

(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2005-520919  
(P2005-520919A)

(43) 公表日 平成17年7月14日(2005.7.14)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

**C10M 107/32**  
**C10M 105/14**  
**C10M 105/24**  
**C10M 105/26**  
**C10M 109/02**

F 1

C10M 107/32  
C10M 105/14  
C10M 105/24  
C10M 105/26  
C10M 109/02

テーマコード(参考)

4H104

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-578503 (P2003-578503)  
(86) (22) 出願日 平成15年3月13日 (2003.3.13)  
(85) 翻訳文提出日 平成16年9月17日 (2004.9.17)  
(86) 國際出願番号 PCT/US2003/008244  
(87) 國際公開番号 WO2003/080772  
(87) 國際公開日 平成15年10月2日 (2003.10.2)  
(31) 優先権主張番号 60/365,651  
(32) 優先日 平成14年3月18日 (2002.3.18)  
(33) 優先権主張国 米国(US)

(71) 出願人 591131338  
ザルブリゾル コーポレイション  
THE LUBRIZOL CORPOR  
ATION  
アメリカ合衆国 オハイオ 44092,  
ウイクリフ レークランド ブールバード  
29400  
29400 Lakeland Bou  
levard, Wickliffe, O  
hio 44092, United S  
tates of America  
(74) 代理人 100078282  
弁理士 山本 秀策  
(74) 代理人 100062409  
弁理士 安村 高明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 改善された溶解性を有する、金属加工において使用するための三価ポリオールからのポリマー性ポリオールエステル

## (57) 【要約】

低い流動点および A P I G r o u p I I および I I I のベースストック中における改善された溶解度を有する金属加工適用のためのポリマー性ポリオールエステル添加剤が、記載される。このポリオールエステルは、三価アルコールおよび / または四価アルコール、直鎖の脂肪モノカルボン酸、短鎖の二酸、およびアルキルまたはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物から作製される。このポリマー性ポリオールエステル分子は、一般的に、リン、硫黄、および他のヘテロ原子(酸素、炭素、および水素以外)を含まないものの、これらは硫黄化炭化水素およびリン含有の耐摩耗添加剤または極圧添加剤を含む添加剤パッケージの一部であり得る。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

金属加工のためのポリマー性ポリオールエステル添加剤であって、以下：

a) 約 40 ~ 70 重量 % の、12 ~ 20 個の炭素原子を有する実質的に直鎖のモノカルボン酸由来の繰り返し単位、

b) 約 5 ~ 30 重量 % の、4 ~ 6 個の炭素原子を有するアルカン二酸由来の繰り返し単位、

c) 約 10 ~ 20 重量 % の、アルキルもしくはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物由来の繰り返し単位であって、ここで、該アルキル基もしくはアルケニル基は、必要に応じて分岐しており、12 ~ 20 個の炭素原子を有する、繰り返し単位、

d) 約 8 ~ 20 重量 % の、三価アルコール、および

e) 約 5 ~ 15 重量 % の、ペンタエリスリトール由来の繰り返し単位、を含む、ポリマー性ポリオールエステル添加剤。

## 【請求項 2】

製造された前記ポリマー性ポリオールエステル分子が、リン原子およびイオウ原子を実質的に含まない、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 3】

前記モノカルボン酸由来の繰り返し単位の量が、約 40 ~ 60 重量 % である、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 4】

前記アルキルもしくはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物由来の繰り返し単位の量が、約 12 ~ 16 重量 % である、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 5】

前記アルカン二酸由来の繰り返し単位の量が、約 12 ~ 20 重量 % である、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 6】

前記三価アルコール由来の繰り返し単位の量が 9 ~ 13 重量 % であり、ペンタエリスリトール由来の繰り返し単位の量が約 7 ~ 10 重量 % である、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 7】

少なくとも 50 重量 % の、American Petroleum Institute によって規定された Group II または Group III のベースストック中に、0.05 ~ 50 重量 % まで希釈された、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 8】

