

(11) *Número de Publicação:* **PT 755978 E**

(51) *Classificação Internacional:* (Ed. 6)
C08L071/02 A C08G065/26 B
C10M107/34 B

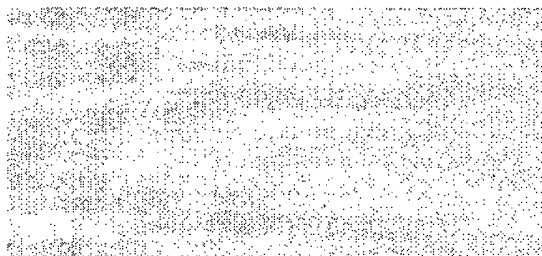
(12) FASCÍCULO DE PATENTE DE INVENÇÃO

(22) Data de depósito: 1996.07.05	(73) Titular(es): AGIP PETROLI S.P.A. VIA LAURENTINA 449 I-00142 ROMA IT
(30) Prioridade: 1995.07.28 IT MI951652	
(43) Data de publicação do pedido: 1997.01.29	(72) Inventor(es): ALESSANDRO LEZZI EMILIO GATTI ALBERTO FORLINI SANDRA COBIANCO IT IT IT IT
(45) Data e BPI da concessão: 2000.10.25	(74) Mandatário(s): JOSÉ EDUARDO LOPES VIEIRA DE SAMPAIO RUA DO SALITRE, 195 R/C DTO 1250 LISBOA PT

(54) Epígrafe: COPOLÍMEROS SEQUENCIADOS DE POLIOXIALQUILENO SUA PREPARAÇÃO E SUA UTILIZAÇÃO COMO LUBRIFICANTES

(57) Resumo:

COPOLÍMEROS SEQUENCIADOS DE POLIOXIALQUILENO SUA PREPARAÇÃO E SUA UTILIZAÇÃO COMO LUBRIFICANTES





FOLHA DO RESUMO

PAT. INV. ☒	MOD. UTI. ☐	MOD. IND. ☐	DES. IND. ☐	TOP. SEMIC. ☐	CLASSIFICAÇÃO INTERNACIONAL (51)						
N.º 755.978 (11) DATA DO PEDIDO ____/____/____ (22)											
REQUERENTE (71) AGIP PETROLI S.p.A., italiana, industrial, com sede em Via (NOME E MORADA) Laurentina 449, 00142 Roma, Itália CÓDIGO POSTAL _____											
INVENTOR(ES) / AUTOR(ES) (72) FORLINI, ALBERTO; GATTI, EMILIO; COBIANCO, SANDRA e LEZZI ALESSANDRO											
REIVINDICAÇÃO DE PRIORIDADE(S) (30) <table border="1"><thead><tr><th>DATA DO PEDIDO</th><th>PAÍS DE ORIGEM</th><th>N.º DO PEDIDO</th></tr></thead><tbody><tr><td> </td><td> </td><td> </td></tr></tbody></table>					DATA DO PEDIDO	PAÍS DE ORIGEM	N.º DO PEDIDO				FIGURA (para interpretação do resumo)
DATA DO PEDIDO	PAÍS DE ORIGEM	N.º DO PEDIDO									
EPIGRAFE (54) "COPOLÍMEROS SEQUENCIADOS DE POLIOXIALQUILE- NO, SUA PREPARAÇÃO E SUA UTILIZAÇÃO COMO LUBRIFICANTES"											
RESUMO (max. 150 palavras) (57) Copolíeteres sequenciados de fórmula geral (I): $RX-(CH_2-CHR_1-O)_x-(-CH_2CHR_2-O)_y-(-CH_2-CHR_3-O)_z-R_4$ na qual: - o simbolo R representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou alquilarilo; - o simbolo X representa um átomo de oxigénio, de enxofre e de azoto; - os simbolos R₁, R₂ e R₃, representam, cada um, um átomo de hidrogénio, um grupo											

NÃO ESCREVER NAS ZONAS SOMBREADAS

258

FOLHA DO RESUMO (Continuação)

PAT. INV. ☐	MOD. UTI. ☐	MOD. IND. ☐	DES. IND. ☐	TOP. SEMIC. ☐	CLASSIFICAÇÃO INTERNACIONAL (51)
N.º Objectos ☐ N.º Desenhos ☐					
N.º ☐ (11)		DATA DO PEDIDO ☐ / ☐ / ☐ (22)			

