

(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
2015 年 2 月 5 日(05.02.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/016259 A1

- (51) 国際特許分類:
C08G 69/44 (2006.01) C10N 40/08 (2006.01)
C10M 133/16 (2006.01) C10N 40/18 (2006.01)
C10M 133/56 (2006.01) C10N 40/20 (2006.01)
C10N 30/00 (2006.01) C10N 40/22 (2006.01)
C10N 30/06 (2006.01) C10N 40/24 (2006.01)
C10N 40/00 (2006.01) C10N 40/25 (2006.01)
C10N 40/02 (2006.01) C10N 40/30 (2006.01)
C10N 40/04 (2006.01) C10N 50/10 (2006.01)
C10N 40/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/070057
- (22) 国際出願日: 2014 年 7 月 30 日(30.07.2014)
- (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 2013-159831 2013 年 7 月 31 日(31.07.2013) JP
- (71) 出願人: 富士フイルム株式会社(FUJIFILM CORPORATION) [JP/JP]; 〒1068620 東京都港区西麻布 2 丁目 2 6 番 3 0 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 寺田 祐二(TERADA Yuji); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 鈴木 博幸(SUZUKI Hiroyuki); 〒2588577 神奈川県足柄上郡開成町牛島 5 7 7 番地 富士フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人特許事務所サイクス(SIKS & CO.); 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目 8 番 7 号 京橋日殖ビル 8 階 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, IR, IS, JP, KE, KG, 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, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: COMPOSITE ESTER POLYAMIDE COMPOSITION, LUBRICANT COMPOSITION, AND METHOD FOR PRODUCING LUBRICANT AND COMPOSITE ESTER POLYAMIDE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 複合エステルポリアミド組成物、潤滑剤組成物、潤滑剤及び複合エステルポリアミド組成物の製造方法

(57) Abstract: The purpose of the invention is to provide a lubricant capable of exhibiting excellent lubricant performance and a lubricant having excellent hydrolysis resistance. The invention pertains to a composite ester polyamide composition containing an ester polyamide obtained by condensing a polyamine containing at least two primary or secondary amino groups, a polycarboxylic acid including at least two carboxyl groups, and a monohydric alcohol having four or more carbons. The invention also relates to a lubricant composition containing a composite polyester composition and a method for producing a lubricant and composite ester polyamide composition.

(57) 要約: 本発明は、優れた潤滑性能を発揮し得る潤滑剤であって、かつ、優れた耐加水分解性を有する潤滑剤を提供することを課題とする。本発明は、少なくとも 2 つの 1 級または 2 級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも 2 つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、炭素数 4 以上の 1 価アルコールとを縮合させることにより得られるエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物に関する。さらに、本発明は、複合ポリエステル組成物を含む潤滑剤組成物、潤滑剤及び複合エステルポリアミド組成物の製造方法に関する。

WO 2015/016259 A1

明 細 書

発明の名称：

複合エステルポリアミド組成物、潤滑剤組成物、潤滑剤及び複合エステルポリアミド組成物の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、複合エステルポリアミド組成物及び潤滑剤に関する。具体的には、本発明は、特定のエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物と、複合エステルポリアミド組成物を含む潤滑剤に関する。

背景技術

[0002] 潤滑剤は、一般にベースオイルと種々の添加剤を含む。ベースオイルとしては、原油から得られる鉱物油、化学合成されるエステル系油、フッ素油、ポリ α オレフィン系油などがある。これらの中でも、エステル系油は、低流動点、高粘度指数、高引火点、良好な潤滑性能、生分解性などから、ジェット機、自動車エンジン油、グリースなどに好適に用いられる。

[0003] エステル系油としては、脂肪族モノカルボン酸と一価アルコールとの反応から得られるモノエステル；脂肪族二塩基酸と一価アルコールとの反応から得られるジエステル；多価アルコールと脂肪族カルボン酸との反応から得られるエステル；及びポリオール、多塩基酸、脂肪族モノカルボン酸との反応から得られる複合エステル；等、様々なエステル類が開示されている（特許文献1～5）。

[0004] また、特許文献6及び7には、多価アミンを用いたエステルポリアミド組成物が開示されている。特許文献6には、ダイマー酸やトリマー酸等の脂肪族二塩基酸とジアミンとメタノールの反応から得られるエステルポリアミド組成物が開示されている。ここでは、得られるエステルポリアミド組成物は、レンズ等の光学部材に用いられている。また、特許文献7には、多価アミンと脂肪族二塩基酸と多価アルコールの反応から得られるエステルポリアミド組成物が開示されており、このような組成物は、潤滑剤組成物として用い

られている。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2002-097482号公報
特許文献2：特開2005-154726号公報
特許文献3：特開2005-232434号公報
特許文献4：特開2005-213377号公報
特許文献5：特開2005-232470号公報
特許文献6：特開平9-12716号公報
特許文献7：特開2003-268395号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0006] 近年、産業分野の多様化や高度化に伴い、潤滑剤には高い潤滑性能が求められるようになってきている。このため、低摩擦性を有し、潤滑性能に優れたポリエステル組成物の開発が求められている。

しかしながら、従来の特許文献に記載されたポリエステルやエステルアミド化合物を含む潤滑剤は、必要とされる潤滑性能を十分に発揮することができないということが本発明者らの検討により明らかとなった。このため、十分な潤滑性能を発揮するよう、さらなる改良が求められていた。

- [0007] また、従来のエステル組成物は、潤滑剤中で加水分解をする場合があるため、潤滑剤の劣化を促進するという問題があった。このように劣化した潤滑剤は、金属等を腐食させる原因となるため問題となっていた。すなわち、従来の潤滑剤は、優れた潤滑性能と耐加水分解性を兼ね備えておらず、これら両方の性能を有する潤滑剤が求められている。

- [0008] そこで本発明者らは、このような従来技術の課題を解決するために、優れた潤滑性能を発揮し得る潤滑剤であって、かつ、優れた耐加水分解性を有する潤滑剤を提供することを目的として検討を進めた。

課題を解決するための手段

[0009] 上記の課題を解決するために鋭意検討を行った結果、本発明者らは、特定のエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物を潤滑剤に用いることにより、その潤滑性能を良化させ得ることを見出した。なお、特定のエステルポリアミドとは、少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、炭素数4以上の1価アルコールを縮合させることにより得られるエステルポリアミドである。

さらに本発明者らは、このようなエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物は、優れた耐加水分解性を発揮し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

具体的に、本発明は、以下の構成を有する。

[0010] [1] 少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、炭素数4以上の1価アルコールとを縮合させることにより得られるエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物。

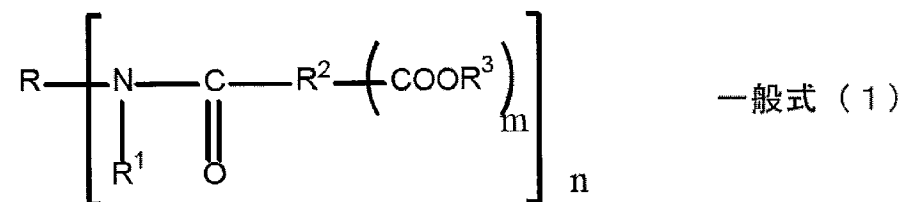
[2] 多価アミンと多価カルボン酸が下記の条件(i)又は(ii)を満たす[1]に記載の複合エステルポリアミド組成物；

(i) 多価アミンが2つの1級または2級アミノ基を含む2価アミンであり、かつ多価カルボン酸が3つ以上のカルボキシル基を含む多価カルボン酸である。

(ii) 多価アミンが3つ以上の1級または2級アミノ基を含む多価アミンであり、かつ多価カルボン酸が2つのカルボキシル基を含む2価カルボン酸である。

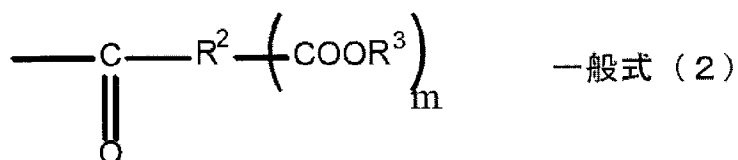
[3] エステルポリアミドの少なくとも1種は、下記一般式(1)で表される[1]又は[2]に記載の複合エステルポリアミド組成物；

[化1]



一般式(1)中、Rは炭素数2～60の脂肪族基を表し、R¹は水素原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基又は一般式(2)で表される基を表す。R²は(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、R³は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。nは2～4の整数を表し、mは1～3の整数を表す。

[化2]



一般式(2)中、R²は(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、R³は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。mは1～3の整数を表す。

[4] 一般式(1)及び(2)において、mは1又は2の整数である[3]に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[5] 一般式(1)及び(2)において、R²の炭素数は22～66である[3]又は[4]に記載の複合エステルポリアミド組成物。

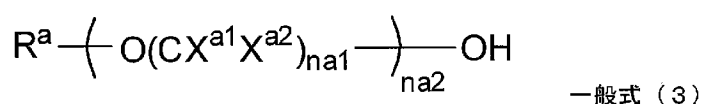
[6] 一般式(1)及び(2)において、R²は、ダイマー酸残基又はトリマー酸残基である[3]～[5]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物。

[7] 一般式(1)及び(2)において、 R^3 の炭素数は6以上である[3]～[6]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物。

[8] 一般式(1)及び(2)において、 R^3 は、オキシアルキレン構造を有する基である[3]～[7]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物。

[9] 1価アルコールは、下記一般式(3)で表される[1]～[8]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物；

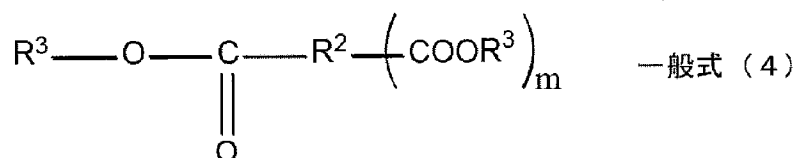
[化3]



一般式(3)中、 R^a は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアルケニル基、置換基を有してもよいアリール基又は置換基を有してもよいヘテロアリール基であり、 X^{a1} 及び X^{a2} はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子又はアルキル基を表す。また、 $na1$ は2～4の整数を表し、 $na2$ は1～12の整数を表す。

[10] 一般式(4)で表されるエステル成分をさらに含む[1]～[9]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物；

[化4]



一般式(4)中、 R^2 は $(m+1)$ 価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、 R^3 は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。 m は1～3の整数を表す。

[11] 40℃における粘度が50～1650mPasである[1]～[10]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物。

