

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2009 年 4 月 30 日 (30.04.2009)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2009/054322 A1

## (51) 国際特許分類:

C10M 105/32 (2006.01) C10M 159/22 (2006.01)  
 C10M 169/04 (2006.01) C10M 159/24 (2006.01)  
 C10M 105/36 (2006.01) C10N 10/04 (2006.01)  
 C10M 105/38 (2006.01) C10N 20/00 (2006.01)  
 C10M 129/10 (2006.01) C10N 20/02 (2006.01)  
 C10M 129/70 (2006.01) C10N 20/04 (2006.01)  
 C10M 133/04 (2006.01) C10N 30/04 (2006.01)  
 C10M 135/10 (2006.01) C10N 30/06 (2006.01)  
 C10M 139/00 (2006.01) C10N 40/25 (2006.01)

市原市姉崎海岸 2 4 番地 4 Chiba (JP). 石川 元治  
 (ISHIKAWA, Motoharu) [JP/JP]; 〒2990107 千葉県市  
 原市姉崎海岸 2 4 番地 4 Chiba (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人樹之下知的財産事務所 (KI-  
 NOSHITA & ASSOCIATES); 〒1670051 東京都杉並  
 区荻窪五丁目 2 6 番 1 3 号 荻窪 T Mビル 3 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG,  
 SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,  
 UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/068860

(22) 国際出願日: 2008 年 10 月 17 日 (17.10.2008)

(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 2007-274080  
 2007 年 10 月 22 日 (22.10.2007) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興  
 産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒  
 1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo  
 (JP).

(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, LS, MW, MZ, NA, SD,  
 SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,  
 KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,  
 CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU,  
 IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE,  
 SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ,  
 GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 手島 一裕  
 (TESHIMA, Kazuhiro) [JP/JP]; 〒2990107 千葉県

添付公開書類:  
 — 国際調査報告書

(54) Title: LUBRICANT COMPOSITION

(54) 発明の名称: 潤滑油組成物

(57) Abstract: Disclosed is a lubricant composition to be used in an internal combustion engine which uses a fuel containing at least one member selected from the group consisting of natural fats and oils, hydrogenated natural fats and oils, transesterified natural fats and oils, and hydrogenated products of the transesterified natural fats and oils. This lubricant composition contains, as a lubricant base oil, a polyol ester having a kinematic viscosity at 100°C of 3-8 mm<sup>2</sup>/s and/or a polybasic acid ester having a kinematic viscosity at 100°C of 3-8 mm<sup>2</sup>/s in an amount of 5-30% by mass based on the total amount of the lubricant composition.

(57) 要約: 天然油脂、天然油脂の水素化処理物、天然油脂のエステル交換物、および天然油脂のエステル交換物の水素化処理物の中から選ばれた少なくとも 1 種を含む燃料を用いる内燃機関で使用される潤滑油組成物であって、潤滑油基油として、100°C 動粘度が 3~8 mm<sup>2</sup>/s であるポリオールエステルおよび/または 100°C 動粘度が 3~8 mm<sup>2</sup>/s である多塩基酸エステルを、潤滑油組成物全量基準で 5~30 質量%配合してなる。

WO 2009/054322 A1

## 明 細 書

### 潤滑油組成物

### 技術分野

[0001] 本発明は、天然油脂由来の燃料を用いる内燃機関に使用される潤滑油組成物に関する。

### 背景技術

[0002] 現在、地球規模での環境規制はますます厳しくなり、特に自動車を取り巻く状況は、燃費規制、排ガス規制等ますます厳しくなっている。この背景には地球温暖化等の環境問題と、石油資源の枯渇に対する懸念からの資源保護がある。

一方、地球上に存在する植物は、大気中の二酸化炭素、水および太陽光を吸収して光合成を行い、炭水化物および酸素を生成する。それ故、植物を原料とした植物油から製造されるいわゆるバイオ燃料は、地球温暖化の主要因である二酸化炭素の削減、さらには自動車から排出される大気汚染物質の低減効果などの点で大きく注目されている。また、植物バイオマスの燃焼によって生成する二酸化炭素は、地球温暖化ガスの増加にカウントされないカーボンニュートラルという考え方もあり、今後炭化水素系の燃料へのバイオ燃料の混合比率は増加すると予想される（例えば、非特許文献1参照）。

[0003] 非特許文献1：山根浩二著「バイオディーゼル天ぷら鍋から燃料タンクへ」東京図書出版会、2006年5月発行

### 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0004] 内燃機関、特にディーゼルエンジンにおいては、煤などのパティキュレートマター（PM）やNO<sub>x</sub>などの排出ガス成分による環境汚染を軽減するための対策が重要な課題となっている。その対策としては、自動車にディーゼルパティキュレートフィルター（DPF）や排出ガス浄化触媒（酸化または還元触媒）などの排出ガス浄化装置を装着することが有効である。例えば、ディーゼルエンジンで生じた煤は、DPFに付着した後、酸化、燃焼により取り除かれる。

ここで、ディーゼルエンジンにDPFを装着した場合、フィルターに蓄積した煤を燃焼させるため、一般に燃料のポスト噴射が行われている。このポスト噴射によりエンジン油への燃料希釈が増大し、エンジン油性能の低下が予想される。特にバイオ燃料はその物性からエンジン油に蓄積し易いことと、バイオ燃料が劣化分解した時に極性化合物が生じることから、エンジン部品（ピストン等）の清浄性への悪影響が大きい。例えば、燃焼により生成した金属酸化物や硫酸塩、カルボン酸塩などによってフィルターが目詰りしやすいという問題が生じている。また、使用されたエンジン油の一部は燃焼し、排出ガスとして排出される。従って、潤滑油中の金属分や硫黄分はできるだけ低くする方が好ましい。さらに、潤滑油中のリン分および硫黄分を減らすことは排出ガス浄化触媒の劣化対策のうえからも好ましい。

しかしながら、これまで、バイオ燃料に十分適した潤滑油は提供されていない。また、単純に、潤滑油中の金属分、リン分、あるいは硫黄分などの含有量を少なくするとかえって潤滑性を損なうおそれもある。

そこで、本発明の主な目的は、バイオ燃料やバイオ燃料を混合した燃料をディーゼルエンジン等の内燃機関に用いても、潤滑性およびエンジン部品の清浄性に優れる潤滑油組成物を提供することにある。

#### 課題を解決するための手段

[0005] 前記した課題を解決すべく、本発明は、以下に示す潤滑油組成物を提供するものである。

(1)天然油脂、天然油脂の水素化処理物、天然油脂のエステル交換物、および天然油脂のエステル交換物の水素化処理物の中から選ばれた少なくとも1種を含む燃料を用いる内燃機関で使用される潤滑油組成物であって、潤滑油基油として、100℃動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ であるポリオールエステルおよび／または100℃動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ である多塩基酸エステルを、潤滑油組成物全量基準で5～30質量％配合することを特徴とする潤滑油組成物。