RESUMO (continuação) (57)

CH₃ ou um radical alquilo C₂-C₁₀;

- o símbolo R₄ representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou acilo;
- os símbolos x, y e z, representam o número de unidades etéreas e constituem números inteiros que têm valores tais que o peso molecular do composto de fórmula geral (I) se encontra compreendido entre 600 e 4000 e, além disso, (x+z)/y encontra-se compreendida entre 1,5 e 5,0, com a condição de:

- a) ou os símbolos R₁ e R₃ representam, cada um, um átomo de hidrogénio ou um grupo CH₃, caso esse em que o símbolo R₂ representa um radical alquilo C₂ a C₁₀,
b) ou os símbolos R₁ e R₃ representam, cada um, um radical alquilo C₂-C₁₀, caso esse em que o símbolo R₂ representa um átomo de hidrogénio ou um grupo CH₃.

NÃO ESCREVER NAS ZONAS SOMBREADAS

Descrição

“Copolímeros sequenciados de polioxiálquileno, sua preparação e sua utilização como lubrificantes”

A presente invenção diz respeito à utilização de poliéteres solúveis em óleo no campo dos lubrificantes, em particular para óleos de motores.

Mais especificamente, os poliéteres de acordo com a presente invenção são caracterizados por uma estrutura de tri-sequenciada do tipo ABA em que os símbolos A e B representam sequências de óxidos de alquileno.

Os óleos lubrificantes para motores consistem em formulações de bases lubrificantes tais como óleos minerais, bases sintéticas do tipo hidrocarboneto e éster, em mistura com sistemas aditivos apropriados.

A possibilidade de formulação de óleos lubrificantes com poliglicóis encontra-se descrita na literatura, em particular para melhorar algumas das propriedades dos óleos, principalmente em termos de índices de viscosidade elevados, boas propriedades de formação de película e comportamento anti-desgaste e, pontos de inflamação elevados.

A dificuldade em afirmar o uso de poliglicóis como bases lubrificantes em formulações de óleo para motores é principalmente devida à sua natureza acentuadamente hidrófila (óxidos de polietileno) que pode ser ilustrada pela sua miscibilidade limitada tanto com bases minerais como com aditivos.

Sintetizaram-se recentemente poliglicóis solúveis em óleo a partir de α -epóxidos substituídos por grupos alquilo (etilo, butilo, hexilo, etc.) susceptíveis de se misturarem completamente com todos os componentes de óleos de motores.

Por exemplo, a patente de invenção US-A-4 481 123 descreve a síntese de

um poliglicol sequenciado particularmente apropriado para engrenagens de transmissão. Este poliglicol consiste numa sequência de politetra-hidrofurano obtida mediante polimerização catiónica de uma sequência de α -alquilepóxido C_8-C_{26} obtida mediante polimerização aniónica.

A patente de invenção US-A-4 793 939 diz respeito à formulação de um óleo lubrificante que consiste numa base mineral parafínica e nafténica e em uma base de poliglicol de di-sequenciada solúvel em óleo que consiste numa sequência C_2-C_4 e numa outra sequência C_6-C_{40} . A introdução do polialquilenoglicol melhora o índice de viscosidade, a resistência ao desgaste e ao atrito, mantendo-se inalteradas as boas propriedades da base mineral.

A patente de invenção EP-A-355 977 descreve a síntese de um poliglicol a ser utilizado em formulações de óleos de motor a dois ou quatro tempos e em lubrificantes industriais.

A percentagem de óleo mineral pode variar entre 0 e 40% e a do poliglicol entre 100 e 60%. Consiste numa estrutura di-sequenciada que consiste em 35 a 80% de epóxidos em C_2-C_4 e entre 1 e 35% de epóxido em C_6-C_{30} .

Os poliéteres tri-sequenciados que constituem o objecto da presente invenção, muito embora mantendo índices de viscosidade excelentes e boas viscosidades a temperaturas de 40 e 100°C dos poliglicóis anteriores, têm adicionalmente excelentes propriedades lubrificantes e anti-desgaste.