[12] [1]～[11]のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成

物と、摩耗防止剤、粘度指数向上剤、酸化防止剤、清浄剤、分散剤、流動、硬化剤、腐食防止剤、シール適合剤、消泡剤、錆防止剤、腐食防止剤、摩擦調整剤、及び増ちょう剤から選択される１種又は２種以上の添加剤とを含有する潤滑剤組成物。

〔１３〕〔１〕～〔１１〕のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物、又は〔１２〕に記載の潤滑剤組成物と、鉱物油、油脂化合物、ポリオレフィン油、シリコン油、パーフルオロポリエーテル油、ジフェニルエーテル油、芳香族エステル油、脂肪族モノエステル油、脂肪族ジエステル油、及びポリオールエステル潤滑油から選択される１種又は２種以上の媒体とを少なくとも含有する潤滑剤組成物。

〔１４〕〔１〕～〔１１〕のいずれかに記載の複合エステルポリアミド組成物、又は〔１２〕又は〔１３〕に記載の潤滑剤組成物を含む潤滑剤。

〔１５〕グリース用潤滑油、離型剤、内燃機関用エンジンオイル、金属加工用（切削用）オイル、軸受け用オイル、燃焼機関用燃料、車両エンジン油、ギヤ油、自動車用作動油、船舶・航空機用潤滑油、マシン油、タービン油、軸受用オイル、油圧作動油、圧縮機・真空ポンプ油、冷凍機油、金属加工用潤滑油剤、磁気記録媒体用潤滑剤、マイクロマシン用潤滑剤、人工骨用潤滑剤、ショックアブソーバ油又は圧延油として用いられる〔１４〕に記載の潤滑剤。

〔１６〕少なくとも２つの１級または２級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも２つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、１価アルコールとを混合し混合物を得る工程と、混合物を脱水縮合する工程を含む複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

〔１７〕混合物を得る工程は、多価アミンに対して、多価カルボン酸を混合する当量比が１～３となり、１価アルコールを混合する当量比が０．５～３となるように混合する工程である〔１６〕に記載の複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

〔１８〕脱水縮合する工程は、混合物に対して１～２５質量％の、沸点１１

0～160℃の炭化水素系溶剤を添加し、水を共沸させつつ、脱水縮合を進行させる工程を含む〔16〕又は〔17〕に記載の複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、高い潤滑性能を発揮し得る複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。さらに、本発明によれば、優れた耐加水分解性を有する複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。このため、本発明の複合エステルポリアミド組成物は、長期間に亘って使用した場合であっても金属を腐食させることがなく、様々な用途の潤滑剤に好ましく用いられる。

発明を実施するための形態

[0012] 以下において、本発明について詳細に説明する。以下に記載する構成要件の説明は、代表的な実施形態や具体例に基づいてなされることがあるが、本発明はそのような実施形態に限定されるものではない。なお、本明細書において「～」を用いて表される数値範囲は「～」前後に記載される数値を下限値及び上限値として含む範囲を意味する。

[0013] (複合エステルポリアミド組成物)

本発明は、所定のエステルポリアミドを含む複合エステルポリアミド組成物に関する。本発明の複合エステルポリアミド組成物は、少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、炭素数4以上の1価アルコールとを縮合させることにより得られるエステルポリアミドを含む。本発明では、このような特定のエステルポリアミドを含むことにより、高い潤滑性能を発揮し得る複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。さらに、本発明で得られる複合エステルポリアミド組成物は優れた耐加水分解性を有する点にも特徴がある。

[0014] <多価アミン>

エステルポリアミドの縮合に用いる多価アミンは、少なくとも2つの1級

または2級アミノ基を含む化合物である。アミノ基は一分子中に2～4個含まれていることが好ましく、2または3個含まれていることがより好ましい。

[0015] 多価アミンの一分子中には、アミノ基は2～4個含まれていることが好ましく、2または3個含まれていることがより好ましい。本発明で用いる多価アミンは、2～4価の多価アミンのいずれか1種を用いることとしてもよく、複数種を用いることとしてもよい。例えば、2価のアミンと3価のアミンを混合したものを用いてもよく、2価のアミンと3価のアミンと4価のアミンを混合したものを用いてもよく、3価のアミンと4価のアミンを混合したものを用いてもよい。

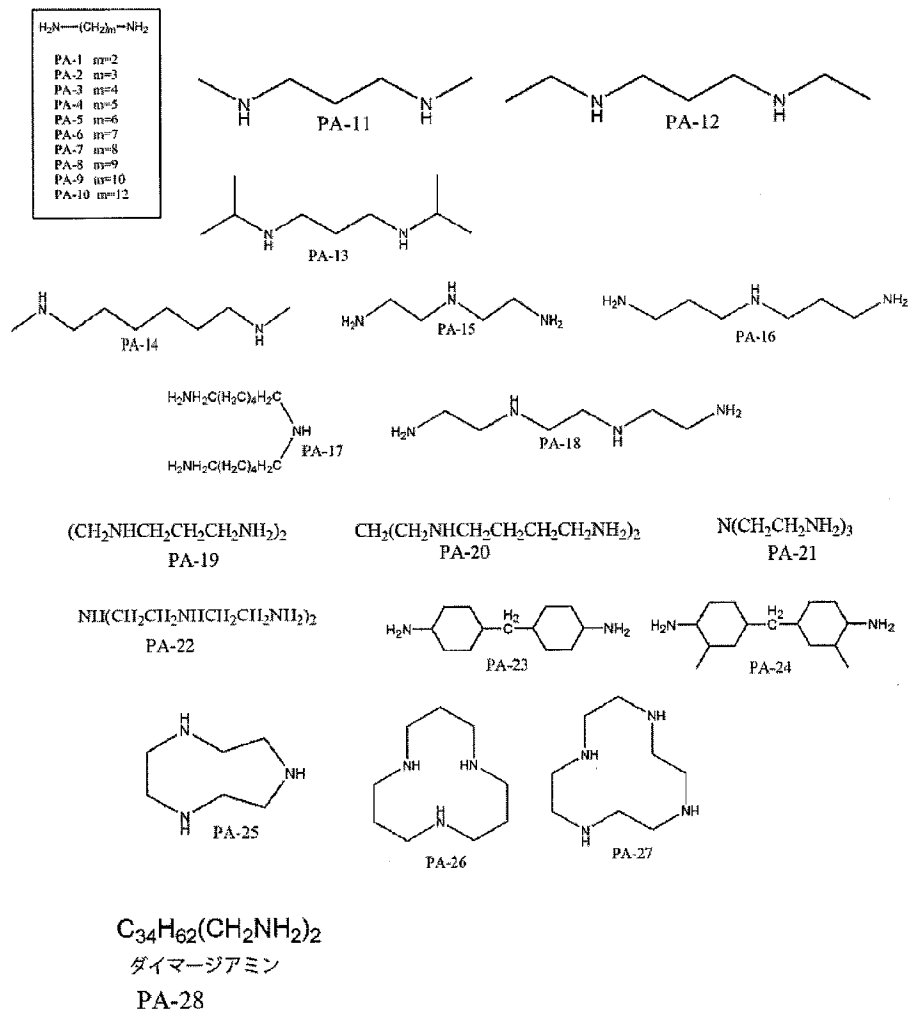
また、分子中には、1級アミノ基と2級アミノ基のいずれか一方が含まれていてもよく、両方が含まれていてもよい。

[0016] 分子中のアミノ基は、鎖状もしくは環状の2価以上の脂肪族炭化水素で連結されている。多価アミンの炭素数は2以上であることが好ましく、6以上であることがより好ましく、7以上であることがさらに好ましく、8以上であることがよりさらに好ましい。また、多価アミンの炭素数は60以下であることが好ましく、30以下であることがより好ましく、24以下であることがさらに好ましく、20以下であることがよりさらに好ましい。多価アミンの炭素数を上記範囲内とすることにより、複合エステルポリアミド組成物の粘度上昇を抑制でき、複合エステルポリアミド組成物の潤滑性能をより高めることができる。また、縮合反応時のアミド化反応率を高めることができる。

[0017] 本発明で用いることができる多価アミンとして、例えば、エチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、フェニレンジアミン、ジアミノナフタレン、ジアミノシクロヘキサン、ダイマージアミン、ピペラジン、トリス（2-アミノエチルアミン）、アダマンタンジアミン等を挙げることができる。

[0018] 下記に本発明で用いることができる多価アミンの具体例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0019] [化5]



[0020] <多価カルボン酸>

エステルポリアミドの縮合に用いる多価カルボン酸は、少なくとも2つのカルボキシル基を含む化合物である。カルボキシル基は一分子中に2～4個含まれていることが好ましく、2または3個含まれていることがより好ましい。また、多価カルボン酸はダイマー酸又はトリマー酸であることが好ましい。

本発明で用いる多価カルボン酸は、2～4価の多価カルボン酸のいずれか1種を用いることとしてもよく、複数種を用いることとしてもよい。例えば、2価のカルボン酸と3価のカルボン酸を混合したものを用いてもよく、2価のカルボン酸と3価のカルボン酸と4価のカルボン酸を混合したものを用

いてもよく、3価のカルボン酸と4価のカルボン酸を混合したものを用いてもよい。

[0021] なお、多価アミンと多価カルボン酸の価数は、下記の条件 (i) 又は (i i) を満たすことが好ましい。

(i) 多価アミンが2つの1級または2級アミノ基を含む2価アミンであり、かつ多価カルボン酸が3つ以上のカルボキシル基を含む多価カルボン酸である。

(i i) 多価アミンが3つ以上の1級または2級アミノ基を含む多価アミンであり、かつ多価カルボン酸が2つのカルボキシル基を含む2価カルボン酸である。

多価アミンと多価カルボン酸の価数が上記条件を満たすものとするにより、流動性があり、優れた潤滑性能を発揮し得る複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。

[0022] 分子中のカルボキシル基は、鎖状もしくは環状の2価以上の脂肪族炭化水素又は芳香族炭化水素で連結されている。脂肪族炭化水素又は芳香族炭化水素連結基の炭素原子の互いに隣接しない1以上の炭素原子は酸素原子に置換されていてもよい。

[0023] 多価カルボン酸の炭素数は、4以上であることが好ましく、10以上であることが好ましく、18以上であることがより好ましく、22以上であることがさらに好ましく、26以上であることが特に好ましい。また、多価カルボン酸の炭素数は、70以下であることが好ましく、66以下であることがより好ましく、59以下であることがさらに好ましい。なお、本発明において、多価カルボン酸の炭素数とは、カルボキシル基を構成する炭素原子も含めた炭素数を表すものとする。このように多価カルボン酸の炭素数を上記範囲内とすることにより、複合エステルポリアミド組成物の潤滑性能をより高めることができる。

