(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
2019年10月24日(24.10.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/203210 A1

(51) 国際特許分類:
C10M 143/02 (2006.01) *C10N 30/02* (2006.01)
C10N 20/00 (2006.01) *C10N 40/25* (2006.01)
C10N 20/02 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/016255

(22) 国際出願日： 2019年4月16日(16.04.2019)

(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 2018-079175 2018年4月17日(17.04.2018) JP
特願 2018-079176 2018年4月17日(17.04.2018) JP

(71) 出願人: 三井化学株式会社 (**MITSUI CHEMICALS, INC.**) [JP/JP]; 〒1057122 東京都港区東新橋一丁目５番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 早川 晃央 (**HAYAKAWA Akio**); 〒2990265 千葉県袖ケ浦市長浦５８０－３２ 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 宇田川 瑛弘 (**UDAGAWA Akihiro**); 〒2990265 千葉県袖ケ浦市長浦５８０－３２ 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 甲斐 紀子(**KAI Noriko**); 〒7400061 山口県玖珂郡和木町和木６－１－２ 三井化学株式会社内 Yamaguchi (JP). 徳永 悠司(**TOKUNAGA Yuji**); 〒7400061 山口県玖珂郡和木町和木６－１－２ 三井化学株式会社内 Yamaguchi (JP).

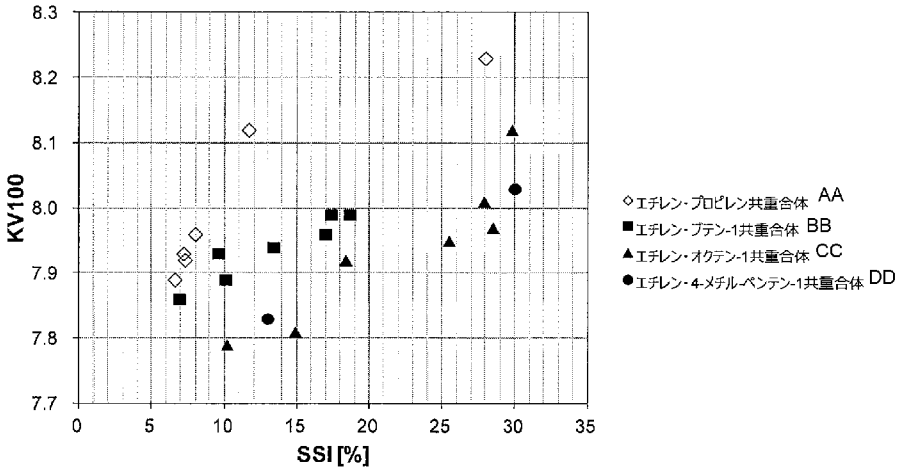
(74) 代理人: 特許業務法人ＳＳＩＮＰＡＴ (**SSINPAT PATENT FIRM**); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目１３番６号 五反田山崎ビル６階 Tokyo (JP).

(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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) **Title:** LUBRICATING OIL COMPOSITION AND VISCOSITY MODIFIER FOR LUBRICATING OIL

(54) 発明の名称： 潤滑油組成物および潤滑油用粘度調整剤

[図1]



AA Ethylene-propylene copolymer
BB Ethylene-butene-1 copolymer
CC Ethylene-octene-1 copolymer
DD Ethylene-4-methyl-pentene-1 copolymer

(57) **Abstract:** A lubricating oil composition containing an ethylene-α-olefin copolymer (A) having a content of structural units derived from ethylene of 70-90 mol% and an intrinsic viscosity [η] of 0.3-1.0 dL/g.

(57) 要約：エチレン由来の構成単位の含有割合が７０～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を含有する潤滑油組成物。

WO 2019/203210 A1

［続葉有］

KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, ST, 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:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明　細　書

発明の名称 ： 潤滑油組成物および潤滑油用粘度調整剤

技術分野

[0001] 本発明は、潤滑油組成物および潤滑油用粘度調整剤に関する。

背景技術

[0002] 石油製品は、一般に温度が変わると粘度が大きく変化する、いわゆる粘度の温度依存性を有する。例えば、自動車に用いられる潤滑油では、粘度の温度依存性が小さいことが好ましい。そこで潤滑油には、粘度の温度依存性を小さくする目的で、潤滑油基油に可溶なある種のポリマーが粘度調整剤として用いられている。

[0003] 潤滑油用粘度調整剤としてはエチレン・α－オレフィン共重合体が広く用いられており、潤滑油の性能バランスをさらに改善するため種々の改良がなされている（例えば、特許文献１参照）。

[0004] 近年、石油資源の低下や、地球温暖化のような環境問題から、排ガス汚染物質やCO_2の排出量の低減を目的とする自動車の燃費向上が求められている。潤滑油による省燃費化は潤滑機械の物理的な改良に比べて費用対効果に優れるため、重要な省燃費化技術として期待されており、潤滑油による燃費向上の要求が高まっている。

[0005] 例えば、潤滑油の１００℃における動粘度の低粘度化は、燃費向上に有効である。

[0006] また、エンジンやトランスミッションにおける動力損失は、摺動部での摩擦損失と潤滑油の粘性による攪拌損失とに分けられる。特にエンジン油による省燃費化の一つの方策として、これらの損失の低減が挙げられる。低粘度化は、エンジン油のこれらの損失の低減に有効である。

[0007] 上述した特許文献１はエンジン用潤滑油ではなく、自動車用・産業用変速機油、パワーステアリング油、油圧作動油等の動力伝達系用潤滑油である。動力伝達系用潤滑油は、頻繁に交換されるものではないので、高い耐久性が

必要とされる。一方、エンジン用潤滑油は、コストの観点から潤滑油用粘度調整剤の使用量が小さいこと、燃費性能の観点から低温および高温での潤滑特性を両立することが必要とされ、ただし交換頻度が高いので動力伝達系用潤滑油ほどは高い耐久性は必要とされていない。したがって、両者は求められる性能が異なっている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：国際公開第２００６／１０１２０６号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、低粘度化された潤滑油組成物を提供することを課題の一つとする。

[0010] また、潤滑油は動粘度の剪断安定性に優れていることが好ましいが、本発明者らの検討によれば、良好な剪断安定性を有し、かつ１００℃動粘度が小さい潤滑油はまだ充分に提供されているとはいえない。そこで本発明は、剪断安定性に優れ、かつ１００℃動粘度が小さい潤滑油組成物、および潤滑油用粘度調整剤を提供することを課題の一つとする。

[0011] また、本発明は、コストが低く、低温から高温での温度領域でバランス良く潤滑特性を両立することが可能な、したがって省燃費化に優れたエンジン用潤滑油組成物、およびエンジン用潤滑油のための粘度調整剤を提供することも課題の一つとする。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者らは上記課題を解決すべく検討した。その結果、以下に記載の潤滑油組成物により上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。本発明は、例えば以下の［１］～［１１］に関する。

[0013] ［１］エチレン由来の構成単位の含有割合が７０～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであるエチレン・α－オレフィン共

重合体（Ａ）を含有する潤滑油組成物。

[0014] ［２］前記共重合体（Ａ）が、エチレン由来の構成単位の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである、エチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体である前記［１］に記載の潤滑油組成物。

[0015] ［３］前記共重合体（Ａ）が、示差走査型熱量計（ＤＳＣ）で測定した融点が１００℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体である前記［１］または［２］に記載の潤滑油組成物。

[0016] ［４］潤滑油基油（Ｂ）をさらに含有する前記［１］～［３］のいずれかに記載の潤滑油組成物。

[0017] ［５］エンジン油である前記［１］～［４］のいずれかに記載の潤滑油組成物。

[0018] ［６］エチレン由来の構成単位の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである、エチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体を含有する潤滑油用粘度調整剤。

[0019] ［７］１００℃における動粘度が７．４～１４．７ｍｍ^2／ｓであり、エンジン用である前記［１］に記載の潤滑油組成物。

[0020] ［８］前記共重合体（Ａ）が、示差走査型熱量計（ＤＳＣ）で測定した融点が１００℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体であり、エンジン用である前記［１］または［７］に記載の潤滑油組成物。

[0021] ［９］前記共重合体（Ａ）において、エチレン由来の構成単位の含有割合が７９～９０モル％であり、エンジン用である前記［１］、［７］または［８］に記載の潤滑油組成物。

[0022] ［１０］潤滑油基油（Ｂ）をさらに含有し、エンジン用である前記［１］、［７］～［９］のいずれかに記載の潤滑油組成物。

[0023] ［１１］エチレン由来の構成単位の含有割合が７９～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであるエチレン・α－オレフィン

