

(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2009-522421

(P2009-522421A)

(43) 公表日 平成21年6月11日(2009.6.11)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
C 10 L 1/02 (2006.01)	C 10 L 1/02	4 H O 1 3
C 10 L 1/185 (2006.01)	C 10 L 1/185	
C 10 L 1/222 (2006.01)	C 10 L 1/222	
C 10 L 1/22 (2006.01)	C 10 L 1/22	
C 10 L 1/183 (2006.01)	C 10 L 1/183	
		審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 40 頁)
(21) 出願番号	特願2008-548982 (P2008-548982)	(71) 出願人 396023948
(86) (22) 出願日	平成18年12月22日 (2006.12.22)	チバ ホールディング インコーポレーテッド
(85) 翻訳文提出日	平成20年6月27日 (2008.6.27)	C i b a H o l d i n g I n c .
(86) 国際出願番号	PCT/EP2006/070139	スイス国, 4057 バーゼル, クリベツ
(87) 国際公開番号	W02007/077165	クシュトラーセ 141
(87) 国際公開日	平成19年7月12日 (2007.7.12)	(74) 代理人 100068618
(31) 優先権主張番号	60/756,090	弁理士 粟 経夫
(32) 優先日	平成18年1月4日 (2006.1.4)	(74) 代理人 100104145
(33) 優先権主張国	米国 (US)	弁理士 宮崎 嘉夫
		(74) 代理人 100104385
		弁理士 加藤 勉
		(74) 代理人 100156889
		弁理士 小山 京子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 安定化されたバイオディーゼル燃料組成物

(57) 【要約】

【課題】 安定化されたバイオディーゼル燃料組成物を提供すること。

【解決手段】

開示されるのは、安定化されたバイオディーゼル燃料組成物であつて、該組成物はバイオディーゼル燃料、例えば菜種油又は大豆油の脂肪酸のメチルエステル、及び3-アリールベンゾフラノン及びヒンダードアミン光安定剤からなる群から選択される1種以上の添加剤、及び所望により、1種以上のヒンダードフェノール系抗酸化剤を含む。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

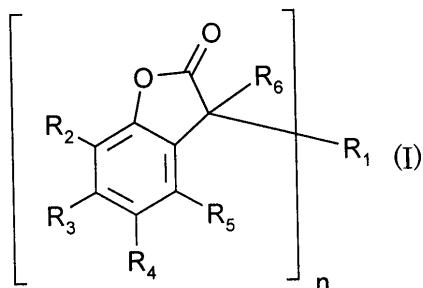
【請求項 1】

熱、光及び酸素の有害効果に対して安定化されたバイオディーゼル燃料組成物であって、バイオディーゼル燃料及び効果的に安定化する量の3-アリールベンゾフラノン安定剤及びヒンダードアミン光安定剤からなる群から選択される1種以上の添加剤及び所望により、ヒンダードフェノール系抗酸化剤類からなる群から選択される1種以上の添加剤を含む組成物。

【請求項 2】

式1

【化1】



10

20

[式中、

nが1を表す場合、

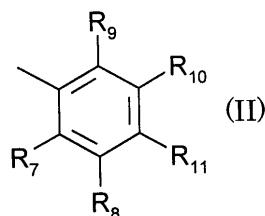
R₁はナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、5, 6, 7, 8-テトラヒドロ-2-ナフチル基、5, 6, 7, 8-テトラヒドロ-1-ナフチル基、チエニル基、ベンゾ[b]チエニル基、ナフト[2, 3-b]チエニル基、チアントレニル基、ジベンゾフリル基、クロメニル基、キサンテニル基、フェノキサチイニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、インドリジニル基、イソインドリル基、インドリル基、インダゾリル基、ブリニル基、キノリジニル基、イソキノリル基、キノリル基、フタルアジニル基、ナフチリジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、ブテリジニル基、カルバゾリル基、(-カルボリニル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、ペリミジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、イソチアゾリル基、フェノチアジニル基、イソキサゾリル基、フラザニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基もしくはフェノキサジニル基、又は炭素原子数1ないし4のアルキル-、炭素原子数1ないし4のアルコキシ-、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ-、ヒドロキシル-、ハロ-、アミノ-、炭素原子数1ないし4のアルキルアミノ-、フェニルアミノ-もしくはジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノによって置換されたあらゆるこれらの炭素環又は複素環の基を表し、

又はR₁は式II

30

30

【化2】



40

で表される基を表し、及び

nが2を表す場合、

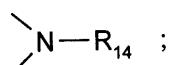
50

R₁は未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル-もしくはヒドロキシ-置換フェニレン基又はナフチレン基を表し、又は-R₁₂-X-R₁₃-を表し、

R₂、R₃、R₄及びR₅は、互いに独立して、水素原子、塩素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数1ないし25のアルキル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基、未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェニル基；未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基；炭素原子数1ないし18のアルコキシ基、炭素原子数1ないし18のアルキルチオ基、炭素原子数1ないし4のアルキルアミノ基、ジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノ基、炭素原子数1ないし25のアルカノイルオキシ基、炭素原子数1ないし25のアルカノイルアミノ基、炭素原子数3ないし25のアルケノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

10

【化3】

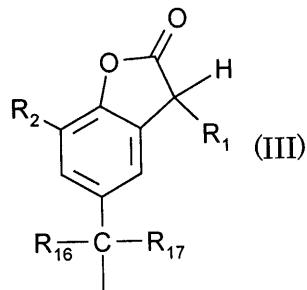


によって中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイルオキシ基；炭素原子数6ないし9のシクロアルキルカルボニルオキシ基、ベンゾイルオキシ基又は炭素原子数1ないし12のアルキル置換ベンゾイルオキシ基を表し、又は選択的に、基R₂及びR₃又は基R₃及びR₄又は基R₄及びR₅は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゾ環(benzo ring)を形成する場合、R₄は付加的に-(CH₂)_p-COR₁₅又は-(CH₂)_qOHを表し、又はR₃、R₅及びR₆が水素原子を表す場合、R₄は付加的に式II

20

I

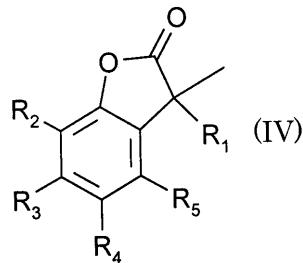
【化4】



30

(式中、R₁はn=1に対して上記で定義される通りである。)で表される基を表し、R₆は水素原子又は式IV

【化5】

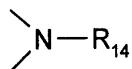


40

(式中、R₄は式IIIで表される基以外を表し、及びR₁はn=1に対して上記で定義される通りである。)で表される基を表し、

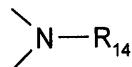
R₇、R₈、R₉、R₁₀及びR₁₁は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、炭素原子数1ないし25のアルキル基、酸素原子、硫黄原子又は

【化6】



によって中断された炭素原子数2ないし25のアルキル基；炭素原子数1ないし25のアルコキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

【化7】

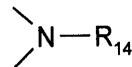


10

によって中断される炭素原子数2ないし25のアルコキシ基；炭素原子数1ないし25のアルキルチオ基、炭素原子数3ないし25のアルケニル基、炭素原子数3ないし25のアルケニルオキシ基、炭素原子数3ないし25のアルキニル基、炭素原子数3ないし25のアルキニルオキシ基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルコキシ基、未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェニル基；未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェノキシ基；未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基；未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキルアミノ基、ジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノ基、炭素原子数1ないし25のアルカノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

20

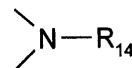
【化8】



によって中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイル基；炭素原子数1ないし25のアルカノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

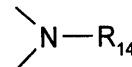
30

【化9】



によって中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイルオキシ基；炭素原子数1ないし25のアルカノイルアミノ基、炭素原子数3ないし25のアルケノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

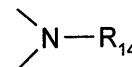
【化10】



40

によって中断された炭素原子数3ないし25のアルケノイル基；炭素原子数3ないし25のアルケノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

【化11】

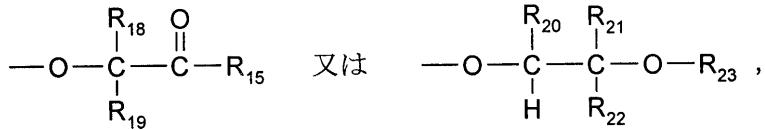


によって中断された炭素原子数3ないし25のアルケノイルオキシ基；炭素原子数6ない

50

し 9 のシクロアルキルカルボニル基、炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニルオキシ基、ベンゾイル基又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイル基；ベンゾイルオキシ基又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイルオキシ基；

【化 1 2】



10

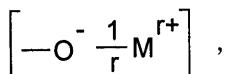
を表し、あるいは又、式 I I 中、基 R_7 及び R_8 又は基 R_8 及び R_{11} は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゾ (benzo) 環を形成し、

R_{12} 及び R_{13} は、互いに独立して未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニレン基もしくはナフチレン基を表し、

R_{14} は水素原子又は炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基を表し、

R_{15} はヒドロキシル基、

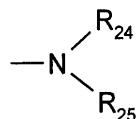
【化 1 3】



20

炭素原子数 1 ないし 18 のアルコキシ基又は

【化 1 4】



を表し、

30

R_{16} 及び R_{17} は、互いに独立して、水素原子、 C_F_3 、炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基又はフェニル基を表し、又は R_{16} 及び R_{17} は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の又は 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキリデン環を形成し、

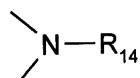
R_{18} 及び R_{19} は、互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基又はフェニル基を表し、

$R_{2,0}$ は、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

R_{21} は、水素原子、未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニル基；炭素原子数 1 ないし 2 5 のアルキル基、酸素原子、硫黄原子又は

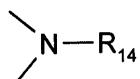
【化 1 5 】

40



によって中断された炭素原子数 2 ないし 2 5 のアルキル基；未置換の又はフェニル基上で 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基；未置換の又はフェニル基上で 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された及び酸素原子、硫黄原子又は

【化16】

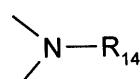


によって中断された炭素原子数7ないし25のフェニルアルキル基を表し、又は、選択的に、基R₂₀及びR₂₁は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の、又は1ないし3個の炭素原子数1ないし4のアルキル基によって置換された炭素原子数5ないし12のシクロアルキレン環を形成し、
10

R₂₂は、水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し、

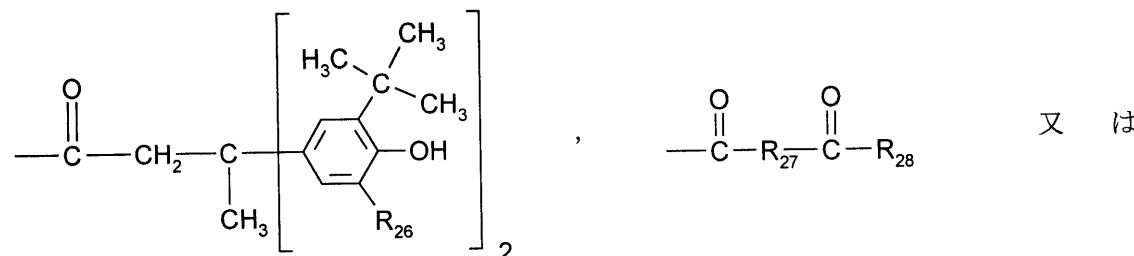
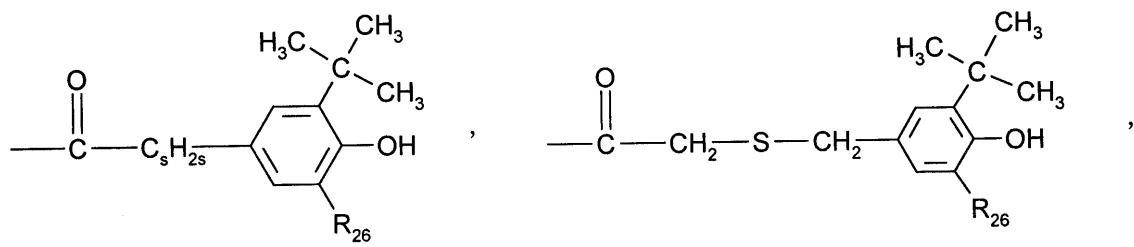
R₂₃は、水素原子、炭素原子数1ないし25のアルカノイル基、炭素原子数3ないし25のアルケノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

【化17】



によって中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイル基；ジ（炭素原子数1ないし6のアルキル）ホスホネート基によって置換された炭素原子数2ないし25のアルカノイル基；炭素原子数6ないし9のシクロアルキルカルボニル基、チエノイル基、フロイル基、ベンゾイル基又は炭素原子数1ないし12のアルキル置換ベンゾイル基；
20

【化18】



を表し、

R₂₄及びR₂₅は、互いに独立して、水素原子又は炭素原子数1ないし18のアルキル基を表し、

R₂₆は、水素原子又は炭素原子数1ないし8のアルキル基を表し、

R₂₇は、直接結合、炭素原子数1ないし18のアルキレン基、酸素原子、硫黄原子又は

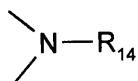
10

20

30

40

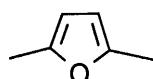
【化19】



によって中断された炭素原子数2ないし18のアルキレン基；炭素原子数2ないし18のアルケニレン基、炭素原子数2ないし20のアルキリデン基、炭素原子数7ないし20のフェニルアルキリデン基、炭素原子数5ないし8のシクロアルキリレン基、炭素原子数7ないし8のビシクロアルキレン基、未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェニレン基、又は

