

(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
2020年9月3日(03.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/175534 A1

(51) 国際特許分類:
B60C 1/00 (2006.01) *C08L 91/00* (2006.01)
C08L 21/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/007679

(22) 国際出願日: 2020年2月26日(26.02.2020)

(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 2019-035837 2019年2月28日(28.02.2019) JP

(71) 出願人: J X T G エ ネ ル ギ ー
株 式 会 社 (**JXTG NIPPON OIL & ENERGY
CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008162 東京都千
代田区大手町一丁目1番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 伊藤 岳史(**ITO Takashi**); 〒1008162 東
京都千代田区大手町一丁目1番2号 J X
T G エ ネ ル ギ ー 株 式 会 社 内 Tokyo (JP). 新
保 紘子(**SHIMPO Hiroko**); 〒1008162 東京都
千代田区大手町一丁目1番2号 J X T G
エ ネ ル ギ ー 株 式 会 社 内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 棚 井 澄 雄, 外 (**TANAI Sumio et al.**);
〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁
目9番2号 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, 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))

(54) **Title:** OIL INCLUDING PETROLEUM-DERIVED AROMATICS, RUBBER COMPOSITION, TIRE, AND
METHOD FOR PRODUCING TIRE

(54) 発明の名称: 石油系芳香族含有油、ゴム組成物、タイヤ及びタイヤの製造方法

(57) **Abstract:** An oil including petroleum-derived aromatics which has a saturation fraction content, as determined by the
clay-gel method, of 45 mass% or less, the proportion of dicyclic aromatics separated as a fraction by HPLC being 16-29
mass% with respect to the amount of the aromatics that is taken as 100 mass%, and which has a benzo[a]pyrene content
of 1 mass ppm or less and a total content of the following specific aromatic compounds 1) to 8) of 10 mass ppm or less. 1)
benzo[a]pyrene, 2) benzo[e]pyrene, 3) benzo[a]anthracene, 4) chrysene, 5) benzo[b]fluoranthene, 6) benzo[j]fluoranthene,
7) benzo[k]fluoranthene, and 8) dibenzo[a,h]anthracene.

(57) 要約: クレイゲル法による飽和分の割合が、45質量%以下であり、HPLCを用いて分画される2
環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、16質量%以上29質量%以下であり、ベンゾ
(a) ピレンの含有量が1質量ppm以下であり、下記1)~8)の特定芳香族化合物の含有量の合計が
10質量ppm以下である、石油系芳香族含有油。1) ベンゾ(a)ピレン、2) ベンゾ(e)ピレン、
3) ベンゾ(a)アントラセン、4) クリセン、5) ベンゾ(b)フルオランテン、6) ベンゾ(j)フル
オランテン、7) ベンゾ(k)フルオランテン、8) ジベンゾ(a, h)アントラセン。



WO 2020/175534 A1

明 細 書

発明の名称：

石油系芳香族含有油、ゴム組成物、タイヤ及びタイヤの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、石油系芳香族含有油、ゴム組成物、タイヤ及びタイヤの製造方法に関する。

本願は、2019年2月28日に、日本に出願された特願2019-035837号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 一般にゴム製品には、ゴム組成物の加工性や軟化性を改善するためにプロセスオイルが配合されることが多い。たとえばSBR（スチレンブタジエン共重合体ゴム）等の合成ゴムには、その合成時に伸展油（エキステンダーオイル）が配合されている（ゴム配合油）。また、タイヤ等のゴム加工製品には、その加工性やゴム加工製品の品質を改善するために加工油（プロセスオイル）が配合されている。ここでは伸展油と加工油とで表現を分けているが、これらは総称してプロセスオイルと呼ばれることがある。

一方で、欧州においては、ゴム配合油に特定の発ガン性多環芳香族化合物を特定量以上含有するものを、タイヤ又はタイヤ部品の製造に使用してはならないとの規制（REACH規則）が2010年より適用されている。そのため、REACH規則に合致するゴム配合油が求められている。

[0003] 自動車分野における省燃費化の動向は非常に注目されており、タイヤの省燃費化についてもさらなる改良が要求されている。タイヤには、2010年1月からタイヤラベリング制度が開始されるに伴い、省燃費性を示す「転がり抵抗性能」とブレーキ性能を示す「ウェットグリップ性能」の向上が強く求められている。しかしながら、一般に転がり抵抗性能とウェットグリップ性能とは背反の関係にあり、これらの高次元での両立が課題となっている。

[0004] タイヤの転がり抵抗性能の向上には、空気抵抗の低減や、トレッドパター

ンの工夫などの他、ゴム組成すなわちトレッドコンパウンド自身のヒステリシスロスを抑制する手法がある。近年、タイヤ処方のひとつである補強材として、シリカを配合するコンパウンドが普及してきている。シリカは、単に配合するだけではコンパウンド中でシリカ同士が凝集して、ゴム変形時にシリカ分子同士が擦れてエネルギーロスを生じやすい。これに対し、ウェットグリップ性能を保ちつつ、転がり抵抗性能を改良するという狙いから、末端変性シリカやシランカップリング剤を適用することで、シリカの存在形態をコントロールする手法が提案されている。

特許文献1によれば、ゴム成分と、含水炭酸カルシウムと、シランカップリング剤とを混練する第一ベース練り工程と、前記第一ベース練り工程により得られた混練物と、シリカとを混練する第二ベース練り工程とを含む製造方法により得られるタイヤ用ゴム組成物が開示されている。これによれば、シリカの分散性に優れ、省燃費性、ウェットグリップ性能、耐摩耗性をバランス良く向上できるタイヤ用ゴム組成物が得られるという。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2012-153787号公報

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、タイヤには、さらなる「転がり抵抗性能」及び「ウェットグリップ性能」の向上と、これらの両立が求められている。かかる要求に対し、シリカやシランカップリング剤以外のゴム部材からの様々なアプローチが期待される。

[0007] 本発明は、上記のような問題点を解消するためになされ、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れたゴム組成物を製造可能とし、REACH規則を満たす石油系芳香族含有油を提供することを目的とする。

また、本発明は、REACH規則を満たす石油系芳香族含有油を含有し、

転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れた、ゴム組成物を提供することを目的とする。

また、本発明は、前記石油系芳香族含有油を含有するタイヤ、及び前記タイヤ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

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、飽和分と、芳香族分のなかでも特に2環芳香族分と、を下記の特定量で含む油を配合することで、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れたゴム組成物を製造可能であることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明の一態様は、下記の石油系芳香族含有油、ゴム組成物、タイヤ、及びタイヤの製造方法である。

[0009] (1) クレイゲル法による飽和分の割合が、45質量%以下であり、
HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、16質量%以上29質量%以下であり、
ベンゾ(a)ピレンの含有量が1質量ppm以下であり、
下記1)～8)の特定芳香族化合物の含有量の合計が10質量ppm以下である、石油系芳香族含有油。

- 1) ベンゾ(a)ピレン(BaP)
- 2) ベンゾ(e)ピレン(BeP)
- 3) ベンゾ(a)アントラセン(BaA)
- 4) クリセン(CHR)
- 5) ベンゾ(b)フルオランテン(BbFA)
- 6) ベンゾ(j)フルオランテン(BjFA)
- 7) ベンゾ(k)フルオランテン(BkFA)
- 8) ジベンゾ(a, h)アントラセン(DBAhA)。

(2) 前記クレイゲル法による飽和分の割合が、22質量%以上である、前記(1)に記載の石油系芳香族含有油。

(3) 前記HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族

分100質量%に対し、23質量%未満である、前記(1)又は(2)に記載の石油系芳香族含有油。

(4) 前記クレイゲル法による飽和分の割合が、36質量%以下である、前記(1)～(3)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油。

(5) 前記HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、22質量%以下である、前記(1)～(4)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油。

(6) ゴムに混合されて用いられるエクステンダーオイル又はプロセスオイルである、前記(1)～(5)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油。

(7) 前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油と、ゴムとを含有する、ゴム組成物。

(8) 前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油を含有する、タイヤ。

(9) ゴムと、前記(1)～(6)のいずれか一つに記載の石油系芳香族含有油と、を配合して加硫することを含む、請求項8に記載のタイヤの製造方法。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れたゴム組成物を製造可能とし、REACH規則を満たす石油系芳香族含有油を提供できる。

また、本発明によれば、REACH規則を満たす石油系芳香族含有油を含有し、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れた、ゴム組成物を提供できる。

また、本発明によれば、前記石油系芳香族含有油を含有するタイヤ、及び前記タイヤの製造方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]本発明の一実施形態の石油系芳香族含有油の製造方法の一例を説明する

工程図である。

[図2A]本発明の一実施形態のタイヤ組成物を調製する過程の一例を説明する工程図である。

[図2B]本発明の一実施形態のタイヤ組成物を調製する過程の一例を説明する工程図である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の石油系芳香族含有油、ゴム組成物、タイヤ、及びタイヤの製造方法の実施形態を説明する。