(2)前述した本発明の潤滑油組成物において、数平均分子量500～3500のポリブテニル基を有し、ホウ素(B)と窒素(N)の質量比(B/N)が0.5以上であるポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体と、アルカリ土類金属系清浄剤とを配合す

ることを特徴とする潤滑油組成物。

(3) 前述した本発明の潤滑油組成物において、硫酸灰分が1.1質量%以下であることを特徴とする潤滑油組成物。

(4) 前述した本発明の潤滑油組成物において、フェノール系酸化防止剤および／またはアミン系酸化防止剤を、組成物全量基準で0.3質量%以上配合することを特徴とする潤滑油組成物。

(5) 前述した本発明の潤滑油組成物において、組成物全量基準で、前記ポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体をホウ素換算量で0.01質量%以上配合することを特徴とする潤滑油組成物。

(6) 前述した本発明の潤滑油組成物において、硫黄含有量が組成物全量基準で0.5質量%以下であることを特徴とする潤滑油組成物。

[0006] 本発明の潤滑油組成物によれば、天然油脂等からなるいわゆるバイオ燃料を用いる内燃機関において、エンジン油中にバイオ燃料が混入しても、ピストン等のエンジン部品に対して優れた清浄性を示す。特に、エンジンが高温となった際の高温清浄性に優れる。また、本発明の潤滑油組成物においては、DPFに残存する灰分を少なくできるので、DPF付きのディーゼルエンジンに使用した場合であってもDPFの性能低下を起こすこともない。

なお、本発明における天然油脂には、植物起源のものに限られず、動物起源のものも含まれる。

### 発明を実施するための最良の形態

[0007] 以下、本発明について、実施形態を詳細に説明する。

本発明は、天然油脂、天然油脂の水素化処理物、天然油脂のエステル交換物、および天然油脂のエステル交換物の水素化処理物の中から選ばれた少なくとも1種を含む燃料を用いる内燃機関で使用される潤滑油組成物である。

[0008] ここで、天然油脂としては、天然界に広く存在する各種の動植物油脂を用いることができるが、脂肪酸とグリセリンとのエステルを主成分とする植物油、例えばサフラワーズ油、大豆油、菜種油、パーム油、パーム核油、綿実油、ヤシ油、米糠油、ゴマ油、ヒマシ油、亜麻仁油、オリーブ油、桐油、椿油、落花生油、カポック油、カカオ油、木蝋

、ヒマワリ油、コーン油などが好適に使用される。

天然油脂の水素化処理物とは、前記した油脂を適当な水素化触媒の存在下でい  
わゆる水添したものである。

ここで、水素化触媒としては、ニッケル系触媒、白金族(Pt,Pd,Rh,Ru)系触媒、コバ  
ルト系触媒、酸化クロム系触媒、銅系触媒、オスミウム系触媒、イリジウム系触媒、モリ  
ブデン系触媒などが挙げられる。また、水素化触媒としては上記触媒を2つ以上組み  
合わせて使用することも好ましい。

[0009] 天然油脂のエステル交換物とは、適当なエステル合成触媒の存在下で、天然油脂  
を構成するトリグリセリドに対してエステル交換反応を行って得られたエステルである  
。例えば、低級アルコールと油脂とを、上記エステル合成触媒の存在下でエステル  
交換反応させることにより、バイオ燃料となる脂肪酸エステルが製造される。低級アル  
コールは、エステル化剤として使用されるものであり、メタノール、エタノール、プロパ  
ノール、ブタノール、ペンタノール等の炭素数5以下のアルコールを挙げることができ  
るが、反応性の点でもコストの点でもメタノールが好ましい。このような低級アルコール  
は、一般に油脂に対して当量以上の量で用いられる。

また、天然油脂のエステル交換物の水素化処理物とは、前記したエステル交換物  
を適当な水素化触媒の存在下で水添したものである。

天然油脂、天然油脂の水素化処理物、天然油脂のエステル交換物、および天然  
油脂のエステル交換物の水素化処理物は、軽油などの炭化水素で構成される燃料  
に添加することで、混合燃料としても好適に使用することができる。

[0010] 本発明の潤滑油組成物に用いられる潤滑油基油としては、少なくともポリオールエ  
ステルおよび／または多塩基酸エステルが用いられる。

ポリオールエステルとしては、脂肪族多価アルコールと直鎖状または分岐状の脂肪  
酸とのエステルが挙げられる。このポリオールエステルを形成する脂肪族多価アルコ  
ールとしては、ネオペンチルグルコール、トリメチロールプロパン、ジトリメチロールプ  
ロパン、トリメチロールエタン、ジトリメチロールエタン、ペンタエリスリトール、ジペン  
タエリスリトール、およびトリペンタエリスリトール等がある。また、脂肪酸としては、炭素  
数8～12のものを使用することができ、特に好ましい脂肪酸としてはペラルゴン酸、カ

プリン酸、ウンデシル酸、ラウリン酸、およびトリデシル酸が挙げられる。また、上記した脂肪族多価アルコールと直鎖状または分岐状の脂肪酸との部分エステルも使用できる。これらの部分エステルは、脂肪族多価アルコールと脂肪酸との反応モル数を適宜調節して反応させることにより得られる。

[0011] 本発明におけるポリオールエステルは、100℃動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ であり、好ましくは、 $4\sim 7\text{mm}^2/\text{s}$ 、より好ましくは $5\sim 6\text{mm}^2/\text{s}$ である。100℃における動粘度が $3\text{mm}^2/\text{s}$ 以上であると蒸発損失が少なく、また、動粘度が $8\text{mm}^2/\text{s}$ 以下であると、粘性抵抗による動力損失が抑制され、燃費改善効果が得られる。

[0012] 本発明における多塩基酸エステルとしては、カルボン酸成分として炭素数6～10の直鎖状または分岐状の脂肪族二塩基酸が好ましく、具体的には、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、およびこれらと同等の性状を有するものが挙げられる。また、アルコール成分としては、炭素数6～15の脂肪族アルコールが好ましく、具体的にはヘキシルアルコール、ヘプチルアルコール、オクチルアルコール、ノニルアルコール、デシルアルコール、ウンデシルアルコール、ドデシルアルコール、トリデシルアルコール、テトラデシルアルコールおよびペンタデシルアルコール、並びにこれらの異性体が挙げられる。

本発明における多塩基酸エステルは、100℃動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ であり、好ましくは、 $4\sim 7\text{mm}^2/\text{s}$ 、より好ましくは $5\sim 6\text{mm}^2/\text{s}$ である。100℃における動粘度が $3\text{mm}^2/\text{s}$ 以上であると蒸発損失が少なく、また、動粘度が $8\text{mm}^2/\text{s}$ 以下であると、粘性抵抗による動力損失が抑制され、燃費改善効果が得られる。