10

【化20】



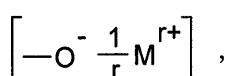
又は

を表し、

R28は、ヒドロキシル基、

【化21】

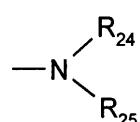
20



又は炭素原子数1ないし18のアルコキシ基又は

【化22】

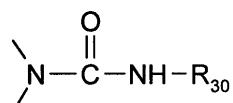
30



を表し、

R29は、酸素原子、-NH-又は

【化23】



を表し、

40

R30は、炭素原子数1ないし18のアルキル基又はフェニル基を表し、

R31は、水素原子又は炭素原子数1ないし18のアルキル基を表し、

Mは、r価の金属カチオンを表し、

Xは、直接結合、酸素原子、硫黄原子又は-NR31-を表し、

nは1又は2を表し、

pは0、1又は2を表し、

qは、1、2、3、4、5又は6を表し、

rは、1、2又は3を表し、及び

sは、0、1又は2を表す。】

で表される1種以上の3-アリールベンゾフラノン安定剤を含む請求項1に記載の組成物

50

。

【請求項 3】

前記 3 - アリールベンゾフラノンが式 I (式中、 $n = 1$ である場合、 R_1 は未置換の、もしくは炭素原子数 1 ないし 18 のアルキルチオ基又はジ (炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル) アミノ基によりパラ位において置換されたフェニル基； 1 ないし 5 個のアルキル置換基において全部で最高 18 個の炭素原子を一緒に含有するモノ - ないし ペンタ置換アルキルフェニル基；各々が未置換の、又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルコキシ基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルチオ基、ヒドロキシ基又はアミノ基により置換されたナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フェナントリル基、アントリル基、フルオレニル基、カルバゾイル基、チエニル基、ピロリル基、フェノチアジニル基又は 5 , 6 , 7 , 8 - テトラヒドロナフチル基を表す。) で表される請求項 2 に記載の組成物。

10

【請求項 4】

前記 3 - アリールベンゾフラノンが式 I (式中、 $n = 2$ である場合、 R_1 は - R_{12} - X - R_{13} - を表し、 R_{12} 及び R_{13} はフェニレン基を表し、 X は酸素原子又は - $N R_{31}$ - を表し、及び R_{31} は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表す。) で表される請求項 2 に記載の組成物。

【請求項 5】

前記 3 - アリールベンゾフラノンが、 3 - [4 - (2 - アセトキシエトキシ) フェニル] - 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - ベンゾフラノ - 2 - オン； 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - [4 - (2 - ステアロイルオキシエトキシ) フェニル] ベンゾフラノ - 2 - オン； 3 , 3 ' - ビス [5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - (4 - [2 - ヒドロキシエトキシ] フェニル) ベンゾフラノ - 2 - オン] ； 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - (4 - エトキシフェニル) ベンゾフラノ - 2 - オン； 3 - (4 - アセトキシ - 3 , 5 - ジメチルフェニル) - 5 , 7 - ジ - 第三ブチルベンゾフラノ - 2 - オン； 3 - (3 , 5 - ジメチル - 4 - ピバロイルオキシ - フェニル) - 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - ベンゾフラノ - 2 - オン； 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - ベンゾフラノ - 2 - オン； 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - (3 , 4 - ジメチルフェニル) - ベンゾフラノ - 2 - オン及び 5 , 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - (2 , 3 - ジメチルフェニル) ベンゾフラノ - 2 - オンからなる群から選択される請求項 2 に記載の組成物。

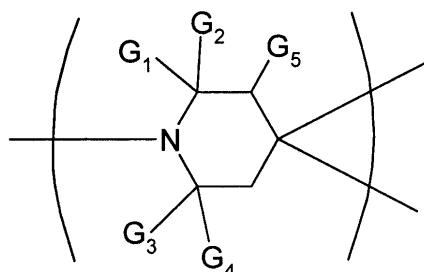
20

【請求項 6】

式

【化 2 4】

30



40

(式中、 G_1 、 G_2 、 G_3 、 G_4 及び G_5 は、独立して、 1 ないし 8 個の炭素原子のアルキル基を表すか、又は G_1 及び G_2 もしくは G_3 及び G_4 は一緒にペニタメチレン基を表す。) で表される少なくとも 1 部分を含有する 1 種以上のヒンダードアミン光安定剤を含む請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 7】

前記ヒンダードアミンが、 N - H 、 N - メチル、 N - メトキシ、 N - プロポキシ、 N - オクチルオキシ、 N - シクロヘキシルオキシ、 N - アシルオキシ及び N - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) 置換アミンである請求項 6 に記載の組成物。

【請求項 8】

50

1種以上のヒンダードアミン光安定剤及び1種以上のヒンダードフェノール系抗酸化剤を含む請求項1に記載の組成物。

【請求項9】

前記ヒンダードフェノール系抗酸化剤が、ブチル化ヒドロキシトルエン、ブチル化ヒドロキシアニソール、トコフェロール、ベンジルホスホネート、- (3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、- (5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、- (3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル及び3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸と一価又は多価アルコールとのエステルからなる群から選択される、請求項8に記載の組成物。

10

【請求項10】

熱、光及び酸素の有害効果に対するバイオディーゼル燃料の安定化のための方法であって、効果的に安定化する量の3-アリールベンゾフラノン安定剤及びヒンダードアミン光安定剤からなる群から選択される1種以上の添加剤及び所望により、ヒンダードフェノール系抗酸化剤類からなる群から選択される1種以上の添加剤をバイオディーゼル燃料に配合することを含む方法。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、3-アリールベンゾフラノン安定剤及び立体障害性アミン光安定剤からなる群から選択される安定剤の有効量、又は3-アリールベンゾフラノン安定剤及びヒンダードフェノール系抗酸化剤からなる群から選択される光安定剤との組合せにおける立体障害性アミン光安定剤の有効量によって、熱、光及び酸素の有害効果に対して安定化されたバイオディーゼル燃料（又はバイオ燃料）組成物を目的としている。

【背景技術】

【0002】

特許文献1は、脂肪、油及び食物の安定化を教示する。該安定剤は、3-アリールベンゾフラノン、長鎖N,N-ジアルキルヒドロキシルアミン、置換ヒドロキシルアミン、ニトロン及びアミンオキシドからなる群から選択される。

30

特許文献2は、バイオディーゼル燃料の貯蔵及び輸送のための物品を製造するために立体障害性アミンによって又はN-ヒドロキシもしくはN-オキシル誘導体によって安定化されたエチレンホモ-及びコポリマーを教示する。

特許文献3は、バイオディーゼル燃料と直接接触する部分で使用されるヒンダードアミン光安定剤を含有するポリオキシメチレン樹脂を開示する。

特許文献4は、3-アリール-ベンゾフラノンのための製造方法を教示する。燃料添加剤はここで開示される。

特許文献5、特許文献6及び特許文献7は、ボイラの青炎バーナー又は最適化された黄炎バーナーにおける使用のための低腐食性燃料組成物を開示する。

40

【特許文献1】国際公開第2004/055141号パンフレット

【特許文献2】米国特許第6,548,580号明細書

【特許文献3】特開2004-059720号公報

【特許文献4】欧州特許第1170296号明細書

【特許文献5】欧州特許第1486555号明細書

【特許文献6】欧州特許第1484387号明細書

【特許文献7】欧州特許第1484388号明細書

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

50

【0003】

バイオディーゼル燃料は、再生可能な燃料源として重要性を増しつつある。例えば燃料自体として用いられ得、又はディーゼル燃料との組合せで使用し得る。

【課題を解決するための手段】

【0004】

熱、光及び酸素の有害効果に対して安定化されたバイオディーゼル燃料組成物が開示され、該組成物は

バイオディーゼル燃料及び

効果的に安定化する量の3-アリールベンゾフラノン安定剤及びヒンダードアミン光安定剤からなる群から選択される1種以上の添加剤及び

所望により、ヒンダードフェノール系抗酸化剤類からなる群から選択される1種以上の添加剤

を含む。

また、熱、光及び酸素の有害効果に対するバイオディーゼル燃料の安定化のための方法が開示され、該方法は効果的に安定化する量の3-アリールベンゾフラノン安定剤及びヒンダードアミン光安定剤からなる群から選択される1種以上の添加剤、及び所望により、ヒンダードフェノール系抗酸化剤類からなる群から選択される1種以上の添加剤をバイオディーゼル燃料に配合することを含む。

【発明を実施するための最良の形態】

【0005】

バイオディーゼル燃料は、再生可能な資源であり及び重要性を増しつつある。

バイオディーゼル燃料は、例えば、トリグリセリドと低級アルコール、例えばメタノール又はエタノールとのエステル交換によって製造される、低級アルキル脂肪酸エステルを含む。典型的なバイオディーゼル燃料は、菜種油の又は大豆油の脂肪酸メチルエステルである。バイオディーゼル燃料源は、植物及び動物源を含む。再利用調理油はバイオディーゼル燃料源であり得る。

【0006】

バイオディーゼル燃料及びその製造は、例えば米国特許第5,578,090号明細書、米国特許第5,713,965号明細書、米国特許第5,891,203号明細書、米国特許第6,015,440号明細書、米国特許第6,174,501号明細書及び米国特許第6,398,707号明細書に開示される。

【0007】

本発明のバイオディーゼル燃料は、例えば植物性又は油性種子由来の、12ないし22個の炭素原子の飽和及び不飽和直鎖脂肪酸の混合物の低級アルキルエステルを含む。用語“低級アルキルエステル”は、炭素原子数1ないし5のエステル、特にメチル及びエチルエステルを意味する。飽和、単不飽和及びポリ不飽和及びポリ不飽和炭素原子数16ないし22の脂肪酸のメチルエステル混合物は、“バイオディーゼル”又は“ナタネメチルエステル”として既知であるものである。

【0008】

本発明に従うバイオディーゼル燃料は、100%低級アルキル脂肪酸エステルであり、又は低級アルキル脂肪酸エステルとディーゼル燃料との組み合わせである。バイオディーゼル燃料は、例えば脂肪酸エステル約5ないし約95質量%及びディーゼル燃料約95ないし約5質量%である。例えば、バイオディーゼル燃料は、脂肪酸エステル約10ないし約90質量%及びディーゼル燃料約90ないし約10質量%である。例として、バイオディーゼル燃料は、脂肪酸エステル約25ないし約75質量%及びディーゼル燃料約75ないし25質量%である。

【0009】

本発明の3-アリールベンゾフラノン抗酸化剤は、例えば米国特許第4,325,863号明細書；米国特許第4,388,244号明細書；米国特許第5,175,312号明細書；米国特許第5,252,643号明細書；米国特許第5,216,052号明細

10

20

30

40

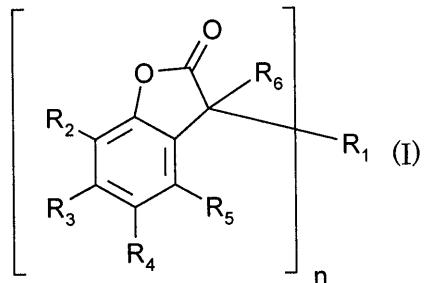
50

書；米国特許第5,369,159号明細書；米国特許第5,488,117号明細書；米国特許第5,356,966号明細書；米国特許第5,367,008号明細書；米国特許第5,428,162号明細書；米国特許第5,428,177号明細書及び米国特許第5,516,920に開示されるものである。

【0010】

特に、本発明において適する3-アリールベンゾフラノンは、式I

【化1】



10

[式中、

nが1を表す場合、

R₁はナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、5,6,7,8-テトラヒドロ-2-ナフチル基、5,6,7,8-テトラヒドロ-1-ナフチル基、チエニル基、ベンゾ[b]チエニル基、ナフト[2,3-b]チエニル基、チアントレニル基、ジベンゾフリル基、クロメニル基、キサンテニル基、フェノキサチイニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、インドリジニル基、イソインドリル基、インドリル基、インダゾリル基、ブリニル基、キノリジニル基、イソキノリル基、キノリル基、フタルアジニル基、ナフチリジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、ブテリジニル基、カルバゾリル基、(-カルボリニル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、ペリミジニル基、フェナントロリニル基、フェナジニル基、イソチアゾリル基、フェノチアジニル基、イソキサゾリル基、フラザニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基もしくはフェノキサジニル基、又は炭素原子数1ないし4のアルキル-、炭素原子数1ないし4のアルコキシ-、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ-、ヒドロキシル-、ハロ-、アミノ-、炭素原子数1ないし4のアルキルアミノ-、フェニルアミノ-もしくはジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノによって置換されたあらゆるこれらの炭素環又は複素環の基を表し、

又はR₁は式II

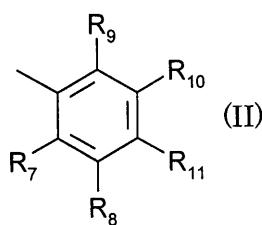
20

30

30

40

40



で表される基を表し、及び

nが2を表す場合、

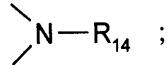
R₁は未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル-もしくはヒドロキシ-置換フェニル基又はナフチレン基を表し、又は-R₁₂-X-R₁₃-を表し、