[0013] 《石油系芳香族含有油》

実施形態の石油系芳香族含有油においては、クレイゲル法による飽和分の割合、HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合、ベンゾ（a）ピレンの含有量、及び特定芳香族化合物の含有量が、特定の数値範囲を満たす。これらの項目について下記数値範囲を満たす石油系芳香族含有油を含有するゴム組成物又はタイヤは、 $\tan \delta$ （50℃）及び $\tan \delta$ （0℃）の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

[0014] ここで、「ウェットグリップ性能」とは、いわゆるブレーキ性能のことで、動的粘弾性試験によって得られる $\tan \delta$ （0℃）がその指標となる。「転がり抵抗性能」とは、いわゆる省燃費性能のことで、動的粘弾性試験によって得られる $\tan \delta$ （50℃）がその指標となる。

[0015] 上記「石油系」とは、石油由来（Petroleum-Derived）の炭化水素油を含有することを意味する。上記「芳香族含有油」とは、クレイゲル法による飽和分の割合、及びHPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、下記数値範囲を満たすことを意味する。

実施形態の石油系芳香族含有油は、上記各項目の数値範囲を満たせば、製法や分類は特に制限されず、例えば、常圧蒸留残渣、常圧蒸留留分、減圧蒸留留分、減圧蒸留残渣、脱れき油、溶剤抽出ラフィネート、水素化精製油、脱蠟油、溶剤抽出エキストラクト等が挙げられ、後述の石油系芳香族含有油の製造方法で製造された油を含有することが好ましい。石油系芳香族含有油

における石油由来の炭化水素油の含有割合は、50質量%以上であってよく、80質量%以上であってよく、95質量%以上であってよい。

[0016] 以下、実施形態の石油系芳香族含有油の性状に係る各項目について説明する。

[0017] 石油系油の成分はクレイゲル法によって、飽和分、芳香族分、極成分（質量%）に分類可能である。以下のクレイゲル法による飽和分、芳香族分、又は極成分（質量%）の値は、飽和分、芳香族分、及び極成分の総量100質量%に対する値である。

[0018] 実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による飽和分の割合が、45質量%以下であり、36質量%以下であることが好ましく、30質量%以下であることがより好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による飽和分の割合が、5質量%以上であることが好ましく、20質量%以上であることがより好ましく、22質量%以上であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による飽和分の割合が、5質量%以上45質量%以下であってよく、20質量%以上36質量%以下であってよく、22質量%以上30質量%以下であってよい。

上記の飽和分の割合が上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ （50℃）及び $\tan \delta$ （0℃）の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

このことは、飽和分が炭化水素の極性として適度なバランスであり、ゴムに一定の親和性を示すとともに、ゴムの配合剤にも一定の親和性を示すため、上記の飽和分の割合が上記範囲内にあることで、製造されるゴム組成物又はタイヤの物理特性を好適となるためと考えられる。

[0019] 実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による芳香族分の割合が、50質量%以上であることが好ましく、51質量%以上であることがより好ましく、58質量%以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による芳香族分の割合が、74質量%以下で

あることが好ましく、70質量%以下であることがより好ましく、69質量%以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による芳香族分の割合が、50質量%以上74質量%以下であってもよく、51質量%以上70質量%以下であってもよく、58質量%以上69質量%以下であってもよい。

上記の芳香族分の割合が上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

このことは、芳香族分がゴムに高い親和性を示すため、上記の芳香族分の割合が上記範囲内にあることで、製造されるゴム組成物又はタイヤの物理特性を好適となるためと考えられる。

[0020] 実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による極成分の割合が、1質量%以上であることが好ましく、2質量%以上であることがより好ましく、3質量%以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による極成分の割合が、11質量%以下であることが好ましく、10質量%以下であることがより好ましく、9質量%以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、クレイゲル法による極成分の割合が、1質量%以上11質量%以下であってもよく、2質量%以上10質量%以下であってもよく、3質量%以上9質量%以下であってもよい。

上記の極成分の割合は、上記の飽和分及び芳香族分の割合と相反関係となり、上記の極成分の割合が、上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

[0021] クレイゲル法による飽和分、芳香族分、及び極成分の割合（質量%）は、ASTM D2007-11 Standard Test Method for Characteristic Groups in Rubber Extender and Processing Oils and Other Petroleum-Derived Oils by the Clay-Gel Absorption Chromatographic Methodの規定により

求めることができる。

[0022] 実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、16質量%以上であり、17質量%以上であることが好ましく、19質量%以上であることがより好ましく、20質量%以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、29質量%以下であり、23質量%未満であることが好ましく、22質量%以下であることがより好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、16質量%以上29質量%以下であってもよく、17質量%以上23質量%未満であってもよく、19質量%以上22質量%以下であってもよく、20質量%以上22質量%以下であってもよい。ここで、上記の2環芳香族分の割合が上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

このことは、後述の実施例に示すデータから検討されるに、芳香族分の中でも2環以上の芳香族分の割合が、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の両立に大きく寄与する。そのなかで、2環芳香族分は、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の向上に加え、さらにREACH規則を満たすとの観点からも良好な性質を有する。

[0023] 実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される1環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、48質量%以上であることが好ましく、60質量%超であることがより好ましく、62質量%超であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される1環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、80質量%以下であることが好ましく、78質量%以下であることがより好ましく、76質量%以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲

の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される1環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、48質量%以上80質量%以下であってもよく、60質量%超78質量%以下であってもよく、62質量%超76質量%以下であってもよい。

上記の1環芳香族分の割合は、上記の2環以上の芳香族分の割合と相反関係となり、上記の1環芳香族分の割合が、上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立される。

[0024] 実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される3環以上の芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、4質量%以上であることが好ましく、5質量%以上であることがより好ましく、6質量%以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される3環以上の芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、20質量%以下であることが好ましく、18質量%以下であることがより好ましく、16質量%未満であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、HPLCを用いて分画される3環以上の芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、4質量%以上20質量%以下であってもよく、5質量%以上18質量%以下であってもよく、6質量%以上16質量%未満であってもよい。

上記の3環以上の芳香族分の割合が、上記数値を満たすことで、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立され、さらにREACH規則を満たす点からも良好となる。

[0025] HPLCを用いた芳香族分の分画は、後述の実施例に記載の測定条件により求めることができる。

[0026] 実施形態の石油系芳香族含有油は、
ベンゾ (a) ピレンの含有量が1質量ppm以下であり、

下記 1) ~ 8) の特定芳香族化合物 (PAHs) の含有量の合計が 10 質量 ppm 以下である。

- 1) ベンゾ (a) ピレン (BaP)
- 2) ベンゾ (e) ピレン (BeP)
- 3) ベンゾ (a) アントラセン (BaA)
- 4) クリセン (CHR)
- 5) ベンゾ (b) フルオランテン (BbFA)
- 6) ベンゾ (j) フルオランテン (BjFA)
- 7) ベンゾ (k) フルオランテン (BkFA)
- 8) ジベンゾ (a, h) アントラセン (DBAhA)。

[0027] これらベンゾ (a) ピレン及び上記特定芳香族化合物 (PAHs) の含有量が上記範囲内であることで、REACH規則におけるエクステンダーオイルへの含有規制に順守した、より安全性の高いゴム配合油とすることができる。

[0028] これらの化合物の含有量は、対象成分を分離・濃縮した後、内部標準物質を添加した試料を調製して、GC-MS分析により定量分析することで取得できる。

ベンゾ (a) ピレン及び特定芳香族化合物 (PAHs) の含有量は、欧州規格 EN 16143 : 2013 Petroleum products - Determination of content of Benzo(a)pyrene (BaP) and selected polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in extender oils -Procedure using double LC cleaning and GC/MS analysisの規定により求めることができる。

[0029] 実施形態の石油系芳香族含有油は、100℃における動粘度が、8 mm²/s 以上であることが好ましく、10 mm²/s 以上であることがより好ましく、14 mm²/s 以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、100℃における動粘度が、25 mm²/s 未満であることが好ましく、23 mm²/s 以下であることがより好ましく、22 mm²/s 以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の

石油系芳香族含有油は、 100°C における動粘度が、 $8\text{ mm}^2/\text{s}$ 以上 $25\text{ mm}^2/\text{s}$ 未満の範囲であってもよく、 $10\text{ mm}^2/\text{s}$ 以上 $23\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下の範囲であってもよく、 $14\text{ mm}^2/\text{s}$ 以上 $22\text{ mm}^2/\text{s}$ 以下の範囲であってもよい。上記動粘度の値が上記数値を満たすと、石油系芳香族含有油を含有するゴム組成物又はタイヤの粘度が好ましくなることから、 $\tan\delta$ (50°C)及び $\tan\delta$ (0°C)の値がより一層好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の両立がより一層好ましくなる。さらに、上記動粘度の値が上記上限値以下であると、石油系芳香族含有油をゴムへ配合するための移送や作業性が良好となる。

