

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2013 年 10 月 3 日(03.10.2013)



(10) 国際公開番号

WO 2013/147182 A1

- (51) 国際特許分類:
C08F 8/42 (2006.01) C10N 30/06 (2006.01)
C10M 155/00 (2006.01) C10N 40/04 (2006.01)
C10N 20/04 (2006.01) C10N 40/08 (2006.01)
C10N 30/04 (2006.01) C10N 40/25 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/059588
- (22) 国際出願日: 2013 年 3 月 29 日(29.03.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2012-076720 2012 年 3 月 29 日(29.03.2012) JP
- (71) 出願人: J X 日鉱日石エネルギー株式会社(JX NIPPON OIL & ENERGY CORPORATION) [JP/JP];
〒1008162 東京都千代田区大手町二丁目 6 番 3 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 田川 一生(TAGAWA Kazuo); 〒1008162
東京都千代田区大手町二丁目 6 番 3 号 J X 日
鉱日石エネルギー株式会社内 Tokyo (JP). 阿部
紀子(ABE Noriko); 〒1008162 東京都千代田区大手

町二丁目 6 番 3 号 J X 日鉱日石エネルギー株
式会社内 Tokyo (JP). 遠藤 美帆(ENDOU Miho);
〒1008162 東京都千代田区大手町二丁目 6 番 3
号 J X 日鉱日石エネルギー株式会社内 Tokyo
(JP). 上野 龍一(UENO Ryuichi); 〒1008162 東京都
千代田区大手町二丁目 6 番 3 号 J X 日鉱日石
エネルギー株式会社内 Tokyo (JP).

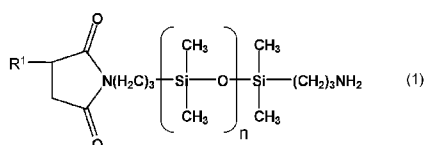
(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et
al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目 1 番
1 号丸の内 MY PLAZA (明治安田生命
ビル) 9 階 創英国際特許法律事務所 Tokyo
(JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,
CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES,
FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN,
IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS,
LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,
MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH,
PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

[続葉有]

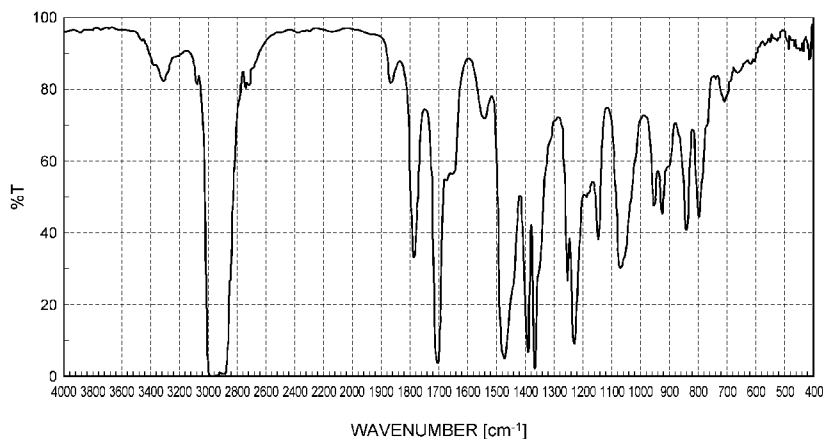
(54) Title: SUCCINIMIDE COMPOUND, LUBRICATING OIL ADDITIVE, AND LUBRICATING OIL COMPOSITION

(54) 発明の名称: コハク酸イミド化合物、潤滑油添加剤および潤滑油組成物



(57) Abstract: Provided is a succinimide compound represented by general formula (1). [In formula (1), R' denotes an alkyl group having a number average molecular weight of not less than 500 but less than 5000 or an alkenyl group having a number average molecular weight of not less than 500 but less than 5000, and n is an integer between 1 and 3.]

(57) 要約: 下記一般式 (1) で表されるコハク酸イミド化合物。[式 (1) 中、R' は数平均分子量 500 以上 5000 未満のアルキル基又は数平均分子量 500 以上 5000 未満のアルケニル基を示し、n は 1 ~ 3 の整数を示す。]



WO 2013/147182 A1



SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI,

FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

コハク酸イミド化合物、潤滑油添加剤および潤滑油組成物

技術分野

[0001] 本発明は、新規なコハク酸イミド化合物、並びに該化合物を含有した潤滑油添加剤及び潤滑油組成物に関する。

背景技術

[0002] コハク酸イミド化合物は、ガソリンエンジン油やディーゼルエンジン油などの内燃機関用潤滑油の分野において、生成する不溶解分を油中に分散させる無灰分散剤として用いられている。一方、コハク酸イミド化合物は、自動変速機などの駆動系潤滑油の分野において、摩擦力を高める摩擦調整剤として使用されている。

[0003] 従来のコハク酸イミド化合物としては、高分子量のアルケニルもしくはアルキル基で置換されたコハク酸無水物と、ポリアルキレンポリアミンとの反応により得られるコハク酸イミド化合物などが知られている（下記特許文献1～3を参照。）また、置換コハク酸イミドの製造方法として、マレイミド化合物及びケイ素エノラートを反応させる方法が知られている（下記特許文献4を参照。）