[0013] 上述したポリオールエステルや多塩基酸エステルは、各々単独の基油として用いてもよく、あるいは混合して用いてもよい。例えば、コンプレックスエステルとして用いてもよい。コンプレックスエステルとは、多塩基酸と多価のアルコールを原料として合成されるエステルであり、通常、原料には一塩基酸も含まれる。本発明では、脂肪族多価アルコールと、炭素数8～12の直鎖状または分岐状の脂肪族モノカルボン酸、直鎖状または分岐状の脂肪族二塩基酸、あるいは芳香族二塩基酸、三塩基酸、四塩基酸とからなるコンプレックスエステルを好適に使用することができる。

[0014] コンプレックスエステルの形成に用いられる脂肪族多価アルコールとしては、トリメチ

ロールプロパン、トリメチロールエタン、ペンタエリスリトール、およびジペンタエリスリトール等を使用することができる。また、脂肪族モノカルボン酸としては、炭素数8～12の脂肪族モノカルボン酸、例えば、ヘプタデシル酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘン酸、およびリグノセリン酸が挙げられる。脂肪族二塩基酸としては、コハク酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ウンデカン二酸、ドデカン二酸、トリデカン二酸、カルボキシオクタデカン酸、カルボキシメチルオクタデカン酸、およびドコサン二酸等が挙げられる。また、芳香族二塩基酸としてはフタル酸、イソフタル酸等、芳香族三塩基酸としてはトリメリット酸等、芳香族四塩基酸としてはピロメリット酸等が挙げられる。

本発明の潤滑油組成物に用いられる潤滑油基油としてコンプレックスエステルを用いる場合でも、好ましい粘度範囲は上述したポリオールエステルや多塩基酸エステルと同様である。

[0015] 上述した各種エステルを製造するためのエステル化反応としては、例えば、アルコール(多価アルコール等)とカルボン酸(脂肪族多塩基酸または芳香族多塩基酸等)を所定の割合で反応させればよい。あるいは、部分エステル化し、次にその部分エステル化物とカルボン酸とを反応させてもよいし、また酸の反応順序を逆にしてもよく、あるいは酸を混合してエステル化反応に供してもよい。

[0016] 上述したポリオールエステルおよび／または多塩基酸エステルの含有量は、潤滑油組成物全量基準で5～30質量%であり、好ましくは10～25質量%、より好ましくは10～20質量%である。ポリオールエステルおよび／または多塩基酸エステルの含有量が5質量%未満では、高温となったエンジン内における清浄性が十分ではなく、一方、30質量%を超えるとゴムに対する影響が大きくなり好ましくない。

[0017] また、基油としては、内燃機関用潤滑油の基油として使用されている鉱油や合成油の中から任意のものを、上述のポリオールエステルや多塩基酸エステルに混合して使用することができる。

鉱油としては、例えば、原油を常圧蒸留して得られる常圧残油を減圧蒸留して得られた潤滑油留分を、溶剤脱れき、溶剤抽出、水素化分解、溶剤脱ろう、接触脱ろう、水素化精製等の1つ以上の処理を行って精製した鉱油、あるいはワックス、GTL (Ga

s-To-Liquid) WAXを異性化することによって製造される鉱油等が挙げられる。

一方、合成油としては、例えば、ポリブテン、ポリオレフィン[ $\alpha$ -オレフィン単独重合体や共重合体など]、各種のエーテル(例えば、ポリフェニルエーテルなど)、ポリグリコール、アルキルベンゼン、アルキルナフタレンなどが挙げられる。これらの合成油のうち、特にポリオレフィンが粘度特性および蒸発性の点で好ましい。

[0018] 本発明において、ポリオールエステルや多塩基酸エステルと混合して用いられる基油としては、上記鉱油を1種用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。また、上記合成油を1種用いてもよく、2種以上を組み合わせ用いてもよい。さらには、鉱油1種以上と合成油1種以上とを組み合わせ用いてもよい。これらの基油を混合して用いる場合でも、基油全体として100℃動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ の範囲にあることが好ましい。100℃における動粘度が $3\text{mm}^2/\text{s}$ 以上であると蒸発損失が少なく、また $8\text{mm}^2/\text{s}$ 以下であると、粘性抵抗による動力損失が抑制され、燃費改善効果が得られる。

[0019] ポリオールエステルや多塩基酸エステルと混合して用いられる鉱油としては、環分析による%CAが3以下で硫黄分の含有量が50質量ppm以下のものが好ましく用いられる。ここで、環分析による%CAとは、環分析n-d-M法により算出した芳香族分の割合(百分率)を示す。また、硫黄分はJIS(Japanese Industrial Standard、以下同) K 2541に準拠して測定した値である。

%CAが3以下で、硫黄分が50質量ppm以下の基油は、良好な酸化安定性を示し、酸価の上昇やスラッジの生成を抑制しうると共に、金属に対する腐食性の少ない潤滑油組成物を提供することができる。より好ましい硫黄分は30質量ppm以下である。また、より好ましい%CAは1以下であり、さらに好ましくは0.5以下である。

[0020] また、ポリオールエステルや多塩基酸エステルおよびこれらと混合して用いられる基油の粘度指数は、70以上が好ましく、より好ましくは100以上、さらに好ましくは120以上である。この粘度指数が70以上の基油は、温度の変化による粘度変化が小さい。

[0021] 本発明の潤滑油組成物には、数平均分子量500～3500のポリブテニル基を有し、ホウ素(B)と窒素(N)の質量比(B/N)が0.5以上であるポリブテニルコハク酸イミ

ド化合物のホウ素誘導体と、アルカリ土類金属系清浄剤とを含むことが好ましい。

このようなポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体は、例えば、(a) 数平均分子量500～3500のポリブテニル基で置換されたコハク酸若しくはその無水物、(b) ポリアルキレンポリアミン、および(c) ホウ素化合物とを反応させて得られる。

[0022] 原料(a)としては、ポリブテニル基で置換されたコハク酸若しくはその無水物を用いる。このポリブテニル基の数平均分子量(以下、分子量またはMnと略することがある。)は、500～3500であるが、好ましくは1000～3000である。このポリブテニル基の分子量が500未満であると、最終的に得られるコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体が潤滑油基油などに充分溶解しないことがあり、また、分子量が3500を越えると、コハク酸イミド化合物が高粘度になり、その取扱いが困難になることがある。

原料(a)としてのポリブテニル基で置換されたコハク酸若しくはその無水物は、そのポリブテニル基の分子量に該当するポリブテンと無水マレイン酸とを公知の方法で反応させればよい。

[0023] 原料(b)としては、ポリアルキレンポリアミンを用いるが、全体の5モル%以上が末端に環構造を有するポリアルキレンポリアミンを用いることが好ましい。原料(b)全体が末端に環構造を有するポリアルキレンポリアミンであってもよいし、または、末端に環構造を有するポリアルキレンポリアミンと末端に環構造をもたないポリアルキレンポリアミンとの混合物であってもよい。末端に環構造を有するポリアルキレンポリアミンの割合が5モル%以上であると、本発明の目的であるエンジン部品の清浄性がより優れる。ポリアルキレンポリアミンの割合は、10モル%以上、さらには20モル%以上であれば、さらに清浄性が向上し、特に高温下における清浄性に優れる。

