

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5107889号

(P5107889)

(45) 発行日 平成24年12月26日 (2012.12.26)

(24) 登録日 平成24年10月12日 (2012.10.12)

(51) Int. Cl.

F I

C 1 O M 107/02 (2006.01) C 1 O M 107/02  
 C 1 O M 101/02 (2006.01) C 1 O M 101/02  
 C 1 O M 107/10 (2006.01) C 1 O M 107/10  
 C O F 293/00 (2006.01) C O F 293/00  
 C 1 O N 20/00 (2006.01) C 1 O N 20:00

A

請求項の数 24 (全 32 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2008-502124 (P2008-502124)  
 (86) (22) 出願日 平成18年3月15日 (2006.3.15)  
 (65) 公表番号 特表2008-543977 (P2008-543977A)  
 (43) 公表日 平成20年12月4日 (2008.12.4)  
 (86) 国際出願番号 PCT/US2006/009855  
 (87) 国際公開番号 W02006/102153  
 (87) 国際公開日 平成18年9月28日 (2006.9.28)  
 審査請求日 平成21年3月3日 (2009.3.3)  
 (31) 優先権主張番号 PCT/US2005/008917  
 (32) 優先日 平成17年3月17日 (2005.3.17)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)  
 (31) 優先権主張番号 60/717,875  
 (32) 優先日 平成17年9月16日 (2005.9.16)  
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 502141050  
 ダウ グローバル テクノロジーズ エル  
 エルシー  
 アメリカ合衆国 ミシガン州 48674  
 , ミッドランド, ダウ センター 204  
 O  
 (74) 代理人 100092783  
 弁理士 小林 浩  
 (74) 代理人 100120134  
 弁理士 大森 規雄  
 (74) 代理人 100128484  
 弁理士 井口 司  
 (74) 代理人 100104282  
 弁理士 鈴木 康仁

早期審査対象出願

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 潤滑剤基油としての低分子量エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

基油および少なくとも 1 種のオイル添加剤を含む潤滑剤組成物であって、  
 前記基油が、10,000 未満の数平均分子量を有するエチレン/ $\alpha$ -オレフィンマル  
 チブロック共重合体を含み、

前記エチレン/ $\alpha$ -オレフィンマルチブロック共重合体が、40 ~ 130 で溶出  
 する T R E F 画分のコモノマー含量を、式 ( - 0 . 2 0 1 3 ) T + 2 1 . 0 7 ( 式中、T は  
 、 で測定した、前記 T R E F 画分のピーク A T R E F 溶出温度の数値である ) で表され  
 る量以上有し、

前記エチレン/ $\alpha$ -オレフィンマルチブロック共重合体が、

( i ) [ N - ( 2 , 6 - ジ ( 1 - メチルエチル ) フェニル ) アミド ] ( 2 - イソプロピ  
 ルフェニル ) ( - ナフタレン - 2 - ジイル ( 6 - ピリジン - 2 - ジイル ) メタン ) ] ハ  
 フニウムジメチル、[ N - ( 2 , 6 - ジ ( 1 - メチルエチル ) フェニル ) アミド ] ( 2 -  
 メチルフェニル ) ( 1 , 2 - フェニレン - ( 6 - ピリジン - 2 - ジイル ) メタン ) ] ハフ  
 ニウムジメチル、ビス [ N , N ' ' ' - ( 2 , 4 , 6 - トリ ( メチルフェニル ) アミド )  
 エチレンジアミン ] ハフニウムジベンジル、ビス ( ( 2 - オキシイル - 3 - ( ジベンゾ -  
 1 H - ピロール - 1 - イル ) - 5 - ( メチル ) フェニル ) - 2 - フェノキシメチル ) シク  
 ロヘキサン - 1 , 2 - ジイルハフニウム ( I V ) ジベンジル、1 , 2 - ビス - ( 3 , 5 -  
 ジ - t - ブチルフェニレン ) ( 1 - ( N - ( 1 - メチルエチル ) イミノ ) メチル ) ( 2 -  
 オキシイル ) ジルコニウムジベンジル、1 , 2 - ビス - ( 3 , 5 - ジ - t - ブチルフェニ