金属加工流体（金属をスタンプ、切削および / または屈曲するための潤滑剤）としての、請求項 7 に記載の組成物の使用。

## 【請求項 9】

産業界において公知の潤滑性極圧添加剤の任意の組み合わせをさらに含む、請求項 7 に記載の組成物。

## 【請求項 10】

前記ポリマー性ポリオールエステルが、約 10,000 ~ 約 1,000,000 の数平均分子量を有する、請求項 1 に記載の組成物。

## 【請求項 11】

請求項 1 に記載の組成物であって、前記モノカルボン酸の少なくとも 50 重量 % がココヤシ脂肪酸またはトール油脂肪酸であり、前記アルキルもしくはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物の少なくとも 50 重量 % がイソオクタデシルコハク酸または無水物であり、前記アルカン二酸の少なくとも 50 重量 % がアジピン酸であり、そして前記三価アルコールの少なくとも 50 重量 % がトリメチロールプロパンである、組成物。

## 【請求項 12】

金属加工のためのポリマー性ポリオールエステル添加剤であって、以下：

a) 約 10 ~ 90 重量 % の、12 ~ 20 個の炭素原子を有する実質的に直鎖のモノカル

10

20

30

40

50

ボン酸由来の繰り返し単位、

b) 約5～30重量%の、4～6個の炭素原子を有するアルカン二酸由来の繰り返し単位、

c) 約5～30重量%の、アルキルもしくはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物由来の繰り返し単位であって、ここで、該アルキル基もしくはアルケニル基は、必要に応じて分岐しており、12～20個の炭素原子を有する、繰り返し単位、および

d) 約5～30重量%の、三価アルコール由来の繰り返し単位、  
を含む、ポリマー性ポリオールエステル添加剤。

【請求項13】

製造された前記ポリマー性ポリオールエステル分子が、リン原子およびイオウ原子を実質的に含まない、請求項12に記載の組成物。 10

【請求項14】

前記モノカルボン酸由来の繰り返し単位の量が、約30～60重量%である、請求項12に記載の組成物。

【請求項15】

前記アルキルもしくはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物由来の繰り返し単位の量が、約10～15重量%または20重量%である、請求項12に記載の組成物。

【請求項16】

前記アルカン二酸由来の繰り返し単位の量が、約10～15重量%である、請求項12に記載の組成物。 20

【請求項17】

前記三価アルコール由来の繰り返し単位の量が10～20重量%である、請求項1に記載の組成物。

【請求項18】

少なくとも50重量%の、American Petroleum Instituteによって規定されたGroup IIまたはGroup IIIのベースストック中に、0.05～50重量%まで希釈された、請求項12に記載の組成物。

【請求項19】

金属加工流体（金属をスタンプ、切削および/または屈曲するための潤滑剤）としての、請求項12に記載の組成物の使用。 30

【請求項20】

産業界において公知の潤滑性極圧添加剤の任意の組み合わせをさらに含む、請求項12に記載の組成物。

【請求項21】

前記ポリマー性ポリオールエステルが、約10,000～約1,000,000の数平均分子量を有する、請求項12に記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

（発明の分野）

パラフィン性鉱油ベースストック（水素化処理）との適合性および金属加工適用における有用性を有するポリマー性ポリオールエステル添加剤を記載する。これらのポリマー性ポリオールエステル分子は、一般的に、リン、硫黄、および他のヘテロ原子（酸素、炭素、および水素以外）を含まないものの、これらは硫黄化炭化水素およびリン含有の耐摩耗添加剤または極圧添加剤を含む添加剤パッケージの一部であり得る。 40

【背景技術】

【0002】

金属加工操作としては、例えば、圧延、鍛造、ホットプレス、プランギング、曲げ加工、スタンピング、ドローイング、切削、パンチング、スピニングなどが挙げられ、一般的に、これらを容易にするために潤滑剤を使用する。潤滑剤は、一般的に、相互作用する金 50

