

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: **87108559.3**

51 Int. Cl.4: **C10L 1/18 , C10L 1/14**

22 Anmeldetag: **13.06.87**

30 Priorität: **26.06.86 DE 3621395**

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
**07.01.88 Patentblatt 88/01**

84 Benannte Vertragsstaaten:  
**AT BE CH DE ES FR GB IT LI LU NL SE**

71 Anmelder: **Ruhrchemie Aktiengesellschaft**  
**Bruchstrasse 219**  
**D-4200 Oberhausen 11(DE)**

72 Erfinder: **Payer, Wolfgang, Dr. Dipl.-Chem.**  
**Zedernweg 58**  
**D-4230 Wesel 1(DE)**

74 Vertreter: **Reichelt, Karl-Heinz, Dr.**  
**Ruhrchemie Aktiengesellschaft Abt. PLD**  
**Postfach 13 01 60**  
**D-4200 Oberhausen 11(DE)**

54 **Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten.**

57 Die Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten wird durch Zusatz einer Mischung aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat, einem oxidierten Polyethylenwachs und/oder einem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat verbessert.

**EP 0 251 002 A1**

## Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten durch Zusatz von Mischungen aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat und einem oxidierten Polyethylenwachs und/oder einem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat.

Mineralöle wie Rohöl, Dieselmotorenkraftstoff oder Heizöl enthalten Paraffin gelöst, das bei niedrigen Temperaturen auskristallisiert. Diese Feststoffablagerungen führen häufig zu Störungen bei der Gewinnung und beim Einsatz von Mineralölen. So kann z.B. die Arbeitsfähigkeit von Förder- und Transporteinrichtungen für Rohöl bis zu deren völligem Ausfall beeinträchtigt werden. Bei Dieselmotoren und Feuerungsanlagen können Verstopfungen der Filter auftreten, die schließlich in einer Unterbrechung der Kraftstoff- bzw. Heizmittelfuhr resultieren.

Um diese unerwünschte Feststoffbildung zu vermeiden, setzt man Mineralölen Additive zu, die der Entstehung von Paraffinkristallen entgegenwirken. Dadurch wird ein Anstieg der Viskosität der Öle verhindert und ihr Stockpunkt gesenkt.

Große Bedeutung als Stockpunktserniedriger und Fließverbesserer für Rohöle und Mitteldestillate haben Copolymerisate aus Ethylen und Carbonsäureestern des Vinylalkohols erlangt. Besonders bewährt haben sich unter ihnen Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate. Solche Mischpolymerisate und ihre Verwendung sind z.B. in der DE-PS 19 14 756 beschrieben. Ihre Herstellung erfolgt im allgemeinen durch Copolymerisation der Monomeren in Autoklaven bei Temperaturen von 80 bis 150°C und Drücken von 5 bis 15 MPa in Gegenwart von Peroxiden als Initiatoren und organischen Lösungsmitteln als Reaktionsmedium.

In der Praxis hat sich gezeigt, daß die Wirksamkeit dieser Copolymerisate als Fließverbesserer abhängig ist von den Eigenschaften der Mineralöle und Mineralöldestillate, deren Fließfähigkeit erhöht werden soll. Bei Mitteldestillaten z.B. wird sie u.a. beeinflusst durch den Gesamtgehalt an n-Paraffinen und den Gehalt an n-Paraffinen bestimmter Kettenlängen.

Es ist daher verständlich, daß die Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate trotz ihrer hervorragenden Eignung die Fließfähigkeit zu erhöhen, nicht immer die erwünschte Wirkung zeigen. In solchen Fällen behilft man sich dann dadurch, daß man sie in großen Mengen zusetzt oder daß man das Mineralöl oder das Mineralöldestillat mit niedrig siedenden Kohlenwasserstoffen vermischt.