10

20

レン) (1 - (N - (2 - メチルシクロヘキシル) イミノ) メチル) (2 - オキソイル) ジルコニウムジベンジル、(t - ブチルアミド) ジメチル (3 - N - ピロリル - 1, 2, 3, 3a, 7a - - インデン - 1 - イル) シランチタニウムジメチル、(t - ブチルアミド) ジ (4 - メチルフェニル) (2 - メチル - 1, 2, 3, 3a, 7a - - インデン - 1 - イル) シランチタニウムジメチル、(t - ブチルアミド) ジ (4 - メチルフェニル) (2 - メチル - 1, 2, 3, 3a, 8a - - s - インダセン - 1 - イル) シランチタニウムジメチル、及びビス (ジメチルジシロキサン) (インデン - 1 - イル) ジルコニウムジクロリドからなる群より選択される 2 種類の触媒と、

(ii) ジエチル亜鉛、ジ (i - ブチル) 亜鉛、ジ (n - ヘキシル) 亜鉛、トリエチルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、トリエチルガリウム、i - ブチルアルミニウムビス (ジメチル (t - ブチル) シロキサン)、i - ブチルアルミニウムビス (ジ (トリメチルシリル) アミド)、n - オクチルアルミニウムジ (ピリジン - 2 - メトキシド)、ビス (n - オクタデシル) i - ブチルアルミニウム、i - ブチルアルミニウムビス (ジ (n - ベンチル) アミド)、n - オクチルアルミニウムビス (2, 6 - ジ - t - ブチルフェノキシド)、n - オクチルアルミニウムジ (エチル (1 - ナフチル) アミド)、エチルアルミニウムビス (t - ブチルジメチルシロキシド)、エチルアルミニウムジ (ビス (トリメチルシリル) アミド)、エチルアルミニウムビス (2, 3, 6, 7 - ジベンゾ - 1 - アザシクロヘプタンアミド)、n - オクチルアルミニウムビス (2, 3, 6, 7 - ジベンゾ - 1 - アザシクロヘプタンアミド)、n - オクチルアルミニウムビス (ジメチル (t - ブチル) シロキシド)、エチル亜鉛 (2, 6 - ジフェニルフェノキシド)、及びエチル亜鉛 (t - ブトキシド) からなる群より選択される可逆的連鎖移動剤とを用いる重合方法によって製造されたものである、潤滑剤組成物。

#### 【請求項 2】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が 1, 000 ~ 5, 000 の数平均分子量範囲を有する、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 3】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が 1.5 ~ 4.0 の分子量分布範囲を有する、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 4】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が 100 で 5 cSt ~ 30 cSt のブルックフィールド粘度を有する、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 5】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が 0 未満の流動点を有する、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 6】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が  $C_3 \sim C_{20}$  - オレフィンを含む、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 7】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が  $C_6 \sim C_{18}$  - オレフィンを含む、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 8】

前記エチレン / - オレフィン共重合体が  $C_{10} \sim C_{20}$  - オレフィンを含む、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 9】

前記エチレン / - オレフィン共重合体がデセンを含む、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 10】

前記エチレン / - オレフィン共重合体がドデセンを含む、請求項 1 に記載の潤滑剤組成物。

#### 【請求項 11】

10

20

30

40

50

前記基油がさらに、API第I類、API第II類、API第III類、API第IV類、API第V類の基剤ストックおよびそれらの組合せからなる群から選択されるオイルを含む、請求項1に記載の潤滑剤組成物。