属表面間で制御された摩擦または滑りのフィルムを提供し得、それによって、この操作に必要とされる全体的な出力を減少し、そして固着を妨げ、ダイ、切断ピットなどの摩耗を減少させる点で、これらの操作を改善する。時々、潤滑剤は、特定の金属加工接触点から熱を移動させて除くことが期待される。さらに、金属加工流体は、金属部分に残余のフィルムを提供し得、それによって、処理される金属に腐食阻害特性を加える。

#### 【0003】

金属加工流体は、しばしば、キャリア流体および多数の特殊な添加剤を含む。キャリア流体は、金属表面にいくらかの一般的な潤滑性を与え、金属表面に特殊な添加剤を運び／送達する。特殊な添加剤は、流体力学的なフィルム潤滑剤を超える摩擦減少、金属腐食保護、極圧または耐摩耗効果などを含む種々の特性を与え得る。

10

#### 【0004】

キャリア流体としては、種々の石油蒸留物が挙げられ、これには、American Petroleum InstituteのGroup I～Vベースストックおよび／または水が挙げられる。Group Iベースストックは、主に、石油の直接的な分留生成物に関する。Group IIベースストックおよびGroup IIIベースストックは、不飽和の量が減少した（例えば、1重量%未満）水素化処理蒸留生成物、および環式蒸留生成物のような、さらに精製された石油生成物である。特殊な添加剤は、溶解した、分散した、および部分的に可溶な物質を含む種々な形態で、キャリア流体内に存在し得る。いくらかの金属加工流体は、加工プロセスの間、失われるかまたは金属表面上に堆積し；いくらかは、流出、噴霧などとして環境中に失われ；そしていくらかは、キャリア流体および添加剤が使用の間、有意に捨てられない場合、再利用可能である。プロセス物品および工業プロセスストリームへの金属加工流体のある割合での流入に起因して、金属加工流体への成分が、最終的に完全に生分解可能であり、生物濃縮の危険がほとんど無いことが望ましい。

20

#### 【0005】

ポリマー性ポリオールエステルは、分子構造、分子量などに依存して、炭水化物オイルおよび水キャリア流体の両方と適合性を示し、いくらか可溶性を示す。これらは、生分解性であり、それらが他のヘテロ原子を含まない場合、生物濃縮の危険がほとんど無い。ペンタエリスリトール由来のポリマー性ポリオールエステルは、金属加工のための添加剤として公知であるが、いくらかの潤滑剤ベースストック材料と、いくらかの温度で適合性の問題を受ける。

30

#### 【発明の開示】

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0006】

改善された溶解度特性および低い酸化指数を有するポリマー性ポリオールエステルは、金属加工のための潤滑剤として使用されるポリマー性ポリオールエステル中のペンタエリスリトールの一部または全てを置換するために、トリメチロールプロパンのような三価アルコールの部分を使用して、調製され得る。トリメチロールプロパンを含むポリオールエステルが、あまり短くない分枝鎖を有し、従って、溶媒またはGroup IIベースストックおよびGroup IIIベースストック中の溶解度を減少させるものの、実験データは、多くの場合において、ペンタエリスリトールに対する一部または完全な置換としてのトリメチロールプロパンの組み込みが、溶解度を向上させることを確認した。

40

#### 【0007】

ペンタエリスリトールの一部または完全な置換の別の利点は、トリメチロールプロパンが全体的なポリオールの充填の一部または全てである場合、より低い酸化指数がこれらの特定のポリマー処方物において得られることである。代表的に、単独のポリオールとしてペンタエリスリトールで作製されたこのタイプのポリオールエステルにおいて、酸化指数は、約20mg KOH / 1gの添加剤である。トリメチロールプロパンが同じ反応条件下で約50モル%のペンタエリスリトールを置換する場合、酸化指数は、8mg KOH / g未満に、より望ましくは、5mg KOH / g未満に容易に減少し得る。トリメチロールプロ