Eine andere Möglichkeit, die Wirksamkeit von Fließverbesserern zu erhöhen besteht darin, Additivkombinationen einzusetzen. So werden in der DE 26 39 672 A1 Mischungen aus Polymeren mit Ethylenskelett und Copolymeren von C<sub>2</sub>-bis C<sub>50</sub>-Olefinen beschrieben, die zu einer synergistischen Verbesserung der Fließeigenschaften von Destillatkohlenwasserstoffölen in der Kälte führen können.

Nach der US 36 60 057 C1 setzt man Mischungen aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat und einem festen Kohlenwasserstoff, der frei von n-Paraffinen ist, als Fließverbesserer ein.

Als Fließverbesserer für Erdölmitteldestillate werden in der US 40 19 878 C1 Gemische offenbart, die aus einem Ethylen enthaltenden Polymerisat, Bienenwachs, Ozokerit und/oder einem langkettigen alpha-Olefin bestehen.

Obgleich die bekannten Substanzen und Substanzgemische in vielen Fällen die Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten unterschiedlicher Provenienz und Zusammensetzung bei niedrigen Temperaturen zum Teil sogar deutlich verbessert haben, fehlen dennoch Additive mit möglichst vielseitiger, im Idealfall universeller Anwendbarkeit.

Es bestand daher die Aufgabe, Additive zu finden, die gegenüber den bekannten Fließverbesserern eine noch größere Anwendungsbreite haben. Sie sollen die Fließfähigkeit auch solcher Öle erhöhen, bei denen die bekannten Additive keine oder nur geringe Wirkung zeigen.

Die vorstehend beschriebene Aufgabe wird gelöst durch ein Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten. Es ist dadurch gekennzeichnet, daß man den Mineralölen bzw. Mineralöldestillaten Mischungen aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat und einem oxidierten Polyethylenwachs und/oder einem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zusetzt.

Überraschenderweise hat sich gezeigt, daß die Kombination von Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisaten mit oxidierten Polyethylenwachsen und/oder oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisaten die Ausscheidung von Paraffinen aus Mineralölen und Mineralöldestillaten wirksam unterdrücken. Die aus bestimmten Polymerisaten bestehenden Additive wirken damit einem Ansteigen der Viskosität der Kohlenwasserstoffgemische bei sinkenden Temperaturen entgegen und setzen den Stockpunkt herab. Das neue Verfahren hat sich zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und deren Destillationsprodukten, unabhängig von ihrer qualitativen und quantitativen Zusammensetzung, bewährt.

Die erfindungsgemäß eingesetzten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate enthalten je 100 Gew.-Teile Ethylen 17 bis 70 Gew.-Teile Vinylacetat. Besonders bewährt haben sich Copolymerisate mit 33 bis 54 Gew.-Teilen Vinylacetat je 100 Gew.-Teilen Ethylen.

Ihre nach der deutschen Norm DIN 53019 in einem Rotationsviskosimeter (Hersteller: Fa. Haake) bei 140°C gemessene Viskosität beträgt 100 bis 5000 mPa • s, insbesondere 200 bis 1500 mPa • s.

Je 100 CH<sub>2</sub>-Gruppen weisen sie 1 bis 10 und vorzugsweise 2 bis 7 CH<sub>3</sub>-Gruppen in den Seitenketten auf, die nicht aus dem Acetatrest des Vinylacetats herrühren. Die Bestimmung der Anzahl CH<sub>3</sub>-Gruppen erfolgt dabei durch H-NMR-Spektroskopie.

Die Herstellung der Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate ist bekannt. Sie kann z.B. durch Polymerisation des Monomergemisches bei Drücken von 5 bis 15 MPa und Temperaturen von 70 bis 150°C in Gegenwart Radikale bildender Initiatoren erfolgen. Als Reaktionsmedium kann ein organisches Lösungs- oder Suspensionsmittel wie Toluol eingesetzt werden.