【請求項12】

前記基油がさらに、天然油、合成油またはそれらの組合せを含む、請求項1に記載の潤滑剤組成物。

【請求項13】

前記添加剤が、粘度指数向上剤、清浄剤、分散剤、摩擦調整剤、流動点降下剤、抗乳化剤、消泡剤、腐食防止剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、防錆剤、増粘剤またはそれらの組合せである、請求項1に記載の潤滑剤組成物。

10

【請求項14】

前記添加剤が粘度指数向上剤である、請求項1に記載の潤滑剤組成物。

【請求項15】

前記粘度指数向上剤がより高分子量のエチレン/オレフィンブロックコポリマーである、請求項14に記載の潤滑剤組成物。

【請求項16】

モーター油、トランスミッション液、ギア油、パワーステアリング液、ショックアブソーバー液、ブレーキ液、油圧油またはグリースである、請求項1に記載の潤滑剤組成物。

【請求項17】

モーター油である、請求項16に記載の潤滑剤組成物。

20

【請求項18】

前記モーター油がさらに、粘度指数向上剤、流動点降下剤、清浄剤、分散剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、摩擦調整剤、防錆剤またはそれらの組合せを含む、請求項17に記載の潤滑剤組成物。

【請求項19】

トランスミッション液である、請求項18に記載の潤滑剤組成物。

【請求項20】

前記トランスミッション液がさらに、粘度指数向上剤、摩擦調整剤、清浄剤、分散剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、流動点降下剤、消泡剤、腐食防止剤またはそれらの組合せを含む、請求項19に記載の潤滑剤組成物。

30

【請求項21】

ギア油である、請求項16に記載の潤滑剤組成物。

【請求項22】

前記ギア油がさらに、粘度指数向上剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、防錆剤またはそれらの組合せを含む、請求項21に記載の潤滑剤組成物。

【請求項23】

グリースである、請求項16に記載の潤滑剤組成物。

【請求項24】

前記グリースがさらに、粘度指数向上剤、増粘剤、錯化剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、消泡剤、腐食防止剤またはそれらの組合せを含む、請求項23に記載の潤滑剤組成物。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、低分子量エチレン/オレフィン共重合体を基油として含有し、かつ、1種以上の添加剤を任意に含有する潤滑剤組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

現代の潤滑剤組成物は様々な用途（例えば、モーター油、トランスミッション液、ギア油、パワーステアリング液、ショックアブソーバー液、ブレーキ液、油圧油およびグリー

50

スなど)で広く使用されている。そのような潤滑剤組成物は様々な機能を有し得る:例えば、(1)可動部の表面の間での摩擦を抑制すること;(2)可動部の摩耗を減少させること;(3)可動部の表面(特に、金属表面)の腐食を低下させること;(4)ギアにおける機械的衝撃を減衰させること;および(5)エンジンシリンダーの壁においてシールを形成することなど。それぞれの潤滑剤組成物が、基油と、用途に依存して、添加剤または調整剤(例えば、粘度指数向上剤、流動点降下剤、分散剤、清浄剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、摩擦調整剤、防錆剤、腐食防止剤、抗乳化剤および消泡剤など)の組合せとを含有し得る。

#### 【0003】

様々な潤滑剤における基油は、天然または合成の様々なオイルまたはポリマーあるいはそれらの様々な組合せから配合される。基油はいくつかの機能を有する。しかし、主として、基油は、摩擦を最小限に保ちながら、可動表面を隔てる流体層を提供するか、または、熱および摩耗粒子を除く潤滑剤である。基油はまた、潤滑剤の特性を高める様々な添加剤のためのキャリアとして機能する。従って、基油は、添加剤をすべての規定使用条件のもとで溶液状態で保つことを要求される。

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0004】

ポリ- -オレフィン(「PAO」)は、潤滑剤基油として広く使用される合成炭化水素である。PAOの様々な特性が、PAOを、エンジン油、コンプレッサー油、油圧油、ギア油およびグリースにおける潤滑剤基油としての使用のために好適にしている。しかしながら、今日までに特徴づけられているPAOは、限られた酸化安定性および限られた生分解性を有する。PAOを製造する費用は比較的大きい。従って、潤滑剤のための現行の基油よりも費用効果的であり、かつ、使用寿命において改善されている潤滑剤基油を製造することが望ましい。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0005】