共重合体を含有する、エンジン用潤滑油のための粘度調整剤。

発明の効果

[0024] 本発明によれば、低粘度化された潤滑油組成物を提供することができる。例えば、本発明によれば、剪断安定性に優れ、かつ１００℃動粘度が小さい潤滑油組成物と、このような潤滑油組成物の製造に好適に用いられる粘度調整剤とを提供することができる。また、本発明によれば、コストが低く、低温から高温での温度領域でバランス良く潤滑特性を両立することが可能な、したがって省燃費化に優れたエンジン用潤滑油組成物、およびエンジン用潤滑油のための粘度調整剤を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0025] [図1]図１は、実施例Ｂ、実施例Ｃおよび比較例Ｂで得られた潤滑油組成物について剪断安定性（ＳＳＩ）および１００℃における動粘度（ＫＶ１００）をプロットしたグラフである。

発明を実施するための形態

[0026] 以下、本発明を実施するための形態について説明する。

[0027] 本明細書において数値範囲「n_1～n_2」は、n_1以上n_2以下を意味する。ここでn_1は前記数値範囲の下限値であり、n_2は前記数値範囲の上限値である。

[0028] ［潤滑油組成物］

本発明の潤滑油組成物は、特定のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を含有し、好ましくはさらに潤滑油基油（Ｂ）を含有する。ここで、共重合体（Ａ）は、潤滑油用粘度調整剤として機能することができる。

[0029] 本発明の潤滑油組成物は、一実施態様においてエンジン用である。この場合、共重合体（Ａ）は、エンジン用潤滑油の粘度調整剤として機能することができる。

[0030] ＜エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）＞

本発明で使用されるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）（以下「共重合体（Ａ）」ともいう）について説明する。共重合体（Ａ）は、エチレン由来の構成単位の含有割合が７０～９０モル％であり、極限粘度［η］が０

．３～１．０ｄｌ／ｇである。

[0031] 以下、共重合体（Ａ）に関して、好ましい態様である第１の態様の共重合体および第２の態様の共重合体を説明する。

[0032] 共重合体（Ａ）は、第１の態様において、少なくともエチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体である。コモノマー単位として炭素数４以上のα－オレフィン由来の構成単位を有する共重合体（Ａ）を用いることで、剪断安定性に優れ、かつ１００℃動粘度が小さい潤滑油組成物を得ることができる傾向にある。

[0033] 第１の態様における共重合体（Ａ）を構成する炭素数４以上のα－オレフィンとしては、例えば、ブテン-１、ペンテン-１、ヘキセン-１、4-メチル-ペンテン-1、ヘプテン-１、オクテン-１、デセン-１、ウンデセン-１、ドデセン-１、トリデセン-１、テトラデセン-１、ペンタデセン-１、ヘキサデセン-１、ヘプタデセン-１、オクタデセン-１、ノナデセン-１、エイコセン-１等の炭素数４～２０、好ましくは炭素数４～１２、より好ましくは炭素数５～８のα－オレフィンが挙げられる。また、α－オレフィンは直鎖状であっても分岐を有してもよい。α－オレフィンの中では、潤滑油組成物に対して低い１００℃動粘度および良好な剪断安定性を与える点で、ブテン-１、オクテン-１、4-メチル-ペンテン-1が好ましく、オクテン-１、4-メチル-ペンテン-1がより好ましい。

[0034] 共重合体（Ａ）は、α－オレフィン由来の構成単位を１種または２種以上有することができる。

[0035] 第１の態様における共重合体（Ａ）は、エチレン由来の構成単位（エチレン単位）の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、好ましくは７２モル％以上、より好ましくは７４モル％以上であり；また、好ましくは８９モル％以下、より好ましくは８８モル％以下である。この含有割合が前記下限値以上であると、潤滑油組成物は剪断安定性が高くなる傾向にあり、前記上限値以下であると、オイルへの溶解性および低温貯蔵安定性に優れる傾向にある。

[0036] 第１の態様における共重合体（Ａ）は、炭素数４以上のα－オレフィン由来の構成単位（α－オレフィン単位）の含有割合が、好ましくは１０モル％以上３０モル％未満であり、より好ましくは１１モル％以上、さらに好ましくは１２モル％以上であり；また、より好ましくは２８モル％以下、さらに好ましくは２６モル％以下である。

[0037] 共重合体（Ａ）は、第２の態様において、少なくともエチレンとα－オレフィンとの共重合体である。第２の態様の共重合体（Ａ）は、エンジン用潤滑油組成物の成分として好ましい。

[0038] 第２の態様における共重合体（Ａ）を構成するα－オレフィンとしては、例えば、プロピレン、ブテン-１、ペンテン-１、ヘキセン-１、4-メチル-ペンテン-1、ヘプテン-１、オクテン-１、デセン-１、ウンデセン-１、ドデセン-１、トリデセン-１、テトラデセン-１、ペンタデセン-１、ヘキサデセン-１、ヘプタデセン-１、オクタデセン-１、ノナデセン-１、エイコセン-１等の炭素数３～２０、好ましくは炭素数３～１２のα－オレフィンが挙げられる。また、α－オレフィンは直鎖状であっても分岐を有してもよい。α－オレフィンの中では、エンジン用潤滑油組成物に対して良好な低温粘度特性および剪断安定性を与える点で、プロピレンが好ましい。

[0039] 共重合体（Ａ）は、α－オレフィン由来の構成単位を１種または２種以上有することができる。

[0040] 第２の態様における共重合体（Ａ）は、エチレン由来の構成単位（エチレン単位）の含有割合が７０～９０モル％であり、好ましくは７０モル％超、より好ましくは７２モル％以上、さらに好ましくは７４モル％以上、特に好ましくは７９モル％以上であり；また、好ましくは８９モル％以下、より好ましくは８８モル％以下、さらに好ましくは８６モル％以下である。この含有割合が前記下限値以上であると、潤滑油組成物はＣＣＳ粘度が低くなり、また、剪断安定性が高くなる傾向にあり、前記上限値以下であると、オイルへの溶解性および低温貯蔵安定性に優れる傾向にある。

[0041] 第２の態様における共重合体（Ａ）は、α－オレフィン由来の構成単位（

α－オレフィン単位）の含有割合が、好ましくは１０～３０モル％であり、より好ましくは１１モル％以上、さらに好ましくは１２モル％以上、特に好ましくは１４モル％以上であり；また、好ましくは３０モル％未満、より好ましくは２８モル％以下、さらに好ましくは２６モル％以下、特に好ましくは２１モル％以下である。

[0042] エチレン由来の構成単位の含有割合は、共重合体（Ａ）を構成するモノマー（例えば、エチレン、炭素数４以上のα－オレフィンまたはα－オレフィン、その他のモノマー）に由来する構成単位の全量を１００モル％としたときの値である。

[0043] その他のモノマーとしては、例えば、環状オレフィン、芳香族ビニル化合物、共役ジエン、非共役ポリエン、官能化ビニル化合物、水酸基含有オレフィン、ハロゲン化オレフィンが挙げられる。環状オレフィン、芳香族ビニル化合物、共役ジエン、非共役ポリエン、官能化ビニル化合物、水酸基含有オレフィンおよびハロゲン化オレフィンとしては、例えば、特開２０１３－１６９６８５号公報の段落［００３５］～［００４１］に記載の化合物が挙げられる。

[0044] 共重合体（Ａ）は、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであり、好ましくは０．３ｄｌ／ｇ以上１．０ｄｌ／ｇ未満、より好ましくは０．３５～０．９９ｄｌ／ｇ、特に好ましくは０．４０～０．９８ｄｌ／ｇである。極限粘度［η］が前記下限値以上であると、少量の共重合体（Ａ）の添加で潤滑油組成物の後述するＨＴＨＳ粘度が高くなり、また、ＣＣＳ粘度が低くなる傾向にあり、また、前記上限値以下であると、潤滑油組成物の剪断安定性が高くなり、また、１００℃動粘度が低くなる傾向にある。

[0045] 極限粘度［η］は、１３５℃、デカリン中で測定される。

[0046] エチレン由来の構成単位の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである第１の態様の共重合体（Ａ）は、潤滑油組成物に対するその添加量が少なくても粘度調整効果を充分に発揮することができることから、コストの点で優れている。

[0047] エチレン由来の構成単位の含有割合が７０～９０モル％、特に７９～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである第２の態様の共重合体（Ａ）は、潤滑油組成物に対するその添加量が少なくても粘度調整効果を充分に発揮することができることから、コストの点で優れている。