50

ロパンが全てのポリオールを置換する場合、酸化指数は、5 mg KOH / g 未満、より望ましくは、3 mg KOH / g 未満になり得る。より高い酸化指数は、それらがポリマー鎖のカップリングを促進し、これが、炭化水素オイル中のポリマー性ポリオールエステルの可溶性を有意に減少し得る点で望ましくない。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

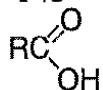
(発明の詳細な説明)

本開示のポリマー性ポリオールエステルは、以下の成分から作製される。第1は、ほぼ直鎖状のモノカルボン酸であり、ここで、Rは、11～19個の炭素原子のアルキル基またはアルケニル基である。

10

【0009】

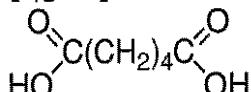
【化1】



第2は、以下に示すアルカン二酸(例えば、アジピン酸)である。

【0010】

【化2】

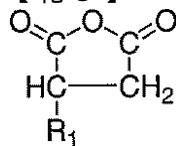


20

第3は、アルキル基もしくはアルケニル基で置換されたコハク酸またはその無水物であり、ここで、R<sub>1</sub>は、15～20個の炭素原子を有する。

【0011】

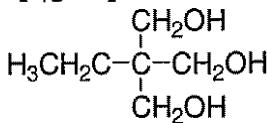
【化3】



第4は、三価アルコールであり、好ましい実施形態では、以下に示す通りのトリメチロールプロパンである。

【0012】

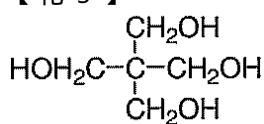
【化4】



実施形態Aにおける第5成分は、実施形態Bにおいて、あらゆる実質的量では存在しない。第5成分は、存在する場合、以下に示す通りのペンタエリスリトールである。

【0013】

【化5】



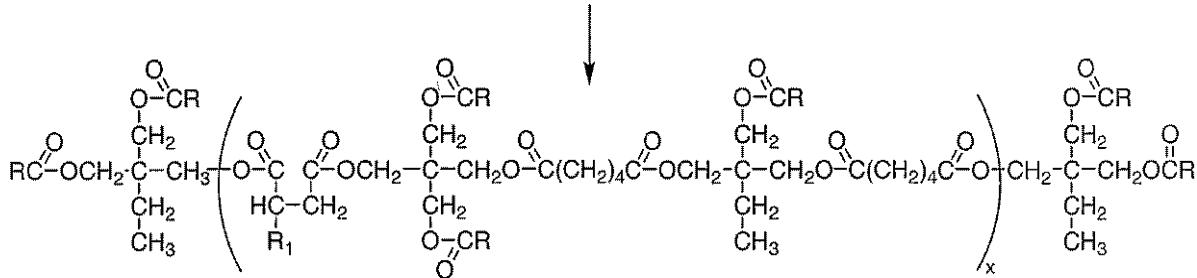
これらの成分1～5が反応する場合、これは、実施形態Aに記載される通りであって以下に示すポリマー性ポリオールエステルを形成し得る。示される通りの厳密に直鎖状の構造以外にも、より多くの側鎖分岐を有する、これら由来の種々の異性体バリエーションが予想される。

【0014】

40

50

## 【化6】



このポリマー性ポリオールエステルは、多価アルコール成分に基づく三価アルコールを約50%～約60%含む実施形態Aを作製するかまたは多価アルコール成分に基づく三価アルコールを約90%～約100%含む実施形態Bを作製するかに依存して、4または5の異なる成分から製造される。ペンタエリスリトールを含むことが、実施形態Aと実施形態Bとの間の主な違いである。