上記要求は本発明の様々な態様によって満たされる。本明細書中には、基油および少なくとも1種のオイル添加剤を含む潤滑剤組成物が提供される。基油はエチレン/ -オレフィン共重合体を含む。いくつかの実施形態において、前記エチレン/ -オレフィン共重合体は約10,000g/mol未満の数平均分子量を有し、かつ、前記エチレン/ -オレフィン共重合体は、TREFを使用して分画されたとき、40と130との間で溶離する分子画分を有し、前記分子画分は、同じ温度の間で溶離する比較可能なランダムエチレン共重合体画分のモノマーモル含有量よりも少なくとも5パーセント高いモノマーモル含有量を有することを特徴とし、ただし、前記比較可能なランダムエチレン共重合体は前記エチレン/ -オレフィン共重合体と同じモノマーを有し、かつ、メルトインデックス、密度およびモノマーモル含有量(ポリマー全体に基づく)を、エチレン/ -オレフィン共重合体のメルトインデックス、密度およびモノマーモル含有量から10パーセント以内で有する。

#### 【0006】

1つの実施形態において、本明細書中で提供される潤滑剤組成物において使用されるエチレン/ -オレフィン共重合体は、TREFを使用して分画されたとき、40と130との間で溶離する少なくとも1種の分子画分を有し、前記分子画分は、少なくとも0.5から約1までのブロックインデックスと、約1.3よりも大きい分子量分布( $M_w/M_n$ )とを有することを特徴とする。

#### 【0007】

別の実施形態において、本明細書中で提供される潤滑剤組成物において使用されるエチレン/ -オレフィン共重合体は、ゼロよりも大きく、約1.0までの平均ブロックインデックスと、約1.3よりも大きい分子量分布( $M_w/M_n$ )とを有する。

#### 【0008】

1つの実施形態において、潤滑剤組成物は、約1,000g/モル～約5,000g/モルの数平均分子量範囲を有するエチレン/ - オレフィン共重合体を含む。いくつかの実施形態において、前記エチレン/ - オレフィン共重合体は約1.5～4.0の分子量分布範囲を有する。いくつかの実施形態において、前記エチレン/ - オレフィン共重合体は100で約5cSt～30cStのブルックフィールド粘度を有する。いくつかの実施形態において、前記エチレン/ - オレフィン共重合体は約0未満の流動点を有する。

【0009】

別の実施形態において、前記エチレン/ - オレフィン共重合体は、 $C_3 \sim C_{20}$  - オレフィン、 $C_6 \sim C_{18}$  - オレフィンまたは $C_{10} \sim C_{20}$  - オレフィンを含む。1つの実施形態において、前記エチレン/ - オレフィン共重合体はデセンまたはドデセンを含む。

10

【0010】

1つの実施形態において、前記潤滑剤組成物における基油はさらに、API第I類、API第II類、API第III類、API第IV類、API第V類の基剤ストックおよびそれらの組合せからなる群から選択されるオイルを含む。いくつかの実施形態において、前記基油はさらに、天然油、合成油またはそれらの組合せを含む。

【0011】

別の実施形態において、本明細書中で提供される組成物における添加剤は、粘度指数向上剤、清浄剤、分散剤、摩擦調整剤、流動点降下剤、抗乳化剤、消泡剤、腐食防止剤、摩

20

【0012】

別の実施形態において、前記添加剤は粘度指数向上剤である。1つの実施形態において、前記粘度指数向上剤はより高分子量のエチレン/ - オレフィンブロックコポリマーである。

【0013】

別の実施形態において、前記潤滑剤組成物は、モーター油、トランスミッション液、ギア油、パワーステアリング液、ショックアブソーバー液、ブレーキ液、油圧油またはグリースである。