De acordo com isto, a presente invenção diz respeito à utilização de copoliéteres tri-sequenciados de fórmula geral (I):



na qual:

- o símbolo R representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou alquilarilo;
- o símbolo X representa um átomo de oxigénio ou de enxofre;
- os símbolos R_1 , R_2 e R_3 , iguais ou diferentes, representam, cada um, um átomo de hidrogénio, um grupo CH_3 ou radicais alquilo $\text{C}_2\text{-C}_{10}$;
- o símbolo R_4 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou acilo;
- os símbolos x, y e z, todos diferentes de zero, representam, cada um, o número de unidades de éter de cada sequência, são números inteiros que têm valores tais que o peso molecular do composto de fórmula geral (I) se encontra compreendido entre 600 e 4000, de preferência entre 800 e 2000, e além disso $(x+z)/y$ encontra-se compreendida entre 1,5 e 5,0, de preferência entre 2,2 e 3,2, com a condição de:
 - a) ou os símbolos R_1 e R_3 representam, cada um, um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 , caso esse em que o símbolo R_2 representa radicais alquilo em C_2 a C_{10} ,
 - b) ou os símbolos R_1 e R_3 representam radicais alquilo em $\text{C}_2\text{-C}_{10}$, caso esse em que o símbolo R_2 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 ,como aditivos anti-desgaste em óleos lubrificantes.

Numa forma de realização, o poliéter de fórmula geral (I) tem R e $R_2 = n\text{-C}_4\text{H}_9$, $R_3 = \text{CH}_3$, $R_1 = \text{CH}_3$, $R_4 = \text{H}$, $x = 6$, $y = 5$, $z = 6$.

Numa outra forma de realização, o poliéter de fórmula geral (I) tem R e $R_2 = n\text{-C}_4\text{H}_9$, $R_3 = \text{CH}_3$, $R_1 = \text{CH}_3$, $R_4 = \text{H}$, $x = 6$, $y = 4$, $z = 6$.

Numa outra forma de realização, o composto de fórmula geral (I) tem $R = R_2 = R_4 = \text{H}$, $R_1 = R_3 = n\text{-C}_4\text{H}_9$, $x = 5$, $y = 4$, $z = 5$.

Para as propriedades finais do produto de fórmula geral (I), a razão $(x+z)/y$,

que determina a solubilidade em óleo do copolímero de fórmula geral (I), é determinante.

Prepara-se os compostos de acordo com a presente invenção mediante três fases de polimerização aniônica. A molécula de iniciador, que deve conter pelo menos um átomo de hidrogénio apropriado para ser alcoxilado, pode ser um álcool, um tiol ou uma amina. Os catalisadores básicos utilizados na polimerização de cada sequência compreendem hidróxido de sódio, hidróxido de potássio, carbonato de estrôncio, de preferência hidróxido de potássio.

Quando, por exemplo, se pretende preparar um composto de fórmula geral (I), ligam-se x moles de epóxido de fórmula geral $(CH_2-CHR_1) = O$, y moles de epóxido de fórmula geral $(CH_2-CHR_2) = O$ e, finalmente z moles de epóxido de fórmula geral $(CH_2-CHR_3) = O$ à molécula de iniciador. Como alternativa, é possível fazer reagir um poliglicol com dois grupos $-OH$ terminais com um ou mais epóxidos de alquilo, ainda na presença de catalisadores básicos. Neste caso, o poliglicol inicial actua como iniciador e o poliéter tri-sequenciado final conterà, como sequência interna, o poliglicol inicial.

No final da reacção com os epóxidos, inactiva-se a reacção mediante adição de água, de preferência sob a forma de acetato de sódio tri-hidratado.

O poliéter de acordo com a presente invenção tem um peso molecular compreendido entre 600 e 4000 dalton, de preferência entre 800 e 2000 dalton.

Este novo grupo de poliéteres é caracterizado por uma elevada compatibilidade e miscibilidade com óleos minerais, uma baixa de capacidade de absorção de água, elevados índices de viscosidade, a possibilidade de modificar a viscosidade a 40 e 100°C por alteração da razão das três sequências de óxido de

polialquileno, excelentes características lubrificantes e anti-desgaste.

Um outro objecto da presente invenção diz, por consequência, respeito à utilização do composto de fórmula geral (I) como óleo lubrificante para trens de engrenagens industriais, engrenagens para diferenciais e óleo para motores a dois tempos.

O composto de fórmula geral (I) pode também ser utilizado como um componente para formulações de óleos lubrificantes parcial ou totalmente sintéticos para motores a 4 tempos. Estas últimas formulações, que podem também conter outros aditivos normalmente utilizados em óleos lubrificantes (por exemplo antioxidantes, dispersantes, detergentes), compreendem entre 5 e 50% do poliéter de fórmula geral (I), entre 25 e 80% de bases lubrificantes sintéticas e entre 15 e 25% de aditivos.