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2005-146148号公報

特許文献2：特開平10-265793号公報

特許文献3：特開平10-219269号公報

特許文献4：特開平2007-238524号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

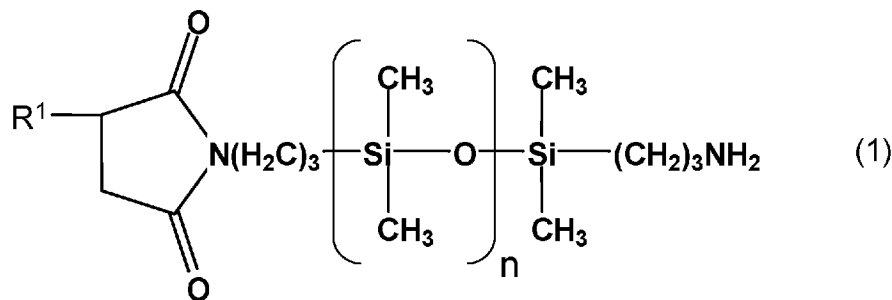
[0005] 本発明は、内燃機関用潤滑油における無灰分散剤、駆動系潤滑油における

摩擦調整剤などの用途に有用な新規なコハク酸イミド化合物、並びに該化合物を含有した潤滑油添加剤及び潤滑油組成物を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決するために、本発明は、下記一般式（１）で表されるコハク酸イミド化合物を提供する。

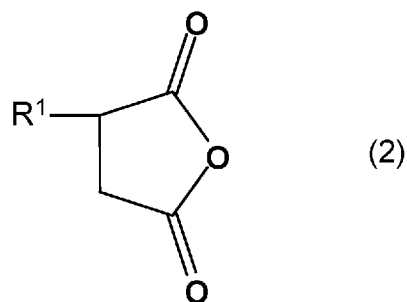
[化1]



〔式（１）中、 R^1 は数平均分子量５００以上５０００未満のアルキル基又は数平均分子量５００以上５０００未満のアルケニル基を示し、 n は１～３の整数を示す。〕

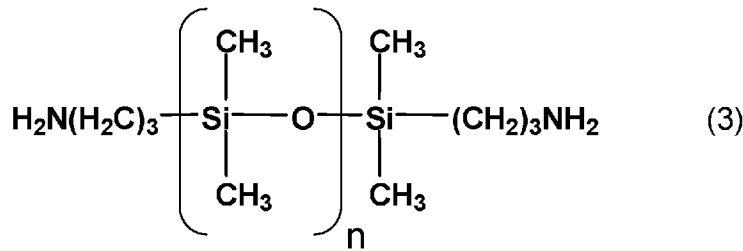
[0007] また、本発明は、下記一般式（２）で表される化合物と、下記一般式（３）で表される化合物との反応により得られるコハク酸イミド化合物を提供する。

[化2]



〔式（２）中、 R^1 は数平均分子量５００以上５０００未満のアルキル基又は数平均分子量５００以上５０００未満のアルケニル基を示す。〕

[化3]



[式(3)中、nは1～3の整数を示す。]

[0008] 本発明のコハク酸イミド化合物は、従来のコハク酸イミド化合物と比較して、非常に優れた特性を有するため、内燃機関用潤滑油における無灰分散剤、駆動装置用潤滑油における摩擦調整剤などの用途に有用である。

[0009] 例えば、近時、駆動系潤滑油では、燃費効率向上の観点から自動変速機内部での摩擦力を効率よく駆動力に転換するために、従来以上の高い摩擦係数が求められている。しかし、上記の特許文献1～3に記載されているような従来のコハク酸イミド化合物を用いた場合には、十分な摩擦特性向上効果を得ることができなかった。なお、この原因としては、従来のコハク酸イミド化合物の場合、コハク酸イミド化合物自体の摩擦特性向上効果が不十分であることに加えて、コハク酸イミドの量を増やすと金属表面への吸着性が変化してその他の添加剤のバランスを崩してしまい、結果として摩擦特性を悪化させてしまうことが考えられる。

[0010] それに対して、本発明のコハク酸イミド化合物は、従来のコハク酸イミド化合物と比較して、摩擦特性向上効果に優れるため、自動変速機内部での摩擦力を効率よく駆動力に転換するための高い摩擦係数を達成することができ、燃費効率を向上させることができる。

[0011] また、本発明は、上記本発明のコハク酸イミド化合物を含有する潤滑油添加剤を提供する。

[0012] また、本発明は、潤滑油基油と、上記本発明のコハク酸イミド化合物とを含有する潤滑油組成物を提供する。

[0013] また、本発明は、潤滑油基油と、上記本発明のコハク酸イミド化合物とを含有する無段変速機用潤滑油組成物を提供する。

[0014] 本発明の潤滑油組成物は、リン化合物をさらに含有することが好ましい。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、内燃機関用潤滑油における無灰分散剤、駆動系潤滑油における摩擦調整剤などの用途に有用な新規なコハク酸イミド化合物、並びに該化合物を含有した潤滑油添加剤及び潤滑油組成物を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]実施例1で得られたコハク酸イミド化合物のIRチャートを示す図である。

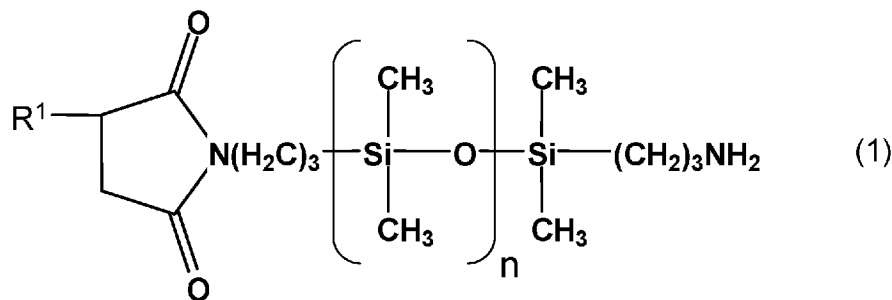
発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明の好適な実施形態について詳細に説明する。

[0018] [第1実施形態；コハク酸イミド化合物]