[0048] 共重合体（Ａ）は、示差走査型熱量計（ＤＳＣ）で測定した融点が１００℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体であることが好ましく、融点が９５℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体であることがより好ましい。このような態様であると、潤滑油組成物のＣＣＳ粘度の低減に寄与できる。

[0049] 以上の物性の測定条件の詳細は、実施例欄に記載する。

[0050] 共重合体（Ａ）は、例えば、バナジウム、ジルコニウム、チタニウム、ハフニウム等の遷移金属を含有する化合物と、有機アルミニウム化合物、有機アルミニウムオキシ化合物およびイオン化イオン性化合物から選ばれる少なくとも１種とを含む触媒を用いて、少なくともエチレンとα－オレフィンとを共重合することにより製造することができる。このとき用いられるオレフィン重合用触媒としては、例えば、国際公開第００／３４４２０号に記載されている触媒が挙げられる。

[0051] 共重合体（Ａ）は１種または２種以上用いることができる。

[0052] 本発明の潤滑油組成物、例えばエンジン用潤滑油組成物、における共重合体（Ａ）の含有割合は、組成物全量の通常は０．１～５．０質量％、好ましくは０．２～４．０質量％、特に好ましくは０．３～３．０質量％である。本発明では、共重合体（Ａ）による組成物の粘度調整効果が高いため、共重合体（Ａ）を少量使用するのみで充分な効果が得られ、したがってコストの観点から好ましい。

[0053] ＜潤滑油基油（Ｂ）＞

本発明の潤滑油組成物、例えばエンジン用潤滑油組成物は、潤滑油基油（Ｂ）（以下「基油（Ｂ）」ともいう）をさらに含有することが好ましい。基油（Ｂ）は、通常、エンジン用潤滑油基油などの潤滑油基油として用いられ

るものを制限なく用いることができ、例えば、鉱物油、合成油が挙げられる。基油（Ｂ）としては、鉱物油と合成油とのブレンド物を用いてもよい。

[0054] 基油（Ｂ）の１００℃における動粘度は、通常は１～５０ｍｍ^2／ｓ、好ましくは１．５～４０ｍｍ^2／ｓ、より好ましくは２～３０ｍｍ^2／ｓである。

[0055] 鉱物油は、一般に脱ワックスなどの精製工程を経て用いられ、精製の仕方により幾つかの等級があり、本等級はＡＰＩ（米国石油協会）分類で規定される。一般に０．５～１０質量％のワックス分を含む鉱物油が使用される。例えば、水素分解精製法で製造された流動点の低い、粘度指数の高い、イソパラフィンを主体とした組成の高度精製油を用いることができる。４０℃における動粘度が１０～２００ｍｍ^2／ｓの鉱物油が一般的に使用される。

[0056] 合成油としては、例えば、ポリα－オレフィン；ポリオールエステル、ジオクチルフタレート、ジオクチルセバケート等のジエステル類；ポリアルキレングリコールが挙げられる。

[0057] 表１に各グループに分類される潤滑油基油の特性を示す。

[0058] [表1]

表１

グループ	種類	粘度指数 *1	飽和炭化水素分 *2 (vol%)	硫黄分 *3 (質量%)
(I) *4	鉱物油	８０～１２０	＜９０	＞０．０３
(II)	鉱物油	８０～１２０	≧９０	≦０．０３
(III)	鉱物油	≧１２０	≧９０	≦０．０３
(IV)	ポリ－α－オレフィン			
(V)	上記以外の潤滑油基油			

＊１：ＡＳＴＭ　Ｄ２２７０（ＪＩＳ　Ｋ２２８３）に準じて測定

＊２：ＡＳＴＭ　Ｄ３２３８に準じて測定

＊３：ＡＳＴＭ　Ｄ４２９４（ＪＩＳ　Ｋ２５４１）に準じて測定

＊４：飽和炭化水素分が９０（vol%）未満でかつ硫黄分が０．０３質量％未満または飽和炭化水素分が９０（vol%）以上でかつ硫黄分が０．０３質量％を超える鉱物油もグループ（Ｉ）に含まれる。

[0059] 表１におけるポリ－α－オレフィンは、炭素数１０以上のα－オレフィンを少なくとも原料モノマーとして重合して得られる炭化水素ポリマーであって、例えば、デセン-１を重合して得られるポリデセンが挙げられる。

[0060] 基油（Ｂ）としては、グループ（II）またはグループ（III）に属する鉱物油、またはグループ（IV）に属するポリ－α－オレフィンが好ましい。グループ（Ｉ）よりもグループ（II）およびグループ（III）の方が、ワックス濃度が少ない傾向にある。グループ（II）またはグループ（III）に属する鉱物油の中でも、１００℃における動粘度が１～５０ｍｍ^2／ｓのものが好ましい。

[0061] 基油（Ｂ）としては、特に低温特性の点から、下記（Ｂ０-1）～（Ｂ０-2）から選ばれる１つまたは双方の特性を有していることが好ましい。

[0062] （Ｂ０-1）１００℃における動粘度が２～１０ｍｍ^2／sであり、好ましくは３～８ｍｍ^2／ｓである。動粘度がこの範囲にあれば、得られる潤滑油組成物は、流動性と潤滑性に優れる。動粘度がこの範囲にあれば、得られるエンジン用潤滑油組成物は、ＣＣＳ粘度に優れる。

[0063] （Ｂ０-2）粘度指数が９０以上であり、好ましくは１００以上である。粘度指数の上限に特に制限はないが、例えば１６０または１３０である。粘度指数が９０以上であれば、エンジン用潤滑油基油などの潤滑油基油として特に有用である。

[0064] 上記特性は、下記方法で測定される。

[0065] １００℃における動粘度：ＡＳＴＭ　Ｄ４４５（ＪＩＳ　Ｋ２２８３）に記載の方法。

[0066] 粘度指数：ＡＳＴＭ　Ｄ２２７０（ＪＩＳ　Ｋ２２８３）に記載の方法。

[0067] 基油（Ｂ）は１種または２種以上用いることができる。

[0068] 本発明の潤滑油組成物、例えばエンジン用潤滑油組成物、における基油（Ｂ）の含有割合は、組成物全量の通常は５０質量％以上、好ましくは７０質量％以上、特に好ましくは８０質量％以上であり、基油（Ｂ）の含有割合の上限は共重合体（Ａ）および添加剤の量により画定される。

[0069] 本発明の潤滑油組成物を、潤滑油添加剤組成物（いわゆるコンセントレイト）として用いる場合は、前記潤滑油組成物は、共重合体（Ａ）１～５０質量部と、基油（Ｂ）５０～９９質量部（ただし、共重合体（Ａ）と基油（Ｂ）との合計を１００質量部とする）との比率でこれらを含有することができる。前記比率は、好ましくは共重合体（Ａ）を２～４０質量部、基油（Ｂ）を６０～９８質量部の範囲で、より好ましくは共重合体（Ａ）を３～３０質量部、基油（Ｂ）を７０～９７質量部の範囲である。

[0070] なお、本発明の潤滑油組成物を、潤滑油添加剤組成物（いわゆるコンセントレイト）として用いる場合は、通常、後述する添加剤は含まないかあるいは必要に応じて後述する酸化防止剤を０．０１～１質量％、好ましくは０．０５～０．５質量％の範囲で含有することが一般的である。前記潤滑油添加剤組成物に、必要に応じて基油（Ｂ）と後述する添加剤とを配合することにより、エンジン用潤滑油組成物などの潤滑油組成物として用いてもよい。

[0071] ＜その他の成分（添加剤）＞

本発明の潤滑油組成物、例えばエンジン用潤滑油組成物は、共重合体（Ａ）および基油（Ｂ）以外の他の成分（添加剤）を含有することができる。他の成分としては、例えば、共重合体（Ａ）以外の他の粘度調整剤、流動点降下剤、清浄分散剤、摩耗防止剤、消泡剤、酸化防止剤、摩擦調整剤、色安定剤、錆止め剤、腐食防止剤および金属不活性化剤が挙げられる。

[0072] 他の粘度調整剤としては、例えば、ポリイソブテン類、ポリメタクリル酸エステル類、ジエンポリマー類、ポリアルキルスチレン類、エステル化されたスチレン－無水マレイン酸共重合体類、アルケニルアレーン共役ジエン共重合体類およびポリオレフィン類、水添ＳＢＲ（スチレンブタジエンラバー）、ＳＥＢＳ（スチレンエチレンブチレンスチレンブロック共重合体）等のポリマーが挙げられる。分散性および／または酸化防止性も有する多機能性の粘度調整剤は公知であり、任意に用いてもよい。