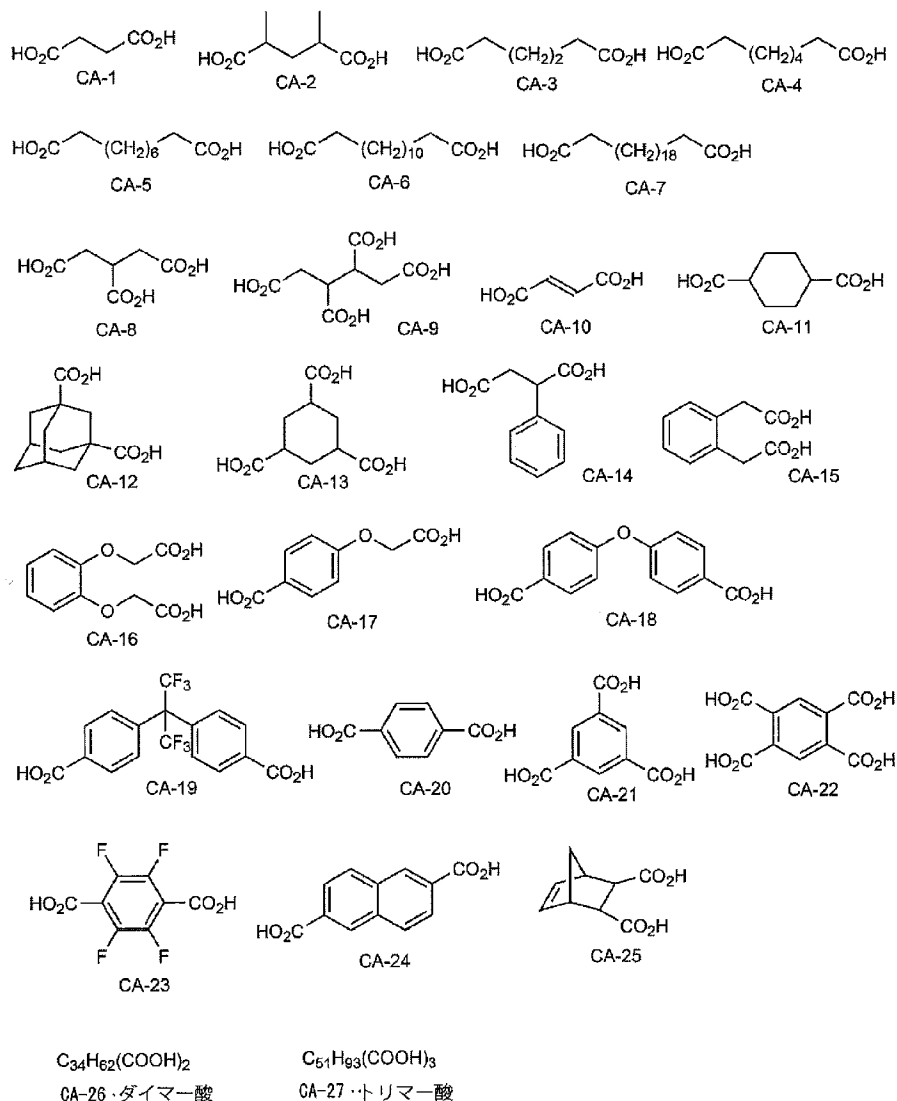
[0024] 本発明で用いることができる多価カルボン酸としては、例えば、テレフタル酸、フタル酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、スベリン

酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸、トリメリット酸、ダイマー酸、及びダイマー酸の水添体、トリマー酸等を挙げることができる。中でも、ダイマー酸、及びダイマー酸の水添体、トリマー酸を用いることが好ましい。

[0025] 分子中のカルボキシル基を連結する基は、炭素数は22～66の脂肪族炭化水素であることが好ましい。中でも、本発明で用いる多価カルボン酸としては、ダイマー酸又はトリマー酸を好ましく例示することができる。

[0026] 下記に本発明で用いることができる多価カルボン酸の具体例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0027] [化6]



[0028] 本発明では、多価カルボン酸の代わりとして、多価カルボン酸の無水物を用いることもできる。多価カルボン酸の無水物は、上記の多価カルボン酸の二つのCOOHが分子内あるいは分子間脱水縮合したものである。その好ましい形態は上記と同様である。その無水物の例には、無水コハク酸、無水グルタル酸、無水アジピン酸、無水マレイン酸、無水フタル酸、無水ナド酸、無水メチルナド酸、無水ヘキサヒドロフタル酸及び混合された多塩基酸の無水物が含まれる。

[0029] <1 価アルコール>

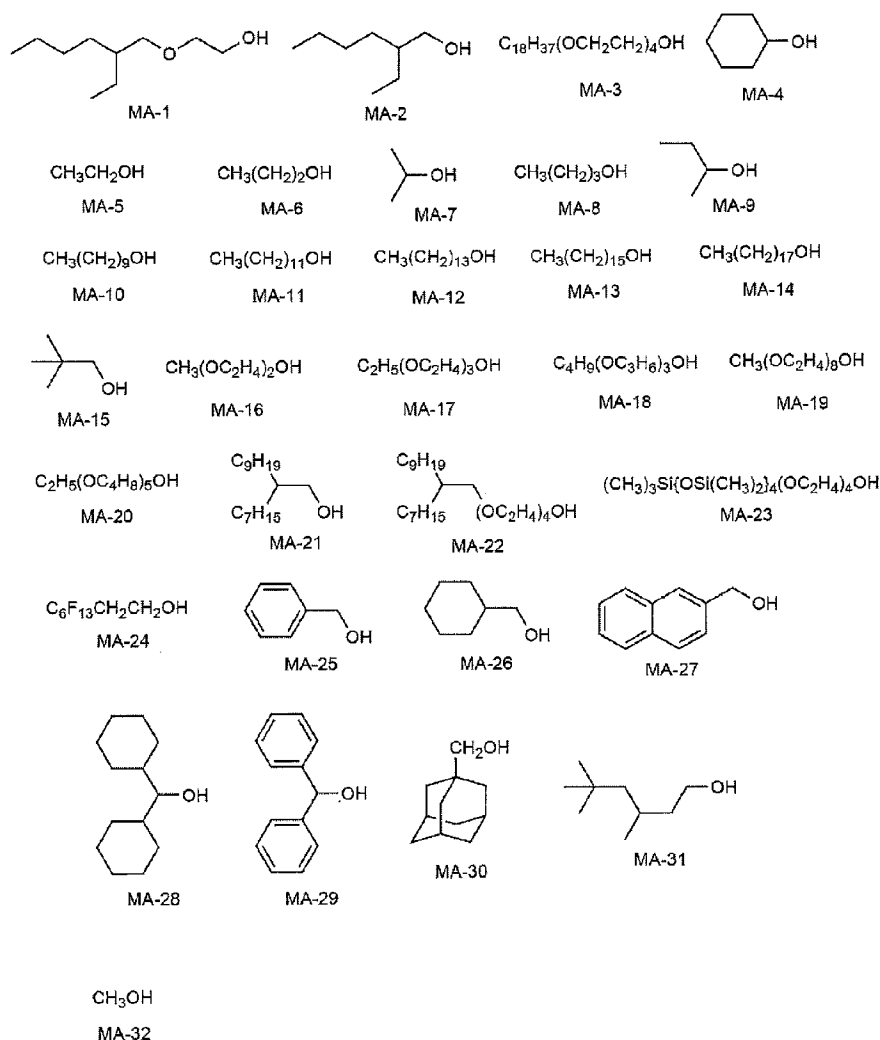
エステルポリアミドの縮合に用いる1価アルコールは、一分子内に水酸基を1つ含む化合物であって、炭素数が4以上の化合物である。1価アルコールは、R(OH)で表される。Rは1価の脂肪族、脂環式又は芳香環基であり、R中の炭素原子の互いに隣接しない1以上の炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい。Rの炭素数は4以上であることが好ましく、6以上であることがより好ましく、8以上であることがさらに好ましい。1価アルコールの炭素数を上記範囲内とすることにより、縮合反応時に1価アルコールが揮散することを抑制することができ、効率よくエステルポリアミドの縮合反応を進めることが可能となる。

[0030] 本発明に適する1価アルコールとしては、例えば、ブタノール、ペンタノール、プロパノール、ヘキサノール、ヘプタノール、オクタノール、デカノール、ドデカノール、ヘキサデカノール、オクタデカノール、エイコサデカノール、フィトステロール、イソステアロール、ステアロール、セトール、ベヘノール、エチレングリコールモノエーテル、ポリエチレングリコールモノエーテル等が挙げられる。

[0031] 下記に本発明で用いることができる1価アルコールの具体例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

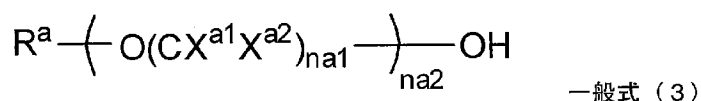
[0032]

[化7]



[0033] 本発明で用いる 1 価アルコールは、下記一般式 (3) で表されるものであることが好ましい。

[0034] [化8]



[0035] ここで、一般式(3)中、R^aは置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアルケニル基、置換基を有してもよいアリール基又は置換基を有してもよいヘテロアリール基であり、X^{a1}及びX^{a2}はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子又はアルキル基を表す。また、n_{a1}は2～4の整数を表し、n_{a2}は1～12の整数を

表す。

[0036] R^a で表される置換基を有してもよいアルキル基のアルキル基部分の炭素数は、3～17であることが好ましく、4～13であることがより好ましく、5～9であることがさらに好ましい。 R^a が表すアルキル基は直鎖であっても分岐であってもよい。また、 R^a はシクロアルキル基であってもよい。

[0037] R^a で表される置換基を有してもよいアルケニル基のアルケニル基部分の炭素数は、3～17であることが好ましく、4～13であることがより好ましく、5～9であることがさらに好ましい。 R^a が表すアルキル基は直鎖であっても分岐であっても環状であってもよい。

[0038] R^a で表される置換基を有してもよいアリール基またはヘテロアリール基のアリール基部分の炭素数は、6～17であることが好ましく、6～12であることがより好ましい。 R^a が表すアリール基としては、フェニル基、ナフチル基などを挙げることができ、その中でもフェニル基が特に好ましい。また、 R^a が表すヘテロアリール基としては、例えば、イミダゾリル基、ピリジル基、キノリル基、フリル基、チエニル基、ベンズオキサゾリル基、インドリル基、ベンズイミダゾリル基、ベンズチアゾリル基、カルバゾリル基、アゼピニル基を例示することができる。ヘテロアリール基に含まれるヘテロ原子は、酸素原子、硫黄原子、窒素原子であることが好ましく、中でも、酸素原子であることが好ましい。