10

## 【0015】

ポリマー性ポリオールエステル中の第1成分は、約12～約20個の炭素原子を有する、実質的に直鎖状のモノカルボン酸である。これらの酸の例は、ココヤシの脂肪酸およびトール油脂肪酸である。これらの酸は、同じパラフィンの性質を有し、それゆえ、好ましくは、Group IIおよびGroup IIIのベースストックの高度に直鎖状のパラフィン油と相互作用すると考えられる。この成分は、縮合重合において1官能性であるので、その量が多いほど、分子量を小さくするのに役立つ。実施形態Aでは、これら(モノカルボン酸由来の繰返し単位)は、このポリマー性ポリオールエステル中の全成分の重量に基づいて、約40重量%～約70重量%、より望ましくは約40重量%～60重量%、そして好ましくは約50重量%～約55重量%の量で存在する。この開示において、繰返し単位は、繰返し単位に対する酸成分、二酸成分、またはポリオール成分を記載するために用いられ、一方、より学術的なアプローチは、酸成分およびアルコール成分の両方を含めるために、繰返し単位を必要とし得る。これは、このポリオールエステルの特定の酸、二酸、またはポリオール由来の繰返し単位の重量%と交換可能に用いられる。なぜなら、前駆体の重量と繰返し単位中のそれに由来するフラグメントの重量との間の相違がないからである。実施形態Bでは、直鎖状モノカルボン酸の量は、約10重量%～約90重量%、より好ましくは約30重量%～約60重量%である。

20

## 【0016】

第2の成分は、4～6の炭素原子を有するアルカン二酸である。好ましいアルカン二酸は、アジピン酸である。この成分は、主に、ポリオールエステルの形成のための鎖伸長剤である。このアルカン二酸は、実施形態Aでは、ポリマー性ポリオールエステル中のすべての繰り返し単位を基に、約5～30重量%、より望ましくは約10～20重量%、そして好ましくは約12～15重量%の範囲で望ましくは存在している。このアルカン二酸は、実施形態Bでは、ポリマー性ポリオールエステル中のすべての繰り返し単位を基に、約5～30重量%、そしてより望ましくは約10～15重量%の範囲で望ましくは存在している。

30

## 【0017】

第3の成分は、アルキル(アルケニル)で置換されたコハク酸またはその無水物である。アルキル(アルケニル)は、用語アルキルまたはアルケニルの速記であり、アルケニルは、分子フラグメント中に1つ以上の炭素-炭素二重結合を含むことだけアルキルと異なる。このアルキルまたはアルケニルで置換されたコハク酸またはその無水物において不飽和は特に所望されないが、いくらかの不飽和が、このアルキルまたはアルケニルで置換されたコハク酸反応物を形成するために用いられる化学反応に起因して存在し得ることが理解される。このアルキルまたはアルケニル基は、望ましくは、約15～20の炭素原子を有するので、全体の分子は、水素原子および酸素原子の個々の量とともに、約19～24の炭素原子を有している。好ましいアルキルまたはアルケニル基は、1つ以上の脂肪族

40

50

分枝をもつ基を含み得、そして望ましい例は、イソオクタデシル基であり得、イソオクタデシル無水コハク酸を生じる。コハク酸の無水物が列挙されているが、最終のポリマーでは、この無水物は、開環されてアルキルまたはアルケニルコハク酸のエステル化生成物としてポリオールエステルとして出現することが理解される。望ましくは、このアルキルまたはアルケニルコハク酸またはその無水物は、実施形態 A では、ポリマーのポリオールエステル中の繰り返し単位として、その中のすべての繰り返し単位を基礎にして約 10 ~ 20 重量%、より望ましくは約 12 ~ 16 重量%、そして好ましくは約 14 ~ 15 重量% として存在する。望ましくは、このアルキルまたはアルケニルコハク酸またはその無水物は、実施形態 B では、ポリマーのポリオールエステル中の繰り返し単位として、約 1 ~ 50 重量%、より望ましくは約 5 ~ 30 重量%、そして好ましくは約 10 ~ 20 重量% として存在する。