本発明の第1実施形態に係るコハク酸イミド化合物は、下記式(1)で表される構造を有する。

[化4]



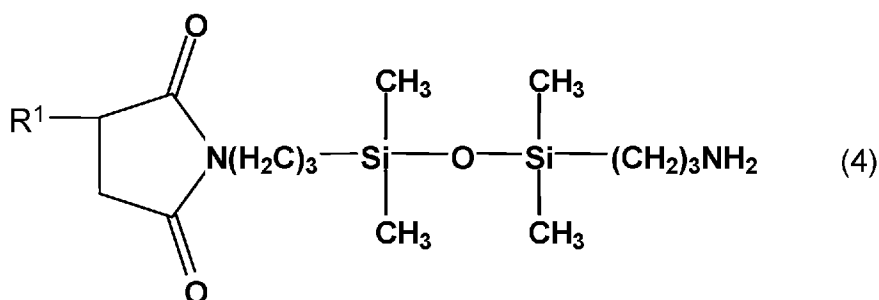
[0019] 一般式(1)中の R^1 としては、ポリブテニル基、ポリイソブテニル基が好ましい。また、数平均分子量は、500以上5000未満であり、好ましくは700～4000、より好ましくは800～3500である。

[0020] また、一般式(1)中の n は1～3の整数であり、好ましくは1～2の整数、より好ましくは1である。 n が上記上限値を超えると基油に対する溶解性が低下する傾向にある。

[0021] 一般式(1)で表されるコハク酸イミド化合物の好ましい例として、以下

の化合物が挙げられる。

[化5]



[式(4)中、 R^1 は数平均分子量500以上5000未満のアルキル基又は数平均分子量500以上5000未満のアルケニル基を示す。]

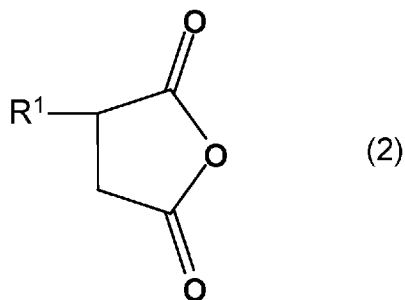
[0022] 一般式(1)で表されるコハク酸イミド化合物は、ホウ素化せずにそのまま(すなわち非ホウ素化コハク酸イミド化合物として)用いてもよく、あるいはホウ素化コハク酸イミド化合物として用いてもよい。さらに、ホウ素化コハク酸イミド化合物と非ホウ素化コハク酸イミド化合物とを組み合わせ用いてもよい。

[0023] ホウ素化コハク酸イミド化合物は、式(1)で表されるコハク酸イミド化合物に対し、ホウ素含有化合物を、通常50～250℃、好ましくは100～200℃の温度で反応させることにより得ることができる。ホウ素含有化合物としては、酸化ホウ素、ハロゲン化ホウ素、ホウ酸、ホウ酸無水物およびホウ酸エステルなどが挙げられる。これらのホウ素含有化合物は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0024] [第2実施形態：コハク酸イミド化合物]

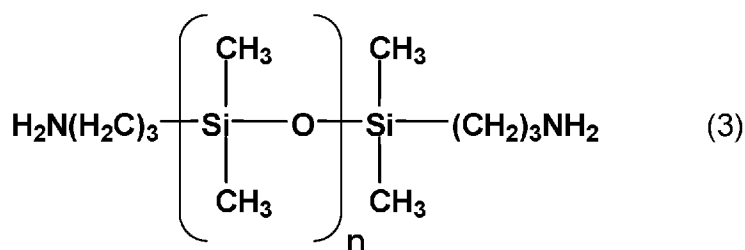
本発明の第2実施形態に係るコハク酸イミド化合物は、下記一般式(2)で表される化合物と、下記一般式(3)で表される化合物との反応により得られるコハク酸イミド化合物である。

[化6]



[式(2)中、R¹は数平均分子量500以上5000未満のアルキル基又は数平均分子量500以上5000未満のアルケニル基を示す。]

[化7]

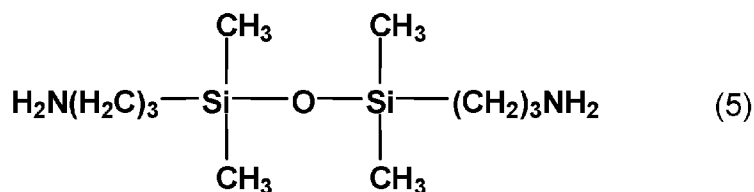


[式(3)中、nは1～3の整数を示す。]

[0025] 一般式(2)中のR¹並びに一般式(3)中のnは、それぞれ一般式(1)中のR¹並びにnと同一の定義内容を示す。これらの好ましい態様も一般式(1)の場合と同様であり、ここでは重複する説明を省略する。

[0026] 上記一般式(3)で示される化合物の具体例としては、下記式(5)で表される1,3-ビス(3-アミノプロピル)テトラメチルジシロキサンが例示出来る。

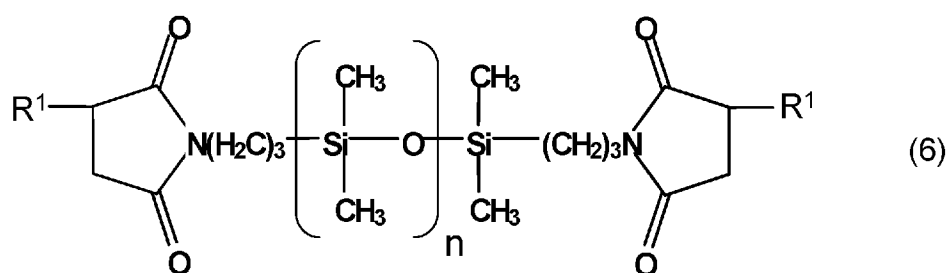
[化8]