[0039] 中でも、一般式(3)において、 R^a は置換基を有してもよいアルキル基であることがより好ましい。ここで、アルキル基は、分岐を有するアルキル基であってもよい。また、 X^{a1} 及び X^{a2} はそれぞれ独立に水素原子又はアルキル基であることがより好ましい。

[0040] 一般的(3)において、 n_{a1} は2又は3の整数であることがより好ましく、2であることがさらに好ましい。また、 n_{a2} は、1～8の整数であることがより好ましく、1～6の整数であることがさらに好ましく、1～3の整数であることが特に好ましい。

[0041] 一般的(3)で表される1価アルコールの炭素数は、4以上であることが

好ましく、6以上であることがより好ましく、8以上であることがさらに好ましい。このような1価アルコールを用いることにより、縮合反応時に1価アルコールが揮散することを抑制することができ、効率よくエステルポリアミドの縮合反応を進めることが可能となる。

[0042] R^a有し得る置換基の例には、置換もしくは無置換の炭素数1～50のアルキル基（例えば、メチル、エチル、以後いずれも直鎖状もしくは分枝鎖状の、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ウンデシル、ドデシル、トリデシル、テトラデシル、ペンタデシル、ヘキサデシル、ヘプタデシル、オクタデシル、ノナデシル、エイコシル、ヘンエイコシル、ドコシル、トリコシル、又はテトラコシル）；炭素原子数2～35のアルケニル基（例えば、プロペニル、ブテニル、ペンテニル、ヘキセニル、ヘプテニル、オクテニル、ノネニル、デセニル、ウンデセニル、ドデセニル）；炭素原子数3～10のシクロアルキル基（例えば、シクロプロピル、シクロブチル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル）；炭素原子数6～30の芳香族環基（例えば、フェニル、ナフチル、ビフェニル、フェナントリル、アントラセニル）、複素環基（窒素原子、酸素原子、及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1個のヘテロ原子を含む複素環の残基であるのが好ましく、例えば、ピリジル、ピリミジル、トリアジニル、チエニル、フリル、ピロリル、ピラゾリル、イミダゾリル、トリアゾリル、チアゾリル、イミダゾリル、オキサゾリル、チアジアリル、オキサジアゾリル、キノリル、イソキノリル）；又はそれらの組み合わせからなる基を表す。これらの置換基は、可能な場合はさらに1以上の置換基を有してもよく、置換基の例には、アルコキシ基、アルコキシカルボニル基、ハロゲン原子、エーテル基、アルキルカルボニル基、シアノ基、チオエーテル基、スルホキシド基、スルホニル基、アミド基などが挙げられる。

[0043] （その他の化合物）

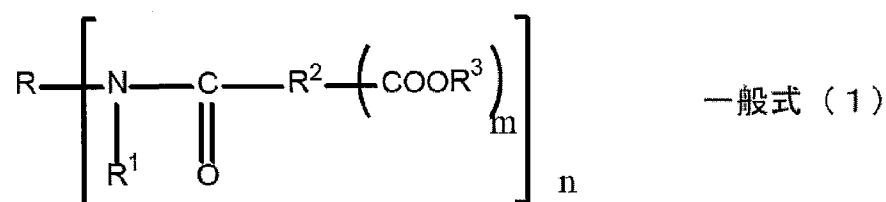
なお、本発明では、多価アミン、多価カルボン酸、1価アルコールに加えて他の成分を縮合反応に用いてもよく、得られるエステルポリアミドを含む

複合エステルポリアミド組成物も好ましく用いられる。

[0044] (エステルポリアミド)

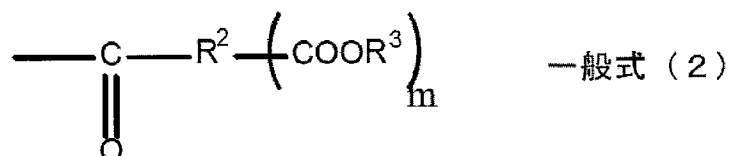
本発明の複合エステルポリアミド組成物は、上述したような多価アミンと、多価カルボン酸と、1価アルコールを混合し、この混合物を縮合させることで得られるエステルポリアミドを含む。混合物を縮合させることで得られるエステルポリアミドの少なくとも1種は、下記一般式(1)で表されることが好ましい。

[0045] [化9]



[0046] 一般式(1)中、Rは炭素数2～60の脂肪族基を表し、R¹は水素原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基又は一般式(2)で表される基を表す。R²は(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、R³は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。nは2～4の整数を表し、mは1～3の整数を表す。

[0047] [化10]



[0048] 一般式(2)中、R²は(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、R³は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。mは1～3の整数を表す。

- [0049] 上記一般式(1)において、Rは炭素数2～60の脂肪族基を表す。Rの炭素数は、6以上であることが好ましく、7以上であることがより好ましく、8以上であることがさらに好ましい。また、Rの炭素数は30以下であることが好ましく、24以下であることがより好ましく、20以下であることがさらに好ましい。
- [0050] 一般式(1)中、nは2～4の整数を表し、一般式(1)及び(2)中、mは1～3の整数を表す。なお、一般式(1)及び(2)において、mは1又は2の整数であることが特に好ましい。また、mが3の場合は、nは2であることが好ましく、mが1又は2の整数である場合は、nは3又は4の整数であることが好ましい。
- [0051] R¹は水素原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基又は一般式(2)で表される基を表す。すなわち、本発明で用いる多価アミンが1級アミノ基を含む多価アミンである場合、R¹は水素原子又は一般式(2)で表される基を表すこととなり、本発明で用いる多価アミンが2級アミノ基を含む多価アミンである場合、R¹は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表すこととなる。
- [0052] R²は、多価カルボン酸の残基を表す。ここで、多価カルボン酸の残基とは、多価カルボン酸から2つのカルボキシル基を除いた部分を構成する基のことをいう。R²は(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、(m+1)価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基であることが好ましい。なお、脂肪族連結基又は芳香族連結基の炭素原子の互いに隣接しない1以上の炭素原子は酸素原子に置換されていてもよい。
- [0053] R²の炭素数は22～66であることが好ましく、26～60であることがより好ましく、30～50であることがさらに好ましい。また、R²はダイマー酸残基又はトリマー酸残基であることが好ましい。R²を上記の条件とする

ことにより、潤滑性能の高い複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。

[0054] R^3 は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアルケニル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。 R^3 が取り得る具体的な基としては、一般式(3)中、 R^a で表される基を例示することができる。なお、 R^3 が有し得る各基の置換基は特に制限されることはない。置換基としては、上記の置換基を同様に例示することができる。

[0055] R^3 の炭素数は4以上であればよく、6以上であることがより好ましく、8以上であることがさらに好ましい。

[0056] また、 R^3 は、オキシアルキレン構造を有する基であることが好ましい。すなわち、 R^3 は、分岐アルキル基、又は鎖中にエーテル結合を含むアルキル基であることが好ましい。 R^3 をこのような置換基とすることにより、複合エステルポリアミド組成物の潤滑性能をさらに高めることができる。

[0057] 多価アミン、多価カルボン酸及び1価アルコールの化合物を混合する際には、多価アミンに対して、多価カルボン酸を混合する当量比が1～3であり、多価アミンに対して、1価アルコールを混合する当量比が0.5～3であることが好ましい。すなわち、混合比率は、多価アミン：多価カルボン酸：1価アルコール＝1：1～3：0.5～3となることが好ましい。これらの混合比率は、1：1.2～2.8：0.7～2.8であることがより好ましく、1：1.5～2.5：1～2.5であることがより好ましい。特に、エステルポリアミドの側鎖は、エンドキャップされることが好ましいことから、多価カルボン酸の当量より、多価アミンと1価アルコールの合計の当量が、同じか大きいことが好ましい。

[0058] 本発明の複合エステルポリアミド組成物の40℃における粘度は、50～1650 mPa sであることが好ましい。複合エステルポリアミド組成物の40℃における粘度は、50 mPa s以上であることが好ましく、70 mPa s以上であることがより好ましく、100 mPa s以上であることがさら

に好ましい。また、複合エステルポリアミド組成物の40℃における粘度は、1650 mPa s以下であることが好ましく、1200 mPa s以下であることがより好ましく、1000 mPa s以下であることがさらに好ましい。複合エステルポリアミド組成物の粘度を上記範囲内とすることにより、複合エステルポリアミド組成物の摩擦係数を低く抑えることができ、これにより潤滑性能を高めることができる。

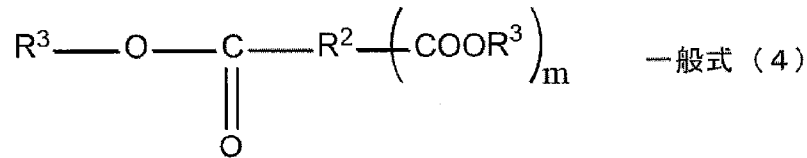
[0059] 本発明の潤滑剤は、摩擦係数の上昇が小さいという優れた特徴を有する。このような優れた効果は、本発明で得られるエステルポリアミドが放射状に側鎖を配する立体構造を有することにより得られるものと考えられる。本発明で得られるエステルポリアミドは、放射状に側鎖を配することが可能な多価アミンと、それに接続し放射状に伸びる多価カルボン酸と、多価カルボン酸の末端連結基となる1価アルコールから構成される化合物である。本発明では、多価アミンを中心原子団とし側鎖を有することで、その立体構造により大きな自由体積を確保することができる。これにより、摩擦係数の上昇を抑えることができる。

[0060] さらに、本発明の潤滑剤は、耐加水分解性に優れているという特徴を有する。このような効果は、中心原子団の多価アミンとし、多価アミンと多価カルボン酸の間にアミド結合を形成することにより得られるものと考えられる。また、本発明では、中心原子団の多価アミンとし、アミド結合を形成することにより、長期間に亘ってエステルポリアミドの分子量の変化を少なく保つことができる。すなわち、本発明では、時間経過と共にエステルポリアミドが分解され、分子量が小さくなることが抑制されており、経年劣化しにくい複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。これにより、長期間に亘って優れた潤滑性能を発揮することができる。加えて、このように耐加水分解性に優れた潤滑剤は、金属を腐食することがないため、金属等の様々な材質に適用することができる。