【0014】

30

1つの実施形態において、前記潤滑剤組成物はモーター油である。1つの実施形態において、前記モーター油はさらに、粘度指数向上剤、流動点降下剤、清浄剤、分散剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、摩擦調整剤、防錆剤またはそれらの組合せを含む。

【0015】

別の実施形態において、前記潤滑剤組成物はトランスミッション液である。1つの実施形態において、前記トランスミッション液はさらに、粘度指数向上剤、摩擦調整剤、清浄剤、分散剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、流動点降下剤、消泡剤、腐食防止剤またはそれらの組合せを含む。

【0016】

1つの実施形態において、前記潤滑剤組成物はギア油である。1つの実施形態において、前記ギア油はさらに、粘度指数向上剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、防錆剤またはそれらの組合せを含む。

40

【0017】

別の実施形態において、前記潤滑剤組成物はグリースである。1つの実施形態において、前記グリースはさらに、粘度指数向上剤、増粘剤、錯化剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、消泡剤、腐食防止剤またはそれらの組合せを含む。

【0018】

基油および少なくとも1種のオイル添加剤を含む潤滑剤組成物を作製する方法もまた提供される。本明細書中で使用される基油および添加剤が上記で記載され、また、本明細書中のどこかで記載される。

50

## 【 0 0 1 9 】

本発明のさらなる態様、ならびに、本発明の様々な実施形態の特徴および特性が下記の説明により明らかになる。

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【 0 0 2 0 】

## 一般的定義

「ポリマー」は、モノマー（同じタイプまたは異なるタイプのモノマーのどちらであっても）を重合することによって調製される高分子化合物を意味する。総称である「ポリマー」は、「ホモポリマー」、「コポリマー」、「ターポリマー」、ならびに、「共重合体」(interpolymer)の各用語を包含する。

10

## 【 0 0 2 1 】

「共重合体」は、少なくとも2種の異なるタイプのモノマーの重合によって調製されるポリマーを意味する。総称である「共重合体」は、用語「コポリマー」（これは通常、2つの異なるモノマーから調製されるポリマーを示すために用いられる）、ならびに、用語「ターポリマー」（これは通常、3種の異なるタイプのモノマーから調製されるポリマーを示すために用いられる）を包含する。総称である「共重合体」はまた、4種以上のタイプのモノマーを重合することによって作製されるポリマーを包含する。

## 【 0 0 2 2 】

用語「エチレン / - オレフィン共重合体」は一般には、エチレンと、3個以上の炭素原子を有する - オレフィンとを含むポリマーを示す。好ましくは、エチレンがポリマー全体の主要なモル分率を構成する。すなわち、エチレンがポリマー全体の少なくとも約50モルパーセントを構成する。より好ましくは、エチレンが、少なくとも約60モルパーセント、少なくとも約70モルパーセント、または、少なくとも約80モルパーセントを構成し、ポリマー全体の実質的な残りが、好ましくは、3個以上の炭素原子を有する - オレフィンである少なくとも1つの別のコモノマーによって構成される。多くのエチレン / オクテンコポリマーについて、好ましい組成物は、ポリマー全体の約80モルパーセントを超えるエチレン含有量、および、ポリマー全体の約10モルパーセント～約15モルパーセントのオクテン含有量、好ましくは、約15モルパーセント～約20モルパーセントのオクテン含有量を含む。いくつかの実施形態において、前記エチレン / - オレフィン共重合体は、低収率で、または微量で、または化学プロセスの副産物として生成される共重合体を含まない。前記エチレン / - オレフィン共重合体は1種または複数種のポリマーと配合することができる一方で、製造時のエチレン / - オレフィン共重合体は実質的に純粋であり、多くの場合、重合プロセスの反応生成物の主要成分を構成する。