[0073] 流動点降下剤としては、例えば、アルキル化ナフタレン、（メタ）アクリル酸アルキルの（共）重合体、フマル酸アルキルと酢酸ビニルとの共重合体

、α－オレフィンポリマー、α－オレフィンとスチレンとの共重合体が挙げられる。特に、（メタ）アクリル酸アルキルの（共）重合体が好ましい。

[0074] 清浄分散剤としては、例えば、カルシウムスルフォネート、マグネシウムスルフォネート等のスルフォネート系；フィネート；サリチレート；コハク酸イミド；ベンジルアミンが挙げられる。潤滑油組成物中の典型的な清浄分散剤の量は、本発明の効果を奏する限り特に限定されないが、通常は１～１０質量％、好ましくは１．５～９．０質量％、より好ましくは２．０～８．０質量％である。なお、該量はすべて、清浄分散剤において油がない（すなわち、それらに従来供給される希釈油がない）状態をベースにする。

[0075] 磨耗防止剤としては、チオリン酸金属塩類、リン酸エステル類およびそれらの塩類、リン含有のカルボン酸類・エステル類・エーテル類・アミド類；ならびに亜リン酸塩などのようなリン含有磨耗防止剤／極圧剤が挙げられる。多くの場合、上記磨耗防止剤はジアルキルジチオリン酸亜鉛（ＺＤＰ）である。典型的なＺＤＰは、１１質量％のＰ（オイルがない状態をベースに算出）を含んでもよく、好適な量として０．０９～０．８２質量％を挙げてもよい。リンを含まない磨耗防止剤としては、ホウ酸エステル類（ホウ酸エポキシド類を含む）、ジチオカルバメート化合物類、モリブデン含有化合物類、および硫化オレフィン類が挙げられる。また、リン含有磨耗防止剤は、本発明の効果を奏する限り特に限定されないが、通常は０．０１～０．２質量％、好ましくは０．０１５～０．１５質量％、より好ましくは０．０２～０．１質量％、さらに好ましくは０．０２５～０．０８質量％のリンを与える量で存在してもよい。

[0076] 消泡剤としては、例えば、ジメチルシロキサン、シリカゲル分散体等のシリコン系消泡剤；アルコール、エステル系消泡剤が挙げられる。

[0077] 酸化防止剤としては、例えば、２，６－ジ－ｔ－ブチル－４－メチルフェノール等のフェノール系酸化防止剤；ジオクチルジフェニルアミン等のアミン系酸化防止剤が挙げられる。酸化防止剤の典型的な量は、具体的な酸化防止剤およびその個々の有効性にもちろん依存するだろうが、例示的な合計量

は、０．０１～５質量％、好ましくは０．１５～４．５質量％、より好ましくは０．２～４質量％となり得る。さらに、１つ以上の酸化防止剤が存在していてもよく、これらの特定の組合せは、これらを組み合わせた全体の効果に対して、相乗的でなり得る。

[0078] 錆止め剤としては、例えば、カルボン酸、カルボン酸塩、エステル、リン酸が挙げられる。腐食防止剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系、チアジアゾール系、イミダゾール系の化合物が挙げられる。

[0079] 本発明の潤滑油組成物（例えばエンジン用潤滑油組成物）が添加剤を含有する場合の含有割合は特に限定されないが、基油（Ｂ）と全添加剤との合計を１００質量％とした場合に、添加剤の全含有割合としては、通常は０質量％を超え、好ましくは１質量％以上であり、より好ましくは３質量％以上であり；通常は４０質量％以下であり、好ましくは３０質量％以下であり、より好ましくは２０質量％以下である。

[0080] ＜潤滑油組成物、エンジン用潤滑油組成物の製造方法＞

本発明の潤滑油組成物、例えばエンジン用潤滑油組成物は、従来公知の方法で、例えば共重合体（Ａ）、必要に応じて基油（Ｂ）および添加剤を混合することにより調製することができる。共重合体（Ａ）は、取扱いが容易なため、基油（Ｂ）中の濃縮物として任意に供給してもよい。

[0081] ＜潤滑油組成物の物性＞

本発明の潤滑油組成物は、例えば高温でのエンジン作動中の燃費性を改善するため、高温低剪断速度下での粘度が低いことが好ましい。すなわち、本発明の潤滑油組成物は、１００℃における動粘度が、通常は５０ｍｍ^2／ｓ以下であり、好ましくは１～４０ｍｍ^2／ｓ、より好ましくは２～３０ｍｍ^2／ｓである。

[0082] また、本発明の潤滑油組成物は、例えばエンジン始動時および作動中における剪断力に対する安定性を有する（例えば後述するShear Stability Index（ＳＳＩ）で評価される）。

[0083] また、本発明の潤滑油組成物は、例えばエンジン油として使用する場合に

、摺動部での摩擦損失と潤滑油の粘性による攪拌損失とが小さいことが好ましい。エンジン用潤滑油は、高温でのエンジン作動中の摺動部保護のため、高温高剪断速度下において潤滑性を維持（油膜保持）できる粘度を有すること（例えば後述するHigh Temperature High Shear（ＨＴＨＳ）粘度で評価される）が好ましい。

[0084] 本発明の潤滑油組成物、特に第１の態様の共重合体（Ａ）を含有する潤滑油組成物は、以上の各物性のバランスに優れており、具体的には低い１００℃動粘度と良好な剪断安定性とを有する。

[0085] したがって、本発明の潤滑油組成物は、例えば、自動車用エンジンオイル、大型車両用ディーゼルエンジン用の潤滑油、船舶用ディーゼルエンジン用の潤滑油、二行程機関用の潤滑油、自動変速装置用およびマニュアル変速機用の潤滑油、ギア潤滑油ならびにグリース等として、多様な公知の機械装置のいずれにも注油することができる。

[0086] 以下、第２の態様の共重合体（Ａ）を含有するエンジン用潤滑油組成物（以下「本発明のエンジン用潤滑油組成物」ともいう）について説明する。

[0087] エンジン用潤滑油は、摺動部での摩擦損失と潤滑油の粘性による攪拌損失とが小さいことが好ましい。エンジン用潤滑油は、高温でのエンジン作動中の摺動部保護のため、高温高剪断速度下において潤滑性を維持（油膜保持）できる粘度を有し（例えば後述するHigh Temperature High Shear（ＨＴＨＳ）粘度で評価される）、かつ、低温でのエンジン始動時の燃費性を改善するため、低温高剪断速度下での粘度が小さいこと（例えば後述するCold Cranking Simulator（ＣＣＳ）粘度で評価される）が好ましい。

[0088] また、高温でのエンジン作動中の燃費性を改善するため、高温低剪断速度下での粘度が特定の範囲にあることが好ましい。例えば動粘度が低いほど、粘性抵抗が低減するため、省燃費化に有効である。一方で、動粘度が低すぎると、油膜が薄くなり、潤滑性に劣ることがある。これらのバランスを満足させるためには１００℃における動粘度が特定の範囲にあることが望ましい。すなわち、本発明のエンジン用潤滑油組成物は、１００℃における動粘度

が、通常は７．４～１４．７ｍｍ^2／ｓであり、好ましくは７．５～１４．５ｍｍ^2／ｓ、より好ましくは７．６～１４．０ｍｍ^2／ｓである。

[0089] また、エンジン用潤滑油は、エンジン始動時および作動中における剪断力に対する安定性を有すること（例えば後述するShear Stability Index（ＳＳＩ）で評価される）が好ましい。

[0090] 本発明のエンジン用潤滑油組成物は、以上の各物性のバランスに優れており、特に低いＣＣＳ粘度と特定の動粘度と良好な剪断安定性とを有する。したがって、本発明のエンジン用潤滑油組成物は、例えば、ガソリンエンジンオイルおよびディーゼルエンジンオイル等のエンジン油として有用であり、具体的には、自動車用ガソリンエンジン、自動二輪用ガソリンエンジン、大型車両用ディーゼルエンジン、船舶用ディーゼルエンジン等のエンジン用のエンジン油として有用である。

[0091] ［潤滑油用粘度調整剤］

本発明の潤滑油用粘度調整剤は、前述した第１の態様の、エチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体（Ａ）を含有する。第１の態様の共重合体（Ａ）の好ましい要件は、前述したとおりである。

[0092] 本発明の潤滑油用粘度調整剤における第１の態様の共重合体（Ａ）の含有割合は、通常は５質量％以上、好ましくは２５質量％以上、より好ましくは５０質量％以上である。