[0061] 本発明では、所定のエステルポリアミドに加えて、軽質分をさらに含んでもよい。ここで、軽質分とは、低分子量の成分をいい、例えば、一般式(4

) で表されるエステル成分を例示することができる。すなわち、軽質分としては、多価カルボン酸と 1 価アルコールが反応したエステルを例示することができる。

[0062] [化11]



[0063] 一般式 (4) 中、 R^2 は $(m+1)$ 価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、 R^3 は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。 m は 1 ~ 3 の整数を表す。なお、 R^2 、 R^3 が取り得る具体的な基としては、一般式 (1) の R^2 及び R^3 例示した基と同様である。

[0064] 本発明では、上記のような軽質分を含む粘性の低い液体を共存させることで複合エステルポリアミド組成物の粘性をさらに低くすることができる。これにより、潤滑性能を良化することができ、さらに、極圧条件下においても、高い潤滑性能を発揮することができる。

[0065] 本発明の複合エステルポリアミド組成物において、所定のエステルポリアミドと、軽質分との比率については特に制限はない。潤滑剤の用途に利用する態様では、軽質分の含有率は、所定のエステルポリアミドに対して 50 質量%以下であることが好ましく、45 質量%以下であることがより好ましく、40 質量%以下であることがさらに好ましい。なお、下限値については特に制限はないが、15 質量%以上であることが好ましい。

所定のエステルポリアミドと、軽質分との比率は、後述する製法において、3つの原料の仕込み比率でコントロールすることで達成することができる。また軽質分を蒸留等で分離し、残存したエステルポリアミドと任意の比率で混合することで好ましい範囲に調整することもできる。

なお、所定のエステルポリアミドと、ダイマージオールを含む軽質分との

組成比率は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）を測定することで算出することができる。軽質分は、GPC分析のピークがシャープに出現し、その強度が大きいことから、判別しやすい。

[0066] 本発明では、複合エステルポリアミド組成物中に含まれるエステルポリアミドの側鎖には、多価カルボン酸中の未反応のCOOHが残存していてもよく、また、1価アルコール中の未反応OHが存在していてもよいが、OH及びCOOHが残存すると、水酸基価と酸価が上がり、用途によっては（例えば、潤滑剤の用途等）、好ましくない場合もある。このような場合、別途アシル化、及び／又はエステル化処理により、エステルポリアミド中のOH及びCOOHを消失させ、水酸基価と酸価を低減することもできる。

[0067] エステルポリアミド中のOHを消失させるためには、側鎖にOHが残存するエステルポリアミドを一旦得た後、その少なくとも一部をアシル化処理を行うことができる。アシル化処理は、一塩基酸（R¹COOH）又は一塩基酸無水物（（R¹CO）₂O）を、OHが残存するエステルポリアミドに添加し、加熱することで、残存のOHをOCOR¹に変換させる処理である。アシル化処理により、水酸基価を低減すると、他の油性媒体と混合する場合、混合しやすくなるなどの点で好ましい。

また、エステルポリアミド中のCOOHを消失させる処理を行ってもよい。例えば、ジアゾメタンなどで処理してエステル化することができる。

[0068] エステルポリアミド中の未反応のOHの割合は、¹³C-NMRを測定することで判明する。潤滑剤の用途では、エステルポリアミドのOHの残存率は0～40％であることが好ましく、0～35％であることがより好ましく、0～30％であることがさらに好ましい。また、同用途では、エステルポリアミドの酸価（サンプル1gを中和するのに要するKOHのmg数）は、0～50であることが好ましく、0～40であることがより好ましく、0～30であることがさらに好ましい。但し、この範囲に制限されるものではない。

[0069] （複合エステルポリアミド組成物の製造方法）

本発明の複合エステルポリアミド組成物は、上述した多価アミン、多価カ

ルボン酸及び1価アルコールの少なくとも3つの原料を仕込んで、脱水縮合させることにより得ることができる。すなわち、本発明の複合エステルポリアミド組成物の製造方法は、少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、1価アルコールとを混合し混合物を得る工程と、混合物を脱水縮合する工程を含む。なお、製造工程では、2つの原料（例えば、多価アミンと多価カルボン酸、または多価カルボン酸と1価アルコール）を先に反応させた後に、残りの原料を反応させることとしてもよい。

[0070] 多価アミン、多価カルボン酸及び1価アルコールの仕込み比率（混合比率）は、当量で決められる。ここでいう当量とは反応における COOH 、 OH もしくは NH の化学当量をいう。多価アミン1分子中の NH 数を n 、モル数を $M1$ とすると、多価アミンの当量は $n \times M1$ で定義される。同様に、多価カルボン酸1分子中の COOH 数を m 、モル数を $M2$ とすると、多価カルボン酸の当量は $m \times M2$ で定義される。1価アルコールは1分子中に OH が1個なので、モル数を $M3$ とすると、 $M3$ で定義される。上記の比率は、これらの $n \times M1$ 、 $m \times M2$ 、 $M3$ の比である。

[0071] 本発明では、混合比率は、多価アミン：多価カルボン酸：1価アルコール＝1：1～3：0.5～3となることが好ましい。これらの混合比率は、1：1.2～2.8：0.7～2.8であることがより好ましく、1：1.5～2.5：1～2.5であることがより好ましい。特に、エステルポリアミドの側鎖は、エンドキャップされることが好ましいことから、多価カルボン酸の当量より、多価アミンと1価アルコールの合計の当量が、同じか大きいことが好ましい。

[0072] 上記のようにして仕込んだ混合物を、触媒存在下もしくは無触媒で、脱水縮合反応をすることで、本発明の複合エステルポリアミド組成物が得られる。

[0073] 脱水縮合の際は、加熱するか、水と共沸する溶媒を適量存在させることが望ましい。これにより生成物が着色することなく、脱水もスムーズに進行す

る。この溶媒は沸点100～200℃の炭化水素系溶媒が好ましく、100～170℃の炭化水素系溶媒がさらに好ましく、110～160℃の炭化水素系溶媒が最も好ましい。これらの溶媒として、例えばトルエン、キシレン、メシチレンなどがあげられる。添加する量は、多すぎると液温がその溶媒付近となり、脱水縮合が進行しにくくなる。一方、少なすぎると、共沸がスムーズに行かない。したがって、添加量は、多価アミン、多価カルボン酸及び1価アルコールの全量に対し、1～25質量%が好ましく、2～20質量%がさらに好ましく、3～15質量%が特に好ましく、5～12質量%も好ましい。

[0074] 触媒を用いることで、反応が加速されるが、触媒除去の後処理が煩雑であり、生成物の着色の原因となることから、用いないことが望ましい。しかし、用いる場合は、通常の触媒で通常の条件と操作が使用される。これに関しては、特表2001-501989号公報、特表2001-500549号公報、特表2001-507334号公報、及び特表2002-509563号公報中の参考文献を参照することができる。

[0075] 仕込み終了後、液温120～250℃、好ましくは130～230℃、さらに好ましくは130～200℃、特に好ましくは140～200℃で反応させる。これにより水を含む溶媒が共沸され、ディーンシュタークのごとき冷却部位で冷却され、液体となることで水と溶媒が分離される。この水は除去されればよい。

[0076] 反応時間は、仕込みのモル数より理論発生水量が計算されるので、この水量が得られる時点まで反応を行うことが好ましいが、完全に反応を完結させることは困難である。理論水発生量が60～90%の時点で反応を終了しても複合エステルポリアミド組成物の潤滑性は良好である。反応時間は1～24時間であり、好ましくは3～18時間、さらに好ましくは5～18時間、最も好ましくは6～15時間である。

[0077] 脱水縮合と揮発分除去後、さらに残存するOHに対して、アシル化を行ってもよい。アシル化を行う場合は、一塩基酸 (R^1COOH) もしくは一塩基

酸無水物 ($(R^1CO)_2O$)、好ましくは一塩基酸無水物 ($(R^1CO)_2O$) を適量添加し、好ましくは 100°C 以上、さらに好ましくは 120°C 以上、特に 150°C 以上加熱することで、残存の OH の少なくとも一部、好ましくはほぼ全てを、 $OCOR^1$ に変換することができる。副生する揮発分は、後述の蒸留で除去することが好ましい。なお、 R^1 は、炭素原子数 $1 \sim 10$ のアルキル基もしくはアリール基とされ、炭素原子数 $1 \sim 6$ のアルキル基もしくはアリール基が好ましく、炭素原子数メチル基、エチル基、ブチル基、フェニル基がさらに好ましく、メチル基もしくはフェニル基が好ましく、メチル基が特に好ましい。

[0078] また、脱水縮合と揮発分除去後、残存する $COOH$ を消失させるために、エステル化処理を行ってもよい。エステル化処理は、例えば、ジアゾメタンを添加して行うことができ、 $COOH$ の少なくとも一部、好ましくはほぼ全てを、メチルエステルに変換することができる。

[0079] この反応により、所定のエステルポリアミドと、上記のように生成されたエステルを少なくとも含む軟質分を含む複合エステルポリアミド組成物が得られる。脱水縮合反応後、所望によりアシル化処理及び／エステル化処理を行った後、得られた複合エステルポリアミド組成物を、そのまま種々の用途、例えば潤滑剤として、用いることができる。また、用途に応じて、種々の処理を行ってもよい。

[0080] 反応及び反応後の処理が終了した後、ろ過を行い、ゴミなどを除去することが好ましい。なお、複合エステルポリアミドが固体となった場合は、溶融してとりだすか、あるいは再沈殿により粉体として取り出すこともできる。

[0081] (潤滑剤組成物)

本発明は、複合エステルポリアミド組成物を少なくとも含有する潤滑剤組成物に関するものとしてもよい。例えば、潤滑剤組成物には、本発明の複合エステルポリアミド組成物と各種添加剤及び／または媒体を添加することができる。

添加剤としては、例えば、摩耗防止剤、粘度指数向上剤、酸化防止剤、清

浄剤、分散剤、流動、硬化剤、腐食防止剤、シール適合剤、消泡剤、錆防止剤、腐食防止剤、摩擦調整剤、及び増ちょう剤から選択される１種又は２種以上を挙げることができる。

このような添加剤を添加することにより、摩耗抑制等の潤滑剤としての好ましい機能を付与することができる。本発明において用いることができる潤滑剤については、特開２０１１－８９１０６号公報の段落〔００９８〕～〔０１６５〕の記載を参照することができる。

[0082] また、媒体としては、鉱物油、油脂化合物、ポリオレフィン油、シリコン油、エーテル油（好ましくはパーフルオロポリエーテル油、ジフェニルエーテル油）、エステル油（好ましくは芳香族エステル油、脂肪族モノエステル油、脂肪族ジエステル油、及びポリオールエステル潤滑油）から選択される１種又は２種以上を挙げることができる。