[0024] 原料(c)としては、ホウ素化合物を用いる。このホウ素化合物としては、例えば、ホウ酸、ホウ酸無水物、ホウ酸エステル、酸化ホウ素、ハロゲン化ホウ素などが挙げられる。中でも、ホウ酸が特に好ましい。

本発明におけるポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体は、上記原料(a)と原料(b)および原料(c)を反応させて得ることができる。この反応方法は、特に制限は無く公知の方法で行えばよい。例えば、以下の方法で反応させて、目的物を得ることができる。まず、原料(a)と原料(b)を反応させ、次いでその反応生成物と原料(c)

c)とを反応させる。原料(a)と原料(b)の反応における原料(a)と(b)の配合割合については、(a):(b)が0.1~10:1(モル比)が好ましく、0.5~2:1(モル比)がより好ましい。また、原料(a)と原料(b)の反応温度については、約80~250℃が好ましく、約100~200℃がより好ましい。反応を行うに際しては、原料の取扱上、または反応を調整するために必要に応じて溶剤、例えば炭化水素油等の有機溶剤を使用することもできる。

[0025] 次に、上記のようにして得られた原料(a)と(b)の反応生成物を原料(c)と反応させる。この反応原料(c)であるホウ素化合物の配合割合は、ポリアルキレンポリアミンに対して、通常モル比で1:0.05~10が好ましく、1:0.5~5がより好ましい。また、反応温度については、通常好ましくは約50~250℃、より好ましくは100~200℃である。また、反応を行うに際して、原料(a)と(b)の反応と同様に、取扱上および反応を調整するために、必要に応じて溶剤、例えば炭化水素油等の有機溶剤を使用することもできる。

上述した反応により生成物として数平均分子量200~3500のポリブテニル基で置換されたコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体を得られる。本発明においては、このようなホウ素誘導体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。

[0026] 本発明の潤滑油組成物におけるポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体の配合量は、組成物全量基準において、ホウ素(原子)換算で0.01質量%以上であることが好ましい。より好ましくは0.01~0.2質量%であり、さらに好ましくは、0.01~0.15質量%であり、もっとも好ましくは0.01~0.1質量%である。

また、該ホウ素誘導体に含まれるホウ素が一定量以上存在することで、潤滑油組成物中にバイオ燃料が混入しても、高温の内燃機関において高いピストン清浄性が得られる。該ホウ素誘導体の配合量が、0.01質量%未満では、十分な高温清浄性は得られない。また、ホウ素含有量が0.2質量%を超えても高温清浄性についてさらなる向上が顕れず、実用性に乏しい。

そして、該ホウ素誘導体におけるホウ素(B)と窒素(N)の質量比(B/N)は、0.5以上であることが好ましく、より好ましくは0.6以上、さらに好ましくは0.8以上である。B/Nが0.5以上であると、高温下におけるエンジン部品の清浄性が大きく向上す

る。

なお、ホウ素化コハク酸イミド系化合物は、上記のように原料(a)と(b)を反応し、次いでその反応生成物を原料(c)と反応させて得ることができるが、反応順序を変えて、まず原料(a)と(c)を反応させ、その後、その反応生成物と(b)を反応させても同様に目的のホウ素化コハク酸イミド化合物を得られる。

[0027] 本発明の潤滑油組成物には、前記したポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体とともにアルカリ土類金属系清浄剤が配合されることが好ましい。

アルカリ土類金属系清浄剤としては例えば、アルカリ土類金属スルフォネート、アルカリ土類金属フェネート、アルカリ土類金属サリシレートおよびこれらの中から選ばれる2種類以上の混合物が好適に挙げられる。

アルカリ土類金属スルフォネートとしては、分子量300～1,500、好ましくは400～700のアルキル芳香族化合物をスルホン化することによって得られるアルキル芳香族スルホン酸のアルカリ土類金属塩、特にマグネシウム塩および／またはカルシウム塩等が挙げられ、中でもカルシウム塩が好ましく用いられる。

アルカリ土類金属フェネートとしては、アルキルフェノール、アルキルフェノールサルファイド、アルキルフェノールのマンニッヒ反応物のアルカリ土類金属塩、特にマグネシウム塩および／またはカルシウム塩等が挙げられ、中でもカルシウム塩が特に好ましく用いられる。

アルカリ土類金属サリシレートとしては、アルキルサリチル酸のアルカリ土類金属塩、特にマグネシウム塩および／またはカルシウム塩等が挙げられ、中でもカルシウム塩が好ましく用いられる。前記アルカリ土類金属系清浄剤を構成するアルキル基としては、炭素数4～30のものが好ましく、より好ましくは6～18の直鎖または分枝アルキル基であり、これらは直鎖でも分枝でもよい。これらはまた1級アルキル基、2級アルキル基または3級アルキル基でもよい。

[0028] また、アルカリ土類金属スルフォネート、アルカリ土類金属フェネートおよびアルカリ土類金属サリシレートとしては、前記のアルキル芳香族スルホン酸、アルキルフェノール、アルキルフェノールサルファイド、アルキルフェノールのマンニッヒ反応物、アルキルサリチル酸等を直接、マグネシウムおよび／またはカルシウムのアルカリ土類

金属の酸化物や水酸化物等のアルカリ土類金属塩基と反応させたり、または一度ナトリウム塩やカリウム塩等のアルカリ金属塩としてからアルカリ土類金属塩と置換させること等により得られる中性アルカリ土類金属スルフォネート、中性アルカリ土類金属フェネートおよび中性アルカリ土類金属サリシレートだけでなく、中性アルカリ土類金属スルフォネート、中性アルカリ土類金属フェネートおよび中性アルカリ土類金属サリシレートと過剰のアルカリ土類金属塩やアルカリ土類金属塩基を水の存在下で加熱することにより得られる塩基性アルカリ土類金属スルフォネート、塩基性アルカリ土類金属フェネートおよび塩基性アルカリ土類金属サリシレートや、炭酸ガスの存在下で中性アルカリ土類金属スルフォネート、中性アルカリ土類金属フェネートおよび中性アルカリ土類金属サリシレートをアルカリ土類金属の炭酸塩またはホウ酸塩を反応させることにより得られる過塩基性アルカリ土類金属スルフォネート、過塩基性アルカリ土類金属フェネートおよび過塩基性アルカリ土類金属サリシレートも含まれる。