[0093] 本発明の潤滑油用粘度調整剤は、共重合体（Ａ）の含有割合が上記範囲にある限り、前述した基油（Ｂ）および添加剤から選ばれる少なくとも１種をさらに含有することができる。

[0094] ［エンジン用潤滑油のための粘度調整剤］

本発明のエンジン用潤滑油のための粘度調整剤は、前述した第２の態様のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を含有する。ここで、前記共重合体（Ａ）におけるエチレン由来の構成単位の含有割合は、７９～９０ｍｏｌ％である。共重合体（Ａ）のその他の好ましい要件は、前述したとおりである。

[0095] 本発明の粘度調整剤における第２の態様の共重合体（Ａ）の含有割合は、通常は５質量％以上、好ましくは２５質量％以上、より好ましくは５０質量％以上である。

[0096] 本発明の粘度調整剤は、共重合体（Ａ）の含有割合が上記範囲にある限り、前述した基油（Ｂ）および添加剤から選ばれる少なくとも１種をさらに含有することができる。

実施例

[0097] 以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0098] ［共重合体の物性］

共重合体の各種物性は、以下のようにして測定した。

[0099] ＜極限粘度［η］（ｄｌ／ｇ）＞

共重合体の極限粘度［η］は、デカリン溶媒を用いて、１３５℃で測定した。具体的には、共重合体のパウダー、ペレットまたは樹脂塊約２０ｍｇをデカリン１５ｍｌに溶解し、１３５℃のオイルバス中で比粘度ηspを測定した。このデカリン溶液にデカリン溶媒を５ｍｌ追加して希釈後、同様にして比粘度ηspを測定した。この希釈操作をさらに２回繰り返し、濃度（Ｃ）を０に外挿した時のηsp／Ｃの値を極限粘度として求めた（下式参照）。

[0100] ［η］＝ｌｉｍ（ηsp／Ｃ） （Ｃ→０）

＜エチレン単位の含有割合（Ｃ２含量）＞

エチレン・α－オレフィン共重合体におけるエチレン由来の構成単位の含有割合およびα－オレフィン由来の構成単位の含有割合（モル％）については、^{13}Ｃ－ＮＭＲスペクトルの解析により求めた。

[0101] （測定装置）

ブルカーバイオスピン社製ＡＶＡＮＣＥｌｌｌ５００ＣｒｙｏＰｒｏｂｅ Ｐｒｏｄｉｇｙ型核磁気共鳴装置

（測定条件）

測定核：^{13}Ｃ（１２５ＭＨｚ）、測定モード：シングルパルスプロトンブロ

ードバンドデカップリング、パルス幅：４５°（５．００μ秒）、ポイント数：６４ｋ、測定範囲：２５０ｐｐｍ（－５５～１９５ｐｐｍ）、繰り返し時間：５．５秒、積算回数：５１２回、測定溶媒：オルトジクロロベンゼン／ベンゼン－d_6（４／１　ｖ／ｖ）、試料濃度：ｃａ．６０ｍｇ／０．６ｍＬ、測定温度：１２０℃、ウインドウ関数：ｅｘｐｏｎｅｎｔｉａｌ（ＢＦ：１．０Ｈｚ）、ケミカルシフト基準：ベンゼン－d_6（１２８．０ｐｐｍ）。

[0102] ＜ＤＳＣ測定＞

エチレン・α－オレフィン共重合体の融点は、インジウム標準にて較正したＳＩＩ社製示差走査型熱量計（Ｘ－ＤＳＣ７０００）を用いて、以下のようにして測定した。

[0103] アルミニウム製ＤＳＣパン上に測定サンプル（エチレン・α－オレフィン共重合体）を約１０ｍｇになるように秤量した。蓋をパンにクリンプして密閉雰囲気下とし、サンプルパンを得た。サンプルパンをＤＳＣセルに配置し、リファレンスとして空のアルミニウムパンを配置した。ＤＳＣセルを窒素雰囲気下にて３０℃（室温）から、１５０℃まで１０℃／分で昇温した（第一昇温過程）。次いで、１５０℃で５分間保持した後、１０℃／分で降温し、ＤＳＣセルを－１００℃まで冷却した（降温過程）。－１００℃で５分間保持した後、ＤＳＣセルを１５０℃まで１０℃／分で昇温した（第二昇温過程）。

[0104] 第二昇温過程で得られるエンタルピー曲線の融解ピークトップ温度を融点（Ｔｍ）とした。融解ピークが２個以上存在する場合には、最大のピーク温度をＴｍとして定義した。なお、融点が観測されないとは、非晶性であることを意味する。

[0105] ［潤滑油組成物の物性］

＜High Temperature High Shear（ＨＴＨＳ）粘度＞

潤滑油組成物のＨＴＨＳ粘度（１５０℃）は、ＡＳＴＭ　Ｄ４６８３に基づき、１５０℃、$10^6 s^{-1}$で測定した。なお、ＨＴＨＳ粘度は、ＳＡＥ粘度分

類によって、エンジン保護のための下限粘度が規定されている。したがって、潤滑油組成物の省燃費性の優劣を確認するため、ＨＴＨＳ粘度が同程度となるよう配合を行い、潤滑油組成物の各種粘度特性を比較した。

[0106] ＜１００℃における動粘度（ＫＶ）＞

潤滑油組成物の１００℃における動粘度（ＫＶ）を、ＡＳＴＭ　Ｄ４４５に基づいて測定した。なお、ＨＴＨＳ粘度が同程度の潤滑油組成物を比較した場合、潤滑油組成物の前記動粘度が小さいほど、潤滑油組成物は、高温時の省燃費性に優れる。一方で、動粘度が低すぎると、潤滑性に劣ることがある。これらのバランスを満足させるためには動粘度が特定の範囲にあることが望ましい場合がある。

[0107] ＜Cold Cranking Simulator（ＣＣＳ）粘度＞

潤滑油組成物のＣＣＳ粘度（－３５℃）を、ＡＳＴＭ　Ｄ５３９３に基づいて測定した。ＣＣＳ粘度は、クランク軸における低温での摺動性（始動性）の評価に用いられる。ＣＣＳ粘度が小さいほど、潤滑油の低温粘度（低温特性）が優れることを示す。なお、ＨＴＴＳが同程度の潤滑油組成物を比較した場合、潤滑油組成物のＣＣＳ粘度が小さいほど、潤滑油組成物は、低温時の省燃費性（低温始動性）に優れる。

[0108] ＜Shear Stability Index（ＳＳＩ）＞

潤滑油組成物のＳＳＩを、ＪＰＩ－５Ｓ－２９－８８規定を参考にした超音波法で測定した。潤滑油組成物に超音波を照射し、照射前後の動粘度低下率からＳＳＩを測定した。ＳＳＩは潤滑油中の共重合体成分が摺動下で剪断力を受け分子鎖が切断することによる動粘度の低下の尺度である。ＳＳＩが大きい値であるほど、動粘度の低下が大きいことを示す。

[0109] （測定装置）

ＵＳ－３００ＴＣＶＰ型超音波剪断安定度試験装置（プリムテック製）

（測定条件）

発振周波数：１０ＫＨｚ

試験温度：４０℃

照射ホーン位置：液面下２ｍｍ

（測定方法）

試料容器に試料を３０ｍｌ採取し、４．２Ｖの出力電圧により超音波を３０分間照射する。超音波照射前後の試料油の１００℃における動粘度を測定し、以下に示す式により、ＳＳＩを求める。

[0110] ＳＳＩ（％）＝１００×（Ｖｏ-Ｖｓ）／（Ｖｏ-Ｖｂ）

Ｖｏ：超音波照射前の１００℃動粘度（ｍｍ^2／ｓ）

Ｖｓ：超音波照射後の１００℃動粘度（ｍｍ^2／ｓ）

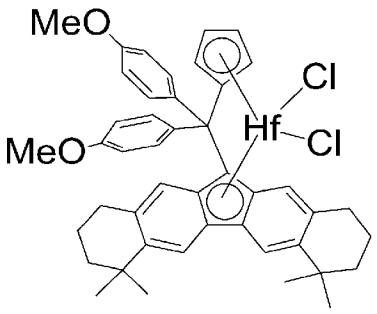
Ｖｂ：潤滑油用粘度調整剤の成分量（下記重合例で得たエチレン・α－オレフィン共重合体）を０質量％として調整した潤滑油組成物またはエンジン油（潤滑油組成物）の１００℃動粘度（ｍｍ^2／ｓ）