R₂、R₃、R₄及びR₅は、互いに独立して、水素原子、塩素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数1ないし25のアルキル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基、未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェニル基；未置換の又は炭素原子数1ないし4のアルキル基、

50

し 4 のアルキル置換炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキル基；炭素原子数 1 ないし 18 のアルコキシ基、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキルチオ基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルアミノ基、ジ(炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル)アミノ基、炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイルオキシ基、炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイルアミノ基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

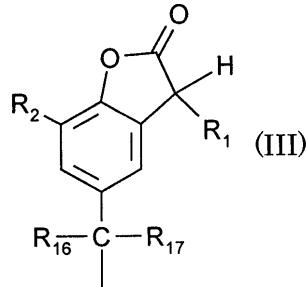
【化 3】



10

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルカノイルオキシ基；炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニルオキシ基、ベンゾイルオキシ基又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイルオキシ基を表し、又は選択的に、基 R₂ 及び R₃ 又は基 R₃ 及び R₄ 又は基 R₄ 及び R₅ は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゾ環 (benzoring) を形成する場合、R₄ は付加的に - (C H₂)_p - C O R₁₅ 又は - (C H₂)_q O H を表し、又は R₃、R₅ 及び R₆ が水素原子を表す場合、R₄ は付加的に式 I I I

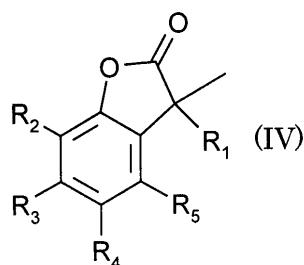
【化 4】



20

(式中、R₁ は n = 1 に対して上記で定義される通りである。) で表される基を表し、R₆ は水素原子又は式 I V

【化 5】



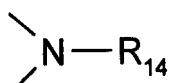
30

(ここで、R₄ は式 I I I で表される基以外を表し、及び R₁ は n = 1 に対して上記で定義される通りである。) で表される基を表し、

40

R₇、R₈、R₉、R₁₀ 及び R₁₁ は、互いに独立して水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、炭素原子数 1 ないし 25 のアルキル基、酸素原子、硫黄原子又は

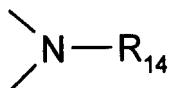
【化 6】



50

によって中断された炭素原子数 2 ないし 25 のアルキル基；炭素原子数 1 ないし 25 のアルコキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

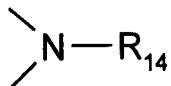
【化 7】



によって中断される炭素原子数 2 ないし 25 のアルコキシ基；炭素原子数 1 ないし 25 のアルキルチオ基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルケニル基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルケニルオキシ基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルキニル基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルキニルオキシ基、炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基、炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルコキシ基、未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニル基；未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェノキシ基；未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキル基；未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルコキシ基；炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルアミノ基、ジ（炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル）アミノ基、炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

10

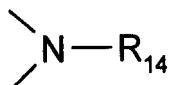
【化 8】



20

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルカノイル基；炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

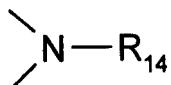
【化 9】



30

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルカノイルオキシ基；炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイルアミノ基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

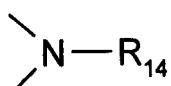
【化 10】



40

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイル基；炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイルオキシ基、酸素原子、硫黄原子又は

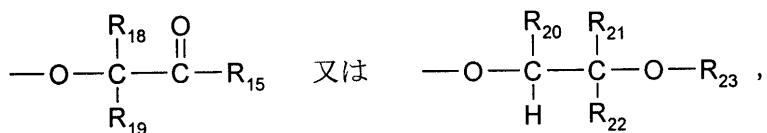
【化 11】



50

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイルオキシ基；炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニル、炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニルオキシ基、ベンゾイル基又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイル基；ベンゾ

イルオキシ基又は炭素原子数 1 ないし 1 2 のアルキル置換ベンゾイルオキシ基；
【化 1 2】



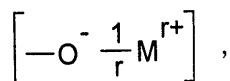
を表し、又は選択的に、式 I I 中、基 R₇ 及び R₈ 又は基 R₈ 及び R₁₁ は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゼン環を形成し、
10

R₁₂ 及び R₁₃ は互いに独立して未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニレン基もしくはナフチレン基を表し、

R₁₄ は水素原子又は炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基を表し、

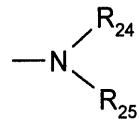
R₁₅ はヒドロキシリル基、

【化 1 3】



炭素原子数 1 ないし 1 8 のアルコキシ基又は
20

【化 1 4】



を表し、

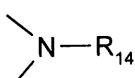
R₁₆ 及び R₁₇ は、互いに独立して、水素原子、C F₃、炭素原子数 1 ないし 1 2 のアルキル基又はフェニル基を表し、又は R₁₆ 及び R₁₇ は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の又は 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキリデン環を形成し、
30

R₁₈ 及び R₁₉ は、互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基又はフェニル基を表し、

R₂₀ は、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

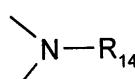
R₂₁ は、水素原子、未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニル基；炭素原子数 1 ないし 2 5 のアルキル基、酸素原子、硫黄原子又は

【化 1 5】



によって中断された炭素原子数 2 ないし 2 5 のアルキル基；未置換の又はフェニル基上で 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基；未置換の又はフェニル基上で 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された及び酸素原子、硫黄原子又は

【化 1 6】

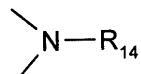


によって中断された炭素原子数 7 ないし 25 のフェニルアルキル基を表し、又は、選択的に、基 R_{20} 及び R_{21} は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の、又は 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された炭素原子数 5 ないし 12 のシクロアルキレン環を形成し、

R_{22} は、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

R_{23} は、水素原子、炭素原子数 1 ないし 25 のアルカノイル基、炭素原子数 3 ないし 25 のアルケノイル基、酸素原子、硫黄原子又は

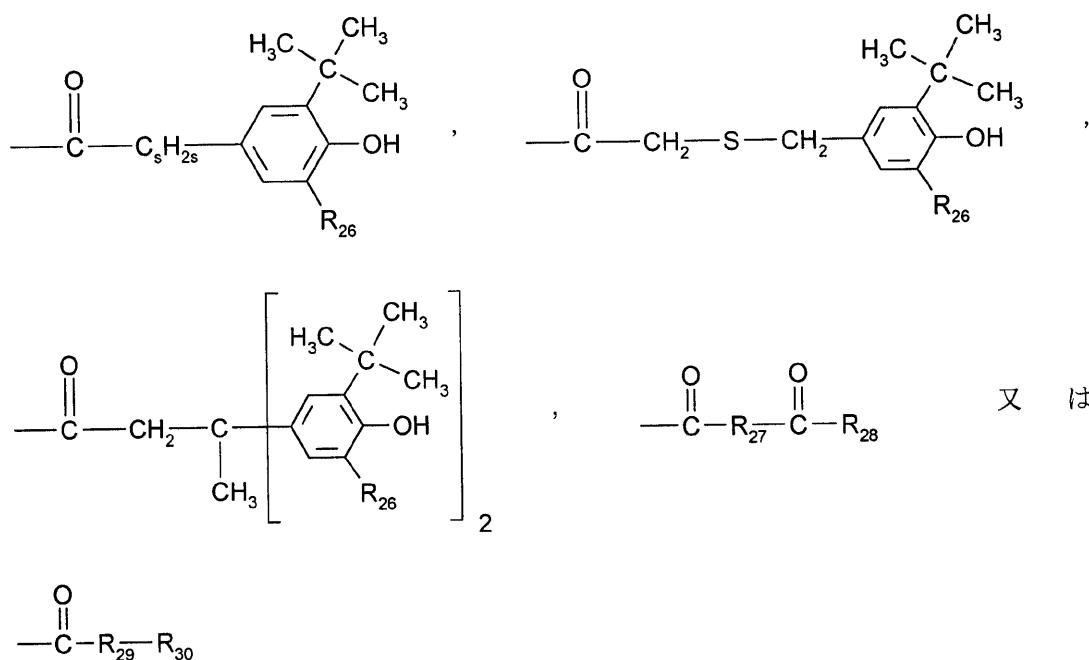
【化 17】



10

によって中断された炭素原子数 3 ないし 25 のアルカノイル基；ジ（炭素原子数 1 ないし 6 のアルキル）ホスホネート基によって置換された炭素原子数 2 ないし 25 のアルカノイル基；炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニル基、チエノイル基、フロイル基、ベンゾイル基又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイル基；

【化 18】



20

30

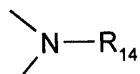
を表し、

R_{24} 及び R_{25} は、互いに独立して、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基を表し、

R_{26} は、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基を表し、

40

R_{27} は、直接結合、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキレン基、酸素原子、硫黄原子又は
【化 19】



によって中断された炭素原子数 2 ないし 18 のアルキレン基；炭素原子数 2 ないし 18 のアルケニレン基、炭素原子数 2 ないし 20 のアルキリデン基、炭素原子数 7 ないし 20 のフェニルアルキリデン基、炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキリレン基、炭素原子数 7

50

ないし 8 のビシクロアルキレン基、未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニレン基、又は

【化 2 0】

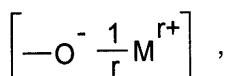


を表し、

R₂₈ は、ヒドロキシリル基、

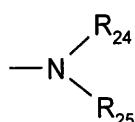
【化 2 1】

10



又は炭素原子数 1 ないし 18 のアルコキシ基又は

【化 2 2】

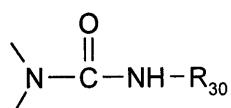


20

を表し、

R₂₉ は、酸素原子、-NH- 又は

【化 2 3】



30

を表し、

R₃₀ は、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基又はフェニル基を表し、

R₃₁ は、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基を表し、

M は、r 値の金属カチオンを表し、

X は、直接結合、酸素原子、硫黄原子又は -NR₃₁- を表し、

n は 1 又は 2 を表し、

p は 0、1 又は 2 を表し、

q は、1、2、3、4、5 又は 6 を表し、

r は、1、2 又は 3 を表し、及び

s は、0、1 又は 2 を表す。】

で表される化合物である。

40

【0011】

ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、5,6,7,8-テトラヒドロ-2-ナフチル基、5,6,7,8-テトラヒドロ-1-ナフチル基、チエニル基、ベンゾ[b]チエニル基、ナフト[2,3-b]チエニル基、チアントレニル基、ジベンゾフリル基、クロメニル基、キサンテニル基、フェノキサチニル基、ピロリル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、ピラジニル基、ピリミジニル基、ピリダジニル基、インドリジニル基、イソインドリル基、インドリル基、インダゾリル基、ブリニル基、キノリジニル基、イソキノリル基、キノリル基、フタルアジニル基、ナフチリジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、ブテリジニル基、カルバゾリル基、(-カルボリニル基、フェナントリジニル基、アクリジニル基、ペリミジニル基 (perimidinyl)

50

、フェナントロリニル基、フェナジニル基、イソチアゾリル基、フェノチアジニル基、イソキサゾリル基、フラザニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基もしくはフェノキサジニル基又は炭素原子数1ないし4のアルキル-、炭素原子数1ないし4のアルコキシ-、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ-、ヒドロキシル-、ハロ-、アミノ-、炭素原子数1ないし4のアルキルアミノ-、フェニルアミノ-又はジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノによって置換されたこれらの炭素環又は複素環基は、例えば、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-フェニルアミノ-4-ナフチル基、1-メチルナフチル基、2-メチルナフチル基、1-メトキシ-2-ナフチル基、2-メトキシ-1-ナフチル基、1-ジメチルアミノ-2-ナフチル基、1,2-ジメチル-4-ナフチル基、1,2-ジメチル-6-ナフチル基、1,2-ジメチル-7-ナフチル基、1,3-ジメチル-6-ナフチル基、1,4-ジメチル-6-ナフチル基、1,5-ジメチル-2-ナフチル基、1,6-ジメチル-2-ナフチル基、1-ヒドロキシ-2-ナフチル基、2-ヒドロキシ-1-ナフチル基、1,4-ジヒドロキシ-2-ナフチル基、7-フェナントリル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、3-ベンゾ[b]チエニル基、5-ベンゾ[b]チエニル基、2-ベンゾ[b]チエニル基、4-ジベンゾフリル基、4,7-ジベンゾフリル基、4-メチル-7-ジベンゾフリル基、2-キサンテニル基、8-メチル-2-キサンテニル基、3-キサンテニル基、2-フェノキサチイニル基、2,7-フェノキサチイニル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、5-メチル-3-ピロリル、2-イミダゾリル基、4-イミダゾリル基、5-イミダゾリル基、2-メチル-4-イミダゾリル基、2-エチル-4-イミダゾリル基、2-エチル-5-イミダゾリル基、3-ピラゾリル基、1-メチル-3-ピラゾリル基、1-プロピル-4-ピラゾリル基、2-ピラジニル基、5,6-ジメチル-2-ピラジニル基、2-インドリジニル基、2-メチル-3-イソインドリル基、2-メチル-1-イソインドリル基、1-メチル-2-インドリル基、1-メチル-3-インドリル基、1,5-ジメチル-2-インドリル基、1-メチル-3-インダゾリル基、2,7-ジメチル-8-ブリニル基、2-メトキシ-7-メチル-8-ブリニル基、2-キノリジニル基、3-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、イソキノリル基、3-メトキシ-6-イソキノリル基、2-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、2-メトキシ-3-キノリル基、2-メトキシ-6-キノリル基、6-フタルアジニル基、7-フタルアジニル基、1-メトキシ-6-フタルアジニル基、1,4-ジメトキシ-6-フタルアジニル基、1,8-ナフチリジニ-2-イル基、2-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、2,3-ジメチル-6-キノキサリニル基、2,3-ジメトキシ-6-キノキサリニル基、2-キナゾリニル基、7-キナゾリニル基、2-ジメチルアミノ-6-キナゾリニル基、3-シンノリニル基、6-シンノリニル基、7-シンノリニル基、3-メトキシ-7-シンノリニル基、2-ブテリジニル基、6-ブテリジニル基、7-ブテリジニル基、6,7-ジメトキシ-2-ブテリジニル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、9-メチル-2-カルバゾリル基、9-メチル-3-カルバゾリル基、(-カルボリニ-3-イル基、1-メチル-(-カルボリニ-3-イル基、1-メチル-(-カルボリニ-6-イル基、3-フェナントリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、2-ペリミジニル基、1-メチル-5-ペリミジニル基、5-フェナントロリニル基、6-フェナントロリニル基、1-フェナジニル基、2-フェナジニル基、3-イソチアゾリル基、4-イソチアゾリル基、5-イソチアゾリル基、2-フェナンチアジニル基、3-フェノチアジニル基、10-メチル-3-フェノチアジニル基、3-イソキサゾリル基、4-イソキサゾリル基、5-イソキサゾリル基、4-メチル-3-フラザニル基、2-フェノキサジニル基又は10-メチル-2-フェノキサジニル基である。