[0027] 一般式(2)で表される化合物と一般式(3)で表される化合物との反応においては、通常、上記一般式(1)で表されるコハク酸イミド化合物が主生成物として得られる。また、一般式(3)で表される化合物の反応部位は

2箇所あるため、原料化合物の仕込み比（モル比）によっては、反応生成物中に一般式（3）で表される化合物1当量に対して一般式（2）で表される化合物が2当量反応した下記一般式（6）で表される副生成物が存在し得る。本実施形態においては、反応生成物から上記の副生成物を除去し、一般式（1）で表されるコハク酸イミド化合物のみを潤滑油添加剤として用いてもよく、あるいは、一般式（1）で表されるコハク酸イミド化合物と上記の副生成物との混合物を潤滑油添加剤として用いても良い。

[化9]



[式（6）中、R¹は数平均分子量500以上5000未満のアルキル基又は数平均分子量500以上5000未満のアルケニル基を示し、nは1～3の整数を示す。]

[0028] また、一般式（2）で表される化合物及び一般式（3）で表される化合物の仕込み比を適宜選定することによって、反応生成物中の一般式（1）で表されるコハク酸イミド化合物の割合を調整することが可能である。一般式（1）で表されるコハク酸イミド化合物をより確実に得ることができる点から、両者の仕込み比は、一般式（2）で表される化合物1molに対して、一般式（3）で表される化合物が、好ましくは1～2mol、より好ましくは1～1.8mol、さらに好ましくは1.1～1.6mol、特に好ましくは1.2～1.5molである。

[0029] 一般式（2）で表される化合物と一般式（3）で表される化合物との反応条件は特に制限されないが、反応温度は145～180℃、好ましくは155～175℃であり、反応時間は6～12、好ましくは8～10時間である。

必要に応じて反応溶媒を用いることが出来、溶媒としては、一般式（５）で表される化合物と一般式（６）で表される化合物を溶解するものが好ましく、具体的には有機溶媒であり、エタノール、トルエン、キシレン類などが例示できる。

[0030] 本実施形態に係るコハク酸イミド化合物は、ホウ素化せずにそのまま（すなわち非ホウ素化コハク酸イミド化合物として）用いてもよく、あるいはホウ素化コハク酸イミド化合物として用いてもよい。さらに、ホウ素化コハク酸イミド化合物と非ホウ素化コハク酸イミド化合物とを組み合わせ用いてもよい。

[0031] ホウ素化コハク酸イミド化合物は、式（１）で表されるコハク酸イミド化合物に対し、ホウ素含有化合物を、通常５０～２５０℃、好ましくは１００～２００℃の温度で反応させることにより得ることができる。ホウ素含有化合物としては、酸化ホウ素、ハロゲン化ホウ素、ホウ酸、ホウ酸無水物およびホウ酸エステルなどが挙げられる。これらのホウ素含有化合物は、１種を単独で用いてもよく、２種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0032] [第３実施形態：潤滑油添加剤]

本実施形態に係る潤滑油添加剤は、上記の第１実施形態又は第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物を含有する。当該潤滑油添加剤は、第１実施形態又は第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物のみからなるものであってもよく、第１実施形態又は第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物と他の添加剤との混合物であってもよい。また、当該潤滑油添加剤は、添加剤を溶解するための希釈剤をさらに含有してもよい。

[0033] 第１実施形態及び第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物は、潤滑油分野に用いられる各種添加剤との適合性に優れている。そのため、本実施形態に係る潤滑油添加剤が第１実施形態又は第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物と他の添加剤との混合物である場合、併用される他の添加剤の種類は特に制限されず、第１実施形態又は第２実施形態に係るコハク酸イミド化合物と併用される他の添加剤の種類並びに両者の配合量は、潤滑油添加剤の用

途・目的に応じて適宜選定することができる。併用される他の添加剤の具体例は後述する。

[0034] [第4実施形態：潤滑油組成物]

本発明の第4実施形態に係る潤滑油組成物は、潤滑油基油と、上記第1実施形態又は第2実施形態に係るコハク酸イミド化合物とを含有する。なお、当該潤滑油組成物には、潤滑油基油と、上記第3実施形態に係る潤滑油添加剤とを含有する態様が包含される。

[0035] 潤滑油基油としては特に制限されず、鉱油および合成油のいずれも使用することができる。鉱油としては、従来公知の種々のものが使用可能であり、例えば、パラフィン系鉱油、中間系鉱油、ナフテン系鉱油などが挙げられる。具体的には、溶剤精製または水素精製による軽質ニュートラル油、中間ニュートラル油、重質ニュートラル油またはブライトストックなどを挙げることができる。また、ワックスを異性化したGTL基油などを用いてもよく、精製度が上がるほどその効果は高くなる。

[0036] また、合成油としては、同様に従来公知の種々のものが使用可能である。例えば、ポリ α -オレフィン（ α -オレフィン共重合体を含む）、ポリブテン、ポリオールエステル、二塩基酸エステル、リン酸エステル、ポリフェニルエーテル、アルキルベンゼン、アルキルナフタレン、ポリオキシアルキレングリコール、ネオペンチルグリコール、シリコンオイル、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、さらにはヒンダードエステルなどを用いることができる。

[0037] これらの潤滑油基油は、1種を単独で、あるいは2種以上を組み合わせ使用することができ、鉱油と合成油とを組み合わせ使用してもよい。

[0038] 潤滑油基油の動粘度は、潤滑油組成物の用途・目的に応じて適宜選定することができる。例えば、本実施形態に係る潤滑油組成物を駆動系潤滑油として用いる場合、潤滑油基油の100℃における動粘度は、好ましくは1～30 mm²/s、より好ましくは2～20 mm²/s、さらに好ましくは3～10 mm²/sである。100℃における動粘度が上記範囲にあると、自動変速