［重合例１Ａ、１Ｂ］

以下、エチレン・α－オレフィン共重合体の重合例について記載する。なお、分析および潤滑油調整剤評価に必要な量を確保するため、複数回の重合を実施していることがある。

[0111] 触媒として使用した下記式で示される化合物（１）は公知の方法によって合成した。

[0112] [化1]



化合物(1)（Me＝メチル基）

充分に窒素置換された容積０．９５Ｌの攪拌翼付加圧連続重合反応器の一つの供給口に、上記化合物（１）のヘキサン溶液（０．０２０ｍｍｏｌ／Ｌ）、トリフェニルカルベニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート（$Ph_3CB(C_6F_5)_4$とも記す）のヘキサン溶液（０．２ｍｍｏｌ／Ｌ

）、トリイソブチルアルミニウム（ｉＢｕ$_3$Ａｌとも記す）のヘキサン溶液（５．０ｍｍｏｌ／Ｌ）をそれぞれ５５ｍＬ／時、２２ｍＬ／時、１００ｍＬ／時の流量で連続的に供給した。同時に連続重合反応器の別の供給口に、エチレンを２５１ｇ／時の流量で、プロピレンを１２２ｇ／時の流量で、水素を６．２ＮＬ／時の流量で連続的に供給した。前記重合反応器の供給口二つと最上部の口から脱水精製したｎ－ヘキサンを２，７６０ｍＬ／時の合計流量で連続的に供給し、重合温度１１１℃、全圧３．６ＭＰａ－Ｇ（Ｇ＝ゲージ圧力）、攪拌回転数７００ｒｐｍの条件下で連続溶液重合を行った。重合反応器外周に設けられたジャケットに冷媒を流通させることにより、重合反応熱の除去を行った。

[0113] 上記条件で重合を行うことによって生成したエチレン・プロピレン共重合体を含むヘキサン溶液は、圧力を３．６ＭＰａ－Ｇに維持するように、重合反応器最上部に設けられた排出口を介してエチレン・プロピレン共重合体として１８９ｋｇ／時の速度で連続的に排出させた。得られる重合溶液を、大量のメタノールに投入してエチレン・プロピレン共重合体を析出させた。そして、該エチレン・プロピレン共重合体を、１８０℃で１時間減圧乾燥を行った。得られたポリマーの性状を表２Ａおよび表２－１Ｂに示す。

[0114] ［重合例２Ａ～１０Ａ］

表２Ａに記載したとおりに重合条件を変更したこと以外は重合例１Ａと同様に行った。ただし、重合例７Ａおよび８Ａでは、上記化合物（１）のヘキサン溶液（０．０３８ｍｍｏｌ／Ｌ）、Ｐｈ$_3$ＣＢ（Ｃ$_6$Ｆ$_5$）$_4$のヘキサン溶液（０．３０ｍｍｏｌ／Ｌ）、ｉＢｕ$_3$Ａｌのヘキサン溶液（５．０ｍｍｏｌ／Ｌ）を用いた。

[0115]

[表2A]

表２Ａ

		重合例1A	重合例2A	重合例3A	重合例4A	重合例5A	重合例6A	重合例7A	重合例8A	重合例9A	重合例10A
化合物(1)のヘキサン溶液	mL/時	55	45	55	60	55	45	30	30	40	45
$Ph_3CB(C_6F_5)_4$ヘキサン溶液	mL/時	22	18	22	24	22	18	15	15	16	18
iBu_3Alヘキサン溶液	mL/時	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
エチレン	g/時	251	251	251	251	251	376	143	157	157	251
プロピレン	g/時	122	122	122	122	122	122	306	306	122	122
水素	NL/時	6.2	4.2	2.7	4.2	4.2	6.2	1.3	1.5	5	2.2
脱水精製したｎ－ヘキサン	mL/時	2,760	2,760	2,760	2,760	2,760	2,760	2,400	2,400	1,760	2,760
重合温度	℃	111	111	111	112	111	115	112	110	111	112
排出速度	kg/時	189	188	192	221	208	165	239	245	136	209
C2含量	mol%	83.2	82.8	80.5	77.9	80.8	87.1	52.2	55.5	73	81.8
[η]	dl/g	0.51	0.66	0.9	0.62	0.64	0.68	1.65	1.23	0.23	1.07
Tm	℃	66.6	66.8	55.7	47.5	60.1	86.3	None	None	34	59

［重合例２Ｂ～２２Ｂ］

表２－１Ｂおよび２－２Ｂに記載したとおりに重合条件を変更したこと以外は重合例１Ｂと同様に行った。ただし、重合例６Ｂでは、上記化合物（１）のヘキサン溶液（０．０３８ｍｍｏｌ／Ｌ）、$Ph_3CB(C_6F_5)_4$のヘキサン溶液（０．３０ｍｍｏｌ／Ｌ）、iBu_3Alのヘキサン溶液（５．０ｍｍｏｌ／Ｌ）を用いた。また、重合例２１Ｂおよび２２Ｂでは、上記化合物（１）のヘキサン溶液（０．０１５ｍｍｏｌ／Ｌ）、$Ph_3CB(C_6F_5)_4$のヘキサン溶液（１．２ｍｍｏｌ／Ｌ）、iBu_3Alのヘキサン溶液（５．０ｍｍｏｌ／Ｌ）を用いた。また、プロピレンの代わりに、重合例７Ｂ～１３Ｂではブテン-1を、重合例１４Ｂ～２０Ｂではオクテン-1を、重合例２１Ｂおよび２２Ｂでは4-メチル-ペンテン-1をコモノマーとして使用した。

[0116]

[表2-1B]

表２－１Ｂ

		重合例1B	重合例2B	重合例3B	重合例4B	重合例5B	重合例6B	重合例7B	重合例8B	重合例9B	重合例10B	重合例11B	重合例12B	重合例13B
化合物(1)のヘキサン溶液	mL/時	55	45	55	60	55	30	50	50	50	80	50	50	50
$Ph_3CB(C_6F_5)_4$ヘキサン溶液	mL/時	22	18	22	24	22	15	20	20	20	32	20	20	20
iBu_3Alヘキサン溶液	mL/時	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
エチレン	g/時	251	251	251	251	251	157	160	160	160	116	160	179	217
プロピレン	g/時	122	122	122	122	122	306	0	0	0	0	0	0	0
ブテン-1	g/時	0	0	0	0	0	0	144	144	144	144	144	144	144
オクテン-1	g/時	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
4-メチル-ペンテン-1	g/時	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
水素	NL/時	6.2	4.2	2.7	4.2	4.2	1.5	3.7	2.4	1.4	1.0	1.7	2.5	3.2
脱水精製したｎ－ヘキサン	mL/時	2760	2760	2760	2760	2760	2400	1560	1560	1560	1560	1560	1560	2260
重合温度	℃	111	111	111	112	111	110	110	111	111	110	111	110	109
排出速度	kg/時	189	188	192	221	208	245	130	143	139	112	140	119	144
C2含量	mol%	83.2	82.8	80.5	77.9	80.8	55.5	81.2	80	78.6	74.5	77.7	82.5	87.1
[η]	dl/g	0.51	0.66	0.9	0.62	0.64	1.23	0.47	0.62	0.85	0.78	0.72	0.67	0.78
Tm	℃	66.6	66.8	55.7	47.5	60.1	None	47.9	38.8	34.8	19	33.8	49.8	68.7

[0117] [表2-2B]

表２－２Ｂ

		重合例14B	重合例15B	重合例16B	重合例17B	重合例18B	重合例19B	重合例20B	重合例21B	重合例22B
化合物(1)のヘキサン溶液	mL/時	90	90	85	48	43	95	120	200	80
$Ph_3CB(C_6F_5)_4$ヘキサン溶液	mL/時	36	36	34	19	17	38	40	100	40
iBu_3Alヘキサン溶液	mL/時	100	100	100	100	100	100	100	100	100
エチレン	g/時	116	116	116	116	116	116	116	155	172
プロピレン	g/時	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ブテン-1	g/時	0	0	0	0	0	0	0	0	0
オクテン-1	g/時	180	180	180	396	360	300	108	0	0
4-メチル-ペンテン-1	g/時	0	0	0	0	0	0	0	257	257
水素	NL/時	2.0	1.2	0.7	1.2	1.1	1.1	0.8	4.7	2.1
脱水精製したｎ－ヘキサン	mL/時	1550	1300	1300	700	800	1500	1500	2610	2610
重合温度	℃	110	110	110	111	110	110	110	71	72
排出速度	kg/時	150	152	159	198	120	147	110	218	283
C2含量	mol%	79	78.6	76.1	70.5	73.2	82.6	86.3	80.4	80.9
[η]	dl/g	0.51	0.66	0.9	0.69	0.78	0.63	0.86	0.49	0.81
Tm	℃	43.1	27.9	30.9	3.85	9.71	52.6	45.9	-0.8	13.2