20

30

## 【 0 0 2 3 】

前記エチレン / - オレフィン共重合体は、エチレンおよび1種以上の共重合可能な - オレフィンコモノマーを、化学的特性または物理的特性において異なる2種以上の重合したモノマーユニットの多数のブロックまたはセグメントによって特徴づけられる重合形態で含む。すなわち、前記エチレン / - オレフィン共重合体はブロック共重合体であり、好ましくは、マルチブロック共重合体またはマルチブロックコポリマーである。用語「共重合体」および用語「コポリマー」は本明細書中では交換可能に使用される。いくつかの実施形態において、前記マルチブロックコポリマーは下記の式によって表すことができる：

40

$$(A B)_n$$

式中、nは少なくとも1であり、好ましくは、1よりも大きい整数であり、例えば、2、3、4、5、10、15、20、30、40、50、60、70、80、90、100またはそれ以上などであり、「A」はハードブロックまたはハードセグメントを表し、「B」はソフトブロックまたはソフトセグメントを表す。好ましくは、AおよびBは、実質的に枝分かれした様式または実質的に星型形状の様式ではなく、実質的に線状の様式で連結される。他の実施形態において、AブロックおよびBブロックはポリマー鎖に沿ってランダムに分布する。別の言い方をすれば、前記ブロックコポリマーは通常、下記のような構

50

造を有しない：

A A A - A A - B B B - B B。

さらに他の実施形態において、前記ブロックコポリマーは通常、異なるモノマーを含む第3のタイプのブロックを有しない。さらに他の実施形態において、ブロックAおよびブロックBのそれぞれは、ブロック内に実質的にランダムに分布したモノマーまたはモノマーを有する。別の言い方をすれば、ブロックAまたはブロックBはいずれも、異なった組成の2つ以上のサブセグメント（またはサブブロック）（例えば、ブロックの他の部分とは実質的に異なる組成を有する先端セグメントなど）を含まない。

【0024】

前記マルチブロックポリマーは典型的には、様々な量の「ハード」セグメントおよび「ソフト」セグメントを含む。「ハード」セグメントは、エチレンが、ポリマーの重量に基づいて約95重量パーセントを超える量で、好ましくは、約98重量パーセントを超える量で存在する重合ユニットのブロックを示す。別の言い方をすれば、ハードセグメントにおけるモノマー含有量（エチレン以外のモノマーの含有量）が、ポリマーの重量に基づいて約5重量パーセント未満であり、好ましくは、約2重量パーセント未満である。いくつかの実施形態において、前記ハードセグメントはすべてまたは実質的にすべてがエチレンからなる。他方で「ソフト」セグメントは、モノマー含有量（エチレン以外のモノマーの含有量）が、ポリマーの重量に基づいて約5重量パーセントを超えるか、好ましくは、約8重量パーセントを超えるか、約10重量パーセントを超えるか、または、約15重量パーセントを超える重合ユニットのブロックを示す。いくつかの実施形態において、ソフトセグメントにおけるモノマー含有量は約20重量パーセントを超えることができ、または、約25重量パーセントを超えることができ、または、約30重量パーセントを超えることができ、または、約35重量パーセントを超えることができ、または、約40重量パーセントを超えることができ、または、約45重量パーセントを超えることができ、または、約50重量パーセントを超えることができ、または、約60重量パーセントを超えることができる。

【0025】

前記ソフトセグメントは、多くの場合、ブロック共重合体において、ブロック共重合体の総重量の約1重量パーセント～約99重量パーセントで、好ましくは、ブロック共重合体の総重量の約5重量パーセント～約95重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約10重量パーセント～約90重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約15重量パーセント～約85重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約20重量パーセント～約80重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約25重量パーセント～約75重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約30重量パーセント～約70重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約35重量パーセント～約65重量パーセントで、ブロック共重合体の総重量の約40重量パーセント～約60重量パーセントで、または、ブロック共重合体の総重量の約45重量パーセント～約55重量パーセントで存在し得る。逆に、前記ハードセグメントを類似する範囲で存在させることができる。前記ソフトセグメントの重量百分率および前記ハードセグメントの重量百分率は、DSCまたはNMRから得られるデータに基づいて計算することができる。そのような方法および計算が、同時出願の米国特許出願第 号（判明時には記入のこと）（代理人文書番号385063-999558）（発明の名称：「エチレン/ - オレフィンブロック共重合体」、Colin L.P. Shan、Lonnie Hazlitt他の名で2006年3月15日出願、Dow Global Technologies Inc. に譲渡）に開示される（その開示はその全体が本明細書中に参考として組み込まれる）。