[0029] 本発明において、アルカリ土類金属系清浄剤の好ましい配合量は、アルカリ土類金属換算量で0.35質量%以下であり、より好ましくは0.01~0.35質量%であり、さらに好ましくは0.1~0.35質量%である。アルカリ土類金属系清浄剤の配合量が0.01質量%以上であると、酸化安定性、塩基価維持性および高温清浄性により優れた潤滑油組成物となる。一方、アルカリ土類金属系清浄剤の配合量が0.35質量%を越えると、排出ガスを浄化する触媒の性能低下を引き起こすおそれがある。また、DPF付きのディーゼルエンジンに適用した場合に、DPFへの灰分付着量が多くなり、DPFの寿命を短くするおそれがある。

[0030] 本発明の潤滑油組成物には、酸化防止剤として、フェノール系酸化防止剤および／またはアミン系酸化防止剤を配合することが好ましい。

フェノール系酸化防止剤としては、例えば、オクタデシルー3-(3,5-ジ-tert-ブチルー4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール);4,4'-ビス(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール);4,4'-ビス(2-メチルー6-tert-ブチルフェノール);2,2'-メチレンビス(4-エチルー6-tert-ブチルフェノール);2,2'-メチレンビス(4-メチルー6-tert-ブチルフェノール);4,4'-ブチリデンビス(3-メチルー6-tert-ブチルフェノール);4,4'-イソプロピリデン

ビス(2, 6-ジ-*t*-ブチルフェノール); 2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6-ノニルフェノール); 2, 2'-イソブチリデンビス(4, 6-ジメチルフェノール); 2, 2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール); 2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-メチルフェノール; 2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール; 2, 4-ジメチル-6-*t*-ブチルフェノール; 2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-アミル-*p*-クレゾール; 2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-(N, N'-ジメチルアミノメチルフェノール); 4, 4'-チオビス(2-メチル-6-*t*-ブチルフェノール); 4, 4'-チオビス(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール); 2, 2'-チオビス(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール); ビス(3-メチル-4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルベンジル)スルフィド; ビス(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)スルフィド; *n*-オクチル-3-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-*t*-ブチルフェニル)プロピオネート、*n*-オクタデシル-3-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-*t*-ブチルフェニル)プロピオネート; 2, 2'-チオ[ジエチル-ビス-3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]などが挙げられる。これらの中で、特にビスフェノール系およびエステル基含有フェノール系のものが好適である。

[0031] また、アミン系酸化防止剤としては、例えばモノオクチルジフェニルアミン; モノノニルジフェニルアミンなどのモノアルキルジフェニルアミン系、4, 4'-ジブチルジフェニルアミン; 4, 4'-ジペンチルジフェニルアミン; 4, 4'-ジヘキシルジフェニルアミン; 4, 4'-ジヘプチルジフェニルアミン; 4, 4'-ジオクチルジフェニルアミン; 4, 4'-ジノニルジフェニルアミンなどのジアルキルジフェニルアミン系、テトラブチルジフェニルアミン; テトラヘキシルジフェニルアミン; テトラオクチルジフェニルアミン; テトラノニルジフェニルアミンなどのポリアルキルジフェニルアミン系、およびナフチルアミン系のもの、具体的には $\alpha$ -ナフチルアミン; フェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; さらにハブチルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; ペンチルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; ヘキシルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; ヘプチルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; オクチルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミン; ノニルフェニル- $\alpha$ -ナフチルアミンなどのアルキル置換フェニル- $\alpha$ -ナフチルアミンなどが挙げられる。これらの中でジアルキルジフェニルアミン系およびナフチルアミン系のものが好適である。

[0032] なお、他の酸化防止剤として、モリブデンアミン錯体系酸化防止剤を用いてもよい。

モリブデンアミン錯体系酸化防止剤としては、6価のモリブデン化合物、具体的には三酸化モリブデンおよび／またはモリブデン酸とアミン化合物とを反応させてなるもの、例えば特開2003-252887号公報に記載の製造方法で得られる化合物を用いることができる。6価のモリブデン化合物と反応させるアミン化合物としては特に制限されないが、具体的には、モノアミン、ジアミン、ポリアミンおよびアルカノールアミンが挙げられる。より具体的には、メチルアミン、エチルアミン、ジメチルアミン、ジエチルアミン、メチルエチルアミン、メチルプロピルアミン等の炭素数1～30のアルキル基(これらのアルキル基は直鎖状でも分枝状でもよい)を有するアルキルアミン;エテニルアミン、プロペニルアミン、ブテニルアミン、オクテニルアミン、およびオレイルアミン等の炭素数2～30のアルケニル基(これらのアルケニル基は直鎖状でも分枝状でもよい)を有するアルケニルアミン;メタノールアミン、エタノールアミン、メタノールエタノールアミン、メタノールプロパノールアミン等の炭素数1～30のアルカノール基(これらのアルカノール基は直鎖状でも分枝状でもよい)を有するアルカノールアミン;メチレンジアミン、エチレンジアミン、プロピレンジアミン、およびブチレンジアミン等の炭素数1～30のアルキレン基を有するアルキレンジアミン;ジエチレントリアミン、トリエチレントトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン等のポリアミン;ウンデシルジエチルアミン、ウンデシルジエタノールアミン、ドデシルジプロパノールアミン、オレイルジエタノールアミン、オレイルプロピレンジアミン、ステアリルテトラエチレンペンタミン等の上記モノアミン、ジアミン、ポリアミンに炭素数8～20のアルキル基またはアルケニル基を有する化合物やイミダゾリン等の複素環化合物;これらの化合物のアルキレンオキシド付加物;およびこれらの混合物等が例示できる。また、特公平3-22438号公報および特開2004-2866号公報に記載されているコハク酸イミドの硫黄含有モリブデン錯体等が例示できる。

上述した酸化防止剤の配合量は、組成物全量基準で、0.3質量%以上が好ましく0.5質量%以上であることがより好ましい。一方、2質量%を越えると、潤滑油基油に不溶となるおそれがある。従って、酸化防止剤の配合量は、組成物全量基準で0.3～2質量%の範囲が好ましい。

[0033] 本発明の潤滑油組成物には、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて他

の添加剤、例えば粘度指数向上剤、流動点降下剤、耐摩耗剤、無灰系摩擦低減剤、防錆剤、金属不活性化剤、界面活性剤、および消泡剤等を配合してもよい。

[0034] 粘度指数向上剤としては、例えば、ポリメタクリレート、分散型ポリメタクリレート、オレフィン系共重合体(例えば、エチレン-プロピレン共重合体など)、分散型オレフィン系共重合体、スチレン系共重合体(例えば、スチレン-ジエン共重合体、スチレン-イソプレン共重合体など)などが挙げられる。これら粘度指数向上剤の配合量は、配合効果の点から、組成物全量基準で、0.5～15質量%程度であり、好ましくは1～10質量%である。