［実施例Ａおよび比較例Ａ］

上記の重合例で得られたエチレン・プロピレン共重合体を潤滑油用粘度調整剤として用いて、潤滑油組成物を調製した。潤滑油組成物の１５０℃におけるＨＴＨＳが２．６ｍＰａ・s程度になるように、エチレン・プロピレン共重合体の添加量を調整した。

[0118] 配合組成は以下のとおりである。

[0119] ＡＰＩグループ（III）基油（「Ｙｕｂａｓｅ－４」、ＳＫ Ｌｕｂｒｉｃａｎｔｓ社製、１００℃における動粘度：４．２１２ｍｍ^2／ｓ、粘度指数：１２３）

添加剤*：８．６４質量％

流動点降下剤：０．３質量％

（ポリメタクリレート「ルブラン１６５」、東邦化学工業社製）

エチレン・プロピレン共重合体：０．５３～２．９２質量％（表３Ａに示すとおり）

合計 １００．０（質量％）

注（＊） 添加剤＝ＣａおよびＮａの過塩基性清浄剤、Ｎ含有分散剤、アミン性［ａｍｉｎｉｃ］およびフェノール性の酸化防止剤、ジアルキルジチオリン酸亜鉛類、摩擦調整剤、および消泡剤を含む従来のＧＦ－５用エンジン油用添加剤パッケージ。

[0120] 評価結果を表３Ａに示す。

[0121]

[表3A]

表３Ａ

実施例/比較例		実施例1A	実施例2A	実施例3A	実施例4A	実施例5A	実施例6A	比較例1A	比較例2A	比較例3A	比較例4A
重合例		重合例1A	重合例2A	重合例3A	重合例4A	重合例5A	重合例6A	重合例7A	重合例8A	重合例9A	重合例10A
ポリマー添加量	%	1.35	1.07	0.85	1.12	1.1	1.02	0.53	0.63	2.92	0.72
HTHS(150℃)	mPa・s	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6	2.6
動粘度(100℃)	mm^2/s	7.89	7.96	8.12	7.92	7.93	7.94	8.5	8.23	7.83	8.14
CCS粘度(-35℃)	mPa・s	5360	5280	5190	5430	5350	5240	5820	5860	7470	5140
SSI	%	7	8	12	7	7	11	44	28	7	15

［実施例Ｂ、実施例Ｃおよび比較例Ｂ］

上記の重合例で得られたエチレン・α－オレフィン共重合体を潤滑油用粘度調整剤として用いて、潤滑油組成物を調製した。潤滑油組成物の１５０℃におけるＨＴＨＳが２．６ｍＰａ・s程度になるように、エチレン・α－オレフィン共重合体の添加量を調整した。

[0122] 配合組成は以下のとおりである。

[0123] ＡＰＩグループ（III）基油（「Ｙｕｂａｓｅ－４」、ＳＫ Ｌｕｂｒｉｃａｎｔｓ社製、１００℃における動粘度：４．２１２ｍｍ^2／ｓ、粘度指数：１２３）

添加剤*：８．６４質量％

流動点降下剤：０．３質量％

（ポリメタクリレート「ルブラン１６５」、東邦化学工業社製）

エチレン・α－オレフィン共重合体：０．６３～１．４４質量％（表３Ｂに示すとおり）

合計 １００．０（質量％）

注（＊） 添加剤＝ＣａおよびＮａの過塩基性清浄剤、Ｎ含有分散剤、アミン性［ａｍｉｎｉｃ］およびフェノール性の酸化防止剤、ジアルキルジチオリン酸亜鉛類、摩擦調整剤、および消泡剤を含む従来のＧＦ－５用エンジン油用添加剤パッケージ。

[0124] 評価結果を表３Ｂに示す。

[0125]

[表3B]

表３Ｂ

実施例/比較例	重合例	ポリマー物性				ポリマー添加量	潤滑油物性		
		コモノマー	[η]	C2含量	Tm(DSC)		HTHS 150℃	動粘度 100℃	SSI
			[dl/g]	[mol%]	[℃]	[%]	[mPa・s]	[mm2/s]	[%]
実施例１Ｃ	重合例1B	プロピレン	0.51	83.2	66.6	1.35	2.6	7.89	7
実施例２Ｃ	重合例2B	プロピレン	0.66	82.8	66.8	1.07	2.6	7.96	8
実施例３Ｃ	重合例3B	プロピレン	0.9	80.5	55.7	0.85	2.6	8.12	12
実施例４Ｃ	重合例4B	プロピレン	0.62	77.9	47.5	1.12	2.6	7.92	7
実施例５Ｃ	重合例5B	プロピレン	0.64	80.8	60.1	1.1	2.6	7.93	7
比較例１Ｂ	重合例6B	プロピレン	1.23	55.5	None	0.63	2.6	8.23	28
実施例１Ｂ	重合例7B	ブテン-1	0.47	81.2	47.9	1.44	2.6	7.86	7
実施例２Ｂ	重合例8B	ブテン-1	0.62	80	38.8	1.16	2.6	7.93	10
実施例３Ｂ	重合例9B	ブテン-1	0.85	78.6	34.8	0.89	2.6	7.99	19
実施例４Ｂ	重合例10B	ブテン-1	0.78	74.5	19	0.99	2.6	7.96	17
実施例５Ｂ	重合例11B	ブテン-1	0.72	77.7	33.8	1.02	2.6	7.94	13
実施例６Ｂ	重合例12B	ブテン-1	0.67	82.5	49.8	1.09	2.6	7.89	10
実施例７Ｂ	重合例13B	ブテン-1	0.78	87.1	68.7	0.93	2.6	7.99	17
実施例８Ｂ	重合例14B	オクテン-1	0.51	79	43.1	1.4	2.6	7.79	10
実施例９Ｂ	重合例15B	オクテン-1	0.66	78.6	27.9	1.15	2.6	7.92	18
実施例１０Ｂ	重合例16B	オクテン-1	0.9	76.1	30.9	0.94	2.6	8.12	30
実施例１１Ｂ	重合例17B	オクテン-1	0.69	70.5	3.85	1.17	2.6	7.95	26
実施例１２Ｂ	重合例18B	オクテン-1	0.78	73.2	9.71	1.06	2.6	8.01	28
実施例１３Ｂ	重合例19B	オクテン-1	0.63	82.6	52.6	1.14	2.6	7.81	15
実施例１４Ｂ	重合例20B	オクテン-1	0.86	86.3	45.9	0.89	2.6	7.97	29
実施例１５Ｂ	重合例21B	4－メチル－ペンテン－１	0.49	80.4	-0.8	1.38	2.6	7.83	13
実施例１６Ｂ	重合例22B	4－メチル－ペンテン－１	0.81	80.9	13.2	0.97	2.6	8.03	30

図１に、実施例Ｂ、実施例Ｃおよび比較例Ｂで得られた潤滑油組成物について剪断安定性（ＳＳＩ）および１００℃における動粘度（ＫＶ１００）をプロットしたグラフを示す。同程度の剪断安定性（ＳＳＩ）を有する実施例

Ｂ（エチレン・ブテン-1共重合体，エチレン・オクテン-1共重合体、エチレン・4-メチル-ペンテン-1共重合体）と、実施例Ｃおよび比較例Ｂ（エチレン・プロピレン共重合体）とを比較した場合、実施例ＢはＫＶ１００が低く、より優れている。

請求の範囲

[請求項1] エチレン由来の構成単位の含有割合が７０～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を含有する潤滑油組成物。

[請求項2] 前記共重合体（Ａ）が、エチレン由来の構成単位の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである、エチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体である請求項１に記載の潤滑油組成物。

[請求項3] 前記共重合体（Ａ）が、示差走査型熱量計（ＤＳＣ）で測定した融点が１００℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体である請求項１または２に記載の潤滑油組成物。

[請求項4] 潤滑油基油（Ｂ）をさらに含有する請求項１～３のいずれか１項に記載の潤滑油組成物。

[請求項5] エンジン油である請求項１～４のいずれか１項に記載の潤滑油組成物。

[請求項6] エチレン由来の構成単位の含有割合が７０モル％を超えて９０モル％以下であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇである、エチレンと炭素数４以上のα－オレフィンとの共重合体を含有する潤滑油用粘度調整剤。