Unter der Bezeichnung oxidierte Polyethylenwachse werden Produkte verstanden, die man bei der Behandlung von Schmelzen linearer oder verzweigter Polyethylenwachse mit Luft erhält. Es handelt sich hierbei um Wachse, die im Molekül Sauerstoff-Funktionen wie Carboxyl-, Carbonyl-, Hydroxyl-Gruppen enthalten. Sie zeichnen sich vor allem durch Emulgierbarkeit in wäßrigen Medien aus. Die erfindungsgemäß eingesetzten Wachsoxidate haben Schmelzpunkte von 85 bis 135°C, nach DIN 51801 oder ASTM D 566 bestimmte Tropfpunkte von 95 bis 135°C und Dichten von 0,94 bis 1,00 g/cm<sup>3</sup>. Ihre Säurezahl, gemessen nach DIN 53402 oder ASTM D 1386, beträgt 5 bis 60 mg KOH/g, die viskosimetrisch ermittelte Molmasse ist 500 bis 10 000 g.mol<sup>-1</sup>. Bevorzugt werden oxidierte Polyethylenwachse mit Tropfpunkten von 100 bis 120°C und einer Säurezahl von 8 bis 30 mg KOH/g. Die genannten Polyethylenwachse sind handelsübliche Produkte. Sie gelangen z.B. unter der Bezeichnung "Hoechst-Wachs PED" (Hersteller: Hoechst AG) oder "Polyethylenwachs OA" (Hersteller: BASF AG) auf den Markt.

Oxidierte Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate sind die Produkte der Oxidation geschmolzener Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate mit Sauerstoff oder sauerstoffhaltigen Gasen. Ihre Herstellung ist z.B. in der DE 29 44 375 A1 beschrieben. Erfindungsgemäß setzt man oxidierte Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate ein, die Tropfpunkte von 80 bis 110°C und Säurezahlen von 5 bis 200 mg KOH/g aufweisen. Die Bestimmung des Tropfpunktes erfolgt, wie im Falle der oxidierten Polyethylenwachse, nach DIN 51801 oder ASTM D 566.

Die erfindungsgemäß zur Verbesserung der Fließfähigkeit Mineralölen und Mineralöldestillaten zugesetzten Mischungen bestehen aus zwei oder drei Komponenten. Sie enthalten stets Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate und ferner oxidierte Polyethylenwachse oder oxidierte Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisate. In einer weiteren Ausgestaltung setzt man nach der neuen Arbeitsweise Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zusammen mit oxidiertem Polyethylenwachs und oxidiertem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat ein.

Das Gewichtsverhältnis von Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zu oxidiertem Polyethylenwachs und/oder oxidiertem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat beträgt 1000 : 1 bis 1 : 10. Bevorzugt werden Mischungen, die Copolymerisat zu oxidiertes Wachs und/oder oxidiertes Copolymerisat im Gewichtsverhältnis von 100 : 1 bis 1 : 5 enthalten.

Das erfindungsgemäße Verfahren verbessert sowohl die Fließfähigkeit von Mineralölen als auch von Mineralöldestillaten. Unter dem Begriff Mineralöle werden hierbei insbesondere Rohöle und Destillationsrückstände wie schweres Heizöl verstanden. Als Mineralöldestillate werden Kohlenwasserstofffraktionen mit einer Siedetemperatur zwischen etwa 150 und 400°C bezeichnet. Hierzu gehören beispielsweise Petroleum, leichte Heizöle und Dieselkraftstoff. Von besonderer Bedeutung sind die Mitteldestillate wie Heizöl EL und Dieselkraftstoff.

Das Gemisch aus den verschiedenen Polymerisaten wird Mineralölen bzw. den Mineralöldestillaten in Form von Lösungen, die 20 bis 70 Gew.-% (bezogen auf die Lösung) der Polymerisate enthalten, zugesetzt. Als Lösungsmittel geeignet sind aliphatische oder aromatische Kohlenwasserstoffe oder Kohlenwasserstoffgemische, z.B. Benzinfractionen. Besonders geeignet ist Kerosin. Die Polymerisatmenge bezogen auf Mineralöl bzw. Mineralölfractionen soll 0,001 bis 2, vorzugsweise 0,005 bis 0,5 Gew.-% betragen.