[0035] 流動点降下剤としては、例えば質量平均分子量が5000～50,000程度のポリメタクリレートなどが挙げられる。

耐摩耗剤としては、ジチオリン酸亜鉛、ジチオカルバミン酸亜鉛、リン酸亜鉛、ジスルフィド類、硫化オレフィン類、硫化油脂類、硫化エステル類、チオカーボネート類、チオカーバメート類(例えば、Mo-DTC)等の硫黄含有化合物;亜リン酸エステル類、リン酸エステル類、ホスホン酸エステル類、およびこれらのアミン塩または金属塩等のリン含有化合物;チオ亜リン酸エステル類、チオリン酸エステル類(例えば、Mo-DTP)、チオホスホン酸エステル類、およびこれらのアミン塩または金属塩等の硫黄およびリン含有摩耗防止剤が挙げられる。

[0036] 無灰系摩擦低減剤としては、潤滑油用の無灰系摩擦低減剤として通常用いられている任意の化合物が使用可能であり、例えば炭素数6～30のアルキル基またはアルケニル基を分子中に少なくとも1個有する、脂肪酸、脂肪族アルコール、脂肪族エーテル、脂肪族エステル、脂肪族アミンおよび脂肪族アミド等が挙げられる。

[0037] 防錆剤としては、石油スルホネート、アルキルベンゼンスルホネート、ジノニルナフタレンスルホネート、アルケニルコハク酸エステル、多価アルコールエステル等が挙げられる。これら防錆剤の配合量は、配合効果の点から、組成物全量基準で、通常0.01～1質量%程度であり、好ましくは0.05～0.5質量%である。

[0038] 金属不活性化剤(銅腐食防止剤)としては、例えば、ベンゾトリアゾール系、トリルトリアゾール系、チアジアゾール系、イミダゾール系およびピリミジン系化合物等が挙げられる。この中でベンゾトリアゾール系化合物が好ましい。金属不活性化剤を配合す

ることでエンジン部品の金属腐食および酸化劣化を抑制することができる。これら金属不活性化剤の配合量は、配合効果の点から、組成物全量基準で、好ましくは0.01～0.1質量%、より好ましくは0.03～0.05質量%である。

[0039] 界面活性剤としては、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルおよびポリオキシエチレンアルキルナフチルエーテル等のポリアルキレングリコール系非イオン性界面活性剤等が挙げられる。

[0040] 消泡剤としては、シリコーン油、フルオロシリコーン油およびフルオロアルキルエーテル等が挙げられ、消泡効果および経済性のバランスなどの点から、組成物全量に基づき、0.005～0.1質量%程度配合することが好ましい。

[0041] 本発明の潤滑油組成物においては、硫黄含有量が組成物全量基準で0.5質量%以下であることが好ましく、0.3質量%以下であることがより好ましく、さらに好ましくは0.2質量%以下である。硫黄含有量が0.5質量%以下であると、排出ガスを浄化する触媒の性能低下を効果的に抑えることができる。

本発明の潤滑油組成物においては、リン含有量は組成物全量基準で0.12質量%以下であることが好ましく、より好ましくは0.1質量%以下である。リン含有量が0.12質量%以下であると、排出ガスを浄化する触媒の性能低下を効果的に抑えることができる。

[0042] また、本発明の潤滑油組成物においては、硫酸灰分は1.1質量%以下であることが好ましく、1質量%以下であるとより好ましい。硫酸灰分が1.1質量%以下であると、排出ガスを浄化する触媒の性能低下を効果的に抑えることができる。また、ディーゼルエンジンにおいては、DPFのフィルタに堆積する灰分量が少なく、該フィルタの灰分詰まりが抑制され、DPFの寿命が長くなる。なお、この硫酸灰分とは、試料を燃やして生じた炭化残留物に硫酸を加えて加熱し、恒量にした灰分をいい、通常潤滑油組成物中の金属系添加剤の大略の量を知るために用いられる。具体的には、JIS K 2272の「5. 硫酸灰分試験方法」に規定される方法により測定される。

なお、内燃機関において潤滑油の蒸発性の増大は、潤滑油自体の消費量の増加を招き、それによる潤滑油寿命の低下、さらには排気ガス触媒への飛散量増大による触媒能力・寿命の低下を引き起こす。このような観点より、本発明の潤滑油組成物

においては、JPI (Japan Petroleum Institute、以下同) -5S-41-93に準拠して測定されるNOACK蒸発量が15質量%以下であることが好ましく、より好ましくは13質量%以下であり、さらに好ましくは10質量%以下である。

### 実施例

[0043] 次に、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

[0044] [実施例1～7、比較例1～4]

表1に示す配合組成を有する潤滑油組成物を調製し、以下に示すホットチューブ試験を行った。なお、潤滑油組成物の調製に用いた各成分の種類は、次の通りである。

(1) 基油A: 水素化精製基油、40℃動粘度 $21\text{mm}^2/\text{s}$ 、100℃動粘度 $4.5\text{mm}^2/\text{s}$ 、粘度指数127、%CA0.0、硫黄含有量20質量ppm未満、NOACK蒸発量13.3質量%

(2) 基油B: PAO、40℃動粘度 $17.5\text{mm}^2/\text{s}$ 、100℃動粘度 $3.9\text{mm}^2/\text{s}$ 、粘度指数120、NOACK蒸発量15質量%

(3) 基油C: エステル油 (ポリオール脂肪酸エステル。ポリオール成分は、トリメチロールプロパンであり、脂肪酸成分は、ヤシ油 (C8～C12) をリファインしたものを用いた。)、40℃動粘度 $19.8\text{mm}^2/\text{s}$ 、100℃動粘度 $4.3\text{mm}^2/\text{s}$ 、粘度指数139、NOACK蒸発量3質量%、けん化価 $0.1\text{mgKOH/g}$

(4) 基油D: トリデシルアジペート、40℃動粘度 $27\text{mm}^2/\text{s}$ 、100℃動粘度 $5.3\text{mm}^2/\text{s}$ 、粘度指数132、NOACK蒸発量4質量%

[0045] (5) 粘度指数向上剤: ポリメタクリレート、質量平均分子量420,000、樹脂量39質量%

(6) 流動点降下剤: ポリアルキルメタクリレート、質量平均分子量6,000

(7) 金属系清浄剤: 過塩基性カルシウムサリシレート、塩基価 (過塩素酸法)  $225\text{mgKOH/g}$ 、カルシウム含有量7.8質量%、硫黄含有量0.3質量%

(8) ポリブテニルコハク酸モノイミドA: ポリブテニル基の数平均分子量1000、窒素含有量1.76質量%、ホウ素含有量2.0質量%、B/N=1.1

(9)ポリブテニルコハク酸ビスイミドB:ポリブテニル基の数平均分子量2000、窒素含有量0.99質量%、B/N=0

(10)フェノール系酸化防止剤:オクタデシル 3-(3,5-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート

(11)アミン系酸化防止剤:ジアルキルジフェニルアミン、窒素含有量4.62質量%

(12)ジアルキルジチオリン酸亜鉛:Zn含有量9.0質量%、リン含有量8.2質量%、硫黄含有量17.1質量%、アルキル基;第2級ブチル基と第2級ヘキシル基の混合物