機のギア軸受けやクラッチなどの摺動部における摩擦を十分に低減し得ると共に低温特性も良好となる。一方、 100°C における動粘度が $30\text{ mm}^2/\text{s}$ を超えると、燃費が悪化し、また低温粘度が高くなりすぎる傾向にある。また、 100°C における動粘度が $1\text{ mm}^2/\text{s}$ 未満であると、自動変速機のギア軸受けやクラッチ等の摺動部において摩耗量が増加するなど潤滑性能が低下したり、蒸発性が高くなり潤滑油消費量が多くなるおそれがある。

[0039] また、潤滑油基油の%CAは、低温特性の点から、20以下であるものが好ましく、特に10以下であることがより好ましい。

[0040] 本実施形態に係る潤滑油組成物において、式(1)で表されるコハク酸イミド化合物の含有量は、その添加効果を有効に発揮し得る点から、好ましくは0.01～30質量%、より好ましくは0.05～20質量%、さらに好ましくは0.1～10質量%である。

[0041] 本実施形態に係る潤滑油組成物は、その性能をさらに向上させる目的で、必要に応じて、第1実施形態又は第2実施形態に係るコハク酸イミド化合物以外の添加剤をさらに含有することができる。当該添加剤としては、式(1)で表されるコハク酸イミド化合物以外の無灰分散剤及び／又は摩擦調整剤、金属系清浄剤、粘度指数向上剤、極圧添加剤、酸化防止剤、腐食防止剤、消泡剤、着色剤等が挙げられる。これらの添加剤は、1種を単独で、または2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0042] 第1実施形態又は第2実施形態に係るコハク酸イミド化合物以外の無灰分散剤及び／又は摩擦調整剤としては、脂肪酸エステル、脂肪酸アミド、または、リン酸エステル、亜リン酸エステル、チオリン酸エステルなどのリン化合物、MODTP、MODTCなどの有機モリブデン化合物、ZnDTPなどの有機亜鉛化合物、アルキルメルカプチルボレートなどの有機ホウ素化合物、グラファイト、二硫化モリブデン、硫化アンチモン、ホウ素化合物、ポリテトラフルオロエチレンなどの固体潤滑剤系摩擦調整剤などが挙げられ、これら中でも、リン化合物が好ましい。無灰分散剤及び／又は摩擦調整剤の含有量は、潤滑油組成物全量を基準として、通常0.1～10質量%である。

- [0043] 酸化防止剤としては、例えばアルキル化ジフェニルアミン、フェニル- α -ナフチルアミン、アルキル化- α -ナフチルアミンなどのアミン系酸化防止剤、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-*t*-ブチルフェノール)などのフェノール系酸化防止剤などが挙げられる。酸化防止剤の含有量は、潤滑油組成物全量を基準として、通常0.05～5質量%である。
- [0044] 金属系清浄剤としては、例えば、カルシウムスルホネート、マグネシウムスルホネート、バリウムスルホネート、カルシウムサリチレート、マグネシウムサリチレート、カルシウムフェネート、バリウムフェネートなどが挙げられ、金属系清浄剤の含有量は、潤滑油組成物全量を基準として、通常0.1～10質量%である。
- [0045] 粘度指数向上剤としては、例えばポリメタクリレート系、ポリイソブテン系、エチレン-プロピレン共重合体系、スチレン-ブタジエン水添共重合体系のものが挙げられる。粘度指数向上剤の含有量は、潤滑油組成物全量を基準として、通常0.5～35質量%である。
- [0046] 本実施形態に係る潤滑油組成物の用途は特に制限されず、内燃機関用潤滑油、駆動系潤滑油等の幅広い分野で 사용할 ことができる。例えば、本実施形態に係る潤滑油組成物は、潤滑式(1)で表されるコハク酸イミド化合物を含有するため、従来のコハク酸イミド化合物と比較して、高い静摩擦係数(高い湿式摩擦材トルク容量)を達成することができ、自動変速機油や無段変速機油として好適である。また湿式クラッチ、湿式ブレーキを有する変速機を備えた建設機械や農機、手動変速機、二輪車ガソリンエンジン、ディーゼルエンジン、ガスエンジン、ショックアブソーバー油等の潤滑油として用いることができる。

実施例

- [0047] 以下、実施例及び比較例に基づき本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に何ら限定されるものではない。
- [0048] [実施例1；コハク酸イミド化合物I-aの合成]

2000 mLのオートクレーブに、ポリイソブテン（数平均分子量1000）1.0 molと、無水マレイン酸1.0 molとを入れ、1.5時間かけて220℃まで昇温させ、220℃に達してから4時間反応させた。反応終了後、得られた生成物にn-ヘキサンを加え攪拌し、その液をろ過して不溶解分を取り除いた。ろ液を常圧蒸留でn-ヘキサンを除去後、減圧下220℃で無水マレイン酸を除去し、マレイン化ポリイソブテンを得た。

合成装置を組み、300 mLの4口フラスコに1, 3-ビス(3-アミノプロピル)テトラメチルジシロキサン7.40 gをはかりとり、系を窒素置換した。200 mLナスフラスコにマレイン化ポリイソブテンを30.0 gをはかりとり、80 mLのo-キシレンを加えて湯浴で溶かし、滴下ロート部分に入れた。また、4口フラスコに20 mLのo-キシレンを入れた。

145℃まで昇温し、300 rpmにて滴下を開始した。その後30分間で155℃に温度を上げ、更に1時間かけて165℃に温度を上げ、3時間で滴下終了した。IR測定より反応が進行していることを確認し、4時間後に反応を終了した。反応液はうすい黄色であった。