【0012】

未置換の、又は炭素原子数1ないし4のアルキル-、炭素原子数1ないし4のアルコキシ-、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ-、ヒドロキシル-、フェニルアミノ-又はジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノ置換されたナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、5,6,7,8-テトラヒドロ-2-ナフチル基、5,6,7,8-テ

10

20

30

40

50

トラヒドロ - 1 - ナフチル基、チエニル基、ベンゾ [b] チエニル基、ナフト [2 , 3 - b] チエニル基、チアントレニル基、ジベンゾフリル基、クロメニル基、キサンテニル基、フェノキサチニル基、ピロリル基、イソインドリル基、インドリル基、フェノチアジニル基、ピフェニル基、ターフェニル基、フルオレニル基又はフェノキサジニル基、例えば、1 - ナフチル基、2 - ナフチル基、1 - フェニルアミノ - 4 - ナフチル基、1 - メチルナフチル基、2 - メチルナフチル基、1 - メトキシ - 2 - ナフチル基、2 - メトキシ - 1 - ナフチル基、1 - ジメチルアミノ - 2 - ナフチル基、1 , 2 - ジメチル - 4 - ナフチル基、1 , 2 - ジメチル - 6 - ナフチル基、1 , 2 - ジメチル - 7 - ナフチル基、1 , 3 - ジメチル - 6 - ナフチル基、1 , 4 - ジメチル - 6 - ナフチル基、1 , 5 - ジメチル - 2 - ナフチル基、1 , 6 - ジメチル - 2 - ナフチル基、1 - ヒドロキシ - 2 - ナフチル基、2 - ヒドロキシ - 1 - ナフチル基、1 , 4 - ジヒドロキシ - 2 - ナフチル基、7 - フェナントリル基、1 - アントリル基、2 - アントリル基、9 - アントリル基、3 - ベンゾ [b] チエニル基、5 - ベンゾ [b] チエニル基、2 - ベンゾ [b] チエニル基、4 - ジベンゾフリル基、4 , 7 - ジベンゾフリル基、4 - メチル - 7 - ジベンゾフリル基、2 - キサンテニル基、8 - メチル - 2 - キサンテニル基、3 - キサンテニル基、2 - ピロリル基、3 - ピロリル基、2 - フェナンチアジニル基、3 - フェノチアジニル基、10 - メチル - 3 - フェのチアジニル基が特に好ましい。

10

【0013】

ハロゲン原子（ハロ）は、例えば、塩素原子、臭素原子又はヨウ素原子である。塩素原子が好ましい。

20

【0014】

25個までの炭素原子を有するアルカノイル基は分枝鎖状または非分枝鎖状の基、例えばホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブタノイル基、ペンタノイル基、ヘキサノイル基、ヘプタノイル基、オクタノイル基、ノナノイル基、デカノイル基、ウンデカノイル基、ドデカノイル基、トリデカノイル基、テトラデカノイル基、ペンタデカノイル基、ヘキサデカノイル基、ヘプタデカノイル基、オクタデカノイル基、エイコサノイル基又はドコサノイル基である。2ないし18個、特に2ないし12個、例えば2ないし6個の炭素原子を有するアルカノイル基が好ましい。アセチル基が特に好ましい。

【0015】

ジ（炭素原子数1ないし6のアルキル）ホスホネート基により置換された炭素原子数2ないし25のアルカノイル基は、例えば $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_2\text{POCH}_2\text{CH}_2\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{O})_2\text{PO}(\text{CH}_2)_4\text{CO}$ - 、 $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{O})_2\text{PO}(\text{CH}_2)_8\text{CO}$ - 又は $(\text{CH}_3\text{CH}_2\text{O})_2\text{PO}(\text{CH}_2)_{17}\text{CO}$ - である。

30

【0016】

25個までの炭素原子を有するアルカノイルオキシ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、ホルミルオキシ基、アセトキシ基、プロピオニルオキシ基、ブタノイルオキシ基、ペンタノイルオキシ基、ヘキサノイルオキシ基、ヘプタノイルオキシ基、オクタノイルオキシ基、ノナノイルオキシ基、デカノイルオキシ基、ウンデカノイルオキシ基、ドデカノイルオキシ基、トリデカノイルオキシ基、テトラデカノイルオキシ基、ペンタデカノイルオキシ基、ヘキサデカノイルオキシ基、ヘプタデカノイルオキシ基、オクタデカノイルオキシ基、エイコサノイルオキシ基又はドコサノイルオキシ基である。2ないし18個、特に2ないし12個、例えば2ないし6個の炭素原子を有するアルカノイルオキシ基が好ましい。アセトキシ基が特に好ましい。

40

【0017】

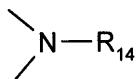
3ないし25個の炭素原子を有するアルケノイル基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、プロペノイル基、2 - プテノイル基、3 - プテノイル基、イソブテノイル基、n - 2 , 4 - ペンタジエノイル基、3 - メチル - 2 - プテノイル基、n - 2 - オクテノイル基、n - 2 - ドセノイル基、イソ - ドセノイル基、オレオイル基、n - 2 - オクタ

50

デセノイル基又はn-4-オクタデセノイル基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルケノイル基が好ましい。

酸素原子、硫黄原子又は

【化24】



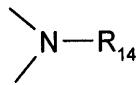
により中断された炭素原子数3ないし25のアルケノイル基は、例えば、 $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{C}\text{H}_2\text{CH}=\text{CHCO}-$ 又は $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OCH}=\text{CHCO}-$ である。 10

【0018】

3ないし25個の炭素原子を有するアルケノイルオキシ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、プロペノイルオキシ基、2-ブテノイルオキシ基、3-ブテノイルオキシ基、イソブテノイルオキシ基、n-2,4-ペンタジエノイルオキシ基、3-メチル-2-ブテノイルオキシ基、n-2-オクテノイルオキシ基、n-2-ドセノイルオキシ基、イソ-ドセノイルオキシ基、オレオイルオキシ基、n-2-オクタデセノイルオキシ基又はn-4-オクタデセノイルオキシ基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルケノイルオキシ基が好ましい。 20

酸素原子、硫黄原子又は

【化25】

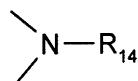


により中断された炭素原子数3ないし25のアルケノイルオキシ基は、例えば、 $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}=\text{CHCOO}-$ 又は $\text{CH}_3\text{OCH}_2\text{CH}_2\text{CH}_2\text{OCH}=\text{CHCOO}-$ である。 30

【0019】

酸素原子、硫黄原子又は

【化26】

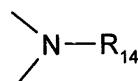


により中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイル基は、例えば、 $\text{CH}_3-\text{O}-\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{S}-\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{NH}-\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{N}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_2\text{CH}_2\text{CO}-$ 、 $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_3\text{CH}_2\text{CO}-$ 又は $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_4\text{CH}_2\text{CO}-$ である。 40

【0020】

酸素原子、硫黄原子又は

【化27】



により中断された炭素原子数3ないし25のアルカノイルオキシ基は、例えば、 $\text{CH}_3-\text{O}-\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{S}-\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{NH}-\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{N}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O}-\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_2\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_3\text{CH}_2\text{COO}-$ 、 $\text{CH}_3-(\text{O}-\text{CH}_2\text{CH}_2-\text{O})_4\text{CH}_2\text{COO}-$ 50

$O - C H_2 C H_2 -)_2 O - C H_2 C O O -$ 、 $C H_3 - (O - C H_2 C H_2 -)_3 O - C H_2 C O$
 O - 又は $C H_3 - (O - C H_2 C H_2 -)_4 O - C H_2 C O O -$ である。

【0021】

炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニル基は、例えば、シクロペンチルカルボニル基、シクロヘキシリカルボニル基、シクロヘプチルカルボニル基又はシクロオクチルカルボニル基である。シクロヘキシリカルボニル基が好ましい。

【0022】

炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニルオキシ基は、例えば、シクロペンチルカルボニルオキシ基、シクロヘキシリカルボニルオキシ基、シクロヘプチルカルボニルオキシ基又はシクロオクチルカルボニルオキシ基である。シクロヘキシリカルボニルオキシ基が好ましい。

10

【0023】

炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイル基であって、好ましくは 1 ないし 3 個、特に 1 又は 2 個のアルキル基を有するものは、例えば o - 、 m - 又は p - メチルベンゾイル基、2, 3 - ジメチルベンゾイル基、2, 4 - ジメチルベンゾイル基、2, 5 - ジメチルベンゾイル基、2, 6 - ジメチルベンゾイル基、3, 4 - ジメチルベンゾイル基、3, 5 - ジメチルベンゾイル基、2 - メチル - 6 - エチルベンゾイル基、4 - 第三ブチルベンゾイル基、2 - エチルベンゾイル基、2, 4, 6 - トリメチルベンゾイル基、2, 6 - ジメチル - 4 - 第三ブチルベンゾイル基又は 3, 5 - ジ - 第三ブチルベンゾイル基である。好ましい置換基は、炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基、特に炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基である。

20

【0024】

炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル置換ベンゾイルオキシ基であって、好ましくは 1 ないし 3 個、特に 1 又は 2 個のアルキル基を有するものは、例えば o - 、 m - 又は p - メチルベンゾイルオキシ基、2, 3 - ジメチルベンゾイルオキシ基、2, 4 - ジメチルベンゾイルオキシ基、2, 5 - ジメチルベンゾイルオキシ基、2, 6 - ジメチルベンゾイルオキシ基、3, 4 - ジメチルベンゾイルオキシ基、3, 5 - ジメチルベンゾイルオキシ基、2 - メチル - 6 - エチルベンゾイルオキシ基、4 - 第三ブチルベンゾイルオキシ基、2 - エチル - ベンゾイルオキシ基、2, 4, 6 - トリメチルベンゾイルオキシ基、2, 6 - ジメチル - 4 - 第三ブチルベンゾイルオキシ基又は 3, 5 - ジ - 第三ブチルベンゾイルオキシ基である。好ましい置換基は、炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基、特に炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基である。

30

【0025】

25 個までの炭素原子を有するアルキル基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、第二ブチル基、イソブチル基、第三ブチル基、2 - エチルブチル基、n - ペンチル基、イソペンチル基、1 - メチルペンチル基、1, 3 - ジメチルブチル基、n - ヘキシリ基、1 - メチルヘキシリ基、n - ヘプチル基、イソヘプチル基、1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル基、1 - メチルヘブチル基、3 - メチルヘブチル基、n - オクチル基、2 - エチルヘキシリ基、1, 1, 3 - トリメチルヘキシリ基、1, 1, 3, 3 - テトラメチルペンチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、1 - メチルウンデシル基、ドデシル基、1, 1, 3, 3, 5, 5 - ヘキサメチルヘキシリ基、トリデシル基、テトラデシル基、ペンタデシル基、ヘキサデシル基、ヘプタデシル基、オクタデシル基、エイコシリ基又はドコシリ基である。R₂ 及び R₄ の好ましい定義の一つは、例えば、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基である。特に好ましい R₄ の定義は、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基である。

40

【0026】

3 ないし 25 個の炭素原子を有するアルケニル基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、プロペニル基、2 - ブテニル基、3 - ブテニル基、イソブテニル基、n - 2, 4 - ペンタジエニル基、3 - メチル - 2 - ブテニル基、n - 2 - オクテニル基、n - 2 - ドデセニル基、イソ - ドデセニル基、オレイル基、n - 2 - オクタデセニル基又は n - 4 - オ