[0030] 100°C における動粘度は、JIS K2283:2000の規定により求めることができる。

[0031] 実施形態の石油系芳香族含有油は、アニリン点が 52°C 以上であることが好ましく、 56°C 以上であることがより好ましく、 60°C 以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、アニリン点が 95°C 以下であることが好ましく、 92°C 以下であることがより好ましく、 88°C 以下であることがさらに好ましく、 84°C 以下であることが特に好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、アニリン点が 52°C 以上 95°C 以下の範囲であってもよく、 52°C 以上 92°C 以下の範囲であってもよく、 56°C 以上 88°C 以下の範囲であってもよく、 60°C 以上 84°C 以下の範囲であってもよい。アニリン点は、等量のアニリンと油とが混じる温度のことで、ゴム相溶性の指標となる。アニリン点が上記上限値以下であると、過度な加温をせずとも油がアニリンと溶け合うということであり、ゴム相溶性が高く好ましい。即ち、アニリン点の値が上記数値を満たすと、石油系芳香族含有油のゴムに対する親和性が良好となり、製造されるゴム組成物又はタイヤの物理特性が、より一層好ましくなる。

[0032] アニリン点は、ASTM D611-12 Standard Test Methods for Aniline Point and Mixed Aniline Point of Petroleum Products and Hydrocarbon Solventsの規定により求めることができる。

[0033] 実施形態の石油系芳香族含有油は、ガラス転移点（ T_g ）が、 -60°C 以上であることが好ましく、 -56°C 以上であることがより好ましく、 -54°C 以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、ガラス転移点（ T_g ）が、 -34°C 以下であることが好ましく、 -36°C 以下であることがより好ましく、 -38°C 以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、ガラス転移点（ T_g ）が、 -60°C 以上 -34°C 以下の範囲であってもよく、 -56°C 以上 -36°C 以下の範囲であってもよく、 -54°C 以上 -38°C 以下の範囲であってもよい。ガラス転移点が上記数値を満たすと、製造されるゴム組成物又はタイヤの物理特性が、より一層好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の向上に重要となる。

[0034] ガラス転移点は、後述の実施例に記載の測定条件により求めることができる。

[0035] 実施形態の石油系芳香族含有油は、粘度比重定数（ VGC ）が、 0.85 以上であることが好ましく、 0.86 以上であることがより好ましく、 0.87 以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、粘度比重定数（ VGC ）が、 0.92 以下であることが好ましく、 0.91 以下であることがより好ましく、 0.90 以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、粘度比重定数（ VGC ）が、 0.85 以上 0.92 以下であってもよく、 0.86 以上 0.91 以下であってもよく、 0.87 以上 0.90 以下であってもよい。粘度比重定数は油の組成を表現する指数であり、一般的に、パラフィン性が高くなると値が低くなり、アロマ性が高いと値は高くなる傾向にある。上記粘度比重定数の値が上記数値を満たすと、石油系芳香族含有油を含有するゴム組成物又はタイヤの物理特性が好ましくなることから、 $\tan \delta$ （ 50°C ）及び $\tan \delta$ （ 0°C ）の値がより一層好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の両立がより一層好ましくなる。

[0036] 粘度比重定数（ VGC ）は、ASTM D2140-08 Standard Prac

tice for Calculating Carbon-Type Composition of Insulating Oils of Petroleum Originの規定により求めることができる。

[0037] 実施形態の石油系芳香族含有油は、環分析による%CAが8以上であることが好ましく、9以上であることがより好ましく、10以上であることがさらに好ましい。実施形態の石油系芳香族含有油は、環分析による%CAが28以下であることが好ましく、26以下であることがより好ましく、24以下であることがさらに好ましい。上記数値の数値範囲の一例としては、実施形態の石油系芳香族含有油は、環分析による%CAが8以上28以下であってもよく、9以上26以下であってもよく、10以上24以下であってもよい。

上記%CAが上記数値を満たすと、発ガン性の高い多環芳香族量が抑制され、同時にゴムとの相溶性を向上させるアロマ性を帯びてくる傾向にあり、前記油を含有するゴム組成物又はタイヤの $\tan \delta$ (50℃) 及び $\tan \delta$ (0℃) の値が好ましくなり、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能の両立がより一層好ましくなる。

[0038] %CAは、ASTM D2140-08 Standard Practice for Calculating Carbon-Type Composition of Insulating Oils of Petroleum Originの規定により求めることができる。

[0039] 実施形態の石油系芳香族含有油は、ゴムに混合されて用いられるエキстенダーオイル又はプロセスオイルとして好適に使用される。

[0040] [石油系芳香族含有油の製造方法]

以下、実施形態の石油系芳香族含有油の製造方法について説明する。前記方法によれば、本発明の石油系芳香族含有油を製造可能である。本発明の石油系芳香族含有油は、下記実施形態の石油系芳香族含有油の製造方法により製造されたものに限定されない。

[0041] 実施形態の石油系芳香族含有油の製造方法は、

溶剤抽出して得られたラフィネートをさらに溶剤抽出して得られたエキストラクトを得る工程、又は、

溶剤抽出して得られたエキストラクトをさらに溶剤抽出して得られたラフィネートを得る工程、又は、

溶剤抽出して得られたラフィネートをさらに溶剤抽出して得られたエキストラクトと、溶剤抽出して得られたラフィネートをさらに溶剤抽出して得られたラフィネート又は該ラフィネートを精製した基油とを混合する工程、を含む。

溶剤抽出の対象物としては、原油を常圧蒸留した残渣を減圧蒸留した減圧蒸留留分が挙げられる。溶剤抽出において、エキストラクトは、溶剤抽出の対象物を芳香族炭化水素に対して親和性を有する溶剤で抽出処理し、溶剤と抽出物（エキストラクト）とを分離回収することにより得られる。出発原料の原油は、パラフィン系原油、ナフテン系原油など種々の原油を、単独あるいは混合して用いることができるが、特にパラフィン系原油を用いることが好ましい。

[0042] 以下、溶剤抽出して得られたラフィネートをさらに溶剤抽出して得られたエキストラクトと、溶剤抽出して得られたラフィネートをさらに溶剤抽出して得られたラフィネート又は該ラフィネートを精製した基油とを混合する工程について説明する。

図1は、実施形態の石油系芳香族含有油の製造方法の一例を説明する工程図である。原油は、まず常圧蒸留装置（不図示）で処理されることで、常圧蒸留残渣が得られる。常圧蒸留残渣は、減圧蒸留装置10へと送られて減圧蒸留され、減圧蒸留留分11が得られる。減圧蒸留留分11は第1溶剤抽出装置30aへと送られる。第1溶剤抽出装置30aでは、減圧蒸留留分11をラフィネート31aとエキストラクト33aとに分離する。分離されたラフィネート31aは、第2溶剤抽出装置30bへと送られる。第2溶剤抽出装置30bでは、ラフィネート31aをラフィネート31bとエキストラクト33bとに分離する。ラフィネート31bは水素化精製装置40で水素化精製され水素化精製油41となり、さらに脱ろう装置50で脱ろうされ、脱ろう油51が得られる。得られた脱ろう油51とエキストラクト33bとを

混合して石油系芳香族含有油 6 2 を得ることができる。

[0043] ここでは、脱ろう油 5 1 とエキストラクト 3 3 b とを混合して石油系芳香族含有油 6 2 を得る場合を説明したが、脱ろう油 5 1 に代えて、ラフィネート 3 1 b 又は水素化精製油 4 1 を、エキストラクト 3 3 b と混合してもよい。

[0044] また、エキストラクト 3 3 b を石油系芳香族含有油 6 2 としてもよい。

[0045] また、図示はしていないが、エキストラクト 3 3 a をさらに溶剤抽出して得られたラフィネートを石油系芳香族含有油としてもよい。

[0046] 減圧蒸留は、留出油の終点が常圧換算 5 8 0 °C 以上となる条件あるいは残渣の初留点が 4 5 0 °C 以上となる条件にて行うことが、得られるエキストラクト中の芳香族含有量を所定の範囲に容易に調整できるため、好ましい。

溶剤抽出は、エキストラクト 3 3 a, 3 3 b を得るため、芳香族炭化水素に選択的親和性を有する溶剤で抽出する処理を行うことが好ましい。芳香族炭化水素に選択的親和性を有する溶剤としては、極性溶媒であってよく、フルフラール、フェノール及び N-メチル-2-ピロリドンからなる群より選択される 1 つあるいはそれ以上を用いることができる。エキストラクト収率を上記の範囲とするための具体的な抽出条件は、脱れき油組成にもよるため一義的に決めることはできないが、溶剤比、圧力、温度等を適宜選定することにより可能である。一般的には、塔頂温度：好ましくは 1 0 0 ~ 1 5 5 °C、より好ましくは 1 0 0 ~ 1 4 0 °C、塔底温度：好ましくは 4 0 ~ 1 2 0 °C、より好ましくは 5 0 ~ 1 1 0 °C、油 1 に対する溶剤比：好ましくは 1 ~ 5、より好ましくは 1.5 ~ 4.5 で溶剤と接触させるとよい。