生成物をエバポレータにて減圧蒸留した。生成物35.8 gを得た。IR及びGPC分析により、得られた生成物が、一般式(1)で表され、R¹が数平均分子量1000のポリイソブテニル基であり、n=1であるコハク酸イミド化合物（以下、「コハク酸イミド化合物I-a」という。）であることを確認した。生成物のIRチャートを図1に示す。

[0049] [実施例2；コハク酸イミド化合物I-bの合成]

2000 mLのオートクレーブに、ポリイソブテン（数平均分子量2300）1.0 molと、無水マレイン酸1.0 molとを入れ、1.5時間かけて220℃まで昇温させ、220℃に達してから4時間反応させた。反応終了後、得られた生成物にn-ヘキサンを加え攪拌し、その液をろ過して不溶解分を取り除いた。ろ液を常圧蒸留でn-ヘキサンを除去後、減圧下220℃で無水マレイン酸を除去し、マレイン化ポリイソブテンを得た。

合成装置を組み、300 mLの4口フラスコに1, 3-ビス(3-アミノプロ

ロピル)テトラメチルジシロキサン 3.70 gをはかりとり、系を窒素置換した。200 mLナスフラスコにマレイン化ポリイソブテンを30.0 gをはかりとり、80 mLの α -キシレンを加えて湯浴で溶かし、滴下ロート部分に入れた。また、4口フラスコに20 mLの α -キシレンを入れた。

145℃まで昇温し、300 rpmにて滴下を開始した。その後30分間で155℃に温度を上げ、更に1時間かけて165℃に温度を上げ、3時間で滴下終了した。IR測定より反応が進行していることを確認し、4時間後に反応を終了した。反応液はうすい黄色であった。

生成物をエバポレータにて減圧蒸留した。生成物32.4 gを得た。IR及びGPC分析により、得られた生成物が、一般式(1)で表され、 R^1 が数平均分子量2300のポリイソブテニル基であり、 $n=1$ であるコハク酸イミド化合物(以下、「コハク酸イミド化合物I-b」という。)であることを確認した。

[0050] [比較例1；コハク酸イミド化合物Iの合成]

2000 mLのオートクレーブに、ポリイソブテン(数平均分子量1000) 1.0 molと、無水マレイン酸1.0 molとを入れ、1.5時間かけて220℃まで昇温させ、220℃に達してから4時間反応させた。反応終了後、得られた生成物に n -ヘキサンを加え攪拌し、その液をろ過してスラッジを取り除いた。ろ液を常圧蒸留で n -ヘキサンを除去後、減圧下220℃で無水マレイン酸を除去し、マレイン化ポリイソブテンを得た。

2 Lセパラブルフラスコに、ジエチレントリアミン1.7 mol、キシレンを入れた。次に、キシレンに溶解させた得られたマレイン化ポリブテン0.17 molを滴下させながら、145～155℃で11時間反応させた。反応終了後、常圧蒸留で溶媒を除去し、減圧蒸留で残留ジエチレントリアミンを除去し、コハク酸イミド化合物Iを得た。

[0051] [実施例3～8、比較例2～4；潤滑油組成物の調製及び評価試験]

実施例3～8においては、それぞれ、潤滑油基油としてのSAE 10留分(100℃動粘度4.1 mm²/s)の鉱油、コハク酸イミド化合物I-a又

は 1ーb 並びに以下に示す添加剤を用いて、表 1 に示す組成を有する潤滑油組成物を調製した。

比較例 2、3 においては、それぞれ、潤滑油基油としての SAE 10 留分（100℃動粘度 4.1 mm²/s）の鉱油、コハク酸イミド化合物 11 並びに以下に示す添加剤を用いて、表 2 に示す組成を有する潤滑油組成物を調製した。また、比較例 4 においては、潤滑油基油としての SAE 10 留分（100℃動粘度 4.1 mm²/s）の鉱油及び以下に示す添加剤を用いて、表 2 に示す組成を有する潤滑油組成物を調製した。

ポリメタクリレート：平均分子量 20,000

アミン系酸化防止剤：ジフェニルアミン

トリクレジルホスフェート

カルシウムスルホネート：300 TBN

無灰系油性剤：グリセリンモノオレート

[0052] 次に、実施例 3～8 及び比較例 2～4 の潤滑油組成物について、LFW-1 試験機を用いて金属間摩擦係数を評価した。試験条件は面圧 0.8 GPa、すべり速度 0.2 m/s、試験温度 80℃で、試験時間 1 時間とし、時間内の摩擦係数を平均化した平均摩擦係数で評価した。得られた結果を表 1～2 に示す。

[0053] [表1]

		実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8
組成 (質量%)	基油 SAE10	残部	残部	残部	残部	残部	残部
	ポリメタクリレート	4	4	4	4	4	4
	アミン系酸化防止剤	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25	0.25
	トリクレジルホスフェート	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
	カルシウムスルホネート	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
	無灰系油性剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
	コハク酸イミド I-a (PIB:1000)	0.5	2.0	4.0	—	—	—
	コハク酸イミド I-b (PIB:2300)	—	—	—	0.5	2.0	4.0
評価試験	金属間摩擦係数 (LFW-1 平均摩擦係数)	0.125	0.131	0.134	0.127	0.131	0.133

[0054]

[表2]

		比較例 2	比較例 3	比較例 4
組成 (質量%)	基油 SAE10	残部	残部	残部
	ポリメタクリレート	4	4	4
	アミン系酸化防止剤	0.25	0.25	0.25
	トリクレジルフォスフェート	0.9	0.9	0.9
	カルシウムスルホネート	0.3	0.3	0.3
	無灰系油性剤	0.1	0.1	0.1
	コハク酸イミド II	1.4	2.8	—
評価試験	金属間摩擦係数 (LFW-1 平均摩擦係数)	0.122	0.126	0.103