50

クタデセニル基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルケニル基が好ましい。

【0027】

3ないし25個の炭素原子を有するアルケニルオキシ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、プロペニルオキシ基、2-ブテニルオキシ基、3-ブテニルオキシ基、イソブテニルオキシ基、n-2,4-ペンタジエニルオキシ基、3-メチル-2-ブテニルオキシ基、n-2-オクテニルオキシ基、n-2-ドデセニルオキシ基、イソ-ドデセニルオキシ基、オレイルオキシ基、n-2-オクタデセニルオキシ基又はn-4-オクタデセニルオキシ基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルケニルオキシ基が好ましい。

10

【0028】

3ないし25個の炭素原子を有するアルキニル基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、

【化28】

プロピニル (—CH₂—C≡CH),

2-ブチニル基、3-ブチニル基、n-2-オクチニル基、又はn-2-ドデシニル基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルキニル基が好ましい。

【0029】

3ないし25個の炭素原子を有するアルキニルオキシ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、

【化29】

プロピニルオキシ (—OCH₂—C≡CH),

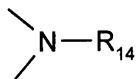
2-ブチニルオキシ基、3-ブチニルオキシ基、n-2-オクチニルオキシ基又はn-2-ドデシニルオキシ基である。3ないし18個、特に3ないし12個、例えば3ないし6個、特に3ないし4個の炭素原子を有するアルキニルオキシ基が好ましい。

【0030】

酸素原子、硫黄原子又は

30

【化30】



により中断された炭素原子数2ないし25のアルキル基は、例えば、CH₃-O-CH₂-、CH₃-S-CH₂-、CH₃-NH-CH₂-、CH₃-N(CH₃)-CH₂-、CH₃-O-CH₂CH₂-O-CH₂-、CH₃-(O-CH₂CH₂-)₂O-CH₂-、CH₃-(O-CH₂CH₂-)₃O-CH₂-又はCH₃-(O-CH₂CH₂-)₄O-CH₂-である。

40

【0031】

炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基は、例えば、ベンジル基、-メチルベンジル基、-ジメチルベンジル基又は2-フェニルエチル基である。ベンジル基及び-ジメチルベンジル基が好ましい。

【0032】

未置換の、又はフェニル基上で1ないし3個の炭素原子数1ないし4のアルキル基によって置換された炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基は、例えばベンジル基、-メチルベンジル基、-ジメチルベンジル基、2-フェニルエチル基、2-メチルベンジル基、3-メチルベンジル基、4-メチルベンジル基、2,4-ジメチルベンジル基、2,6-ジメチルベンジル基又は4-第三ブチルベンジル基である。ベンジル基が好ま

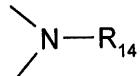
50

しい。

【0033】

未置換の、フェニル基上で1ないし3個の炭素原子数1ないし4のアルキル基により置換され及び酸素原子、硫黄原子又は

【化31】



により中断された炭素原子数7ないし25のフェニルアルキル基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えば、フェノキシメチル基、2-メチルフェノキシメチル基、3-メチルフェノキシメチル基、4-メチルフェノキシメチル基、2,4-ジメチルフェノキシメチル基、2,3-ジメチルフェノキシメチル基、フェニルチオメチル基、N-メチル-N-フェニルメチル基、N-エチル-N-フェニルメチル基、4-第三ブチルフェノキシメチル基、4-第三ブチル-フェノキシエトキシメチル基、2,4-ジ-第三ブチルフェノキシメチル基、2,4-ジ-第三ブチルフェノキシエトキシメチル基、フェノキシエトキシエトキシメチル基、ベンジルオキシメチル基、ベンジルオキシエトキシメチル基、N-ベンジル-N-エチルメチル基又はN-ベンジル-N-イソプロピルメチル基である。

【0034】

炭素原子数7ないし9のフェニルアルコキシ基は、例えば、ベンジルオキシ基、-メチルベンジルオキシ基、-ジメチルベンジルオキシ基又は2-フェニルエトキシ基である。ベンジルオキシ基が好ましい。

【0035】

好ましくは1ないし3個、特に1又は2個のアルキル基を含有する炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェニル基は、例えばo-、m-又はp-メチルフェニル基、2,3-ジメチルフェニル基、2,4-ジメチルフェニル基、2,5-ジメチルフェニル基、2,6-ジメチルフェニル基、3,4-ジメチルフェニル基、3,5-ジメチルフェニル基、2-メチル-6-エチルフェニル基、4-第三ブチルフェニル基、2-エチルフェニル基又は2,6-ジエチルフェニル基である。

【0036】

好ましくは1ないし3個、特に1又は2個のアルキル基を含有する炭素原子数1ないし4のアルキル置換フェノキシ基は、例えばo-、m-又はp-メチルフェノキシ基、2,3-ジメチルフェノキシ基、2,4-ジメチルフェノキシ基、2,5-ジメチルフェノキシ基、2,6-ジメチルフェノキシ基、3,4-ジメチルフェノキシ基、3,5-ジメチルフェノキシ基、2-メチル-6-エチルフェノキシ基、4-第三ブチルフェノキシ基、2-エチルフェノキシ基又は2,6-ジエチルフェノキシ基である。

【0037】

未置換の、又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基は、例えば、シクロペンチル基、メチルシクロペンチル基、ジメチルシクロペンチル基、シクロヘキシル基、メチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、トリメチルシクロヘキシル基、第三ブチルシクロヘキシル基、シクロヘプチル基又はシクロオクチル基である。シクロヘキシル基及び第三ブチルシクロヘキシル基が好ましい。

【0038】

未置換の、又は炭素原子数1ないし4のアルキル置換炭素原子数5ないし8のシクロアルコキシ基は、例えば、シクロペントキシ基、メチルシクロペントキシ基、ジメチルシクロペントキシ基、シクロヘキソキシ基(cyclohexoxy)、メチルシクロヘキソキシ基(methylcyclohexoxy)、ジメチルシクロヘキソキシ基(dimethylcyclohexoxy)、トリメチルシクロヘキソキシ基(trimethylcyclohexoxy)、第三ブチルシクロヘキソキシ基(tert-butylcyclohexoxy)、第三ブチルシクロヘキソキシ基(tert-buty1

10

20

30

40

50

cyclohexoxy)、シクロヘプトキシ基又はシクロオクトキシ基である。シクロヘキソキシ基及び第三ブチルシクロヘキソキシ基が好ましい。

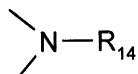
【0039】

25個までの炭素原子を有するアルコキシ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、イソブトキシ基、ペントキシ基、イソペントキシ基、ヘキソキシ基、ヘプトキシ基、オクトキシ基、デシルオキシ基、テトラデシルオキシ基、ヘキサデシルオキシ基又はオクタデシルオキシ基である。1ないし12個、特に1ないし8個、例えば1ないし6個の炭素原子を有するアルコキシ基が好ましい。

【0040】

酸素原子、硫黄原子又は

【化32】



により中断された炭素原子数2ないし25のアルコキシ基は、例えばCH₃-O-CH₂CH₂O-、CH₃-S-CH₂CH₂O-、CH₃-NH-CH₂CH₂O-、CH₃-N(CH₃)-CH₂CH₂O-、CH₃-O-CH₂CH₂-O-CH₂CH₂O-、CH₃-(O-C₂H₅CH₂-)₂O-CH₂CH₂O-、CH₃-(O-C₂H₅CH₂-)₃O-CH₂CH₂O-又はCH₃-(O-C₂H₅CH₂-)₄O-CH₂CH₂O-である。

【0041】

25個までの炭素原子を有するアルキルチオ基は、分枝鎖状または非分枝鎖状の基、例えばメチルチオ基、エチルチオ基、プロピルチオ基、イソプロピルチオ基、n-ブチルチオ基、イソブチルチオ基、ペンチルチオ基、イソペンチルチオ基、ヘキシルチオ基、ヘプチルチオ基、オクチルチオ基、デシルチオ基、テトラデシルチオ基、ヘキサデシルチオ基又はオクタデシルチオ基である。1ないし12個、特に1ないし8個、例えば1ないし6個の炭素原子を有するアルキルチオ基が好ましい。

【0042】

4個までの炭素原子を有するアルキルアミノ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えばメチルアミノ基、エチルアミノ基、プロピルアミノ基、イソプロピルアミノ基、n-ブチルアミノ基、イソブチルアミノ基又は第三ブチルアミノ基である。

【0043】

ジ(炭素原子数1ないし4のアルキル)アミノ基はまた、2つの基が互いに独立して分枝鎖状又は非分枝鎖状であることを意味し、例えばジメチルアミノ基、メチルエチルアミノ基、ジエチルアミノ基、メチル-n-プロピルアミノ基、メチルイソプロピルアミノ基、メチル-n-ブチルアミノ基、メチルイソブチルアミノ基、エチルイソプロピルアミノ基、エチル-n-ブチルアミノ基、エチルイソブチルアミノ基、エチル-n-ブチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、イソプロピル-n-ブチルアミノ基、イソプロピルイソブチルアミノ基、ジ-n-ブチルアミノ基又はジイソブチルアミノ基である。

【0044】

25個までの炭素原子を有するアルカノイルアミノ基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えばホルミルアミノ基、アセチルアミノ基、プロピオニルアミノ基、ブタノイルアミノ基、ペンタノイルアミノ基、ヘキサノイルアミノ基、ヘプタノイルアミノ基、オクタノイルアミノ基、ノナノイルアミノ基、デカノイルアミノ基、ウンデカノイルアミノ基、ドデカノイルアミノ基、トリデカノイルアミノ基、テトラデカノイルアミノ基、ペンタデカノイルアミノ基、ヘキサデカノイルアミノ基、ヘプタデカノイルアミノ基、オクタデカノイルアミノ基、エイコサノイルアミノ基又はドコサノイルアミノ基である。2ないし18個、特に2ないし12個、例えば2ないし6個の炭素原子を有するアルカノイルアミノ基

10

20

30

40

50

が好ましい。

【0045】

炭素原子数1ないし18のアルキレン基は、分枝鎖状又は非分枝鎖状の基、例えばメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、デカメチレン基、ドデカメチレン基又はオクタデカメチレン基である。炭素原子数1ないし12のアルキレン基、特に炭素原子数1ないし8のアルキレン基が好ましい。

【0046】

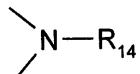
好ましくは1ないし3個、特に1又は2個の分枝鎖状又は非分枝鎖状のアルキル群の基を含有する、炭素原子数1ないし4のアルキル置換炭素原子数5ないし12のシクロアルキレン環は、例えば、シクロペンチレン基、メチルシクロペンチレン基、ジメチルシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、メチルシクロヘキシレン基、ジメチルシクロヘキシレン基、トリメチルシクロヘキシレン基、第三ブチルシクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基、シクロオクチレン基又はシクロデシレン基である。シクロヘキシレン基及び第三ブチルシクロヘキシレン基が好ましい。

10

【0047】

酸素原子、硫黄原子又は

【化33】



20

により中断された炭素原子数2ないし18のアルキレン基は、例えば-CH₂-O-CH₂-、-CH₂-S-CH₂-、-CH₂-NH-CH₂-、-CH₂-N(CH₃)-CH₂-、-CH₂-O-CH₂CH₂-O-CH₂-、-CH₂-(O-CH₂CH₂-)₂O-CH₂-、-CH₂-(O-CH₂CH₂-)₃O-CH₂-、-CH₂-(O-CH₂CH₂-)₄O-CH₂-又は-CH₂CH₂-S-CH₂CH₂-である。

【0048】

炭素原子数2ないし18のアルケニレン基は、例えば、ビニレン基、メチルビニレン基、オクテニルエチレン基又はドセニルエチレン基である。炭素原子数2ないし8のアルケニレン基が好ましい。

30

【0049】

2ないし20個の炭素原子を有するアルキリデン基は、例えばエチリデン基、プロピリデン基、ブチリデン基、ペンチリデン基、4-メチルペンチリデン基、ヘプチリデン基、ノニリデン基、トリデシリデン基、ノナデシリデン基、1-メチルエチリデン基、1-エチルプロピリデン基又は1-エチルペンチリデン基である。炭素原子数2ないし8のアルキリデン基が好ましい。

【0050】

7ないし20個の炭素原子を有するフェニルアルキリデン基は、例えば、ベンジリデン基、2-フェニルエチリデン基又は1-フェニル-2-ヘキシリデン基である。炭素原子数7ないし9のフェニルアルキリデン基が好ましい。

40

【0051】

炭素原子数5ないし8のシクロアルキレン基は、二価の遊離原子価及び少なくとも1個の環単位を有する飽和炭化水素基であり、そして例えばシクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロヘプチレン基又はシクロオクチレン基である。シクロヘキシレン基が好ましい。

【0052】

炭素原子数7ないし8のビシクロアルキレン基は、例えばビシクロヘプチレン基又はビシクロオクチレン基である。

【0053】

50

未置換のもしくは炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニレン基又はナフチレン基は、例えば 1, 2 -、1, 3 -、1, 4 - フェニレン基、1, 2 -、1, 3 -、1, 4 -、1, 6 -、1, 7 -、2, 6 - もしくは 2, 7 - ナフチレン基である。1, 4 - フェニレン基が好ましい。