一方、溶剤抽出は、ラフィネート 3 1 a, 3 1 b を得るため、芳香族炭化水素に親和性を有する溶剤で抽出する溶剤精製処理を行うことが好ましい。芳香族炭化水素に選択的親和性を有する溶剤としては、フルフラール、フェノール及び N-メチル-2-ピロリドンから 1 つあるいはそれ以上を選択して用いることができる。この溶剤精製工程においては、通常の潤滑油基油を精製する条件、例えば、フルフラールを抽出溶媒として用いる場合、塔頂温

度：好ましくは60～150℃、より好ましくは70～140℃、塔底温度：好ましくは40～90℃、より好ましくは50～80℃、油1に対する溶剤比：好ましくは0.5～4、より好ましくは1～3、で溶剤と接触させるとよい。

その他所望により、ラフィネートを水素化精製及び／又は溶剤脱ロウあるいは水素化脱ロウ処理により、脱ロウすることにより、より好ましい基油が得られる。前記水素化精製は、ニッケル、コバルト、モリブデン等の活性金属1種以上をアルミナやシリカアルミナ等の担体に担持した触媒の存在下に、水素圧5～15 MPa、温度250～400℃、液空間速度（LHSV）1～5 h⁻¹の条件で行うとよい。また、前記溶剤脱ロウは、例えば、メチルエチルケトン／トルエンの混合溶媒下に、溶媒／油比（容積比）＝1／1～5／1、温度－10～－40℃で行うとよく、また、水素化脱ロウは、ゼオライト触媒の存在下に、水素圧5～15 MPa、温度300～400℃、LHSV 1～5 H r⁻¹の条件で行うとよい。

水素化精製は、触媒存在下、高温高压の水素と原料油を接触させることで、硫黄分、窒素分など、プロセスオイルの使用、保存などに悪影響をおよぼす不純物を水素化軽質反応物として除去することができ、結果として安定性や色相などを向上することができる。溶剤脱ろはアセトン、メチルエチルケトン、ベンゼン、トルエンからなる群より選択される1つあるいはそれ以上の溶剤を用いて原料油に混合し、その後冷却工程を経てノルマルパラフィンをはじめとするワックス留分を析出させ、これをフィルタにてろ過して分離除去することで低温流動性の向上を図ることができる。

以上のようにして得られたラフィネートをさらに溶剤抽出したエキストラクトにより実施形態の石油系芳香族含有油を製造することができる。

又は、以上のようにして得られたエキストラクトをさらに溶剤抽出したラフィネートにより実施形態の石油系芳香族含有油を製造することができる。

又は、以上のようにして得られたエキストラクトと基油とを質量比で95／5～5／95、特に好ましくは、80／20～20／80の割合で混合す

ることにより実施形態の石油系芳香族含有油を製造することができる。

[0047] 《ゴム組成物》

以下、実施形態のゴム組成物について説明する。本発明のゴム組成物は、下記ゴム組成物に限定されない。

図2 A及びBは、原料ゴムからタイヤ組成物を調製する過程の一例を説明する工程図である。タイヤ原料となるタイヤ組成物は、原料ゴム、及び各種配合剤が配合されている。合成ゴムは、その合成時にエクステンダーオイルが配合されることがあり、原料ゴムとして、予めエクステンダーオイルを含有するゴム組成物（油展ゴムともいわれる）が使用されてもよい（図2 A参照）。又はエクステンダーオイルを含有しない原料ゴム（非油展ゴムともいわれる）が使用されてもよい（図2 B参照）。原料ゴムには、プロセスオイル及び各種配合剤が添加される（図2 A及びB参照）。

油展ゴムである原料ゴム（ゴム組成物）は、単量体を重合反応に供することと得ることができ、その過程でエクステンダーオイルを添加して製造することができる。例えば、原料ゴムのゴム原料である単量体とエクステンダーオイルとを含む反応液を重合反応に供する方法や、原料ゴムのゴム原料である単量体を含む反応液を重合反応させた後、重合体溶液にエクステンダーオイルを添加する方法により、油展ゴムの製造することができる（図2 A）。

タイヤ組成物（ゴム組成物）は、前記原料ゴム、本発明に係る石油系芳香族含有油、及び配合剤を、例えば、公知のゴム用混練機、例えば、ロール、ミキサー、ニーダーなどで混練し、製造することができる。タイヤ組成物は任意の条件で加硫することができる。

本明細書においては、原料ゴム及び実施形態の石油系芳香族含有油（エクステンダーオイル又はプロセスオイル）を含有するものをゴム組成物という。

実施形態のゴム組成物は、タイヤの製造に用いられるタイヤ用ゴム組成物として好適である。一実施形態として、本発明は、原料ゴム、本発明に係る石油系芳香族含有油、及び配合剤を含有する、タイヤ組成物を提供する。タ

イヤ組成物は、実施形態のゴム組成物に包含される概念とする。タイヤ組成物（ゴム組成物）は加硫されていてもよく、未加硫であってもよい。

ここではエクステンダーオイルとプロセスオイルとで表現を分けているが、これらは総称してプロセスオイルと呼ばれることがある。

[0048] 以下、ゴム組成物及びタイヤ組成物の組成について説明する。

[0049] 原料ゴムとしては、エラストマー性ポリマーを用いることができ、例えば、天然ゴム、イソプレングム、ブタジエングム、1,2-ブタジエングム、スチレン-ブタジエングム、イソプレン-ブタジエングム、スチレン-イソプレン-ブタジエングム、エチレン-プロピレンジエングム、ハロゲン化ブチルゴム、ハロゲン化イソプレングム、ハロゲン化イソブチレンコポリマー、クロロプレングム、ブチルゴムおよびハロゲン化イソブチレン-p-メチルスチエングム、ニトリルゴム、クロロプレングムなどのジエン系ゴム、ブチルゴム、エチレン-プロピレン系ゴム（EPDM、EPM）、エチレン-ブテンゴム（BBM）、クロロスルホン化ポリエチレン、アクリルゴム、フッ素ゴムなどのオレフィン系ゴム、エピクロロヒドリングム、多硫化ゴム、シリコーンゴム、ウレタンゴムなどを挙げることができ、また、水添されていてもよいポリスチレン系エラストマー性ポリマー（SBS、SIS、SEBS）、ポリオレフィン系エラストマー性ポリマー、ポリ塩化ビニル系エラストマー性ポリマー、ポリウレタン系エラストマー性ポリマー、ポリエステル系エラストマー性ポリマーまたはポリアミド系エラストマー性ポリマーなどの熱可塑性エラストマーでもよい。これらは単独、または任意のブレンドとして使用することができる。

石油系芳香族含有油との相溶性の観点からは、エラストマー性ポリマーは、天然ゴム、イソプレングム、スチレン-ブタジエングム、ブタジエングム、ブチルゴム、クロロプレングム、及びアクリルニトリルゴムからなる群から選択される少なくとも一種であることが好ましい。さらに、タイヤ性能として、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能を発揮するトレッド部に好適に使用可能であるとの観点から、エラストマー性ポリマーは、天然ゴム、

イソプレンゴム、スチレンブタジエンゴム、ブタジエンゴムからなる群から選択される少なくとも一種であることが好ましい。

[0050] エキステンダーオイル、又はプロセスオイルとしては、実施形態に係る石油系芳香族含有油を用いることができる。

[0051] 配合剤としては、充填剤、老化防止剤、酸化防止剤、架橋剤（加硫剤）、架橋促進剤、樹脂、可塑材、加硫促進剤、加硫促進助剤（加硫助剤）等が挙げられる。

[0052] 充填剤としては、カーボンブラック、シリカ、シラン化合物（シランカップリング剤）等が挙げられ、シリカ及び／又はシランカップリング剤が好ましい。

カーボンブラックは粒子径に基づいて、ハードカーボンとソフトカーボンとに分類される。ソフトカーボンはゴムに対する補強性が低く、ハードカーボンはゴムに対する補強性が強い。実施形態のゴム組成物がカーボンブラックを含有する場合には、特に補強性の強いハードカーボンを用いるのが好ましい。カーボンブラックは、エラストマー性ポリマー100質量部に対して10～250質量部配合されていることが好ましく、20～200質量部配合されていることがより好ましく、30～50質量部配合されていることがさらに好ましい。

シリカとしては、特に限定されないが、例えば、乾式法ホワイトカーボン、湿式法ホワイトカーボン、コロイダルシリカ、および沈降シリカなどが挙げられる。これらの中でも、含水ケイ酸を主成分とする湿式法ホワイトカーボンが好ましい。これらのシリカはそれぞれ単独あるいは2種以上を組み合わせ用いることができる。これらシリカの比表面積は、特に制限されないが、窒素吸着比表面積（BET法）で通常10～400 m²/g、好ましくは20～300 m²/g、更に好ましくは120～190 m²/gの範囲であるときに、補強性、耐摩耗性および発熱性等の改善に対し好適である。ここで、窒素吸着比表面積は、ASTM D3037-81に準じ、BET法で測定される値である。