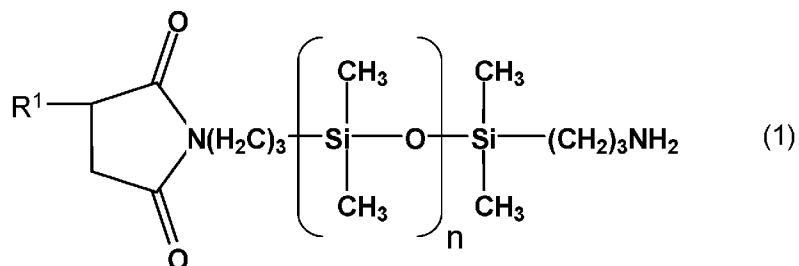
産業上の利用可能性

[0055] 本発明のコハク酸イミド化合物、潤滑油添加剤及び潤滑油組成物は、幅広い潤滑油分野で使用可能であり、特に、高い静摩擦係数が必要とされる自動変速機油や無段変速機油として好適である。

請求の範囲

[請求項1] 下記一般式（１）で表されるコハク酸イミド化合物。

[化1]



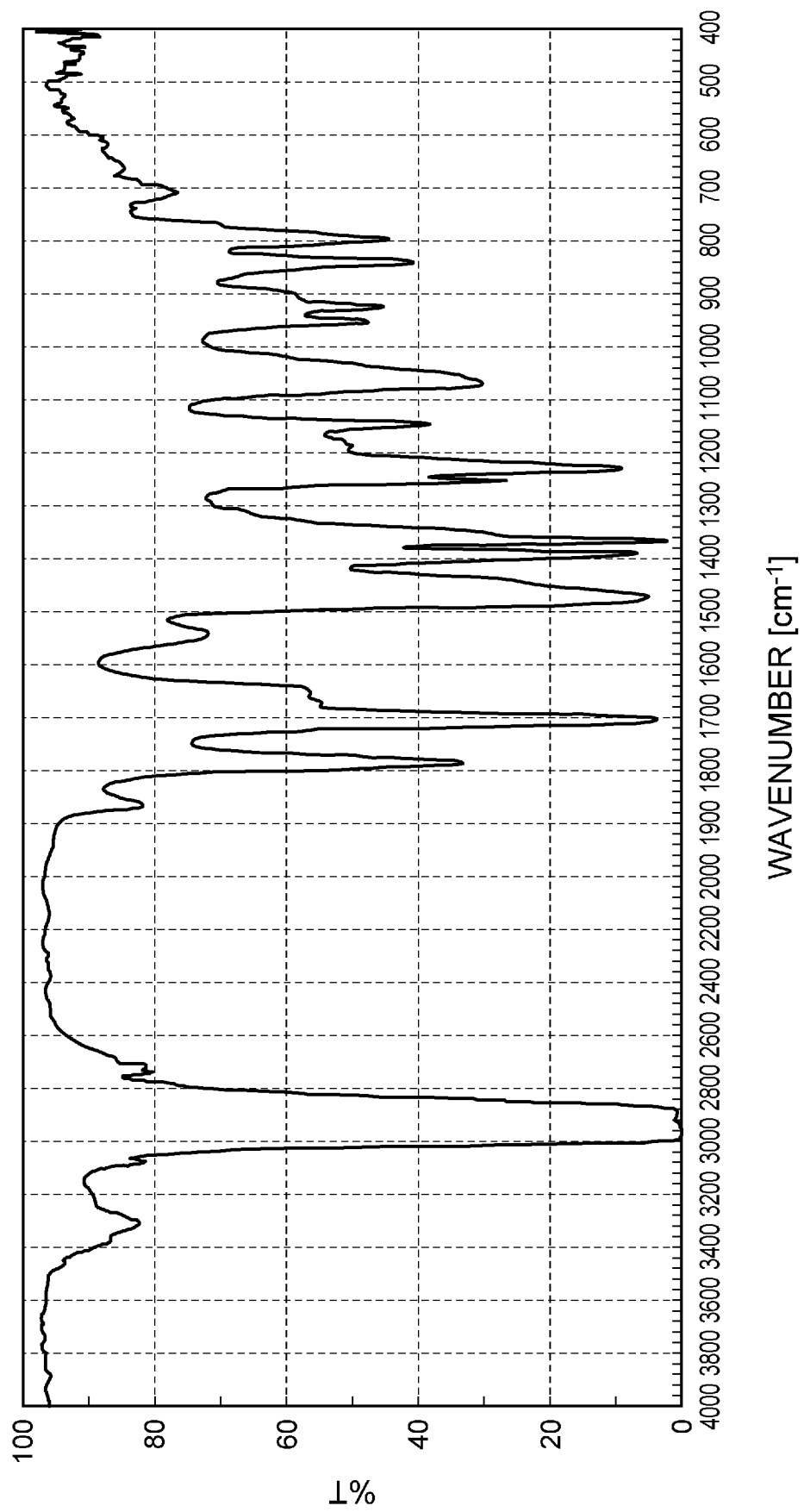
[式（１）中、 R^1 は数平均分子量５００以上５０００未満のアルキル基又は数平均分子量５００以上５０００未満のアルケニル基を示し、 n は１～３の整数を示す。]

[請求項2] 請求項１に記載のコハク酸イミド化合物を含有する潤滑油添加剤。

[請求項3] 潤滑油基油と、請求項１に記載のコハク酸イミド化合物とを含有する潤滑油組成物。

[請求項4] 潤滑油基油と、請求項１に記載のコハク酸イミド化合物とを含有する無段変速機用潤滑油組成物。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/059588