Os seguintes exemplos experimentais proporcionam uma melhor ilustração da presente invenção.

EXEMPLO 1 – Preparação do composto de fórmula geral (I) na qual R e R_2 = butilo, $R_1 = R_3$ = metilo, R_4 = hidrogénio, $x = 6$, $y = 5$, $z = 6$.

Realiza-se a reacção num reactor de 1 litro resistente à pressão equipado com um agitador magnético de arrastamento e com uma entrada para os epóxidos e uma outra para o azoto para as lavagens, um termómetro, um manómetro e uma válvula de segurança. Introduce-se no reactor 54,9 g (0,49 mole) de butilato de potássio, previamente sintetizado a partir de butanol e de hidróxido de potássio. Leva-se o reactor lavado com azoto a cerca de 90°C e subsequentemente adiciona-se, durante um intervalo de tempo igual a 60 minutos, 165 g (2,84 moles) de óxido de propileno. No final da adição, deixa-se o reactor à temperatura de 130°C durante 1 hora.

Introduz-se então no reactor aquecido a 150°C durante um intervalo de tempo de 1 hora 240 g (2,4 moles) de óxido de hexeno. Deixa-se reagir a mistura durante 1 hora e finalmente adiciona-se, no decurso de um intervalo de tempo de uma hora, 165 g de óxido de propileno. No final da terceira adição deixa-se o reactor à temperatura de 150°C durante mais uma hora.

Arrefece-se o reactor a cerca de 70°C e descarrega-se subsequentemente o oligómero sob a forma de um sal de potássio e trata-se com 38 g (0,28 mole) de acetato de sódio tri-hidratado. Deixa-se a mistura sob agitação durante 12 horas a cerca de 40°C. Isola-se então o oligómero sob a forma de um álcool mediante filtração numa membrana porosa. O rendimento da reacção foi de 98,1%.

O peso molecular do oligómero é igual a 1272 e a polidispersibilidade é igual a 1,17. A percentagem dos dois componentes no oligómero final é igual a 54,7% do óxido de propileno e 39,4% de óxido de hexeno.

O oligómero foi então caracterizado a partir tanto do ponto de vista reológico como tribológico. Os resultados encontram-se representados no quadro 1, que indica, para fins comparativos, as características dos dois poliglicóis comerciais, um, denominado NS9, que consiste em cerca de 85% em peso de óxido de polipropileno e os restantes 15% de óxido de polietileno, o outro, denominado SYN OA 60, que consiste num óxido de polibutileno.

QUADRO 1

Características	Ex. 1	NS9	SYN OA 60
Visc. 100°C, cSt	7,66	11,21	9,3
Visc. 40°C, cSt	43,08	57,19	57,6
Índice de viscosidade	147	193	143
4 Esferas de Desgaste; Diâmetro de desgaste, mm	0,35	0,59	0,71
Almen-Wieland;	2050	600	600
Tensão de tracção Ult., kg			
SRV;	0,1025	0,1074	0,1095
Coefficiente de Atrito			

A partir dos resultados do quadro 1, pode ver-se que o produto do exemplo 1 de acordo com a presente invenção tem melhores características tribológicas do que as dos poliéteres comerciais. Isto prova a capacidade de aplicação do produto do exemplo 1 como lubrificante para trens de engrenagens industriais, engrenagens para diferenciais e óleo para motores a 2 tempos.

Com respeito às medições do quadro 1, realizou-se a viscosidade cinemática à temperatura de 40°C de acordo com ASTM D445; a viscosidade cinemática à temperatura de 100°C de acordo com ASTM D445; o índice de viscosidade de acordo com ASTM D2270; o ensaio das 4 esferas de desgaste de acordo com ASTM D4172; o SRV de acordo com DIN 51834.

Além disso, o copolímero do exemplo 1 apresenta uma miscibilidade completa com óleos minerais em todas as proporções.

Ensaçou-se igualmente o copolímero tri-sequenciado do exemplo 1 em uma formulação "completamente sintética". Preparou-se a formulação (SYN/P), que consiste em 65% em peso de PAO (polialfaolefinas), 15% em peso do produto anterior do exemplo 1 e 20% de aditivos. Para fins comparativos, preparou-se uma formulação (SYN/E), que consiste em 65% em peso de PAO, 15% de ésteres de

ácidos gordos com álcool neopentílico e 20% de aditivos.