本発明において、「媒体」とは、一般的に「流動性液体」とよばれる媒体の全てを意味するものである。但し、室温又は使用される温度において、液状であることは必要とせず、液体以外にも固体及びゲル等のいずれの形態の材料も利用することができる。本発明において利用する媒体については特に制限はなく、用途に応じて種々の液体から選択することができる。本発明において用いることができる媒体については、特開２０１１－８９１０６号公報の段落〔００６７〕～〔００９６〕の記載を参照することができる。

[0083] （潤滑剤組成物の性質）

本発明の潤滑剤組成物は、４０℃での粘度が１６５０ｍＰａ・ｓ以下であるのが好ましく、１２００ｍＰａ・ｓ以下であることがより好ましく、１０００ｍＰａ・ｓ以下であることがさらに好ましい。粘性は、使用環境により適正な粘性が求められるため、それに合わせる必要がある。

[0084] 本発明の潤滑剤組成物は、構成元素が、炭素、水素、酸素及び窒素だけからなることが好ましく、炭素、水素及び酸素のみから構成することがさらに好ましい。また、油性媒体として用いる油も、炭素、水素及び酸素のみから構成される材料は種々ある。これらを組み合わせることにより、構成元素

が、炭素、水素、酸素及び窒素だけからなる組成物を調製することができる。

なお、現行の潤滑油は、通常、リン、硫黄、重金属を含んでいる。燃料と共に潤滑油も燃焼する２ストロークエンジンに用いられる潤滑油は、環境負荷を配慮して、リンと重金属は含まれないが、硫黄は４ストロークエンジンに用いられる潤滑油の半分量程度含まれている。即ち、現行の潤滑技術では、最低でも硫黄分による境界潤滑膜の形成は必須であると推察されるが、硫黄元素を含んでいることによって、排気ガス浄化のための触媒への負荷は非常に大きい。この排気ガス浄化触媒には、プラチナやニッケルが使用されているが、リンや硫黄の被毒作用は大きな問題になっている。その点からも潤滑油の組成物を構成する元素が、炭素、水素、酸素及び窒素だけからなることのメリットは非常に大きい。さらに炭素、水素、酸素だけからなることはエンジンオイル以外の産業機械、特に食品製造関連機器の潤滑油には最適である。現行技術では、摩擦係数を犠牲にして環境に配慮した元素組成をとっている。これは、冷却のために大量の水を必要とする金属の切削・加工用潤滑油にも非常に好ましい技術である。

[0085] (潤滑剤組成物の調製方法)

本発明の潤滑剤組成物は、複合エステルポリアミド組成物を、油性媒体中もしくは水性媒体中に添加し、溶解及び／又は分散させることで調製することができる。溶解及び／又は分散は、加温下で行ってもよい。複合エステルポリアミド組成物の添加量は、油性媒体の質量に対して、１０質量％以上で添加されるのが好ましい。但し、この範囲に限定されるものではなく、上記化合物が、摩擦低減作用を示すのに十分な量であれば、上記範囲外であってもよい。

[0086] (潤滑剤組成物の用途)

本発明の潤滑剤組成物は、潤滑剤として有用である。すなわち、本発明は、上述した複合エステルポリアミド組成物を含む潤滑剤又は上述した潤滑剤組成物を含む潤滑剤に関するものでもある。

本発明の潤滑剤は、例えば、2つの摺動面間に供給され、摩擦を低減するために用いることができる。本発明の組成物は、摺動面に皮膜を形成し得る。摺動面の材質としては、鋼鉄では、具体的には、機械構造用炭素鋼、ニッケルクロム鋼材・ニッケルクロムモリブデン鋼材・クロム鋼材・クロムモリブデン鋼材・アルミニウムクロムモリブデン鋼材などの構造機械用合金鋼、ステンレス鋼、マルチエージング鋼などが挙げられる。

[0087] 摺動面の材質としては、鋼鉄以外の各種金属、又は金属以外の無機もしくは有機材料も広く用いられる。金属以外の無機もしくは有機材料としては、各種プラスチック、セラミック、カーボン等、及びその混合体などが挙げられる。より具体的には、鋼鉄以外の金属材料としては、鋳鉄、銅・銅-鉛・アルミニウム合金、その鋳物及びホワイトメタルが挙げられる。

なお、摺動面の材質については、特開2011-89106号公報の段落〔0168〕～〔0175〕の記載を参照することができる。

[0088] 本発明の潤滑剤は、種々の用途に利用できる。例えば、グリース用潤滑油、離型剤、内燃機関用エンジンオイル、金属加工用（切削用）オイル、軸受け用オイル、燃焼機関用燃料、車両エンジン油、ギヤ油、自動車用作動油、船舶・航空機用潤滑油、マシン油、タービン油、軸受用オイル、油圧作動油、圧縮機・真空ポンプ油、冷凍機油、金属加工用潤滑油剤、磁気記録媒体用潤滑剤、マイクロマシン用潤滑剤、人工骨用潤滑剤、ショックアブソーバ油又は圧延油として用いることができる。さらに、往復動式や回転式の密閉型圧縮機を有するエアコンや冷蔵庫、自動車用エアコンや除湿機、冷凍庫、冷凍冷蔵倉庫、自動販売機、ショーケース、化学プラント等の冷却装置などにも用いられる。

[0089] 塩素系化合物を含まない金属加工用潤滑油剤として、例えば鉄鋼材料やAl合金などの金属材料を熱間圧延したり、切削等の加工を行なう際に、またアルミニウムの冷間圧延油、切削油、研削油、引き抜き加工油、プレス加工油等の金属加工油や金属の塑性加工油として、特に高速、高負荷加工時の摩擦、破損、表面あれの抑止剤として、またブローチ加工、ガンドリル加工の

ような低速・重切削に適用可能な金属加工油組成物としても有用である。

また各種グリース用潤滑油、磁気記録媒体用潤滑剤、マイクロマシン用潤滑剤や人工骨用潤滑剤等に利用することができる。また、組成物の元素組成を炭水化物とすることができるため、例えば、乳化、分散化、可溶化剤としてケーキミックス、サラダドレッシング、ショートニングオイル、チョコレート等に広く利用されている、ポリオキシエチレンエーテルを含むソルビタン脂肪酸エステルを食用油を基油とした組成物を潤滑油とすることで、全く人体に無害の高性能潤滑油を食品製造ラインの製造機器や医療機器部材の潤滑に用いることができる。

さらに、本発明の組成物を水系に乳化して分散したり、極性溶媒中や樹脂媒体中に分散することで、切削油や圧延油として用いることができる。

[0090] また、本発明の潤滑剤組成物は離型剤としても、種々の用途に利用できる。例えば、ポリカーボネート樹脂、難燃性ポリカーボネート樹脂、電子写真装置や静電記録装置などで使用される画像形成用トナーの主成分である結晶性ポリエステル樹脂、各種成形用熱可塑性樹脂組成物及び半導体封し用エポキシ樹脂組成物などの離型剤として用いられる。離型剤の一態様は、ポリカーボネート樹脂等の樹脂100質量部に対して、複合エステルポリアミド組成物を0.01～10質量部（好ましくは0.1～5質量部）含有する態様である。

また、衣料などの繊維製品に予め練り込んだり、塗布することにより、繊維製品に付着した汚れの離脱を促進して繊維製品の汚れを防止する防汚剤としても用いることができる。

実施例

[0091] 以下に実施例と比較例を挙げて本発明の特徴をさらに具体的に説明する。以下の実施例に示す材料、使用量、割合、処理内容、処理手順等は、本発明の趣旨を逸脱しない限り適宜変更することができる。したがって、本発明の範囲は以下に示す具体例により限定的に解釈されるべきものではない。

[0092] （実施例1～24）

<エステルポリアミドの合成>

(合成例 1)

ヘキサメチレンジアミン (PA-5) 7 質量部、ダイマー酸 (CA-26 : 商品名ツノダイム 395) 67 質量部、2-(2-エチルヘキシルオキシ)エタノール (MA-1) 26 質量部をディーンスターク脱水装置がついた反応容器に仕込んだ。液温 160~200℃で 12 時間攪拌した。攪拌中に水が発生し、4 質量部の水が除去された。室温まで放冷、黄色透明の液状物として 96 質量部の複合エステルポリアミド組成物 PEA-1 を得た。

[0093] (合成例 2)

トリス(2-アミノエチルアミン) (PA-21) 6 質量部、ダイマー酸 (CA-26 : 商品名ツノダイム 395) 69 質量部、2-(2-エチルヘキシルオキシ)エタノール (MA-1) 25 質量部をディーンスターク脱水装置がついた反応容器に仕込んだ。液温 160~200℃で 12 時間攪拌した。攪拌中に水が発生し、4 質量部の水が除去された。室温まで放冷、黄色透明の液状物として 96 質量部の複合エステルポリアミド組成物 PEA-2 を得た。

[0094] 表 1 に示す化合物を反応させ、上記と同様にして複合エステルポリアミド組成物 PEA-3~PEA-24 を合成した。

[0095] <多価アミン>

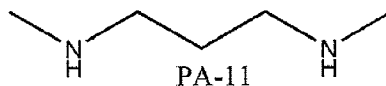
本発明の実施例で用いた多価アミンは下記のものである。

[0096] [化12]



PA-5 m=6

PA-9 m=10



PA-11



PA-21



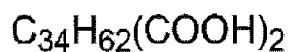
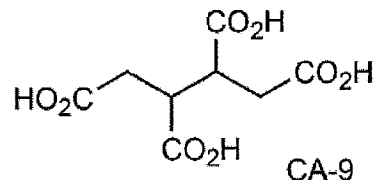
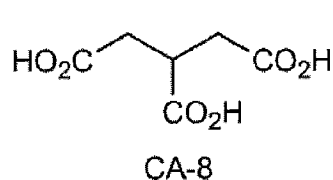
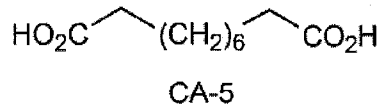
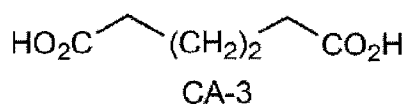
ダイマージアミン

PA-28

[0097] <多価カルボン酸>

また、本発明の実施例で用いた多価カルボン酸は下記のものである。

[0098] [化13]