10

## 【0018】

第 4 の成分は、三価ポリオールである。約 4 ~ 10 の炭素原子を有する、種々の三価アルコールが用いられ得るが、トリメチロールプロパンが、その他の三価アルコールに対し、トリメチロールプロパンから作製されるポリオールエステルの化学的安定性に起因して好適である。望ましくは、実施形態 A では、この三価アルコールは、繰り返し単位中に約 8 ~ 20 重量%、より望ましくは約 9 ~ 13 重量%、そして好ましくはすべての繰り返し単位を基礎に約 11 ~ 12 重量% で存在する。望ましくは、実施形態 B では、この三価アルコールは、繰り返し単位中に約 5 または 10 ~ 30 重量%、そしてより望ましくは、すべての繰り返し単位を基礎に約 10 ~ 20 重量% で存在する。

20

## 【0019】

第 5 の成分、ペンタエリスリトールは、実施形態 A に存在するのみであり、そして実施形態 B では意図的に存在していない。ペンタエリスリトールは、すでに示された構造を有する。それは、その他の三価アルコールより好適である。なぜなら、水酸基のすべての酸素原子からの（中央）炭素に任意の結合した水素原子を欠く特別の構造のためである。これは、水酸基からの炭素が取り出され得る水素原子（単数または複数）を有するとき生じるいくつかの化学反応を防ぐことを補助する。ペンタエリスリトールは、一般に、所定の式によって規定されているが、ペンタエリスリトールの市販の供給源は、一般に、ペンタエリスリトールの結合から、痕跡量のダイマー、トリマーおよびより高級なオリゴマーを含むことが周知である。本出願および請求項の目的には、用語ペンタエリスリトールは、いくらかのダイマー、トリマーなどを含むその一般に市販される受容可能な形態を含む。ペンタエリスリトールは、望ましくは、実施形態 A 中に、約 5 ~ 15 重量%、より望ましくは、約 7 ~ 10 重量%、そして好ましくは、約 8 ~ 9 重量% の量で存在している。

30

## 【0020】

このポリマー性ポリオールエステルは、その適用に依存して、微量から大量まで金属加工中に存在し得る。ほとんどの従来適用においては、その使用率は、炭化水素希釈油中のこのポリマー性ポリオールエステル約 0.05 重量% ~ 約 50 重量% であり、より望ましくは約 0.1 重量% ~ 約 25 重量% である。この特定のポリマー性ポリオールエステルは、金属加工適用において有用であり得る広汎な種々の天然油および合成油とともに使用され得る。この特定のポリマー性ポリオールエステルは、ペンタエリトリトール単独からのポリマー性ポリオールエステルおよび類似する酸よりも低い流動点を有し、従って、それらよりも低温でより容易に取り扱われそして測定される（ポンプ可能な（pumpable）ニート（neat）粘度を達成するために加熱が必要でないか、またはそれらよりも少なくしか加熱が必要ではない）。

40

## 【0021】

このポリマー性ポリオールの分子量は、金属加工流体（例えば、希釈油）中で最適な溶解度を達成そしてその流体中の他の成分との最適な適合性を達成するように、調整され得る。その数平均分子量は、ほとんどの適用について約 10,000 から約 1,000,000 まで変化し得、より望ましくは、約 20,000 から約 500,000 まで変化し得る。最大溶解度を達成するために、ポリマー性ポリオールエステルは、しばしば、20

50

, 000 ~ 100,000 に制御された数平均分子量を有する。このポリマー性ポリオールエステルの酸化指数およびヒドロキシル価は、その分子量により影響を受ける。この適用において、大過剰な残留ヒドロキシル基も酸基も、望ましくない。従って、その酸基およびヒドロキシル基の化学量論は、ほぼ等しく、1モル%、2モル%、または3モル%から10モル%までの分、変化すると予測され得る。20mg KOH / g ポリマー未満の酸化指数、より望ましくは10mg KOH / g ポリマー未満、8mg KOH / g ポリマー未満、5mg KOH / g ポリマー未満または3mg KOH / g ポリマー未満の酸化指数が、上記産業により好まれるが、より高い酸化指数は、金属加工添加剤としての使用を必ずしも除外するわけではない。