Die Polymerisatgemische können allein oder auch zusammen mit anderen Additiven verwendet werden, z.B. mit anderen Stockpunktniedrigern oder Entwachsungshilfsmitteln, mit Korrosionsinhibitoren, Antioxidantien, Schlamminhibitoren und Zusätzen zur Erniedrigung des Cloud-Points.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird durch die nachfolgenden Beispiele näher erläutert:

Die Beispiele 1 bis 14 betreffen das erfindungsgemäße Verfahren. In den Beispielen 15 und 16 wird über Ergebnisse von Vergleichsversuchen berichtet, die bei Einsatz bekannter Fließverbesserer auf Basis eines Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisates allein und zusammen mit Bienenwachs als zweiter Komponente erhalten werden.

Die Wirksamkeit der untersuchten Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit wird an Hand des "Kalt-Filter-Verstopfungspunkt-Tests" (CFPP-Test) beschrieben. Die Durchführung des Tests erfolgt nach DIN 51428. Sie ist auch im J. of the Inst. of Petr. Bd. 52, Juni 1966, Seite 173 bis 185, publiziert.

Zur Prüfung werden vier Mitteldestillate M1, M2, M3 und M4 eingesetzt, die durch die in Tabelle 1  
5 zusammengestellten Eigenschaftswerte gekennzeichnet sind.

Tabelle 1: Kennzeichnung der Mitteldestillate

10

	M 1	M 2	M 3	M 4	
15					
	Siedeanalyse (°C)				
20					
	Siedeanfang	180	163	163	233
	5 %	202	190	191	255
	50 %	297	271	272	
	90 %	357			371
25					
	95 %		364	381	
	Siedeende	357	372	385	390
30					
	Cloud-Point (°C) (nach DIN 51597)	7	5	8	9
	CFPP-Wert (°C)	1	-2	1	5
35					
	Gehalt an n-Paraffinen (%)	39,1	32,6	26,8	47,5

40

#### Beispiele 1 - 16

In den folgenden Beispielen werden als Polymere eingesetzt:

A<sub>1</sub> ein nach dem Hochdruckverfahren synthetisiertes Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat mit 40 Gew.-Teilen  
45 Vinylacetat je 100 Gew.-Teile Ethylen und einer osmometrisch bestimmten Molmasse von 1900 g•mol<sup>-1</sup>,

A<sub>2</sub> ein nach dem Hochdruckverfahren synthetisiertes Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat mit 57,2 Gew.-  
Teilen Vinylacetat je 100 Gew.-Teile Ethylen und einer Molmasse von 2000 g•mol<sup>-1</sup>,

B ein oxidiertes Polyethylenwachs mit einem Schmelzpunkt von 107°C, einem Tropfpunkt (nach DIN  
51801) von 107°C, einer Dichte von 0,97 g/cm<sup>3</sup>, einer Säurezahl (nach DIN 53402) von 9 mg KOH/g, einer  
50 Verseifungszahl (nach DIM 53401) von 28 mg KOH/g und einer Molmasse von 2700 g•mol<sup>-1</sup>,

C ein oxidiertes Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat mit einem Schmelzpunkt von 98°C, einem Tropfpunkt  
(nach DIN 51801) von 99°C, einer Säurezahl (nach DIN 53402) von 20 mg KOH/g, einer Verseifungszahl  
(nach DIN 53401) von 86 mg KOH/g und einer Molmasse von 1900 g•mol<sup>-1</sup>,

D ein Bienenwachs.