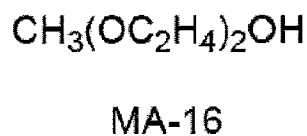
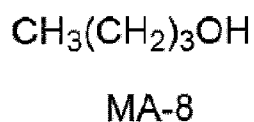
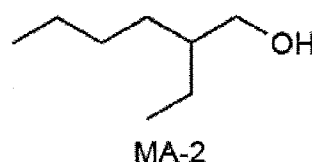
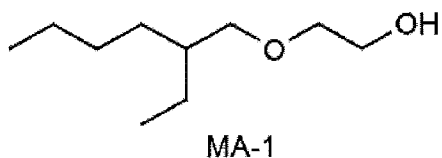


CA-26 … ダイマー酸

[0099] < 1 価アルコール >

また、本発明の実施例で用いた 1 価アルコールは下記のものである。

[0100] [化14]



[0101] < 潤滑剤の調製 >

得られた複合エステルポリアミド組成物と鉱油（100ニュートラル油、100℃における粘度4.4 mm/s²）とを、質量比率で、25/75で混合し、金属系清浄剤としてカルシウムスルホネート2.0質量%を含有する潤滑剤を調製した。潤滑剤の摩擦係数を下記の方法により測定した。

[0102] < 評価 >

試験例 1：内燃機関用潤滑油としての評価

本発明の複合エステルポリアミド組成物 P E A - 1 と鉱油（100ニュー
トラル油、100℃における粘度 4.4 mm/s^2 ）とを、質量比率で、25
／75で混合し、金属系清浄剤としてカルシウムスルホネート2.0質量％
を含有する潤滑剤L1を調製し、摩擦係数を測定した。また、本発明の組成
物 P E A - 1 に代えて組成物 P E A 2 ～ 2 4 を用いた以外は実施例1と同様
にして潤滑剤L2～L24を調製し、摩擦係数を測定した。摩擦係数を評価
する指標として下記評価基準にしたがって評価した。評価結果は下記表1に
示す。なお、摩擦係数は、振動型摩擦摩耗試験機（Optimol Ins
t r u m e n t s P r u e f t e c h n i k G m b H社製、商品名：S
R V 4）を用いて、振動数100Hz、振幅2.0mm、荷重30N、温
度65℃、試験時間30分において測定した。なお、評価がCランク以上の
ものを合格とする。

Aランク：摩擦係数 <0.05

Bランク： $0.05 \leq$ 摩擦係数 <0.06

Cランク： $0.06 \leq$ 摩擦係数 <0.07

Dランク：摩擦係数 ≥ 0.07

[0103] 試験例2：加水分解安定性の評価

本発明の複合エステルポリアミド組成物 P E A - 1 ～ 2 4 及び比較例化合
物の加水分解安定性はA S T M D 2 6 1 9に従い、以下評価基準をもとに
ランク付けした。なお、試験条件や評価項目は下記の通りである。なお、評
価がCランク以上のものを合格とする。

[0104] <試験条件>

混合割合 試料75g、水25g、試験温度93℃、試験時間48hr、触
媒材質 銅

<評価項目> 試験前酸価、試験後の酸価

<評価基準>

Aランク：試験後酸価（ mg KOH/g ）／試験前酸価（ mg KOH/g ）

≤ 1.2

Bランク：1.2 < 試験後酸価 (mg KOH/g) / 試験前酸価 (mg KOH/g) ≤ 1.5

Cランク：1.5 < 試験後酸価 (mg KOH/g) / 試験前酸価 (mg KOH/g) ≤ 5

Dランク：5.0 < 試験後酸価 (mg KOH/g) / 試験前酸価 (mg KOH/g)

[0105] (比較例1)

本発明の複合エステルポリアミド組成物 (PEA-1) に代えて、特開平9-12716 実施例記載の反応生成物 (PEA-25) を用いた以外は、実施例1と同様にして、潤滑剤L25を調製し、同様の評価を行った。結果を表1に示す。

[0106] [表1]

	ポリエステルアミド成分							エステルポリアミド 組成物	評価 (潤滑剤)	
	多価アミン		多価カルボン酸		1価アルコール		1価アルコール 炭素数		摩擦係数	加水分解 安定性
	種類	混合量 (質量部)	種類	混合量 (質量部)	種類	混合量 (質量部)				
実施例1	PA-5	7	CA-26	67	MA-1	26	10	PEA-1	B	A
実施例2	PA-21	6	CA-26	69	MA-1	25	10	PEA-2	A	A
実施例3	PA-21	6	CA-26	74	MA-2	20	8	PEA-3	A	A
実施例4	PA-11	7	CA-26	80	MA-8	13	4	PEA-4	B	A
実施例5	PA-21	7	CA-26	81	MA-8	12	4	PEA-5	A	A
実施例6	PA-9	11	CA-26	70	MA-16	19	5	PEA-6	B	A
実施例7	PA-28	34	CA-8	22	MA-1	44	10	PEA-7	A	A
実施例8	PA-28	38	CA-8	25	MA-2	37	8	PEA-8	B	B
実施例9	PA-28	45	CA-8	30	MA-8	25	4	PEA-9	B	B
実施例10	PA-28	39	CA-8	26	MA-16	35	5	PEA-10	A	B
実施例11	PA-28	42	CA-3	23	MA-1	35	10	PEA-11	B	A
実施例12	PA-5	14	CA-3	35	MA-1	52	10	PEA-12	B	B
実施例13	PA-5	12	CA-5	42	MA-1	46	10	PEA-13	B	A
実施例14	PA-9	14	CA-8	29	MA-1	57	10	PEA-14	B	B
実施例15	PA-11	12	CA-9	27	MA-1	61	10	PEA-15	B	B
実施例16	PA-21	14	CA-3	42	MA-2	44	8	PEA-16	B	B
実施例17	PA-5	12	CA-8	38	MA-2	53	8	PEA-17	C	B
実施例18	PA-9	22	CA-9	29	MA-2	49	8	PEA-18	B	B
実施例19	PA-11	17	CA-3	50	MA-8	32	4	PEA-19	C	A
実施例20	PA-21	14	CA-5	60	MA-8	26	4	PEA-20	B	A
実施例21	PA-5	20	CA-9	41	MA-8	39	4	PEA-21	C	B
実施例22	PA-9	23	CA-3	38	MA-16	39	5	PEA-22	B	B
実施例23	PA-11	13	CA-5	50	MA-16	37	5	PEA-23	B	A
実施例24	PA-21	16	CA-8	38	MA-16	46	5	PEA-24	B	A
比較例1	PA-1	9	CA-26	82	メタノール	9	1	PEA-25	D	B

[0107] 表1からわかるように、上記実施例1～24の試料の摩擦係数は、比較例の試料よりも、低いことが理解できる。従って、本発明の潤滑剤は、自動車のエンジンなどの内燃機関用、ギヤ油、自動変速機液、ショックアブソーバ

油などの自動車用潤滑油として好適に用いることができる。

また、本発明の複合エステルポリアミド組成物はいずれも加水分解に対して安定であり、変質しにくい特性を有していることが分かる。

産業上の利用可能性

[0108] 本発明によれば、高い潤滑性能を発揮し得る複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。さらに、本発明によれば、優れた耐加水分解性を有する複合エステルポリアミド組成物を得ることができる。このため、本発明の複合エステルポリアミド組成物は、金属を腐食させることがなく、様々な用途において潤滑剤として好ましく用いられ、産業上の利用可能性が高い。

請求の範囲

【請求項1】 少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、炭素数4以上の1価アルコールとを縮合させることにより得られるエステルポリアミドを含むことを特徴とする複合エステルポリアミド組成物。

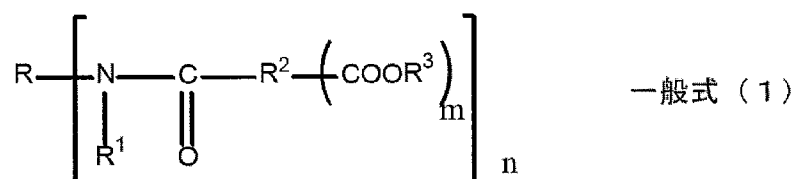
【請求項2】 前記多価アミンと前記多価カルボン酸が下記の条件（i）又は（i i）を満たす請求項1に記載の複合エステルポリアミド組成物；

（i）多価アミンが2つの1級または2級アミノ基を含む2価アミンであり、かつ多価カルボン酸が3つ以上のカルボキシル基を含む多価カルボン酸である。

（i i）多価アミンが3つ以上の1級または2級アミノ基を含む多価アミンであり、かつ多価カルボン酸が2つのカルボキシル基を含む2価カルボン酸である。

【請求項3】 前記エステルポリアミドの少なくとも1種は、下記一般式（1）で表される請求項1又は2に記載の複合エステルポリアミド組成物；

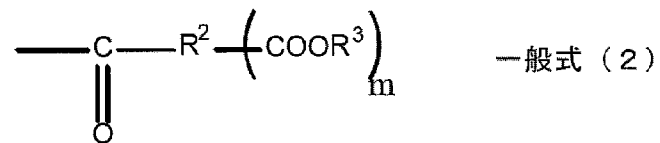
【化1】



一般式（1）中、Rは炭素数2～60の脂肪族基を表し、R¹は水素原子、置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基又は一般式（2）で表される基を表す。R²は（m+1）価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、R³は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。nは2～4の整数を表し

、 m は1～3の整数を表す。

[化2]



一般式(2)中、 R^2 は $(m+1)$ 価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、 R^3 は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。 m は1～3の整数を表す。

[請求項4] 前記一般式(1)及び(2)において、 m は1又は2の整数である請求項3に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[請求項5] 前記一般式(1)及び(2)において、 R^2 の炭素数は22～66である請求項3又は4に記載の複合エステルポリアミド組成物。

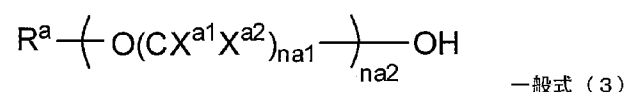
[請求項6] 前記一般式(1)及び(2)において、 R^2 は、ダイマー酸残基又はトリマー酸残基である請求項3～5のいずれか1項に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[請求項7] 前記一般式(1)及び(2)において、 R^3 の炭素数は6以上である請求項3～6のいずれか1項に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[請求項8] 前記一般式(1)及び(2)において、 R^3 は、オキシアルキレン構造を有する基である請求項3～7のいずれか1項に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[請求項9] 前記1価アルコールは、下記一般式(3)で表される請求項1～8のいずれか1項に記載の複合エステルポリアミド組成物；

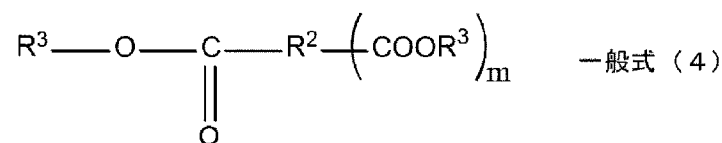
[化3]