シラン化合物としては、特に制限されないが、硫黄含有シランカップリング剤が好ましく、ビス（３－トリエトキシシリルプロピル）ジスルフィドがより好ましい。

[0053] 架橋剤（加硫剤）としては、粉末硫黄、沈降性硫黄、高分散性硫黄、表面処理硫黄、不溶性硫黄などが挙げられる。

[0054] 加硫促進剤としては、テトラメチルチウラムジスルフィド（TMTD）、テトラエチルチウラムジスルフィド（TETD）などのチウラム系、ヘキサメチレンテトラミンなどのアルデヒド・アンモニア系、ジフェニルグアニジンなどのグアニジン系、ジベンゾチアジルジサルファイド（DM）などのチアゾール系、N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアゾリルスルフェンアミドなどのシクロヘキシルベンゾチアジルスルフェンアמיד系などが挙げられる。

[0055] 加硫促進助剤としては、アセチル酸、プロピオン酸、ブタン酸、ステアリン酸、アクリル酸、マレイン酸などの脂肪酸、アセチル酸亜鉛、プロピオン酸亜鉛、ブタン酸亜鉛、ステアリン酸亜鉛、アクリル酸亜鉛、マレイン酸亜鉛などの脂肪酸亜鉛、亜鉛華などが挙げられる。

[0056] これら原料ゴム、本発明に係る石油系芳香族含有油、及び配合剤の配合量は、本発明の目的に反しない限り、一般的な配合量とすることができる。

[0057] 一例として、エラストマー性ポリマー１００質量部に対して、充填剤：３０～１００質量部、石油系芳香族含有油：８０質量部以下、老化防止剤：０．５～５質量部、架橋剤：１～１０質量部、樹脂：０～２０質量部、加硫促進剤：０．５～５質量部、加硫促進助剤：１～１０質量部の配合を例示できる。

充填剤として、シリカ及び／又はシランカップリング剤が用いられる場合、シリカ及び／又はシランカップリング剤は、エラストマー性ポリマー１００質量部に対して、１０～３００質量部配合されていることが好ましく、５０～１５０質量部配合されていることがより好ましく、７０～１００質量部配合されていることがさらに好ましい。シラン化合物（シランカップリング剤）の含有量は、エラストマー性ポリマー１００質量部に対し、０．１～３

0質量部であることが好ましく、1～20質量部であることがより好ましい。

石油系芳香族含有油は、エラストマー性ポリマー100質量部に対して、0.5～80質量部配合されていることが好ましく、10～50質量部配合されていることがより好ましく、20～40質量部配合されていることがさらに好ましい。

[0058] 実施形態のゴム組成物によれば、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れたゴム組成物を提供できる。

[0059] 《タイヤ・タイヤの製造方法》

実施形態のタイヤは、上記の実施形態に係る石油系芳香族含有油を含有する。

実施形態のタイヤは、ゴムと、実施形態の石油系芳香族含有油と、を配合して加硫することで、製造することができる。

言い換えると、実施形態のタイヤは、上記タイヤ組成物（ゴム組成物）を含んでよく、タイヤ組成物に対し、加硫を行うことにより製造することができる。具体的には、例えば、上記タイヤ組成物を加硫成形して、タイヤを製造することができる。より具体的には、例えば、上記タイヤ組成物を加熱溶融し、加熱溶融したタイヤ組成物を押し出し、次いで、タイヤ成型機を用いて成形した後、加硫機を用いて加熱・加圧することにより、タイヤを製造することができる。

[0060] タイヤは、一例として、トレッド、カーカス、サイドウォール、インナーライナー、アンダートレッド、ベルト部などのタイヤ各部から構成される。実施形態のタイヤは、上記の実施形態に係る石油系芳香族含有油を、トレッド部に含有することが好ましい。実施形態のタイヤは、実施形態のタイヤ組成物からなるタイヤトレッドを有することが好ましい。石油系芳香族含有油が、接地面となるトレッド部に含有されることで、転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能が好適に発揮される。

[0061] 実施形態のタイヤ及びタイヤの製造方法によれば、転がり抵抗性能及びウ

エットグリップ性能に優れたタイヤを提供できる。

[0062] 実施形態の石油系芳香族含有油が、なぜタイヤ組成物（ゴム組成物）のウエットグリップ性能と転がり抵抗性能の両立に効果を発揮するのかについては、以下のように推定される。

両性能は二律背反であるため、一方を損なうことなく、もう一方を高められれば結果として両立ができる。通常、省燃費タイヤと呼ばれているものにはシリカを配合することで両立、特に省燃費性能を志向されているが、シリカは表面に親水基が多く、ゴムポリマーとはなじみにくいため、シリカどうしで凝集してしまう傾向がある。その場合、タイヤが走行中に変形した際に、シリカ同士が擦れるなどして発熱してしまい、余計なエネルギーロスが生じる。したがって、シリカをゴムポリマー中でいかに分散させるかがポイントとなる。上述の特定成分を特定量で含む石油系芳香族含有油は、シリカを含め各種配合剤の分散や溶解に作用し、それらのゴムポリマー中での挙動が各物理特性に好ましい影響を与え、結果として背反性能の両立に繋がると考えられる。

実施例

[0063] 次に実施例を示して本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されない。

[0064] 1. プロセスオイルの製造

[0065] <実施例 1 – 1>

ナフテン原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた500N相当の減圧蒸留留分を第一のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度70～100℃、塔底温度40～70℃、溶剤比1.0～2.0の範囲で調整）に供し、得られたラフィネート留分を第二のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度100～130℃、塔底温度70～90℃、溶剤比2.0～3.0の範囲で、エキストラクト留分の100℃の動粘度が20mm²/s近傍となるよう調整）に供し、得られたエキストラクト留分を、実施例1のプロセスオイルとした。

[0066] <実施例 2 - 1 >

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた 500 N 相当の減圧蒸留留分を第一のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 100～130℃、塔底温度 70～100℃、溶剤比 1.6～3.0 の範囲で調整）に供し、得られたエキストラクト留分を第二のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 70～100℃、塔底温度 40～70℃、溶剤比 1.0～2.0 の範囲で、ラフィネート留分の 100℃ 動粘度が 20 mm²/s 近傍となるよう調整）に供し、得られたラフィネート留分を、実施例 2 のプロセスオイルとした。

[0067] <実施例 3 - 1 >

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた 350 N 相当の減圧蒸留留分を第一のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 80～100℃、塔底温度 50～70℃、溶剤比 1.0～1.5 の範囲で調整）に供し、得られたラフィネート留分を第二のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 105～125℃、塔底温度 75～95℃、溶剤比 2.0～3.0 の範囲で調整）に供し、得られたエキストラクト留分をエキストラクト（M）とした。

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた 900 N 相当の減圧蒸留留分を第一のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 80～100℃、塔底温度 50～70℃、溶剤比 0.8～1.4 の範囲で調整）に供し、得られたラフィネート留分を第二のフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 110～130℃、塔底温度 80～100℃、溶剤比 2.0～3.0 の範囲で調整）に供し、得られたエキストラクト留分をエキストラクト（N）とした。

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた 900 N 相当の減圧蒸留留分をフルフラール抽出装置（運転条件：塔頂温度 105～125℃、塔底温度 65～85℃、溶剤比 1.0～3.0 の範囲で調整）に供し、得られたラフィネート留分を水素化精製装置

(運転条件：貴金属系触媒を用いて、液空間速度 $1.0 \sim 2.0 \text{ h}^{-1}$ 、反応温度 $270 \sim 330^\circ\text{C}$ 、水素オイル比 $1400 \sim 2800 \text{ NL/L}$ 、水素分圧 $4.0 \sim 6.0 \text{ MPa}$ の範囲で調整) に供し、得られた水素化精製油を溶剤脱蠟装置 (運転条件：メチルエチルケトンとトルエンの混合溶剤、一次溶剤比 $0.7 \sim 2.0$ 、二次溶剤比 $0.7 \sim 2.0$ 、脱蠟温度 $-15 \sim -25^\circ\text{C}$ の範囲で調整) に供し、得られた脱蠟油を脱蠟油 (O) とした。

エキストラクト (M) /エキストラクト (N) /脱蠟油 (O) を重量比で $25/50/25$ に混合して、実施例 3 のプロセスオイルを得た。

[0068] <実施例 4-1>

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた減圧蒸留残渣を圧縮液化したプロパンによる脱れき抽出装置 (運転条件：塔頂温度 $55 \sim 85^\circ\text{C}$ 、塔底温度 $45 \sim 75^\circ\text{C}$ 、溶剤比 $1.0 \sim 4.0$ の範囲で調整) に供し、得られた脱れき油をフルフラール抽出装置 (運転条件：塔頂温度 $110 \sim 130^\circ\text{C}$ 、塔底温度 $60 \sim 80^\circ\text{C}$ 、溶剤比 $3.0 \sim 4.0$ の範囲で調整) に供し、得られたエキストラクト留分をエキストラクト (E) とした。