A medição das 4 esferas de desgaste da mistura SYN/P (diâmetro de desgaste em mm) proporcionou um valor de 0,49 contra um valor de 0,51 para a mistura comparativa SYN/E.

A medição de SRV (coeficiente de atrito) da mistura SYN/P proporcionou um valor igual a 0,141 contra o valor de 0,122 para a mistura de SYN/E.

Os valores relativos à formulação “completamente sintética” mostram que a composição de acordo com a presente invenção tem comportamentos tribológicos comparáveis com os de um óleo comercial com comportamento SH e pode, por consequência, ser utilizada como um óleo lubrificante para motores a 4 tempos.

EXEMPLO 2 – Preparação do composto de fórmula geral (I) na qual R e R_2 = butilo, $R_1 = R_3$ = metilo, R_4 = hidrogénio, $x = 6$, $y = 4$, $z = 6$.

Realizou-se a reacção num reactor de 50 ml resistente à pressão, equipado com um agitador magnético de arrastamento e com uma entrada para os epóxidos e uma para o azoto para as lavagens, um termómetro, um manómetro e uma válvula de segurança. Utilizando o mesmo processo que se descreveu no exemplo 1, fizeram-se reagir 2,8 g (25 mmoles) de butilato de potássio com 8,7 g (150 mmoles) de óxido de propileno, e a seguir com 10 g (100 mmoles) de óxido de hexeno e, finalmente, com 8,7 g (150 mmoles) de óxido de propileno. Tratou-se o oligómero sob a forma de um sal de potássio com 1,2 g (8,8 mmoles) de acetato de sódio tri-hidratado e isolou-se finalmente mediante filtração sob forma alcoólica. O rendimento da reacção foi de 96%.

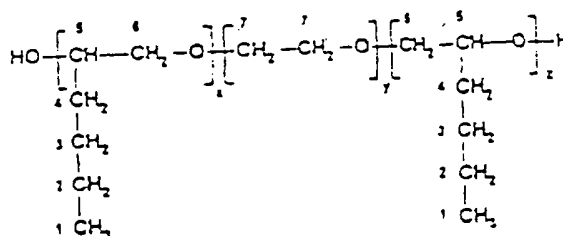
O peso molecular do oligómero é igual a 1172 e a polidispersibilidade é igual a 1,17.

238

mmoles) de óxido de hexeno. Tratou-se o oligómero sob a forma de sal de potássio com 1,2 g (8,8 mmoles) de acetato de sódio tri-hidratado e isolou-se finalmente mediante filtração sob forma alcoólica. O rendimento da reacção foi igual a 97,5%.

O peso molecular do oligómero é igual a 1177 e a polidispersibilidade é igual a 1,09.

A distribuição dos diferentes protões (via RMN¹H e RMN¹³C) dos poliéteres tri-sequenciados dos exemplos 1 e 3, encontra-se indicada a seguir.



RMN-¹H (CD₂Cl₂): δ = 0,8(t, C¹), 1,1-1,4(m, C²+C³+C⁴),

3,2-3,4(m, C⁶+C⁷), 3,5-3,6(m, C⁵)ppm

RMN-¹³C (CD₂Cl₂): δ = 13,8(C¹), 22,6(C²), 27,5(C³), 31(C⁴),

70-75(C⁶+C⁷), 78-80(C⁵)ppm

Caracterizou-se então o oligómero tanto do ponto de vista reológico como tribológico com os resultados seguintes:

Viscosidade cinemática a 40°C (ASTM D445) = 70,79 cSt

Viscosidade cinemática a 100°C (ASTM D445) = 9,56 cSt

Índice de viscosidade (ASTM D2270) = 114

Miscibilidade completa com óleos minerais em todas as proporções.

Lisboa, 3 de Novembro de 2000

O Agente Oficial da Propriedade Industrial

Jose de Santaio
JOSÉ DE SANTAIO
A.O.P.I.