【0054】

好ましくは 1 ないし 3 個、特に 1 又は 2 個の分枝鎖状又は非分枝鎖状のアルキル群の基を含有する炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキリデン環は、例えばシクロペンチリデン基、メチルシクロペンチリデン基、ジメチルシクロペンチリデン基、シクロヘキシリデン基、メチルシクロヘキシリデン基、ジメチルシクロヘキシリデン基、トリメチルシクロヘキシリデン基、第三ブチルシクロヘキシリデン基、シクロヘプチリデン基又はシクロオクチリデン基である。シクロヘキシリデン基及び第三ブチルシクロヘキシリデン基が好ましい。

10

【0055】

一、二又は三価の金属カチオンは、好ましくはアルカリ金属、アルカリ土類金属又はアルミニウムカチオン、例えば Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{++} 、 Ca^{++} 又は Al^{+++} である。

【0056】

特に好ましい本発明の組成物は、少なくとも 1 種の式 I (式中、 $n = 1$ である場合、 R_1 は未置換の、もしくは炭素原子数 1 ないし 18 のアルキルチオ基又はジ (炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル) アミノ基によりパラ位において置換されたフェニル基；1 ないし 5 個のアルキル置換基において全部で最高 18 個の炭素原子と一緒に含有するモノ - ないし ベンタ置換アルキルフェニル基；各々が未置換の、又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルコキシ基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルチオ基、ヒドロキシ基又はアミノ基により置換されたナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、フェナントリル基、アントリル基、フルオレニル基、カルバゾイル基、チエニル基、ピロリル基、フェノチアジニル基又は 5, 6, 7, 8 - テトラヒドロナフチル基を表す。) で表される 3 - アリールベンゾフラノンを含有する。

20

【0057】

式 I (式中、 $n = 2$ である場合

R_1 は $-R_{12}-X-R_{13}-$ を表し、

30

R_{12} 及び R_{13} はフェニレン基を表し、

X は酸素原子又は $-NR_{31}-$ を表し、及び

R_{31} は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表す。) で表される化合物が好ましい。

【0058】

式 I [式中、 $n = 1$ を表す場合、

R_1 は未置換の、もしくは炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル -、炭素原子数 1 ないし 4 のアルコキシ -、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルチオ -、ヒドロキシル -、ハロ -、アミノ -、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルアミノ - 又はジ (炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル) アミノ置換ナフチル基、フェナントリル基、チエニル基、ジベンゾフリル基、カルバゾイル基、フルオレニル基又は式 II (式中、

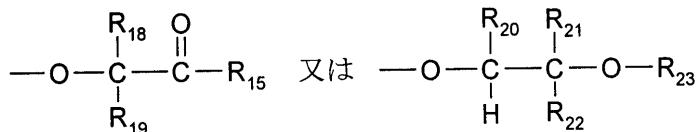
40

R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 及び R_{11} は、互いに独立して、水素原子、塩素原子、臭素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 2 ないし 18 のアルキル基；炭素原子数 1 ないし 18 のアルコキシ基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 2 ないし 18 のアルコキシ基；炭素原子数 1 ないし 18 のアルキルチオ基、炭素原子数 3 ないし 12 のアルケニルオキシ基、炭素原子数 3 ないし 12 のアルキニルオキシ基、炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基、炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルコキシ基、未置換の又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換フェニル基；フェノキシ基、シクロヘキシル基、炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルコキシ基、炭素原子数 1 ないし 4 のアルキルアミノ基、ジ (炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル) アミノ基、炭素原子数 1 ないし 12 のアルカノイル基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 3 ないし 12 のアルカノイル基；炭素原子数 1

50

ないし 1 2 のアルカノイルオキシ基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 3 ないし 1 2 のアルカノイルオキシ基；炭素原子数 1 ないし 1 2 のアルカノイルアミノ基、炭素原子数 3 ないし 1 2 のアルケノイル基、炭素原子数 3 ないし 1 2 のアルケノイルオキシ基、シクロヘキシリカルボニル基、シクロヘキシリカルボニルオキシ基、ベンゾイル基又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換ベンゾイル基；ベンゾイルオキシ基又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換ベンゾイルオキシ基；

【化 3 4】

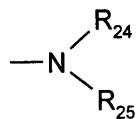


10

を表し、選択的に、式 I I 中、基 R₇ 及び R₈ 又は基 R₈ 及び R₁₁ は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゼン環を形成し、

R₁₅ はヒドロキシ基、炭素原子数 1 ないし 1 2 のアルコキシ基又は

【化 3 5】



20

を表し、

R₁₈ 及び R₁₉ は互いに独立して、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

R₂₀ は水素原子を表し、

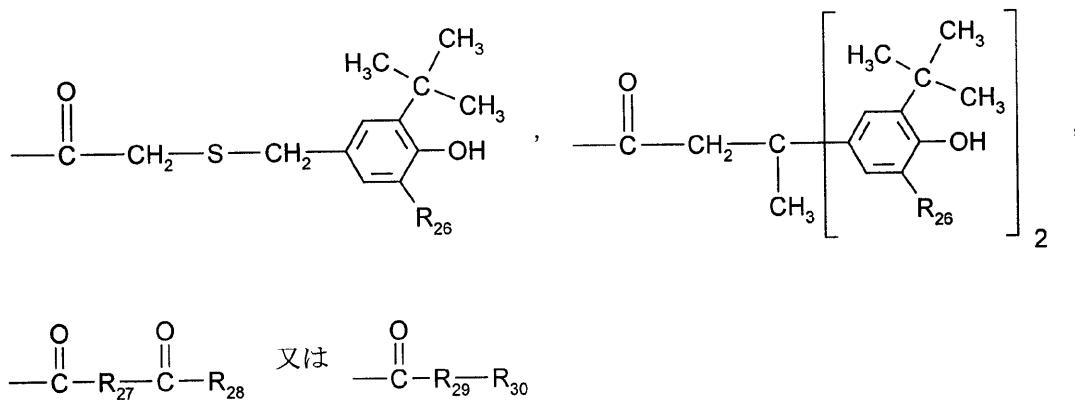
R₂₁ は、水素原子、フェニル基、炭素原子数 1 ないし 1 8 のアルキル基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 2 ないし 1 8 のアルキル基；炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基、未置換の、又はフェニル基上で 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換された及び酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 7 ないし 1 8 のフェニルアルキル基を表し、又は、選択的に基 R₂₀ 及び R₂₁ は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の、又は 1 ないし 3 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基によって置換されたシクロヘキシリレン環を形成し、

R₂₂ は水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

R₂₃ は水素原子、炭素原子数 1 ないし 1 8 のアルカノイル基、炭素原子数 3 ないし 1 8 のアルケノイル基、酸素原子又は硫黄原子によって中断された炭素原子数 3 ないし 1 2 のアルカノイル基；ジ（炭素原子数 1 ないし 6 のアルキル）ホスホネート基によって置換された炭素原子数 2 ないし 1 2 のアルカノイル基；炭素原子数 6 ないし 9 のシクロアルキルカルボニル基、ベンゾイル基

30

【化36】



を表し、

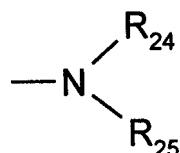
R_{24} 及び R_{25} は、互いに独立して、水素原子又は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基を表し、

R_{26} は水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表し、

R_{27} は炭素原子数 1 ないし 12 のアルキレン基、炭素原子数 2 ないし 8 のアルケニレン基、炭素原子数 2 ないし 8 のアルキリデン基、炭素原子数 7 ないし 12 のフェニルアルキリデン基、炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキレン基又はフェニレン基を表し、

R_{28} はヒドロキシル基、炭素原子数 1 ないし 12 のアルコキシ基又は

【化37】



を表し、

R_{29} は酸素原子又は - NH - を表し、

R_{30} は炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基又はフェニル基を表し、及び

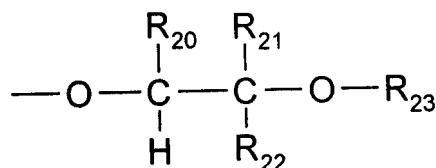
s は 1 又は 2 を表す。) で表される基を表す。] で表される化合物もまた好ましい。

【0059】

さらに、式 I [式中、 n が 1 を表す場合、

R_1 は、フェナントリル基、チエニル基、ジベンゾフリル基、未置換の、又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル置換カルバゾリル基を表し、又はフルオレニル基を表し、又は R_1 は式 II (式中、 R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 及び R_{11} は、互いに独立して、水素原子、塩素原子、ヒドロキシル基、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、炭素原子数 1 ないし 18 のアルコキシ基、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキルチオ基、炭素原子数 3 ないし 4 のアルケニルオキシ基、炭素原子数 3 ないし 4 のアルキニルオキシ基、炭素原子数 2 ないし 18 のアルカノイルオキシ基、フェニル基、ベンゾイル基、ベンゾイルオキシ基又は

【化38】



を表し、

20

20

30

40

50

R_{20} は水素原子を表し、

R_{21} は水素原子、フェニル基又は炭素原子数1ないし18のアルキル基を表し、又は、選択的に、基 R_{20} 及び R_{21} は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換であるか、又は1ないし3個の炭素原子数1ないし4のアルキル基によって置換されたシクロヘキシレン環を形成し、

R_{22} は、水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し、及び

R_{23} は、水素原子、炭素原子数1ないし18のアルカノイル基又はベンゾイル基を表す。)で表される基を表す。]で表される化合物が好ましい。

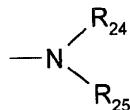
【0060】

式I(式中、nが1を表す場合、 R_7 、 R_8 、 R_9 、 R_{10} 及び R_{11} は、互いに独立して、水素原子、炭素原子数1ないし4のアルキルチオ基又はフェニル基を表す。)で表される化合物が特に好ましい。

特に興味深いのは、少なくとも1種の式I(式中、 R_2 、 R_3 、 R_4 及び R_5 は、互いに独立して、水素原子、塩素原子、炭素原子数1ないし18のアルキル基、ベンジル基、フェニル基、炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基、炭素原子数1ないし18のアルコキシ基、炭素原子数1ないし18のアルキルチオ基、炭素原子数1ないし18のアルカノイルオキシ基、炭素原子数1ないし18のアルカノイルアミノ基、炭素原子数3ないし18のアルケノイルオキシ基又はベンゾイルオキシ基を表し、又は、選択的に、基 R_2 及び R_3 又は基 R_3 及び R_4 又は基 R_4 及び R_5 は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、ベンゼン環を形成し、 R_4 は付加的に- $(CH_2)_p-COR_{15}$ 又は- $(CH_2)_qOH$ を表し、又は R_3 、 R_5 及び R_6 が水素原子を表す場合、 R_4 は付加的に式IIIで表される基を表し、

R_{15} は、ヒドロキシル基、炭素原子数1ないし12のアルコキシ基又は

【化39】



を表し、

R_{16} 及び R_{17} はメチル基を表し、又はそれらに結合する炭素原子と一緒にになって、未置換の、又は1ないし3個の炭素原子数1ないし4のアルキル基によって置換された炭素原子数5ないし8のシクロアルキリデン環を表し、

R_{24} 及び R_{25} は、互いに独立して水素原子又は炭素原子数1ないし12のアルキル基を表し、

pは1又は2を表し、及び

qは2、3、4、5又は6を表す。)で表される化合物を含有する組成物である。

【0061】

少なくとも1種の式I(式中、基 R_2 、 R_3 、 R_4 及び R_5 のうち少なくとも2つが水素原子を表す。)で表される化合物を含有する組成物もまた特に興味深い。

【0062】

少なくとも1種の式I(式中、 R_3 及び R_5 は水素原子を表す。)で表される化合物を含有する組成物が特に興味深い。

【0063】

少なくとも1種の式I(式中、

R_2 は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し、

R_3 は水素原子を表し、

R_4 は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表し、又は R_6 が水素原子を表す場合、 R_4 は付加的に式IIIで表される基を表し、

R_5 は水素原子を表し、及び

R_{16} 及び R_{17} は、それらに結合する炭素原子と一緒にになって、シクロヘキシリデン環を形

10

20

30

40

50

成する。)で表される化合物を含有する組成物が極めて特に興味深い。

【0064】

下記化合物は、本発明の組成物において特に適するベンゾフラノ-2-オン型の例である：3-[4-(2-アセトキシエトキシ)フェニル]-5,7-ジ-第三ブチル-ベンゾフラノ-2-オン；5,7-ジ-第三ブチル-3-[4-(2-ステアロイルオキシエトキシ)フェニル]ベンゾフラノ-2-オン；3,3'-ビス[5,7-ジ-第三ブチル-3-(4-[2-ヒドロキシエトキシ]フェニル)ベンゾフラノ-2-オン]；5,7-ジ-第三ブチル-3-(4-エトキシフェニル)ベンゾフラノ-2-オン；3-(4-アセトキシ-3,5-ジメチルフェニル)-5,7-ジ-第三ブチルベンゾフラノ-2-オン；3-(3,5-ジメチル-4-ピバロイルオキシ-フェニル)-5,7-ジ-第三ブチル-ベンゾフラノ-2-オン；5,7-ジ-第三ブチル-3-(3,4-ジメチルフェニル)ベンゾフラノ-2-オン；5,7-ジ-第三ブチル-3-(2,3-ジメチルフェニル)ベンゾフラノ-2-オン。