55 Der Vinylacetatgehalt in den Polymeren A<sub>1</sub> und A<sub>2</sub> wird nach der Pyrolysemethode bestimmt. Hierzu  
werden 200 mg des Polymerisats mit 300 mg reinem Polyethylen in einem Pyrolysekolben 5 Minuten auf  
450°C erhitzt und die Spaltgase in einem 250 ml-Rundkolben aufgefangen. Die entstandene Essigsäure  
wird mit einer NaJ/KJO<sub>3</sub>-Lösung umgesetzt und das freiwerdende Jod mit Na<sub>2</sub>S<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Lösung titriert.

Tabelle 2 ist die Zusammensetzung der Polymergemische zu entnehmen, die in den Mitteldestillaten M<sub>1</sub>, bis M<sub>4</sub> als Fließverbesserer Anwendung finden. Die Polymergemische werden als Lösung in Kerosin (50 Gew.-% Polymere, bezogen auf die Lösung) eingesetzt.

Tabelle 3 schließlich enthält Angaben zur Wirksamkeit des erfindungsgemäßen Verfahrens zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten.

10

15

Tabelle 2: Zusammensetzung der Polymergemische

20

Beispiel Nr.	Polymerisat				
	A <sub>1</sub>	A <sub>2</sub>	B	C	D
1	90	-	10	-	-
2	95	-	5	-	-
3	90	-	-	10	-
4	80	-	-	20	-
5	95	-	-	5	-
6	97	-	-	3	-
7	97	-	3	-	-
8	99	-	-	1	-
9	99	-	1	-	-
10	50	-	-	50	-
11	50	-	50	-	-
12	-	90	10	-	-
13	-	90	-	10	-
14	100	-	-	-	-
15	-	100	-	-	-
16	90	-	-	-	10

50

55



**Ansprüche**

5

1.) Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mineralölen und Mineralöldestillaten, dadurch gekennzeichnet, daß man den Mineralölen bzw. Mineralöldestillaten Mischungen aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat und einem oxidierten Polyethylenwachs und/oder einem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zusetzt.

10

2.) Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat 17 bis 70, vorzugsweise 33 bis 54 Gew.-Teile Vinylacetat je 100 Gew.-Teile Ethylen enthält, eine bei 140°C gemessene Viskosität von 100 bis 5000, vorzugsweise 200 bis 1500 mPa.s besitzt und je 100 CH<sub>2</sub>-Gruppen 1 bis 10, vorzugsweise 2 bis 7 CH<sub>3</sub>-Gruppen in den Seitenketten aufweist, die nicht aus dem Acetatrest des Vinylacetats herrühren.

15

3.) Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das oxidierte Polyethylenwachs eine Molmasse von 500 bis 10000 g • mol<sup>-1</sup> besitzt, einen Schmelzpunkt von 85 bis 135°C, einen Tropfpunkt von 95 bis 135°C, vorzugsweise 100 bis 120°C, eine Dichte von 0,94 bis 1,00 g/cm<sup>3</sup> und eine Säurezahl von 5 bis 60, vorzugsweise 8 bis 30 mg KOH/g aufweist.

20

4.) Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das oxidierte Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat einen Tropfpunkt von 80 bis 110°C und eine Säurezahl von 5 bis 200 mg KOH/g besitzt.

5.) Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis von Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zu dem oxidierten Polyethylenwachs und/oder dem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat 1000 : 1 bis 1 : 10 und vorzugsweise 100 : 1 bis 1 : 5 beträgt.

25

6.) Mineralöl oder Mineralöldestillat mit verbessertem Fließverhalten, dadurch gekennzeichnet, daß es 0,001 bis 2, vorzugsweise 0,005 bis 0,5 Gew.-% (bezogen auf das Gewicht des Mineralöls bzw. Mineralöldestillates) einer Mischung aus einem Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat und einem oxidierten Polyethylenwachs und/oder einem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat enthält.