上記エキストラクト (E) /後述の脱蠟油 (F) を重量比で $40/60$ に混合して、実施例 4 のプロセスオイルを得た。

[0069] <比較例 1-1>

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた 500 N 相当の減圧蒸留留分をフルフラール抽出装置 (運転条件：塔頂温度 $100 \sim 130^\circ\text{C}$ 、塔底温度 $50 \sim 80^\circ\text{C}$ 、溶剤比 $1.0 \sim 3.0$ の範囲で調整) に供し、得られたラフィネート留分を水素化精製装置 (運転条件：貴金属系触媒を用いて、液空間速度 $1.0 \sim 3.0 \text{ h}^{-1}$ 、反応温度 $280 \sim 340^\circ\text{C}$ 、水素オイル比 $1500 \sim 2500 \text{ NL/L}$ 、水素分圧 $6.0 \sim 10.0 \text{ MPa}$ の範囲で調整) に供し、得られた水素化精製油を溶剤脱蠟装置 (運転条件：メチルエチルケトンとトルエンの混合溶剤、一次溶剤比 $1.0 \sim 2.0$ 、二次溶剤比 $0.5 \sim 1.4$ 、脱蠟温度 $-15 \sim -2$

5℃の範囲で調整)に供し、得られた脱蠟油を脱蠟油(G)とした。

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた減圧蒸留残渣を減圧蒸留残渣(H)とした。

ナフテン原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた1000N相当の減圧蒸留留分を水素化精製装置(運転条件:貴金属系触媒を用いて、液空間速度1.0~3.0h⁻¹、反応温度270℃~340℃、水素オイル比1400~2800NL/L、水素分圧3.0~9.0MPaの範囲で調整)に供し、得られた水素化精製油を水素化精製油(I)とした。

ナフテン原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた減圧蒸留残渣を減圧蒸留残渣(J)とした。

脱蠟油(G)/減圧蒸留残渣(H)を重量比で50/50に混合し、水素化精製油(I)/減圧蒸留残渣(J)を重量比で50/50に混合し、両者を100℃の動粘度が30mm²/s近傍となるよう混合して、比較例1のプロセスオイルを得た。

[0070] <比較例2-1>

ナフテン原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた2000N相当の減圧蒸留留分を水素化精製装置(運転条件:貴金属系触媒を用いて、液空間速度1.0~3.0h⁻¹、反応温度270℃~340℃、水素オイル比1400~2800NL/L、水素分圧3.0~9.0MPaの範囲で調整)に供し、得られた水素化精製油を、比較例2のプロセスオイルとした。

[0071] <比較例3-1>

中東原油を常圧蒸留装置に供し、得られた常圧蒸留残渣を減圧蒸留装置に供し、得られた500N相当の減圧蒸留留分をフルフラール抽出装置(運転条件:塔頂温度105~125℃、塔底温度55~75℃、溶剤比1.2~2.8の範囲で調整)に供し、得られたラフィネート留分を水素化精製装置(運転条件:貴金属系触媒を用いて、液空間速度2.0~3.0h⁻¹、反応

温度310～360℃、水素オイル比1500～2500NL/L、水素分圧8.5～12.0MPaの範囲で調整)に供し、得られた水素化精製油を溶剤脱蠟装置(運転条件:メチルエチルケトンとトルエンの混合溶剤、一次溶剤比1.0～2.0、二次溶剤比0.5～1.4、脱蠟温度-15～-25℃の範囲で調整)に供し、得られた脱蠟油を脱蠟油(F)とした。上記脱蠟油(F)を比較例3のプロセスオイルとした。

[0072] <比較例4-1>

上記エキストラクト(E)/脱蠟油(F)を重量比で80/20に混合して、比較例4のプロセスオイルを得た。

[0073] 2. プロセスオイルの性状測定

上記実施例及び比較例で得られたプロセスオイルを試料とし、下記項目の測定を行った。

[0074] [クレイゲル法]

クレイゲル法(クレイゲルカラムクロマト):ASTM D2007-11 Standard Test Method for Characteristic Groups in Rubber Extender and Processing Oils and Other Petroleum-Derived Oils by the Clay-Gel Absorption Chromatographic Methodにより、芳香族分、飽和分、極成分(質量%)を求めた。

[0075] [HPLCを用いた芳香族分の分画]

HPLC(高圧液体クロマトグラフィー)を用いた芳香族分の分画は、(既報:Analytical Chemistry, 1983, 55, p.1375-1379)に掲載されている「Separation of aromatic and polar compounds in fossil fuel liquids by liquid chromatography」を参考とし、以下の手順で実施した。

試料をヘキサンで5倍に希釈することにより前処理を行った。カラムは、ウォーターズ社製Spherisorb A5Y 250×4.6mmを用い、流量は2.5mL/分とし、検出器にはUV検出器を使用し、波長270nmで測定した。溶離液は、試料導入からの時間が0～10.0分まではヘキサンを用い、10.0～30.0分まではヘキサン100質量%からジク

クロロメタン 40 質量%とヘキサン 60 質量%の混合溶液に直線的にジクロロメタン含有量を増大させた。試料導入からの時間が 30.0 ~ 30.1 分の間にジクロロメタン 40 質量%とヘキサン 60 質量%の混合溶液をジクロロメタン 100 質量%に変更し、30.1 分以降はジクロロメタン 100 質量%を用いた。

得られたピーク面積から以下の式により環別の芳香族炭化水素の含有量（質量%）を求めた。ここで、1 環面積は、ベンゼンのピークからナフタレンの直前のピークまでのピーク面積の合計であり、2 環面積は、ナフタレンのピークからアントラセンの直前のピークまでのピーク面積の合計であり、また、3 環以上面積は、アントラセンのピーク以降のピーク面積の合計である。

1 環芳香族分（質量%）= $(1 \text{ 環面積} / (1 \text{ 環面積} + 0.1 \times 2 \text{ 環面積} + 0.025 \times 3 \text{ 環以上面積})) \times 100$;

2 環芳香族分（質量%）= $(0.1 \times 2 \text{ 環面積} / (1 \text{ 環面積} + 0.1 \times 2 \text{ 環面積} + 0.025 \times 3 \text{ 環以上面積})) \times 100$;

3 環以上の芳香族分（質量%）= $(0.025 \times 3 \text{ 環面積} / (1 \text{ 環面積} + 0.1 \times 2 \text{ 環面積} + 0.025 \times 3 \text{ 環以上面積})) \times 100$

[0076] [動粘度 (100℃)]

JIS K2283 : 2000 の規定により測定した。

[0077] [アニリン点]

ASTM D611-12 Standard Test Methods for Aniline Point and Mixed Aniline Point of Petroleum Products and Hydrocarbon Solvents の規定により測定した。

[0078] [ガラス転移点 (T_g)]

DSC（示差走査熱量計）にて一定の昇温速度で昇温した際に測定される、ガラス転移領域における熱量変化ピークから得られたガラス転移点とした。初期温度は、通常予期ガラス転移点より 30℃ ~ 50℃ 程度又はそれより低い温度とし、前記初期温度で一定時間保持した後、昇温を開始した。具体

的には、以下の条件で測定した。

装置：日立ハイテクサイエンス製DSC7020

初期温度：－90℃、10分間保持

昇温速度：10℃／分

終了温度：30℃、5分間保持

[0079] [粘度比重定数（VGC）]

ASTM D2140-08 Standard Practice for Calculating Carbon-Type Composition of Insulating Oils of Petroleum Originの規定により測定した。

[0080] [%CA]

ASTM D2140-08 Standard Practice for Calculating Carbon-Type Composition of Insulating Oils of Petroleum Originの規定により測定した。

[0081] [ベンゾ（a）ピレン及び特定芳香族化合物（PAHs）の含有量]

欧州規格EN 16143:2013 Petroleum products - Determination of content of Benzo(a)pyrene (BaP) and selected polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) in extender oils - Procedure using double LC cleaning and GC/MS analysisの規定により測定した。

PAHsとは以下を意味する。

- 1) ベンゾ（a）ピレン（BaP）
- 2) ベンゾ（e）ピレン（BeP）
- 3) ベンゾ（a）アントラセン（BaA）
- 4) クリセン（CHR）
- 5) ベンゾ（b）フルオランテン（BbFA）
- 6) ベンゾ（j）フルオランテン（BjFA）
- 7) ベンゾ（k）フルオランテン（BkFA）
- 8) ジベンゾ（a, h）アントラセン（DBAhA）

[0082] 3. ゴム組成物の製造

＜実施例 1－2 ～ 実施例 4－2＞

ゴムポリマーと、上記の実施例 1－1～4－1 で製造したプロセスオイルと、その他の各配合剤（シリカ、シランカップリング剤、老化防止剤、加硫助剤、酸化亜鉛、硫黄、加硫促進剤）とを、下記配合にて調製した後、混練りを行い、未加硫のゴム組成物を得た後、160℃にてプレス加硫成形した。