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08F8/42(2006.01)i, C10M155/00(2006.01)i, C10N20/04(2006.01)n, C10N30/04(2006.01)n, C10N30/06(2006.01)n, C10N40/04(2006.01)n, C10N40/08(2006.01)n, C10N40/25(2006.01)n

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)

C08F8/42, C10M155/00, C10N20/04, C10N30/04, C10N30/06, C10N40/04, C10N40/08, C10N40/25

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2005/123789 A1 (BASF AG), 29 December 2005 (29.12.2005), claims 1 to 12; examples & DE 102004029467 A	1-4
A	N. T. McManus, et al., Grafting of ethylene-ethyl acrylate-maleic anhydride terpolymer with amino-terminated polydimethyl-siloxane during reactive processing, Journal of applied polymer science, 2006, Vol.101, No.6, p.4230-4237	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"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

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 June, 2013 (12.06.13)

Date of mailing of the international search report
25 June, 2013 (25.06.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/059588

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-166715 A (BP Chemicals Ltd.), 14 June 1994 (14.06.1994), claims 1 to 8; examples 4, 12 & GB 9219092 D & GB 9225999 D & GB 9304084 D & EP 587381 A1 & BR 9303734 A & HU 66143 A & CA 2105720 A & CN 1090586 A	1-4
A	JP 52-150495 A (Texaco Development Corp.), 14 December 1977 (14.12.1977), claims 1 to 17; examples & US 4048080 A & US 4098585 A & GB 1531945 A & DE 2724297 A & FR 2354346 A & BE 855474 A & NL 7706193 A & AU 2572777 A & PT 66643 A & SE 7706560 A & ES 459534 A & BR 7703677 A & CA 1089434 A & IT 1080556 B & CA 1085410 A	1-4
A	JP 53-112995 A (Shell Internationale Research Maatschappij B.V.), 02 October 1978 (02.10.1978), claims 1 to 13; examples 1, 2 & US 4169063 A & GB 1586434 A & DE 2810248 A & FR 2383225 A & BE 864469 A2 & NL 7802574 A & CA 1099047 A	1-4
A	JP 8-504875 A (Exxon Chemical Patents Inc.), 28 May 1996 (28.05.1996), claims 1 to 12; examples 5 to 7 & US 5498809 A & EP 674694 A2 & WO 1994/019436 A2 & DE 69317905 C & AU 7090494 A & ES 2114206 T & AT 164879 T & BR 9307668 A & CA 2111057 A & IL 107927 D & MX 9307957 A & CN 1088944 A & AU 673448 B & ES 2122654 T	1-4
A	JP 51-119093 A (Toa Nenryo Kogyo Kabushiki Kaisha), 19 October 1976 (19.10.1976), claim 1; example 4 & BE 840655 A1	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08F8/42(2006.01)i, C10M155/00(2006.01)i, C10N20/04(2006.01)n, C10N30/04(2006.01)n,
C10N30/06(2006.01)n, C10N40/04(2006.01)n, C10N40/08(2006.01)n, C10N40/25(2006.01)n

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08F8/42, C10M155/00, C10N20/04, C10N30/04, C10N30/06, C10N40/04, C10N40/08, C10N40/25

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAplus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2005/123789 A1 (BASF AKTIENGESELLSCHAFT) 2005. 12. 29, 請求項 1-12, 実施例 & DE 102004029467 A	1-4
A	N. T. McManus, et al., Grafting of ethylene-ethyl acrylate- maleic anhydride terpolymer with amino-terminated polydimethyl- siloxane during reactive processing, Journal of applied polymer science, 2006, Vol.101, No.6, p.4230-4237	1-4

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の 1 以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 2 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

2 5 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

武貞 亜弓

4 J

3 1 3 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 6-166715 A (ビーピー ケミカルズ リミテッド) 1994. 06. 14, 請求項 1-8, 実施例 4, 12 & GB 9219092 D & GB 9225999 D & GB 9304084 D & EP 587381 A1 & BR 9303734 A & HU 66143 A & CA 2105720 A & CN 1090586 A	1-4
A	JP 52-150495 A (テキサコ・デイベロツプメント・コーポレーシヨ ン) 1977. 12. 14, 特許請求の範囲(1)-(17), 実施例 & US 4048080 A & US 4098585 A & GB 1531945 A & DE 2724297 A & FR 2354346 A & BE 855474 A & NL 7706193 A & AU 2572777 A & PT 66643 A & SE 7706560 A & ES 459534 A & BR 7703677 A & CA 1089434 A & IT 1080556 B & CA 1085410 A	1-4
A	JP 53-112995 A (シエル・インターナシヨネイル・リサーチ・マー チャツピイ・ベー・ウイ) 1978. 10. 02, 特許請求の範囲(1)-(13), 実施例 1, 2 & US 4169063 A & GB 1586434 A & DE 2810248 A & FR 2383225 A & BE 864469 A2 & NL 7802574 A & CA 1099047 A	1-4
A	JP 8-504875 A (エクソン ケミカル パテンツ インコーポレイテ ッド) 1996. 05. 28, 特許請求の範囲 1-12, 例 5~7 & US 5498809 A & EP 674694 A2 & WO 1994/019436 A2 & DE 69317905 C & AU 7090494 A & ES 2114206 T & AT 164879 T & BR 9307668 A & CA 2111057 A & IL 107927 D & MX 9307957 A & CN 1088944 A & AU 673448 B & ES 2122654 T	1-4
A	JP 51-119093 A (東亜燃料工業株式会社) 1976. 10. 19, 特許請求の範囲(1), 実施例 4 & BE 840655 A1	1-4