10

20

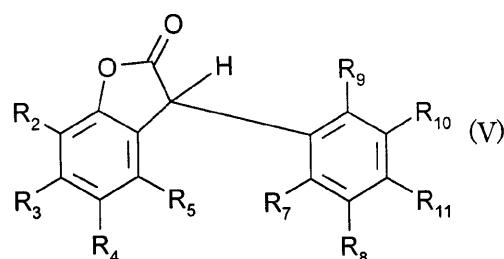
30

40

【0065】

少なくとも1種の式V

【化40】



(式中、

R₂は水素原子又は炭素原子数1ないし6のアルキル基を表し、

R₃は水素原子を表し、

R₄は水素原子又は炭素原子数1ないし6のアルキル基を表し、

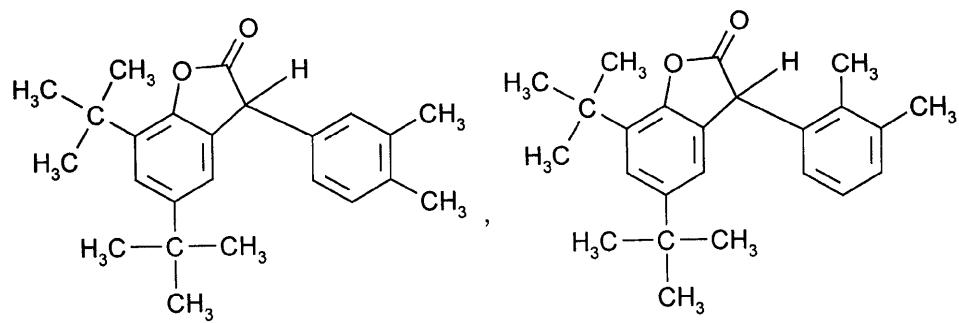
R₅は水素原子を表し、

R₇、R₈、R₉、R₁₀及びR₁₁は、互いに独立して、水素原子、炭素原子数1ないし4のアルキル基又は炭素原子数1ないし4のアルコキシ基を表すが、但し、基R₇、R₈、R₉、R₁₀及びR₁₁のうち少なくとも2つは水素原子を表す。)で表される化合物を含有する組成物がまた特に興味深い。

【0066】

少なくとも1種の式V a又はV b

【化41】



(Va)

(Vb)

で表される化合物、又は式V a及びV bで表される2つの化合物の混合物を含有する組成

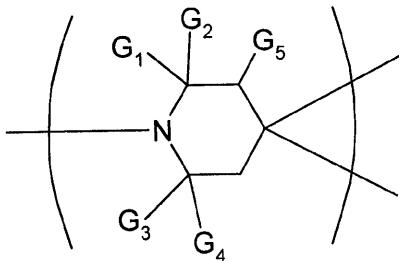
50

物が極めて特に好ましい。

【0067】

立体障害性アミン安定剤は、少なくとも1種の式

【化42】



10

(式中、G₁、G₂、G₃、G₄及びG₅は、独立して、1ないし8個の炭素原子のアルキル基を表し、又はG₁及びG₂もしくはG₃及びG₄は一緒にペントメチレン基を表す。)で表される部分を含有する。

【0068】

ヒンダードアミンは、例えば米国特許第5,004,770号明細書、米国特許第5,204,473号明細書、米国特許第5,096,950号明細書、米国特許第5,300,544号明細書、米国特許第5,112,890号明細書、米国特許第5,124,378号明細書、米国特許第5,145,893号明細書、米国特許第5,216,156号明細書、米国特許第5,844,026号明細書、米国特許第5,980,783号明細書、米国特許第6,046,304号明細書、米国特許第6,117,995号明細書、米国特許第6,271,377号明細書、米国特許第6,297,299号明細書、米国特許第6,392,041号明細書、米国特許第6,376,584号明細書及び米国特許第6,472,456号明細書、並びに2000年11月16日に出願された米国特許出願公開第09/714,717号明細書及び2002年8月6日に出願された米国特許出願公開第10/485,377号明細書において開示される。

上記米国特許第6,271,377号明細書、米国特許第6,392,041号明細書及び米国特許第6,376,584号明細書は、ヒンダードヒドロキシアルコキシアミン安定剤を開示する。

30

【0069】

適するヒンダードアミンは、例えば以下のものを含む：

- 1) 1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-オクタデシルアミノピベリジン、
- 2) ビス(2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)セバケート、
- 3) ビス(1-アセトキシ-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)セバケート、
- 4) ビス(1,2,2,6,6-ペントメチ-4-イル)セバケート、
- 5) ビス(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)セバケート、
- 6) ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)セバケート；
- 7) ビス(1-アシル-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)セバケート、
- 8) ビス(1,2,2,6,6-ペントメチル-4-ピベリジル)n-ブチル-3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンジルマロネット
- 9) 2,4-ビス[(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-イル)ブチルアミノ]-6-(2-ヒドロキシエチルアミノ-s-トリアジン)、
- 10) ビス(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピベリジニ-4-

40

50

- イル) アジペート、
 11) 2 , 4 - ビス [(1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - ピペリジニ - 4 -
 イル) プチルアミノ] - 6 - クロロ - s - トリアジン、
 12) 1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - ヒドロキシ - 2 , 2 , 6 ,
 6 - テトラメチルピペリジン、
 13) 1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - オキソ - 2 , 2 , 6 , 6 -
 テトラメチルピペリジン、
 14) 1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - オクタデカノイルオキシ -
 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、
 15) ビス (1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラ
 メチルピペリジニ - 4 - イル) セバケート、
 16) ビス (1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラ
 メチルピペリジニ - 4 - イル) アジペート、
 17) 2 , 4 - ビス { N - [1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 ,
 6 , 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル] - N - プチルアミノ } - 6 - (2 - ヒドロ
 キシエチルアミノ) - s - トリアジン、
 18) 4 - ベンゾイル - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、
 19) ジ - (1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチルピペリジニ - 4 - イル) p - メトキシベ
 ンジリデンマロネート、
 20) 4 - ステアリルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、
 21) ビス (1 - オクチルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジル)
 スクシネート、
 22) 1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチル - 4 - アミノピペリジン、
 23) 2 - ウンデシル - 7 , 7 , 9 , 9 - テトラメチル - 1 - オキサ - 3 , 8 - ジアザ -
 4 - オキソ - スピロ [4 , 5] デカン、
 24) トリス (2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) ニトリロトリアセテ
 ト、
 25) トリス (2 - ヒドロキシ - 3 - (アミノ - (2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリ
 ジニ - 4 - イル) プロピル) ニトリロトリアセテート、
 26) テトラキス (2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) - 1 , 2 , 3 , 4
 - ブタン - テトラカルボキシレート、
 27) テトラキス (1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) - 1 , 2 , 3
 , 4 - ブタン - テトラカルボキシレート、
 28) 1 , 1 ' - (1 , 2 - エタンジイル) - ビス (3 , 3 , 5 , 5 - テトラメチルピペ
 ラジノン)、
 29) 3 - n - オクチル - 7 , 7 , 9 , 9 - テトラメチル - 1 , 3 , 8 - トリアザスピロ
 [4 . 5] デカン - 2 , 4 - ジオン、
 30) 8 - アセチル - 3 - ドデシル - 7 , 7 , 9 , 9 - テトラメチル - 1 , 3 , 8 - トリ
 アザスピロ [4 . 5] デカン - 2 , 4 - ジオン、
 31) 3 - ドデシル - 1 - (2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) ピロリジ
 ン - 2 , 5 - ジオン、
 32) 3 - ドデシル - 1 - (1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) ピロ
 リジン - 2 , 5 - ジオン、
 33) N , N ' - ビス - ホルミル - N , N ' - ビス (2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4
 - ピペリジル) ヘキサメチレンジアミン、
 34) 2 , 4 - ビス [(1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - ピペリジニ - 4 -
 イル) プチルアミノ] - 6 - クロロ - s - トリアジンと N , N ' - ビス (3 - アミノプロ
 ピル) エチレンジアミン)との反応生成物、
 35) 1 - (2 - ヒドロキシエチル) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ヒドロキシ
 ピペリジン及びコハク酸の縮合物、

10

20

30

40

50

36) N, N' - ビス(2, 2, 6, 6 - テトラメチル-4 - ピペリジル) - ヘキサメチレンジアミン及び4 - 第三オクチルアミノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンの直鎖状又は環状縮合物、

37) N, N' - ビス(2, 2, 6, 6 - テトラメチル-4 - ピペリジル) - ヘキサメチレンジアミン及び4 - シクロヘキシルアミノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンの直鎖状又は環状縮合物、

38) N, N' - ビス - (2, 2, 6, 6 - テトラメチル-4 - ピペリジル) ヘキサメチレンジアミン及び4 - モルホリノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンの直鎖状又は環状縮合物、

39) N, N' - ビス - (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル-4 - ピペリジル) ヘキサメチレンジアミン及び4 - モルホリノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンの直鎖状又は環状縮合物、

40) 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(4 - n - ブチルアミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジル) - 1, 3, 5 - トリアジン及び1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ)エタンの縮合物、

41) 2 - クロロ - 4, 6 - ジ - (4 - n - ブチルアミノ - 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジル) - 1, 3, 5 - トリアジン及び1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ)エタンの縮合物、

42) 7, 7, 9, 9 - テトラメチル - 2 - シクロウンデシル - 1 - オキサ - 3, 8 - ジアザ - 4 - オキソスピロ[4, 5]デカン及びエピクロロヒドリンの反応生成物、

43) ポリ[メチル, (3 - オキシ - (2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル) プロピル)] シロキサン、C A S 登録番号 182635 - 99 - 0、

44) マレイン酸無水物 - 炭素原子数 18 ないし 22 - オレフィン - コポリマーと 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - アミノピペリジンとの反応生成物、

45) 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(ジブチルアミノ) - s - トリアジンでエンドキャップされた 4, 4' - ヘキサメチレンビス(アミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン) 及び 2, 4 - ジクロロ - 6 - [(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル) ブチルアミノ] - s - トリアジンの縮合生成物であるオリゴマー化合物、

46) 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(ジブチルアミノ) - s - トリアジンでエンドキャップされた 4, 4' - ヘキサメチレンビス(アミノ - 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン) 及び 2, 4 - ジクロロ - 6 - [(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジニ - 4 - イル) ブチルアミノ] - s - トリアジンの縮合生成物であるオリゴマー化合物、

47) 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(ジブチルアミノ) - s - トリアジンでエンドキャップされた 4, 4' - ヘキサメチレンビス(アミノ - 1 - プロポキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン) 及び 2, 4 - ジクロロ - 6 - [(1 - プロポキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル) ブチルアミノ] - s - トリアジンの縮合生成物であるオリゴマー化合物、

48) 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(ジブチルアミノ) - s - トリアジンでエンドキャップされた 4, 4' - ヘキサメチレンビス(アミノ - 1 - アシルオキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン) 及び 2, 4 - ジクロロ - 6 - [(1 - アシルオキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル) ブチルアミノ] - s - トリアジンの縮合生成物であるオリゴマー化合物、及び

49) 1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ)エタンとシアヌル酸塩化物との反応によって得られた生成物と、(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジニ - 4 - イル) ブチルアミンとの反応によって得られる生成物。

【0070】

上記化合物の立体障害性 N - H、N - メチル、N - メトキシ、N - プロポキシ、N - オクチルオキシ、N - シクロヘキシルオキシ、N - アシルオキシ及び N - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) 類似体もまた含まれる。例えば、N - H ヒンダードアミンと N

10

20

30

40

50

-メチルヒンダードアミンとを置き換えることはN-Hの代わりにN-メチル類似体を用いることである。

【0071】

ヒンダードフェノール系抗酸化剤は、例えば以下の通りである

1.1. アルキル化モノフェノール、例えば、2,6-ジ第三ブチル-4-メチルフェノール、2-第三ブチル-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジ第三ブチル-4-エチルフェノール、2,6-ジ第三ブチル-4-n-ブチルフェノール、2,6-ジ第三ブチル-4-イソブチルフェノール、2,6-ジシクロペンチル-4-メチルフェノール、2-(1-メチルシクロヘキシル)-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジオクタデシル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリシクロヘキシルフェノール、2,6-ジ第三ブチル-4-メトキシメチルフェノール、側鎖において直鎖状又は分岐鎖状であるノニルフェノール、例えば、2,6-ジノニル-4-メチルフェノール、2,4-ジメチル-6-(1-メチルウンデシ-1-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1-メチルヘプタデシ-1-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1-メチルトリデシ-1-イル)フェノール及びそれらの混合物。

1.2. アルキルチオメチルフェノール、例えば、2,4-ジオクチルチオメチル-6-第三ブチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-エチルフェノール、2,6-ジドデシルチオメチル-4-ノニルフェノール。

1.3. ヒドロキノン及びアルキル化ヒドロキノン、例えば、2,6-ジ第三ブチル-4-メトキシフェノール、2,5-ジ第三ブチルヒドロキノン、2,5-ジ第三アミルヒドロキノン、2,6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール、2,6-ジ第三ブチルヒドロキノン、2,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルステアレート、ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)アジペート。

1.4. トコフェロール、例えば、-トコフェロール、-トコフェロール、-トコフェロール、-トコフェロール及びそれらの混合物(ビタミンE)。

1.5. ヒドロキシル化チオジフェニルエーテル、例えば、2,2'-チオビス(6-第三ブチル-4-メチルフェノール)、2,2'-チオビス(4-オクチルフェノール)、4,4'-チオビス(6-第三ブチル-3-メチルフェノール)、4,4'-チオビス(6-第三ブチル-2-メチルフェノール)、4,4'-チオビス(3,6-ジ第二アミルフェノール)、4,4'-ビス(2,6-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)ジスルフィド。