一般式（３）中、 R^a は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアルケニル基、置換基を有してもよいアリール基又は置換基を有してもよいヘテロアリール基であり、 X^{a1} 及び X^{a2} はそれぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子又はアルキル基を表す。また、 n_{a1} は２～４の整数を表し、 n_{a2} は１～１２の整数を表す。

[請求項10] 一般式（４）で表されるエステル成分をさらに含む請求項１～９のいずれか１項に記載の複合エステルポリアミド組成物；

[化4]



一般式（４）中、 R^2 は（ $m+1$ ）価以上の鎖状もしくは環状の脂肪族連結基又は芳香族連結基を表し、 R^3 は置換基を有してもよいアルキル基、置換基を有してもよいシクロアルキル基、置換基を有してもよいアリール基、置換基を有してもよいヘテロアリール基を表す。 m は１～３の整数を表す。

[請求項11] ４０℃における粘度が５０～１６５０ｍＰａｓである請求項１～１０のいずれか１項に記載の複合エステルポリアミド組成物。

[請求項12] 請求項１～１１のいずれか１項に記載の複合エステルポリアミド組成物と、摩耗防止剤、粘度指数向上剤、酸化防止剤、清浄剤、分散剤、流動、硬化剤、腐食防止剤、シール適合剤、消泡剤、錆防止剤、腐食防止剤、摩擦調整剤、及び増ちょう剤から選択される１種又は２種以上の添加剤とを含有する潤滑剤組成物。

[請求項13] 請求項１～１１のいずれか１項に記載の複合エステルポリアミド組成物、又は請求項１２に記載の潤滑剤組成物と、鉱物油、油脂化合物、ポリオレフィン油、シリコン油、パーフルオロポリエーテル油、ジフェニルエーテル油、芳香族エステル油、脂肪族モノエステル油、

脂肪族ジエステル油、及びポリオールエステル潤滑油から選択される1種又は2種以上の媒体とを少なくとも含有する潤滑剤組成物。

[請求項14] 請求項1～11のいずれか1項に記載の複合エステルポリアミド組成物、又は請求項12又は13に記載の潤滑剤組成物を含む潤滑剤。

[請求項15] グリース用潤滑油、離型剤、内燃機関用エンジンオイル、金属加工用（切削用）オイル、軸受け用オイル、燃焼機関用燃料、車両エンジン油、ギヤ油、自動車用作動油、船舶・航空機用潤滑油、マシン油、タービン油、軸受用オイル、油圧作動油、圧縮機・真空ポンプ油、冷凍機油、金属加工用潤滑油剤、磁気記録媒体用潤滑剤、マイクロマシン用潤滑剤、人工骨用潤滑剤、ショックアブソーバ油又は圧延油として用いられる請求項14に記載の潤滑剤。

[請求項16] 少なくとも2つの1級または2級アミノ基を含む多価アミンと、少なくとも2つのカルボキシル基を含む多価カルボン酸と、1価アルコールとを混合し混合物を得る工程と、前記混合物を脱水縮合する工程を含む複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

[請求項17] 前記混合物を得る工程は、前記多価アミンに対して、前記多価カルボン酸を混合する当量比が1～3となり、前記1価アルコールを混合する当量比が0.5～3となるように混合する工程である請求項16に記載の複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

[請求項18] 前記脱水縮合する工程は、前記混合物に対して1～25質量%の、沸点110～160℃の炭化水素系溶剤を添加し、水を共沸させつつ、脱水縮合を進行させる工程を含む請求項16又は17に記載の複合エステルポリアミド組成物の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070057

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

See extra sheet.

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)

C08G69/44, C10M133/16, C10M133/56, C10N30/00, C10N30/06, C10N40/00, C10N40/02, C10N40/04, C10N40/06, C10N40/08, C10N40/18, C10N40/20, C10N40/22, C10N40/24, C10N40/25, C10N40/30, C10N50/10

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 1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2003-193089 A (International Flavors and Fragrances Inc.), 09 July 2003 (09.07.2003), entire text & US 2003/0110682 A1 & EP 1319704 A1 & CN 1427071 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2010-539189 A (Arizona Chemical Company, LLC), 16 December 2010 (16.12.2010), entire text & US 2009/0074685 A1 & EP 2187859 A1 & WO 2009/039158 A1 & KR 10-2010-0061684 A & CN 101801331 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18

☒ 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
14 October, 2014 (14.10.14)

Date of mailing of the international search report
28 October, 2014 (28.10.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070057

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-45827 A (L'Oreal), 22 February 2007 (22.02.2007), entire text & US 2007/0036739 A1 & EP 1752136 A2	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	WO 2009/139094 A1 (Kokyu Alcohol Kogyo Co., Ltd.), 19 November 2009 (19.11.2009), claims; paragraphs [0010] to [0012], [0026] to [0028], [0037] & US 2009/0280076 A1 & US 2009/0280077 A1 & EP 2286789 A1 & EP 2298274 A1 & WO 2009/139092 A1 & KR 10-2010-0137591 A & KR 10-2011-0014189 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2000-72872 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 07 March 2000 (07.03.2000), claims; paragraphs [0018] to [0024], [0050] (Family: none)	1-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2003-261854 A (Sanyo Chemical Industries, Ltd.), 19 September 2003 (19.09.2003), claims; paragraphs [0008] to [0013], [0027] to [0029] (Family: none)	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2007-204762 A (Union Camp Corp.), 16 August 2007 (16.08.2007), entire text & US 5783657 A & US 5998570 A & US 6111055 A & EP 939782 B1 & EP 1027032 A1 & EP 1696022 A1 & EP 1686159 A1 & WO 1998/017243 A1 & WO 1998/017705 A1 & WO 2000/041188 A2 & WO 2002/098992 A1	1-7, 10-18
A	JP 61-2793 A (Kao Soap Co., Ltd.), 08 January 1986 (08.01.1986), claims (Family: none)	1-18
A	JP 6-145683 A (Tonen Corp.), 27 May 1994 (27.05.1994), claims (Family: none)	1-18
A	JP 2008-520795 A (Croda International PLC), 19 June 2008 (19.06.2008), entire text & US 2009/0054281 A1 & GB 425510 D & EP 1814970 A1 & WO 2006/054044 A1 & KR 10-2007-0084349 A	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070057

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 10-265793 A (Tonen Corp.), 06 October 1998 (06.10.1998), claims & US 5922656 A & EP 867498 A1	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/070057

Continuation of A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

(International Patent Classification (IPC))

*C08G69/44(2006.01)i, C10M133/16(2006.01)i, C10M133/56(2006.01)i,
C10N30/00(2006.01)n, C10N30/06(2006.01)n, C10N40/00(2006.01)n,
C10N40/02(2006.01)n, C10N40/04(2006.01)n, C10N40/06(2006.01)n,
C10N40/08(2006.01)n, C10N40/18(2006.01)n, C10N40/20(2006.01)n,
C10N40/22(2006.01)n, C10N40/24(2006.01)n, C10N40/25(2006.01)n,
C10N40/30(2006.01)n, C10N50/10(2006.01)n*

(According to International Patent Classification (IPC) or to both national
classification and IPC)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. 特別ページ参照

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. C08G69/44, C10M133/16, C10M133/56, C10N30/00, C10N30/06, C10N40/00, C10N40/02, C10N40/04, C10N40/06, C10N40/08, C10N40/18, C10N40/20, C10N40/22, C10N40/24, C10N40/25, C10N40/30, C10N50/10

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 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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）

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
X	JP 2003-193089 A（インターナショナル フレーバーズ アンド フ ラグランシズ インコーポレイテッド）2003. 07. 09, 全文 & US 2003/0110682 A1 & EP 1319704 A1 & CN 1427071 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2010-539189 A（アルゾナ・ケミカル・カンパニー・エルエルシ ー）2010. 12. 16, 全文 & US 2009/0074685 A1 & EP 2187859 A1 & WO 2009/039158 A1 & KR 10-2010-0061684 A & CN 101801331 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18

☒ 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 4 . 1 0 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

2 8 . 1 0 . 2 0 1 4

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）

渡辺 陽子

4 J

9 2 7 9

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
X	JP 2007-45827 A (ロレアル) 2007.02.22, 全文 & US 2007/0036739 A1 & EP 1752136 A2	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	WO 2009/139094 A1 (高級アルコール工業株式会社) 2009.11.19, 特許請求の範囲、[0010]-[0012][0026]-[0028][0037] & US 2009/0280076 A1 & US 2009/0280077 A1 & EP 2286789 A1 & EP 2298274 A1 & WO 2009/139092 A1 & KR 10-2010-0137591 A & KR 10-2011-0014189 A	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2000-72872 A (日本ゼオン株式会社) 2000.03.07, 特許請求の範囲、[0018]-[0024][0050] (ファミリーなし)	1-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2003-261854 A (三洋化成工業株式会社) 2003.09.19, 特許請求の範囲、[0008]-[0013][0027]-[0029] (ファミリーなし)	1, 3-7, 10, 11, 16-18
X	JP 2007-204762 A (ユニオン キャンプ コーポレイション) 2007.08.16, 全文 & US 5783657 A & US 5998570 A & US 6111055 A & EP 939782 B1 & EP 1027032 A1 & EP 1696022 A1 & EP 1686159 A1 & WO 1998/017243 A1 & WO 1998/017705 A1 & WO 2000/041188 A2 & WO 2002/098992 A1	1-7, 10-18
A	JP 61-2793 A (花王石鹼株式会社) 1986.01.08, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 6-145683 A (東燃株式会社) 1994.05.27, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 2008-520795 A (クロード インターナショナル パブリック リミティド カンパニー) 2008.06.19, 全文 & US 2009/0054281 A1 & GB 425510 D & EP 1814970 A1 & WO 2006/054044 A1 & KR 10-2007-0084349 A	1-18
A	JP 10-265793 A (東燃株式会社) 1998.10.06, 特許請求の範囲 & US 5922656 A & EP 867498 A1	1-18

発明の属する分野の分類

C08G69/44(2006.01)i, C10M133/16(2006.01)i, C10M133/56(2006.01)i,
C10N30/00(2006.01)n, C10N30/06(2006.01)n, C10N40/00(2006.01)n, C10N40/02(2006.01)n,
C10N40/04(2006.01)n, C10N40/06(2006.01)n, C10N40/08(2006.01)n, C10N40/18(2006.01)n,
C10N40/20(2006.01)n, C10N40/22(2006.01)n, C10N40/24(2006.01)n, C10N40/25(2006.01)n,
C10N40/30(2006.01)n, C10N50/10(2006.01)n