## 【0022】

10

これらのポリマー性ポリオールエステルは、当該分野で周知の種々のプロセスを用いて生成され得る。それは縮合重合であるので、反応物から水を除去してその縮合重合を完了させるのを促進することが、望ましい。希釈剤が使用され得る。これらを生成するために使用される示唆される手順は、不活性ガス（例えば、窒素）下で、約240 ~ 255 の温度にて、その酸化指数が受容可能になる（例えば、通常は、3 ~ 8mg KOH / g ポリマーの間の酸化指数で、反応が停止された）まで、その反応物を攪拌リアクター内で混合する工程を包含する。これは、代表的には、実施形態Aの反応物を使用して、6 ~ 8時間であった。

## 【0023】

20

このポリマー性ポリオールエステルは、金属加工流体中で唯一の添加剤である必要はない。これらの添加剤は、リン含有極圧（EP）添加剤および/またはイオウ含有極圧（EP）添加剤とともに良好に作用する。このポリマー性ポリオールエステルは、イオウEP添加剤および/またはリンEP添加剤とともに使用された場合、クロロパラフィンEP添加剤に代わる部分的EP置換物として機能し得る。このポリマー性ポリオールエステルは、金属加工用添加剤としての米国特許第5,798,322号に列挙された有機リン化合物とともに、この特許におけるポリマー性ポリオールエステル添加剤と組み合わせて、良好に作用する。米国特許第5,798,322号は、金属加工処方一般に関するその教示、およびポリマー性ポリオールエステル添加剤を使用する処方物に対する添加剤/変形に関するその教示について、参考として本明細書中に援用される。

## 【0024】

30

上記に言及された文書の各々は、本明細書中に参考として援用される。実施例中または他のように明示的に示される場合を除いて、物質の量、反応条件、分子量、炭素原子数などを特定する本明細書中のすべての数量は、用語「約（およそ）」により修飾されたものとして理解されるべきである。他のように示されない限り、本明細書中で言及される各化学物質または組成物は、商業グレードの物質であると解釈されるべきであり、この商業グレードの物質は、異性体、副産物、誘導体、およびその商業グレードにおいて存在すると通常は理解される他のそのような物質を含み得る。しかし、各化学物質成分の量は、いかなる溶媒も希釈油も除いて示される。溶媒または希釈油は、他のように示されない限り、市販の物質中に通常存在し得る。本明細書中で示される上限および下限、範囲、および比の限度は、独立して組合され得ることが理解されるべきである。本発明の要素のほとんどに関して、他の要素に関する範囲とは独立して範囲が与えられるが、本発明のより好ましい実施形態において、本発明の要素は、本発明の各要素に関する種々の（各種の（assorted））望ましい範囲または好ましい範囲と、種々の組合せて組み合わされるべきであることが、認識される。本明細書中で使用される場合、表現「本質的に～からなる」とは、検討中の組成物の基本的かつ新規な特徴に実質的には影響しない物質を含むことを許容する。