30

7.) Mineralöl oder Mineralöldestillat nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß  
-das Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat 17 bis 70, vorzugsweise 33 bis 54 Gew.-% Vinylacetat je 100 Gew.-Teile Ethylen enthält, eine bei 140°C gemessene Viskosität von 100 bis 5000, vorzugsweise 200 bis 1500 mPa • s besitzt und je 100 CH<sub>2</sub>-Gruppen 1 bis 10, vorzugsweise 2 bis 7 CH<sub>3</sub>-Gruppen in den Seitenketten aufweist, die nicht aus dem Acetatrest des Vinylacetats herrühren,

35

-das oxidierte Polyethylenwachs eine Molmasse von 500 bis 10 000 g • mol<sup>-1</sup> besitzt, einen Schmelzpunkt von 85 bis 135°C, einen Tropfpunkt von 95 bis 135°C, vorzugsweise 100 bis 120°C, eine Dichte von 0,94 bis 1,00 g/cm<sup>3</sup> und eine Säurezahl von 5 bis 60, vorzugsweise 8 bis 30 mg KOH/g aufweist

und

-das oxidierte Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat einen Tropfpunkt von 80 bis 110°C und eine Säurezahl von 5 200 mg KOH/g besitzt.

40

8.) Mineralöl oder Mineralöldestillat nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Gewichtsverhältnis von Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat zu dem oxidierten Polyethylenwachs und/oder dem oxidierten Ethylen-Vinylacetat-Copolymerisat 1000 : 1 bis 1 : 10, vorzugsweise 100 : 1 bis 1 : 5 beträgt.

45

50

55



EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)
A	US-A-3 388 977 (BURKARD et al.) * Insgesamt *	1-3,5- 8	C 10 L 1/18 C 10 L 1/14
P, Y	EP-A-0 190 553 (RUHRCHEMIE AG) * Insgesamt *	1-4,6, 7	
Y	DE-A-1 914 756 (ESSO) * Anspruch; Seite 7, Zeilen 18-23 *	1-4,6, 7	
Y	DE-A-2 944 375 (HOECHST) * Anspruch; Seite 8, Zeile 25 - Seite 9, Zeile 4 *	1-4,6, 7	
A	GB-A-1 101 039 (ESSO) * Insgesamt *	1,2,6, 7	C 10 L
A	US-A-3 961 916 (ILNYCKYJ et al.) * Anspruch *	1,2,6, 7	
A	US-A-4 019 878 (WISOTSKY) * Insgesamt *	1,6	
	--- -/-		
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 30-09-1987	Prüfer DE LA MORINERIE B.M.
<p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet  Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie  A : technologischer Hintergrund  O : nichtschriftliche Offenbarung  P : Zwischenliteratur  T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</p> <p>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  D : in der Anmeldung angeführtes Dokument  L : aus andern Gründen angeführtes Dokument  &amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			



EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl. 4)
A	US-A-3 250 599 (KIRK et al.) * Insgesamt *	1,6	
A	DE-A-1 570 884 (LUBRIZOL) * Anspruch; Seite 3, Zeile 21 - Seite 4, Zeile 12; Seite 18, Zeile 14 - Seite 19, Zeile 5 *	1,3,4, 6,7	
A	US-A-2 875 029 (MCREYNOLDS) * Spalte 1, Zeilen 1-61 *	1,6	
A	US-A-3 454 379 (ISAACSON et al.) * Insgesamt *	1,6	
			RECHERCHIERTES SACHGEBIETE (Int. Cl. 4)
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort DEN HAAG		Abschlußdatum der Recherche 30-09-1987	Prüfer DE LA MORINERIE B.M.
<p>KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE</p> <p>X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet  Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie  A : technologischer Hintergrund  O : nichtschriftliche Offenbarung  P : Zwischenliteratur  T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze</p> <p>E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  D : in der Anmeldung angeführtes Dokument  L : aus andern Gründen angeführtes Dokument  &amp; : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument</p>			