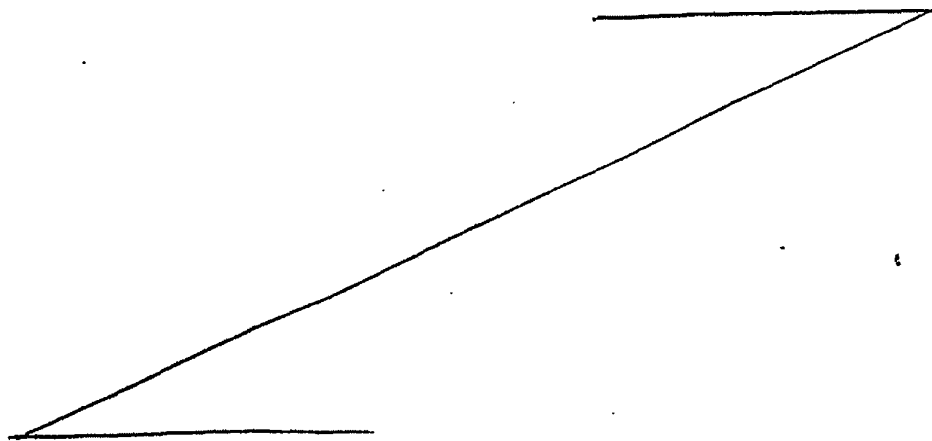
	Resistencia al impacto	27,4 kp/cm <sup>2</sup>
	Angulo de flexión	1005 kp/cm <sup>2</sup>
	Resistencia a la flexión	28,8°
5	Dureza a la presión de bola 10"	1327 kp/cm <sup>2</sup>
	60"	1137 kp/cm <sup>2</sup> .

#### Comparación.

10 Como ensayo de control se polimerizaron perlas de metilmetacrilato con un 0,25% en peso de dibenzoilperóxido con un líquido compuesto de un 94% de metilmetacrilato y un 6% en peso de etilenglicoldimetacrilato, y se sometió a la comprobación de resistencia según DIN 53.452:

	Resistencia al impacto	19,4 kp/cm <sup>2</sup>
	Angulo de flexión	18°
15	Resistencia a la flexión	1059 kp/cm <sup>2</sup>
	Dureza a la presión de bola 10"	1249 kp/cm <sup>2</sup>
	60"	1158 kp/cm <sup>2</sup>

20 Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle, en cuanto no alteren su principio fundamental.



REIVINDICACIONES

5 1.- Procedimiento para la obtención de cuerpos moldeados dentales a base de polimetacrilatos, por el procedimiento de polvo-líquido, caracterizado porque se polimeriza empleando como polvo polimetilmetacrilatos finamente particulados que han sido elastificados con poliuretanos.

10 2.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como polvo se emplean polimetacrilatos finamente particulados elastificados con poliuretano que se obtienen en forma de perlas de polímero por el procedimiento de polimerización de perlas.

15 3.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como polvo se emplean polimetilmetacrilatos elastificados con poliuretano que se han obtenido a través de un procedimiento de molturación como acrilatos astillados.

20 4.- Procedimiento según las reivindicaciones 2 y 3, caracterizado porque con los polimetilmetacrilatos elastificados con poliuretano se mezcla, para ajustar la elaborabilidad y margen de elaborabilidad con polímeros de metacrilato demetilo no elastificados.

25 5.- Procedimiento para la obtención de cuerpos moldeados dentales a base de polimetacrilatos, tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de dieciseis hojas es-

critas a máquina por una sola cara.

Madrid, 24 MAYO 1978

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT.

J. M. GOMEZ ACEBO Y COMAS  
p. p. Firmador J. Suarez Díez