40

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		Internal Application No PCT/US 03/08244															
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 C10M145/22 C10M129/78 C10M107/32 C10M105/42 C08G63/12 //C10N40:20,40:22,40:24																	
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 C19M C10G																	
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, PAJ, CHEM ABS Data																	
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b> <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Category <sup>o</sup></th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="text-align: left; padding: 2px;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">US 5 798 322 A (MYERS AARON ET AL) 25 August 1998 (1998-08-25) cited in the application column 2, line 16 – line 42 claims; examples</td> <td style="padding: 2px;">1-21</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">GB 1 215 214 A (ROGER CHARLES PRICE, ALAN MICHAEL, DOMINEY AND ALAN HAROLD EDWARDS) 9 December 1970 (1970-12-09) the whole document</td> <td style="padding: 2px;">1-21</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">A</td> <td style="padding: 2px;">GB 665 595 A (BATAAFSCHE PETROLEUM) 23 January 1952 (1952-01-23) page 1, line 83 –page 2, line 115 examples</td> <td style="padding: 2px;">1-21</td> </tr> <tr> <td></td> <td style="text-align: center; padding: 2px;">-/-</td> <td></td> </tr> </tbody> </table>			Category <sup>o</sup>	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	A	US 5 798 322 A (MYERS AARON ET AL) 25 August 1998 (1998-08-25) cited in the application column 2, line 16 – line 42 claims; examples	1-21	A	GB 1 215 214 A (ROGER CHARLES PRICE, ALAN MICHAEL, DOMINEY AND ALAN HAROLD EDWARDS) 9 December 1970 (1970-12-09) the whole document	1-21	A	GB 665 595 A (BATAAFSCHE PETROLEUM) 23 January 1952 (1952-01-23) page 1, line 83 –page 2, line 115 examples	1-21		-/-	
Category <sup>o</sup>	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.															
A	US 5 798 322 A (MYERS AARON ET AL) 25 August 1998 (1998-08-25) cited in the application column 2, line 16 – line 42 claims; examples	1-21															
A	GB 1 215 214 A (ROGER CHARLES PRICE, ALAN MICHAEL, DOMINEY AND ALAN HAROLD EDWARDS) 9 December 1970 (1970-12-09) the whole document	1-21															
A	GB 665 595 A (BATAAFSCHE PETROLEUM) 23 January 1952 (1952-01-23) page 1, line 83 –page 2, line 115 examples	1-21															
	-/-																
<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																	
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report															
16 July 2003		24/07/2003															
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  Dötterl, E															

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/US 03/08244

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5 698 502 A (KREVALIS MARTIN A ET AL) 16 December 1997 (1997-12-16) column 6, line 40 -column 8, line 5 examples -----	1-21
A	US 3 697 428 A (WIDMER ROBERT ET AL) 10 October 1972 (1972-10-10) examples -----	1-21

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/US 03/08244

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 5798322	A	25-08-1998	AU WO	4156597 A 9808920 A1	19-03-1998 05-03-1998
GB 1215214	A	09-12-1970	BE DE ES FR JP NL NO SE	732865 A 1920849 A1 366848 A1 2008163 A6 48020001 B 6907150 A ,B 127710 B 358406 B	10-11-1969 17-09-1970 01-04-1971 16-01-1970 18-06-1973 11-11-1969 06-08-1973 30-07-1973
GB 665595	A	23-01-1952	NONE		
US 5698502	A	16-12-1997	AU AU BR CN EP JP KR NO WO	727824 B2 4342897 A 9711765 A 1233273 A 0938536 A1 2001501991 T 2000036032 A 991159 A 9811179 A1	21-12-2000 02-04-1998 24-08-1999 27-10-1999 01-09-1999 13-02-2001 26-06-2000 11-05-1999 19-03-1998
US 3697428	A	10-10-1972	DE FR GB JP	2014475 A1 2044708 A1 1287526 A 49001762 B	08-10-1970 26-02-1971 31-08-1972 16-01-1974

## フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	F I	テーマコード(参考)
C 10M 129/08	C 10M 129/08	
C 10M 129/34	C 10M 129/34	
C 10M 129/40	C 10M 129/40	
C 10M 129/42	C 10M 129/42	
C 10M 145/22	C 10M 145/22	
C 10M 159/12	C 10M 159/12	
// C 10N 20:04	C 10N 20:04	
C 10N 30:00	C 10N 30:00	Z
C 10N 40:20	C 10N 40:20	Z

(81)指定国 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),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,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,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100113413

弁理士 森下 夏樹

(72)発明者 パテル, ハリッシュ アール.

アメリカ合衆国 サウス カロライナ 29302, スバルタンバーグ, ダレス フェリー  
ロード 219

(72)発明者 キムズ, ジョン エー.

アメリカ合衆国 サウス カロライナ 29302, スバルタンバーグ, パインクレスト ロード 1369

F ターム(参考) 4H104 BB04R BB17R BB18R CB13A CB13C DB01A DB01C EA03A EA03C EB08

LA20 PA21