[0083] ＜比較例 1－2 ～ 比較例 4－2＞

ゴムポリマーと、上記の比較例 1－1～4－1 で製造したプロセスオイルと、その他の各配合剤（同上）とを、下記配合にて調製した後、混練りを行い、未加硫のゴム組成物を得た後、160℃にてプレス加硫成形した。

[0084] タイヤ組成物の配合を下記表 1 に示す。表中の p h r は、ゴムポリマー 100 質量部に対する各種配合剤の質量部を表す。

[0085] [表1]

	配合量 (phr)
ゴムポリマー (SBR)	100
シリカ	80
シランカップリング剤	6.4
老化防止剤	2
加硫助剤	1
酸化亜鉛	3
プロセスオイル	37.5
硫黄	2.2
加硫促進剤 A	1.7
加硫促進剤 B	2.0

- [0086] ・ゴムポリマー (SBR) : ランクセス製 BunaVSL4526
- ・シリカ : エボニック製 ULTRASIL7000GR
- ・シランカップリング剤 : エボニック製 Si75
- ・老化防止剤 : 大内新興化学工業製 ノクラック6C
- ・加硫助剤 : 日油製 ステアリン酸
- ・酸化亜鉛 : 東邦亜鉛製 酸化亜鉛3号
- ・プロセスオイル : 実施例および比較例で製造した各プロセスオイル

- ・硫黄：市販加硫用硫黄
- ・加硫促進剤 A：大内新興化学工業製 ノクセラーcz
- ・加硫促進剤 B：大内新興化学工業製 ノクセラーd

[0087] ゴムの混練り方法：下記に示す二段練りとした。

(一段目)

- ・試験機：東洋精機製作所製ラボプラスミルB-600
- ・試験機容積：600cc
- ・充填率：70%(質量比)
- ・回転数：100rpm
- ・温度：100℃開始で上限155℃とした
- ・練り時間：約9分

(二段目)

- ・試験機：池田機械工業製電気加熱式高温ロール機
- ・サイズ：6
インチφ×16インチ
- ・回転数：前ロール25rpm
- ・回転比：前後比 1 : 1.22
- ・温度：23±10℃

[0088] 4. ゴム組成物の物性測定

上記実施例及び比較例のプレス加硫成形後のゴム練り片から、8mmφ×10mmの試験片を作製し、前記試験片に対して、下記項目の測定を行った。

[0089] [tan δ (0℃)]

TAINSTRUMENTS製粘弾性測定装置ARESを用いて、ねじりモードで、周波数10 Hz、測定温度範囲－50℃～100℃、昇温速度2℃/min、動的ひずみ0.1%で測定を行った。得られた温度可変tan δ より、0℃の値を抜粋した。

tan δ (0℃)は、ウェットグリップ性能の指標であり、この値が大きいほどウェットグリップ性能に優れることを意味する。

[0090] [tan δ (50℃)]

TAINSTRUMENTS製粘弾性測定装置ARESを用いて、ねじりモードで、周波数10

Hz、測定温度範囲 -50°C ～ 100°C 、昇温速度 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、動的ひずみ 0.1% で測定を行った。得られた温度可変 $\tan \delta$ より、 50°C の値を抜粋した。

$\tan \delta (50^{\circ}\text{C})$ は、転がり抵抗性能の指標であり、この値が小さいほど転がり抵抗性能に優れることを意味する。

[0091] 5. 結果

上記の測定結果を以下に示す。上記の実施例 1-1 及び実施例 1-2 は、実施例 1 と略記する。他の実施例及び比較例についても同様に略記する。

[0092] 各項目の測定結果を下記の表 2 に示す。 $\tan \delta (0^{\circ}\text{C})$ 及び $\tan \delta (50^{\circ}\text{C})$ の値は、実施例 4 の実数値（それぞれ 0.594 、 0.105 ）を 1 とした相対値で表記した。

[0093]

[表2]

			実施例				比較例				
			1	2	3	4	1	2	3	4	
プロセスオイル	HPLCを用いた芳香族分画	1環芳香族分	質量%	73.6	68.8	64.4	58.9	67.0	71.5	87.9	46.8
		2環芳香族分	質量%	17.9	20.6	21.8	22.8	18.5	18.8	9.1	30.8
		3環以上芳香族分	質量%	8.5	10.6	13.8	18.3	14.5	9.7	3.0	22.4
	クレーゲルクロマト	芳香族分	質量%	62.0	67.4	71.9	50.5	39.5	41.2	34.6	70.8
		飽和分	質量%	34.2	24.5	22.6	44.6	45.4	55.3	64.9	21.4
		極性分	質量%	3.8	8.1	5.5	4.9	15.1	3.5	0.5	7.8
	動粘度 (100℃)	mm ² /s	19.24	18.17	21.35	19.81	29.40	20.01	10.91	43.54	
	アニリン点	℃	80.3	64.4	74.0	93.8	90.4	97.6	110.0	76.4	
	ガラス転移点	℃	-39.3	-47.3	-51.7	-58.5	-54.1	-53.6	-69.1	-44.1	
	環分析 (ASTM D2140)	VGC		0.879	0.891	0.890	0.854	0.861	0.849	0.815	0.896
		%CA		12.1	22.4	22.7	16.7	22.4	13.2	5.7	25.8
ゴム組成物	Benzo[a]pyrene		ppm	○	○	○	○	○	○	○	
	PAHs 8物質合計		ppm	○	○	○	○	○	○	○	
	tan δ (0℃) : ウェットグリップ性能			1.29	1.10	1.04	1.00	1.09	0.93	0.70	1.32
	tan δ (50℃) : 転がり抵抗性能			0.91	0.95	0.97	1.00	1.02	0.99	0.93	1.08

プロセスオイルの各項目：下線は、実施形態にて規定の範囲外であることを表す。

Benzo[a]pyrene: ○は、含有量が1ppm未満 (REACH規則基準値内) であることを表す。

PAHs 8物質合計: ○は、含有量が10ppm未満 (REACH規則基準値内) であることを表す。

tan δ (0℃): 下線は、数値が1を下回る (ウェットグリップ性能に劣る) ものを意味する。

tan δ (50℃): 下線は、数値が1を上回る (転がり抵抗性能に劣る) ものを意味する。

[0094] 実施例1～4のプロセスオイルは、実施形態に規定の「クレーゲル法による飽和分の割合」、及び「HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合

」の範囲を満たし、前記プロセスオイルを配合して得られた実施例 1～4 のゴム組成物は、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が両立されており、非常に優れていた。

特に、「クレイゲル法による芳香族分の割合」が実施形態に規定の範囲を満たすプロセスオイルを配合して得られた実施例 1～3 のゴム組成物は、ウェットグリップ性能及び転がり抵抗性能が、良好な数値にて両立されていることがわかる。

また、実施例及び比較例のいずれのプロセスオイルも、ベンゾ（a）ピレン及び特定芳香族化合物（PAHs）の含有量が、REACH規則を満たすことが確認できた。

[0095] 以上、各実施形態における各構成及びそれらの組み合わせ等は一例であり、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、構成の付加、省略、置換、およびその他の変更が可能である。また、本発明は各実施形態によって限定されることなく、請求項（クレーム）の範囲によってのみ限定される。

産業上の利用可能性

[0096] 転がり抵抗性能及びウェットグリップ性能に優れたゴム組成物を製造可能とし、REACH規則を満たす石油系芳香族含有油を提供することができる。

符号の説明

[0097] 10 減圧蒸留装置
11 減圧蒸留留分
30a, 30b 溶剤抽出装置
31a, 31b ラフィネート
33a, 33b エキストラクト
40 水素化精製装置
41 水素化精製油
50 脱ろう装置
51 脱ろう油

6 2 石油系芳香族含有油

請求の範囲

- [請求項1] クレイゲル法による飽和分の割合が、45質量%以下であり、
HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、クレイゲル法による芳香族分100質量%に対し、16質量%以上29質量%以下であり、
ベンゾ（a）ピレンの含有量が1質量ppm以下であり、
下記1）～8）の特定芳香族化合物の含有量の合計が10質量ppm以下である、石油系芳香族含有油。
- 1）ベンゾ（a）ピレン
 - 2）ベンゾ（e）ピレン
 - 3）ベンゾ（a）アントラセン
 - 4）クリセン
 - 5）ベンゾ（b）フルオランテン
 - 6）ベンゾ（j）フルオランテン
 - 7）ベンゾ（k）フルオランテン
 - 8）ジベンゾ（a，h）アントラセン。
- [請求項2] 前記クレイゲル法による飽和分の割合が、22質量%以上である、請求項1に記載の石油系芳香族含有油。
- [請求項3] 前記HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、23質量%未満である、請求項1又は2に記載の石油系芳香族含有油。
- [請求項4] 前記クレイゲル法による飽和分の割合が、36質量%以下である、請求項1～3のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有油。
- [請求項5] 前記HPLCを用いて分画される2環芳香族分の割合が、前記芳香族分100質量%に対し、22質量%以下である、請求項1～4のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有油。
- [請求項6] ゴムに混合されて用いられるエキстенダーオイル又はプロセスオイルである、請求項1～5のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有