[請求項7] １００℃における動粘度が７．４～１４．７ｍｍ^2／ｓであり、エンジン用である請求項１に記載の潤滑油組成物。

[請求項8] 前記共重合体（Ａ）が、示差走査型熱量計（ＤＳＣ）で測定した融点が１００℃以下であるかまたは融点が観測されない共重合体であり、

エンジン用である

請求項１または７に記載の潤滑油組成物。

[請求項9] 前記共重合体（Ａ）において、エチレン由来の構成単位の含有割合が７９～９０モル％であり、

エンジン用である

請求項１、７または８に記載の潤滑油組成物。

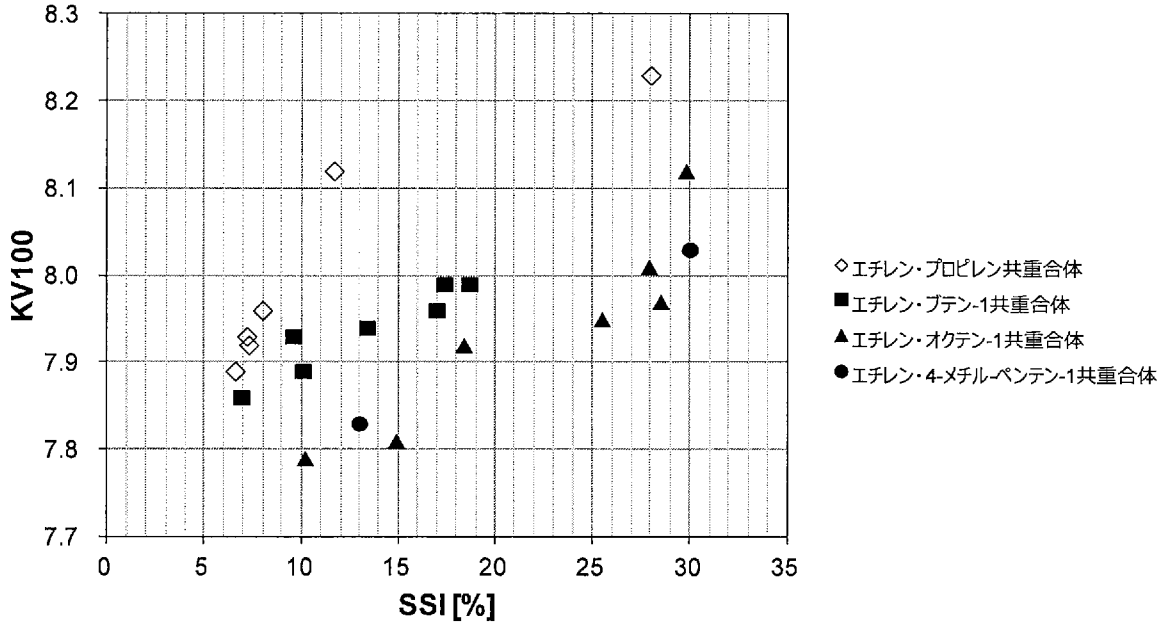
[請求項10] 潤滑油基油（Ｂ）をさらに含有し、

エンジン用である

請求項１、７～９のいずれか１項に記載の潤滑油組成物。

[請求項11] エチレン由来の構成単位の含有割合が７９～９０モル％であり、極限粘度［η］が０．３～１．０ｄｌ／ｇであるエチレン・α－オレフィン共重合体を含有する、エンジン用潤滑油のための粘度調整剤。

[図1]


8.3
8.2
8.1
8.0
7.9
7.8
7.7
KV100
0
5
10
15
20
25
30
35
SSI [%]
◇エチレン・プロピレン共重合体
■エチレン・ブテン-1共重合体
▲エチレン・オクテン-1共重合体
●エチレン・4-メチル-ペンテン-1共重合体

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/016255

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C10M143/02(2006.01)i, C10N20/00(2006.01)n, C10N20/02(2006.01)n, C10N30/02(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)
Int.Cl. C10M143/02, C10N20/00, C10N20/02, C10N30/02, C10N40/25

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII) キーワード：潤滑油，エチレンαオレフィン共重合体 及びそれに類する用語

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 1998/33872 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 06 August 1998, claims, page 7, line 20 to page 8, line 21, pp. 51-57, tables 5-6, examples C3-C7, etc. & US 6214779 B1, claims, column 4, line 34 to column 5, line 5, columns 24-26, tables 5-6, examples C3-C7, etc. & EP 902081 A1 & CN 1216060 A	1-11
X	JP 2005-307099 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 04 November 2005, claims, paragraphs [0023], [0034]-[0072], examples 1-6, etc. (Family: none)	1-11

☒ 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	Date of mailing of the international search report
19 June 2019 (19.06.2019)	02 July 2019 (02.07.2019)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/016255

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/082182 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 18 May 2017, claims, paragraphs [0057], [0370]-[0371], tables 3-4, example 3, etc. & US 2018/0320102 A1, claims, paragraphs [0088], [0419], tables 3-4, example 3, etc. & EP 3375849 A1	1-11
X	WO 2006/101206 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 28 September 2006, claims, paragraphs [0014], [0052]-[0075], tables 2-4, examples 1-12, etc. & US 2009/0023619 A1, claims, paragraphs [0046], [0132]-[0172], tables 2-4, examples 1-12, etc. & EP 1887075 A1 & CN 101146899 A	1-4, 6
X	WO 2003/038017 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 08 May 2003, claims, pp. 35-40, example 4, etc. & US 2004/0058830 A1, claims, paragraphs [0212]-[0276], example 4, etc. & EP 1441023 A1 & CN 1494582 A	1-8, 10
A	WO 2015/147215 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 01 October 2015, claims, examples, etc. & US 2017/0114166 A1, claims, examples, etc. & EP 3124505 A1 & CN 106133006 A	1-11
A	JP 7-150181 A (MITSUI SEKIYU KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) 13 June 1995, claims, examples, etc. (Family: none)	1-11
A	JP 2000-72825 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) 07 March 2000, claims, examples, etc. (Family: none)	1-11

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０１６２５５

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C10M143/02(2006.01)i, C10N20/00(2006.01)n, C10N20/02(2006.01)n, C10N30/02(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（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C10M143/02, C10N20/00, C10N20/02, C10N30/02, 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	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580（JDreamIII）キーワード：潤滑油，エチレンαオレフィン共重合体 及びそれに類する用語

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	WO 1998/33872 A1（三井化学株式会社） 1998.08.06，特許請求の範囲，第７頁第20行-第８頁第21行， 第51-57頁，表5-6，実施例C3-C7等 & US 6214779 B1 特許請求の範囲，第４欄第34行-第５欄第５行， 第24-26欄，表5-6，実施例C3-C7等 & EP 902081 A1 & CN 1216060 A	1-11
X	JP 2005-307099 A（三井化学株式会社） 2005.11.04，特許請求の範囲，[0023]，[0034]-[0072]，実施例1-6等	1-11

☑　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	国際調査報告の発送日
１９．０６．２０１９	０２．０７．２０１９

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
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）　４Ｖ　６１１９
林　建二
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４８３

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
	(ファミリーなし)	
X	WO 2017/082182 A1 (三井化学株式会社) 2017.05.18, 特許請求の範囲,[0057],[0370]-[0371],表 3-4, 実施例 3 等 & US 2018/0320102 A1 特許請求の範囲,[0088],[0419],表 3-4, 実施例 3 等 & EP 3375849 A1	1-11
X	WO 2006/101206 A1 (三井化学株式会社) 2006.09.28, 特許請求の範囲,[0014],[0052]-[0075],表 2-4, 実施例 1-12 等 & US 2009/0023619 A1 特許請求の範囲,[0046],[0132]-[0172], 表 2-4,実施例 1-12 等 & EP 1887075 A1 & CN 101146899 A	1-4,6
X	WO 2003/038017 A1 (三井化学株式会社) 2003.05.08, 特許請求の範囲,第 35-40 頁,実施例 4 等 & US 2004/0058830 A1 特許請求の範囲,[0212]-[0276],実施例 4 等 & EP 1441023 A1 & CN 1494582 A	1-8,10
A	WO 2015/147215 A1 (三井化学株式会社) 2015.10.01, 特許請求の範囲,実施例等 & US 2017/0114166 A1 特許請求の範囲,実施例等 & EP 3124505 A1 & CN 106133006 A	1-11
A	JP 7-150181 A (三井石油化学工業株式会社) 1995.06.13, 特許請求の範囲,実施例等 (ファミリーなし)	1-11
A	JP 2000-72825 A (出光石油化学株式会社) 2000.03.07, 特許請求の範囲,実施例等 (ファミリーなし)	1-11