Rua do Salitre, 195, 4/e-Drt.
1250 LISBOA

Reivindicações

1. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de fórmula geral (I)



na qual:

- o símbolo R representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou alquilarilo;
- o símbolo X representa um átomo de oxigénio ou de enxofre;
- os símbolos R_1 , R_2 e R_3 , iguais ou diferentes, representam, cada um, um átomo de hidrogénio, um grupo CH_3 ou radicais alquilo C_2-C_{10} ;
- o símbolo R_4 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou acilo;
- os símbolos x, y e z, todos diferentes de zero, representam cada um, o número de unidades de éter de cada sequência, são números inteiros que têm valores tais que o peso molecular do composto de fórmula geral (I) se encontra compreendido entre 600 e 4000 e, além disso, $(x+z)/y$ encontra-se compreendida entre 1,5 e 5,0; com a condição de:
 - a) ou os símbolos R_1 e R_3 representam, cada um, um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 , caso esse em que o símbolo R_2 representa radicais alquilo em C_2 a C_{10} ,
 - b) ou os símbolos R_1 e R_3 representam radicais alquilo em C_2-C_{10} , caso esse em que o símbolo R_2 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 ,
 como aditivos anti-desgaste em óleos lubrificantes.

2. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, caracterizada de o facto de a razão $(x+z)/y$ se encontrar compreendida entre 2,2 e 3,2.

3. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a

reivindicação 1, caracterizada de o facto de terem um peso molecular compreendido entre 800 e 2000 dalton.

4. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, em que $R = R_2 = n\text{-C}_4\text{H}_9$, $R_1 = R_3 = \text{CH}_3$, $R_4 = \text{H}$, $x = 6$, $y = 5$, $z = 6$.

5. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, em que $R = R_2 = \text{butilo}$, $R_1 = R_3 = \text{metilo}$, $R_4 = \text{H}$, $x = 6$, $y = 5$, $z = 6$.

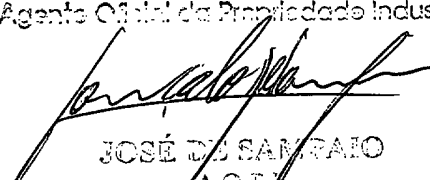
6. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, em que $R = R_2 = R_4 = \text{H}$, $R_1 = R_3 = \text{butilo}$, $x = 5$, $y = 4$, $z = 5$.

7. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, para trens de engrenagens industriais, engrenagens para diferenciais e óleo para motores a 2 tempos.

8. Utilização de copoliéteres tri-sequenciados de acordo com a reivindicação 1, em óleos lubrificantes para motores a 4 tempos.

Lisboa, 3 de Novembro de 2000

128 O Agente Oficial da Propriedade Industrial



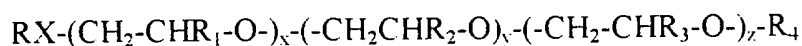
JOSÉ DE SAMPAIO
A.O.P.
Rua do Salfre, 196, t/c-Drt.
1250 LISBOA

1 258

Resumo

“Copolímeros sequenciados de polioxiálquileno, sua preparação e sua utilização como lubrificantes”

Copoliéteres sequenciados de fórmula geral (I):

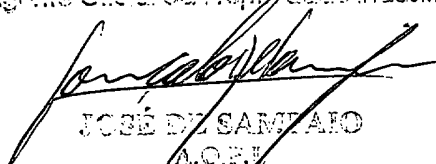


na qual:

- o símbolo R representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou alquilarilo;
- o símbolo X representa um átomo de oxigénio, de enxofre e de azoto;
- os símbolos R_1 , R_2 e R_3 , representam, cada um, um átomo de hidrogénio, um grupo CH_3 ou um radical alquilo C_2-C_{10} ;
- o símbolo R_4 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo alquilo ou acilo;
- os símbolos x, y e z, representam o número de unidades etéreas e constituem números inteiros que têm valores tais que o peso molecular do composto de fórmula geral (I) se encontra compreendido entre 600 e 4000 e, além disso, $(x+z)/y$ encontra-se compreendida entre 1,5 e 5,0, com a condição de:
 - a) ou os símbolos R_1 e R_3 representam, cada um, um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 , caso esse em que o símbolo R_2 representa um radical alquilo C_2 a C_{10} ,
 - b) ou os símbolos R_1 e R_3 representam, cada um, um radical alquilo C_2-C_{10} , caso esse em que o símbolo R_2 representa um átomo de hidrogénio ou um grupo CH_3 .

Lisboa, 3 de Novembro de 2000

 O Agente Oficial da Propriedade Industrial



JOSÉ DE SANT'ANA
A.O.P.I.
Rua do Salitre, 194, 1º e-Drt.
1250 LISBOA