(13)銅腐食防止剤:1-[N,N-ビス(2-エチルヘキシル)アミノメチル]メチルベンゾトリアゾール

(14)バイオディーゼル燃料:菜種油メチルエステル

(15)その他の添加剤:防錆剤、界面活性剤および消泡剤

[0046] 各潤滑油組成物の性状測定およびホットチューブ試験については、以下のようにして行った。

(カルシウム含有量)

JIS-5S-38-92に準拠して測定した。

(ホウ素含有量)

JIS-5S-38-92に準拠して測定した。

(窒素含有量)

JIS K2609に準拠して測定した。

(リン含有量)

JPI-5S-38-92に準拠して測定した。

(硫黄含有量)

JIS K2541に準拠して測定した。

(硫酸灰分)

JIS K2272に準拠して測定した。

(Noack)

JPI-5S-41-93に準拠して測定した。

## [0047] (ホットチューブ試験)

試験用の潤滑油組成物としては、内燃機関内における燃料と潤滑油との混合割合を想定して、前記した各潤滑油組成物(新油)に対してバイオ燃料(菜種油をメチルアルコールによりエステル交換して得られた燃料)を5質量%配合した混合油を用いた。試験温度は、280℃および320℃に設定し、その他の条件については、JPI-5 S-55-99に準拠して測定した。また、ホットチューブ試験は粘度指数向上剤の量が影響する場合もあるので、各実施例・比較例では粘度指数向上剤の配合量を一定にした。試験後のガラス管への付着物量が少ないほど、清浄性が良好であることを示す。

各潤滑油組成物の性状およびホットチューブ試験の結果を表1に示す。

## [0048] [表1]

|                          |                  | 実施例    |        |        |        |        |        |        |        |        |        | 比較例    |  |  |  |
|--------------------------|------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--|--|--|
|                          |                  | 1      | 2      | 3      | 4      | 5      | 6      | 7      | 1      | 2      | 3      | 4      |  |  |  |
| 配合組成<br>(質量%)            | 基油A              | 62.61  | 62.61  | 62.61  | —      | 61.61  | 61.61  | —      | 82.61  | 62.61  | 79.61  | 79.61  |  |  |  |
|                          | 基油B              | —      | —      | —      | 62.61  | —      | —      | 61.61  | —      | 20.00  | —      | —      |  |  |  |
|                          | 基油C              | 20.00  | —      | 10.00  | 20.00  | 20.00  | —      | 20.00  | —      | —      | 3.00   | —      |  |  |  |
|                          | 基油D              | —      | 20.00  | 10.00  | —      | —      | 20.00  | —      | —      | —      | —      | 3.00   |  |  |  |
|                          | 粘度指数向上剤          | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   | 6.50   |  |  |  |
|                          | 流動点降下剤           | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   | 0.30   |  |  |  |
|                          | 金属系清浄剤           | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   | 2.82   |  |  |  |
|                          | ポリブテニルコハク酸モノイミドA | —      | —      | —      | —      | 1.00   | 1.00   | 1.00   | —      | —      | —      | —      |  |  |  |
|                          | ポリブテニルコハク酸ビスイミドB | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   | 5.00   |  |  |  |
|                          | フェノール系酸化防止剤      | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   |  |  |  |
|                          | アミン系酸化防止剤        | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   |  |  |  |
|                          | ジアルキルジチオリン酸亜鉛    | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   | 1.22   |  |  |  |
|                          | 銅腐食防止剤           | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   | 0.05   |  |  |  |
|                          | その他              | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   | 0.50   |  |  |  |
| 組成物の性状<br>(質量%)          | 合計               | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 |  |  |  |
|                          | カルシウム含有量         | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   | 0.22   |  |  |  |
|                          | ホウ素含有量           | 0.00   | 0.00   | 0.00   | 0.00   | 0.02   | 0.02   | 0.02   | 0.00   | 0.00   | 0.00   | 0.02   |  |  |  |
|                          | 窒素含有量            | 0.07   | 0.07   | 0.07   | 0.07   | 0.09   | 0.09   | 0.09   | 0.07   | 0.07   | 0.07   | 0.09   |  |  |  |
|                          | 硫黄含有量            | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    | 0.2    |  |  |  |
|                          | リン含有量            | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   | 0.10   |  |  |  |
|                          | 硫酸灰分             | 0.96   | 0.96   | 0.96   | 0.96   | 0.97   | 0.97   | 0.97   | 0.96   | 0.96   | 0.97   | 0.97   |  |  |  |
|                          | Noack            | 8.7    | 9.0    | 8.8    | 9.5    | 8.8    | 9.0    | 9.8    | 11.2   | 10.5   | 11.0   | 11.0   |  |  |  |
|                          | 合計               | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 |  |  |  |
|                          | 合計               | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 |  |  |  |
| ホットチューブ試験 / 付着物量(mg)     |                  | 0.8    | 0.8    | 0.8    | 0.8    | 0.1    | 0.1    | 0.1    | 10.3   | 9.7    | 9.9    | 10.1   |  |  |  |
| 新油95%+バイオディーゼル燃料5% @280℃ |                  | 25.2   | 28.0   | 26.2   | 26.6   | 3.9    | 4.4    | 4.1    | 157.8  | 83.3   | 155.5  | 153.5  |  |  |  |
| 新油95%+バイオディーゼル燃料5% @320℃ |                  | 25.2   | 28.0   | 26.2   | 26.6   | 3.9    | 4.4    | 4.1    | 157.8  | 83.3   | 155.5  | 153.5  |  |  |  |

## [0049] 〔評価結果〕

表1のホットチューブ試験結果からわかるように、本発明の潤滑油組成物を用いた実施例1～7では、新油にバイオ燃料を添加しても、ホットチューブ内の付着量はさほど多くなく、エンジンの清浄性にも優れることが理解できる。一方、比較例1、2は、基油としてポリオールエステルも多塩基酸エステルも用いていないので、付着量が非常に多い。また、比較例3、4のように、ポリオールエステルや多塩基酸エステルを基油として用いても、その配合量が少ないと付着防止効果はほとんど認められず、エンジンの清浄性に対しても期待できない。