1.6. アルキリデンビスフェノール、例えば、2,2'-メチレンビス(6-第三ブチル-4-メチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(6-第三ブチル-4-エチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[4-メチル-6-(1-メチルシクロヘキシル)フェノール]、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)、2,2'-メチレンビス(6-ノニル-4-メチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-第三ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ第三ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(6-第三ブチル-4-イソブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[6-(1-メチルベンジル)-4-ノニルフェノール]、2,2'-メチレンビス[6-(1,1-ジメチルベンジル)-4-ノニルフェノール]、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ第三ブチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(6-第三ブチル-2-メチルフェノール)、1,1-ビス(5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、2,6-ビス(3-第三ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェノール、1,1,3-トリス(5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、1,1-ビス(5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-3-n-ドデシルメルカプトブタン、エチレングリコールビス[3,3-ビス(3'-第三ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)ブチレート]、ビス(3-第三ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ジシクロ

10

20

30

40

50

ペンタジエン、ビス[2-(3'-第三ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-6-第三ブチル-4-メチルフェニル]テレフタレート、1,1-ビス(3,5-ジメチル-2-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-4-n-デシルメルカプトブタン、1,1,5,5-テトラ-(5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ペンタン。

1.7. ベンジル化合物、例えば、3,5,3',5'-テトラ第三ブチル-4,4'-ジヒドロキシジベンジルエーテル、オクタデシル-4-ヒドロキシ-3,5-ジメチルベンジルメルカプトアセテート、トリデシル-4-ヒドロキシ-3,5-ジ第三ブチルベンジルメルカプトアセテート、トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)アミン、1,3,5-トリ-(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2,4,6-トリメチルベンゼン、ジ-(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)スルフィド、3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル-メルカプト-酢酸イソオクチルエステル、ビス-(4-第三ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルベンジル)ジチオールテレフタレート、1,3,5-トリス-(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、1,3,5-トリス-(4-第三ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルベンジル)イソシアヌレート、3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル-リン酸ジオクタデシルエステル及び3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル-リン酸モノエチルエステル、カルシウム塩。

1.8. ヒドロキシベンジル化マロネート、例えば、ジオクタデシル-2,2-ビス(3,5-ジ第三ブチル-2-ヒドロキシベンジル)マロネート、ジ-オクタデシル-2-(3-第三ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)マロネート、ジドデシルメルカプトエチル-2,2-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート、ビス[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェニル]-2,2-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート。

1.9. 芳香族ヒドロキシベンジル化合物 例えば、1,3,5-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2,4,6-トリメチルベンゼン、1,4-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2,3,5,6-テトラメチルベンゼン、2,4,6-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)フェノール。

1.10. トリアジン化合物 例えば、2,4-ビス(オクチルメルカプト)-6-(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4,6-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4,6-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,2,3-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、1,3,5-トリス(4-第三ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルベンジル)イソシアヌレート、2,4,6-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルエチル)-1,3,5-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)-ヘキサヒドロ-1,3,5-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート。

1.11. ベンジルホスホネート、例えば、ジメチル-2,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジエチル-3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル-3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル-5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルベンジルホスホネート、3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸のモノエチルエステルのカルシウム塩。

1.12. アシリアルアミノフェノール、例えば、4-ヒドロキシラウリン酸アニリド、4-ヒドロキシステアリン酸アニリド、2,4-ビス-オクチルメルカプト-6-(3,5-

10

20

30

40

50

第三ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-s-トリアジン及びオクチル-N-(3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)カルバメート。

1.13. - (3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と以下の一価又は多価アルコールとのエステル、アルコールの例：メタノール、エタノール、n-オクタノール、i-オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペニタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン。

1.14. - (5-第三ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロピオン酸と以下の一価又は多価アルコールとのエステル、アルコールの例：メタノール、エタノール、n-オクタノール、i-オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペニタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン。

1.15. - (3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸と以下の一価又は多価アルコールとのエステル、アルコールの例：メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペニタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン。

1.16.3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸と以下の一価又は多価アルコールとのエステル、アルコールの例：メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペニタエリトリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、3-チアウンデカノール、3-チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4-ヒドロキシメチル-1-ホスファ-2,6,7-トリオキサビシクロ[2.2.2]オクタン。

1.17. - (3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸のアミド、例えば、N,N'-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミド、N,N'-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)トリメチレンジアミド、N,N'-ビス(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヒドラジド、N,N'-ビス[2-(3-[3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル]プロピオニルオキシ)エチル]オキサミド〔ユニロイヤル(Union Royal)社により提供される商標名ナウガード(Naugard)XL-1〕。

【0072】

各々の3-アリールベンゾフラノン及びヒンダードアミン光安定剤、並びに所望なフェノール系抗酸化剤は、バイオディーゼル燃料の質量に基づき、約5質量ppmないし約500質量ppm、例えば約50質量ppmないし約500質量ppm、例えば約10

10

20

30

40

50

0質量ppmないし約5000質量ppmのレベルで用いられる。例えば、各々の添加剤は、バイオディーゼル燃料の質量に基づき、約150ないし約4000質量ppm、約200ないし約3000質量ppm、又は約250ないし約2500質量ppm存在する。場合によっては、前記レベルが、バイオディーゼル燃料の質量に基づき、約1質量%、約2質量%又は約3質量%まであり得る。

【0073】

安定化されたバイオディーゼル燃料は、不安定な試料と対比してさらに高い貯蔵安定性を示す。熱、光又は酸素条件下的バイオディーゼル燃料の劣化は、カルボン酸、過酸化物、アルデヒド及びアルコールの形成が観察される。

【実施例】

【0074】

食品業界によって開発されたランシマット (Rancimat) 試験を、大豆バイオディーゼル（大豆脂肪酸のメチルエステル）の酸化安定性を試験するために採用した。大豆バイオディーゼル試料3.0gを、111.7で保持し、そして空気のバーピング流れにさらした（1時間につき10リットル）。試料容器を第2コンテナにガス抜きし、排ガスを蒸留水60mLを通して泡立たせた。前記試験は、過酸化物、アルコール、アルデヒド及びカルボン酸のような揮発性酸化分解生成物を測定した。揮発性分解生成物（主にギ酸）を、前記試料容器全体を通して押し流し、そしてそれらを第2コンテナにガス抜きして、そこで蒸留水に閉じ込められた。水の電気伝導率を、電極の使用により時間の関数として監視した。電気伝導率曲線の変曲点（具体的な値ではない）は、測定された誘導時間である。いくつかの試料は前記変曲点が得られる前に高い伝導性を示し、他のものは僅かに伝導性を示すだけであることが指摘される。誘導時間の増加は酸化安定性の増加を示す。結果を以下に表に示す。添加剤のレベルはバイオディーゼルの質量に基づき質量パーセントである。

【表1】

ランシマット (Rancimat) 誘導時間

試料	添加剤	誘導時間 (時間)
1 (対照)	無し	5.0
2	250ppmA	6.6
3	2500ppmA	8.8
4	2500ppmA	12.7

添加剤Aはビス-（1,1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル）セバケートであり、Bは3-（3,4-ジメチルフェニル）-5,7-ジ-第三ブチル-ベンゾフラノ-2-オンであった。EN14214規格を満たすために6時間の誘導時間を必要とした。

10

20

30

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2006/070139

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
INV. C10L1/02 C10L1/185 C10L1/232 C10L1/14		
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) C10L		
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		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	US 2006/201056 A1 (JORDAN FREDERICK L [US]) 14 September 2006 (2006-09-14) paragraphs [0085], [0089], [0093]; claims 1,20,23,26,27	1,10
X	US 2005/160662 A1 (JORDAN FREDERICK L [US]) 28 July 2005 (2005-07-28) paragraphs [0064], [0068], [0095], [0182], [0188]; claims 2,4,21	1,10
Y	WO 2004/044104 A (BAYER CHEMICALS AG [DE]; INGENDOH AXEL [DE]; ROTHER CHRISTIAN [DE]; HE) 27 May 2004 (2004-05-27) page 1, line 22 - page 2, line 23; claims 1-3,6,7; examples 1-10	1-10
	-/-	
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		<input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.
<p>* Special categories of cited documents :</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the International filing date but later than the priority date claimed</p> <p>"T" later document published after the International filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"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</p> <p>"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.</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the International search	Date of mailing of the International search report	
14 May 2007	21/05/2007	
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: 81 651 epo nl; Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer DE LA MORINERIE, B	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2006/070139

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	<p>WO 01/59000 A (CIBA SC HOLDING AG [CH]; TINKL MICHAEL [DE]; DOSENBACH OLIVER [DE]; NE) 16 August 2001 (2001-08-16) page 27, paragraph 2; claims 1-10,12-16 page 28, paragraphs 2,3,6 page 30, paragraphs 2,4 page 33, paragraph 6 – page 34, paragraph 1 page 40 – page 42 page 46, line 10 – line 16 page 47, line 1 – line 10</p> <p>US 4 191 682 A (LUZZI JOHN J [US] ET AL) 4 March 1980 (1980-03-04) column 4, line 17 – line 29; claims 1-3,14 column 3, line 54 – line 56</p> <p>GB 2 281 910 A (CIBA GEIGY AG [CH]) 22 March 1995 (1995-03-22) page 36, paragraphs 2,9; claims 1-12,16-18,20,21; examples 3,11 page 37, paragraphs 1,4 page 38, paragraph 6 page 39, paragraph 3 page 41, paragraph 3 page 43, paragraph 9 page 45, paragraph 3</p> <p>WO 2004/055141 A (CIBA SC HOLDING AG [CH]; SELTZER RAYMOND [US]; RAVICHANDRAN RAMANATHAN) 1 July 2004 (2004-07-01) cited in the application page 4, line 9 – line 21; claims 1-4,14,15,17,19 page 21, line 30 – page 22, line 20 page 24, line 7 – line 13</p> <p>US 5 185 448 A (ODORISIO PAUL A [US] ET AL) 9 February 1993 (1993-02-09) column 5, line 44 – line 53; claims 1,2,4-7</p>	1,2,10 1,6-9 1-5,10 1-5,8-10 1,10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2006/070139

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
US 2006201056	A1	14-09-2006	NONE		
US 2005160662	A1	28-07-2005	NONE		
WO 2004044104	A	27-05-2004	AU 2003257439 A1 EP 1563041 A1 US 2004139649 A1	03-06-2004 17-08-2005 22-07-2004	
WO 0159000	A	16-08-2001	AU 3924101 A CA 2400063 A1 JP 2003522201 T US 2003212170 A1	20-08-2001 16-08-2001 22-07-2003 13-11-2003	
US 4191682	A	04-03-1980	NONE		
GB 2281910	A	22-03-1995	AT 404941 B AT 176994 A BE 1008613 A4 BR 9403589 A CA 2132131 A1 CH 686306 A5 CN 1106809 A CN 1191229 A CZ 9402263 A3 DE 4432732 A1 ES 2112140 A1 FR 2710063 A1 HK 1005619 A1 IT MI941891 A1 JP 3023586 B2 JP 7233160 A NL 9401507 A RU 2134689 C1 SE 524984 C2 SE 9403091 A SG 52428 A1 SK 110594 A3 US 5516920 A	25-03-1999 15-08-1998 04-06-1996 16-05-1995 18-03-1995 29-02-1996 16-08-1995 26-08-1998 12-04-1995 23-03-1995 16-03-1998 24-03-1995 15-01-1999 17-03-1995 21-03-2000 05-09-1995 18-04-1995 20-08-1999 02-11-2004 18-03-1995 23-05-2000 07-06-1995 14-05-1996	
WO 2004055141	A	01-07-2004	AU 2003302176 A1 BR PI0317474 A CN 1726026 A EP 1571928 A2 JP 2006510362 T KR 20050089968 A MX PA05006544 A	09-07-2004 07-02-2006 25-01-2006 14-09-2005 30-03-2006 09-09-2005 16-08-2005	
US 5185448	A	09-02-1993	DE 69221022 D1 DE 69221022 T2 EP 0512951 A1 JP 6057033 A	04-09-1997 22-01-1998 11-11-1992 01-03-1994	

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,L,A,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100109690

弁理士 小野塚 薫

(74)代理人 100135035

弁理士 田上 明夫

(74)代理人 100131266

弁理士 高 昌宏

(74)代理人 100146237

弁理士 森 則雄

(74)代理人 100153475

弁理士 山田 清治

(72)発明者 リ, ナタリー アール.

アメリカ合衆国, ニューヨーク州 10606, ホワイト ブレーンズ, バンク ストリート アパートメント 121アイ

(72)発明者 ヒューズ, デイビッド ロイストン

アメリカ合衆国, コネティカット州 06824, フェアフィールド、スタイルソン ロード 1
203

(72)発明者 クサティス, パトリス

アメリカ合衆国, ニューヨーク州 12550, ニューバーグ, ブランディワイン クロッシング
44

(72)発明者 オレンスキ, デイビッド

アメリカ合衆国, ニューヨーク州 10579, パトナム バレー, バーガー ヒル ロード 1
2

F ターム(参考) 4H013 BA00