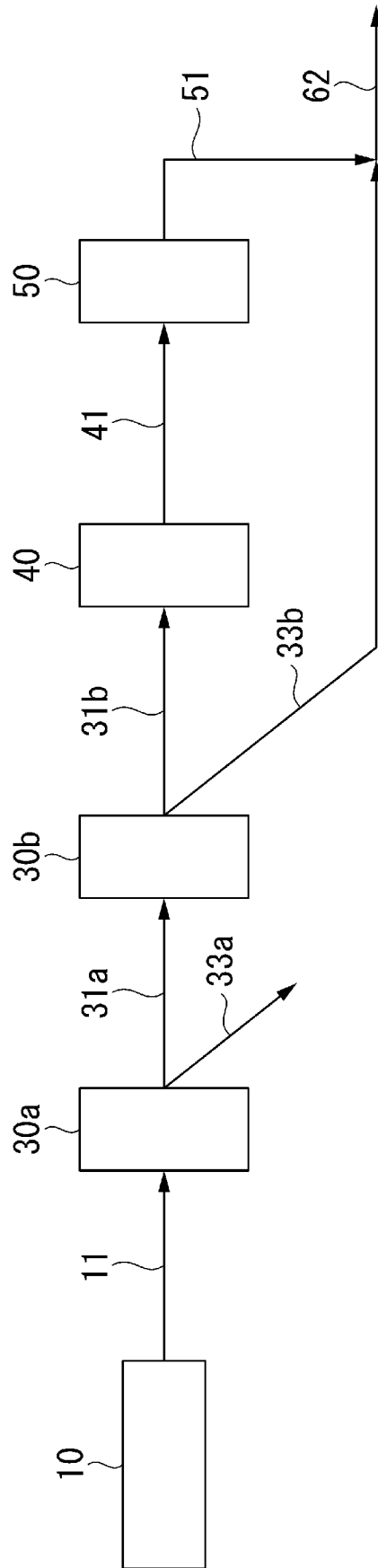
油。

[請求項7] 請求項1～6のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有油と、ゴムとを含有する、ゴム組成物。

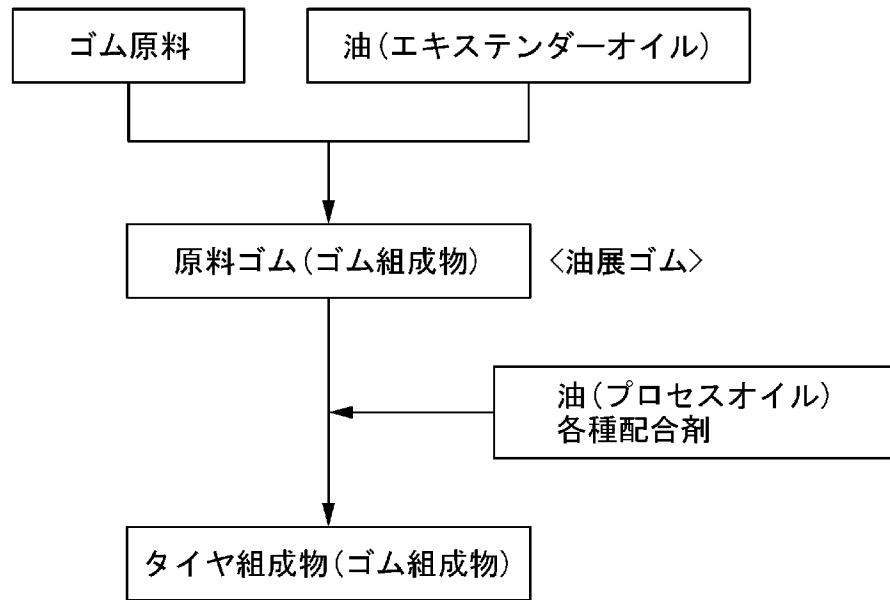
[請求項8] 請求項1～6のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有油を含有する、タイヤ。

[請求項9] ゴムと、請求項1～6のいずれか一項に記載の石油系芳香族含有油と、を配合して加硫することを含む、請求項8に記載のタイヤの製造方法。

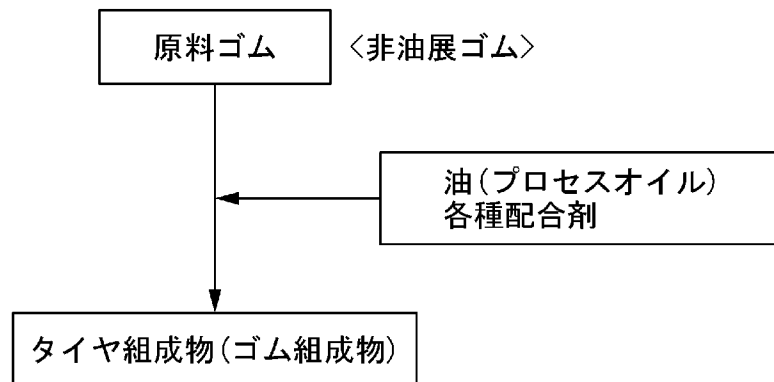
[図1]



[図2A]



[図2B]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/007679

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B60C 1/00 (2006.01) i; C08L 21/00 (2006.01) i; C08L 91/00 (2006.01) i
FI: C08L91/00; C08L21/00; B60C1/00 Z

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)

B60C1/00; C08L21/00; C08L91/00

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2010/110144 A1 (NIPPON OIL CORPORATION) 30.09.2010 (2010-09-30) claim 1, paragraphs [0002], [0004], [0153]-[0160], [0161]-[0170], tables 1-4, examples 3-1 to 3-4, table 5	1-9
X	WO 2010/110093 A1 (NIPPON OIL CORPORATION) 30.09.2010 (2010-09-30) claims 1-4, paragraphs [0002], [0167], examples 1-5, tables 1, 2, 4-9	1-9
A	WO 2014/057641 A1 (JX NIPPON OIL & ENERGY CORPORATION) 17.04.2014 (2014-04-17) claims, examples	1-9

☐ 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

"I" 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
15 April 2020 (15.04.2020)

Date of mailing of the international search report
26 May 2020 (26.05.2020)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
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/JP2020/007679

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2010/110144 A1	30 Sep. 2010	JP 2010-229316 A JP 2010-229317 A SG 174122 A CN 102365323 A TW 201100483 A KR 10-2012-0004407 A CN 103059908 A	
WO 2010/110093 A1	30 Sep. 2010	JP 2010-229314 A SG 174123 A CN 102365322 A KR 10-2012-0004408 A TW 201038725 A	
WO 2014/057641 A1	17 Apr. 2014	CN 104837969 A KR 10-2015-0074017 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B60C 1/00(2006.01)i; C08L 21/00(2006.01)i; C08L 91/00(2006.01)i FI: C08L91/00; C08L21/00; B60C1/00 Z														
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）） B60C1/00; C08L21/00; C08L91/00														
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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2020年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2020年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年				
日本国実用新案公報	1922 - 1996年													
日本国公開実用新案公報	1971 - 2020年													
日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年													
日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年													
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）														
C. 関連すると認められる文献														
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号												
X	WO 2010/110144 A1（新日本石油株式会社）30.09.2010（2010 - 09 - 30） 請求項1, [0002], [0004], [0153]-[0160], [0161]-[0170], 表1-4, 実施例3-1 - 3-4, 表5	1-9												
X	WO 2010/110093 A1（新日本石油株式会社）30.09.2010（2010 - 09 - 30） 請求項1-4, [0002], [0167], 実施例1-5, 表1, 2, 4-9	1-9												
A	WO 2014/057641 A1（J X 日鉱日石エネルギー株式会社）17.04.2014（2014 - 04 - 17） 特許請求の範囲, 実施例	1-9												
☐ 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。														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td>“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</td> </tr> <tr> <td>“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）</td> <td>“&” 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td></td> </tr> <tr> <td>“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</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	“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	“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	“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	“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	“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	“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）	“&” 同一パテントファミリー文献	“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	
* 引用文献のカテゴリー	“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													
“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	“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													
“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	“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													
“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）	“&” 同一パテントファミリー文献													
“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														
国際調査を完了した日 15.04.2020	国際調査報告の発送日 26.05.2020													
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） 今井 督 4J 5812 電話番号 03-3581-1101 内線 3457													

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/JP2020/007679

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2010/110144	A1	30.09.2010	JP	2010-229316	A	
				JP	2010-229317	A	
				SG	174122	A	
				CN	102365323	A	
				TW	201100483	A	
				KR	10-2012-0004407	A	
				CN	103059908	A	
WO	2010/110093	A1	30.09.2010	JP	2010-229314	A	
				SG	174123	A	
				CN	102365322	A	
				KR	10-2012-0004408	A	
				TW	201038725	A	
WO	2014/057641	A1	17.04.2014	CN	104837969	A	
				KR	10-2015-0074017	A	