## 産業上の利用可能性

[0050] 本発明の潤滑油組成物は、バイオ燃料あるいはバイオ燃料を含む燃料を用いる内燃機関に好適に利用できる。

## 請求の範囲

- [1] 天然油脂、天然油脂の水素化処理物、天然油脂のエステル交換物、および天然油脂のエステル交換物の水素化処理物の中から選ばれた少なくとも1種を含む燃料を用いる内燃機関で使用される潤滑油組成物であって、  
潤滑油基油として、 $100^{\circ}\text{C}$ 動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ であるポリオールエステルおよび／または $100^{\circ}\text{C}$ 動粘度が $3\sim 8\text{mm}^2/\text{s}$ である多塩基酸エステルを、  
潤滑油組成物全量基準で $5\sim 30$ 質量％配合することを特徴とする潤滑油組成物。
- [2] 請求項1に記載の潤滑油組成物において、  
数平均分子量 $500\sim 3500$ のポリブテニル基を有し、ホウ素(B)と窒素(N)の質量比(B/N)が $0.5$ 以上であるポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体と、  
アルカリ土類金属系清浄剤とを配合することを特徴とする潤滑油組成物。
- [3] 請求項1または請求項2のいずれかに記載の潤滑油組成物において、  
硫酸灰分が $1.1$ 質量％以下であることを特徴とする潤滑油組成物。
- [4] 請求項1～請求項3のいずれかに記載の潤滑油組成物において、  
フェノール系酸化防止剤および／またはアミン系酸化防止剤を、組成物全量基準で $0.3$ 質量％以上配合することを特徴とする潤滑油組成物。
- [5] 請求項1～請求項4のいずれかに記載の潤滑油組成物において、  
組成物全量基準で、前記ポリブテニルコハク酸イミド化合物のホウ素誘導体をホウ素換算量で $0.01$ 質量％以上配合することを特徴とする潤滑油組成物。
- [6] 請求項1～請求項5のいずれかに記載の潤滑油組成物において、  
硫黄含有量が組成物全量基準で $0.5$ 質量％以下であることを特徴とする潤滑油組成物。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/068860

## 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)

C10M105/32, C10M169/04, C10M105/36, C10M105/38, C10M129/10, C10M129/70, C10M133/04, C10M135/10, C10M139/00, C10M159/22, C10M159/24, C10N10/04, C10N20/00, C10N20/02, C10N20/04, C10N30/04, C10N30/06, 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 | 1996-2008 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2008 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2008 |

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<br>A    | JP 2002-206096 A (Nippon Mitsubishi Oil Corp.),<br>26 July, 2002 (26.07.02),<br>Claims; Par. Nos. [0001], [0006], [0009] to [0010], [0013] to [0017], [0040]; example 3<br>(Family: none) | 1, 3, 4, 6<br>2, 5    |
| X<br>A    | JP 2002-275488 A (Nippon Oil Corp.),<br>25 September, 2002 (25.09.02),<br>Claims; Par. Nos. [0005] to [0007], [0019] to [0021], [0039], [0046]; examples 1 to 6<br>(Family: none)         | 1, 3, 4, 6<br>2, 5    |

☒ 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  
07 November, 2008 (07.11.08)

Date of mailing of the international search report  
18 November, 2008 (18.11.08)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/068860

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                       | Relevant to claim No. |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| X<br>A    | JP 2001-348591 A (Nippon Mitsubishi Oil Corp.),<br>18 December, 2001 (18.12.01),<br>Claims; Par. Nos. [0007] to [0013], [0046],<br>[0049] to [0051], [0054]; example 1<br>(Family: none) | 1, 3, 4, 6<br>2, 5    |
| A         | JP 2005-264066 A (Nippon Oil Corp.),<br>29 September, 2005 (29.09.05),<br>Claims; Par. No. [0029]<br>& WO 2005/090532 A1 & EP 1736529 A1<br>& US 2007/0179070 A1                         | 1-6                   |
| A         | JP 2004-269707 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.),<br>30 September, 2004 (30.09.04),<br>Claims; Par. Nos. [0010] to [0015]<br>(Family: none)                                                   | 1-6                   |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2008/068860

Continuation of A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
(International Patent Classification (IPC))

C10M105/32(2006.01)i, C10M169/04(2006.01)i, C10M105/36(2006.01)n,  
C10M105/38(2006.01)n, C10M129/10(2006.01)n, C10M129/70(2006.01)n,  
C10M133/04(2006.01)n, C10M135/10(2006.01)n, C10M139/00(2006.01)n,  
C10M159/22(2006.01)n, C10M159/24(2006.01)n, C10N10/04(2006.01)n,  
C10N20/00(2006.01)n, C10N20/02(2006.01)n, C10N20/04(2006.01)n,  
C10N30/04(2006.01)n, C10N30/06(2006.01)n, C10N40/25(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. C10M105/32, C10M169/04, C10M105/36, C10M105/38, C10M129/10, C10M129/70, C10M133/04, C10M135/10, C10M139/00, C10M159/22, C10M159/24, C10N10/04, C10N20/00, C10N20/02, C10N20/04, C10N30/04, C10N30/06, 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 0 8 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 0 8 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 0 8 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<br>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<br>請求の範囲の番号   |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| X<br>A          | JP 2002-206096 A（日石三菱株式会社）2002. 07. 26,<br>請求の範囲、段落[0001]、[0006]、[0009]-[0010]、[0013]-[0017]、<br>[0040]、実施例 3<br>（ファミリーなし） | 1, 3, 4, 6<br>2, 5 |
| X<br>A          | JP 2002-275488 A（新日本石油株式会社）2002. 09. 25,<br>請求の範囲、段落[0005]-[0007]、[0019]-[0021]、[0039]、[0046]、<br>実施例 1-6<br>（ファミリーなし）     | 1, 3, 4, 6<br>2, 5 |

☒ 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

0 7 . 1 1 . 2 0 0 8

国際調査報告の発送日

1 8 . 1 1 . 2 0 0 8

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）

太田 千香子

4 V

4 0 4 8

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

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                                                                          |                    |
|-----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求の範囲の番号   |
| X<br>A                | JP 2001-348591 A (日石三菱株式会社) 2001. 12. 18,<br>請求の範囲、段落[0007]-[0013]、[0046]、[0049]-[0051]、[0054]、<br>実施例 1<br>(ファミリーなし)    | 1, 3, 4, 6<br>2, 5 |
| A                     | JP 2005-264066 A (新日本石油株式会社) 2005. 09. 29,<br>請求の範囲、段落[0029]<br>& WO 2005/090532 A1 & EP 1736529 A1 & US 2007/0179070 A1 | 1-6                |
| A                     | JP 2004-269707 A (出光興産株式会社) 2004. 09. 30,<br>請求の範囲、段落[0010]-[0015]<br>(ファミリーなし)                                          | 1-6                |

## 発明の属する分野の分類

C10M105/32(2006.01)i, C10M169/04(2006.01)i, C10M105/36(2006.01)n,  
C10M105/38(2006.01)n, C10M129/10(2006.01)n, C10M129/70(2006.01)n,  
C10M133/04(2006.01)n, C10M135/10(2006.01)n, C10M139/00(2006.01)n,  
C10M159/22(2006.01)n, C10M159/24(2006.01)n, C10N10/04(2006.01)n,  
C10N20/00(2006.01)n, C10N20/02(2006.01)n, C10N20/04(2006.01)n, C10N30/04(2006.01)n,  
C10N30/06(2006.01)n, C10N40/25(2006.01)n