【0026】

本明細書中で使用される用語「流動点」は、ASTM D97を使用して測定されたとき、オイルを注ぐことができる最低温度を示す。

【0027】

用語「マルチブロックコポリマー」または用語「セグメント化コポリマー」は、好まし

10

20

30

40

50

くは線状様式でつながれた2つ以上の化学的に異なった領域またはセグメント（これは「ブロック」と呼ばれる）を含むポリマー、すなわち、ペンダント様式またはグラフト化様式ではなく、むしろ、重合したエチレン性官能基に関してエンド・ツー・エンドでつながれる化学的に区別されるユニットを含むポリマーを示す。好ましい実施形態において、前記ブロックは、ブロックに取り込まれたモノマーの量またはタイプ、そのような組成のポリマーに起因し得る密度、結晶化度の程度、結晶子サイズ、タクチシティのタイプまたは程度（アイソタクチックまたはシンジオタクチック）、レジオ規則性またはレジオ不規則性、枝分かれ（長鎖枝分かれまたは超枝分かれを含む）の程度、均一性、あるいは、任意の他の化学的特性または物理的特性において異なる。前記マルチブロックコポリマーは、コポリマーを作製する特有のプロセスのために、多分散性指数（ $PDI$ または $M_w/M_n$ ）、ブロック長分布および/またはブロック数分布の両方の特有の分布によって特徴づけられる。より具体的には、連続プロセスで製造されるとき、前記ポリマーは望ましくは、 $1.7 \sim 2.9$ の $PDI$ を有し、好ましくは $1.8 \sim 2.5$ の $PDI$ 、より好ましくは $1.8 \sim 2.2$ の $PDI$ 、最も好ましくは $1.8 \sim 2.1$ の $PDI$ を有する。回分プロセスまたは半回分プロセスで製造されるとき、前記ポリマーは $1.0 \sim 2.9$ の $PDI$ を有し、好ましくは $1.3 \sim 2.5$ の $PDI$ 、より好ましくは $1.4 \sim 2.0$ の $PDI$ 、最も好ましくは $1.4 \sim 1.8$ の $PDI$ を有する。

#### 【0028】

下記の記載において、本明細書中に提供されるすべての数字は、「約」または「おおよそ」の語がそれに関連して使用されるかどうかにかかわらず、おおよその値である。本明細書中に提供される数字は、1パーセント、2パーセント、5パーセント、または、時には10パーセント～20パーセント異なる場合がある。下限（ $R^L$ ）および上限（ $R^U$ ）を伴う数値範囲が開示されるときは常に、その範囲に含まれる任意の数字が具体的には開示される。特に、範囲に含まれる下記の数字が具体的には開示される： $R = R^L + k * (R^U - R^L)$ 、式中、 $k$ は、1パーセント刻みで1パーセントから100パーセントに及ぶ変数であり、すなわち、 $k$ は、1パーセント、2パーセント、3パーセント、4パーセント、5パーセント、・・・、50パーセント、51パーセント、52パーセント、・・・、95パーセント、96パーセント、97パーセント、98パーセント、99パーセントまたは100パーセントである。そのうえ、上記で定義されたように2つの $R$ の数字によって定義される任意の数値範囲もまた、具体的に開示される。

#### 【0029】

##### 潤滑剤組成物

本明細書中には、（a）基油と、（b）オイル添加剤とを含む潤滑剤組成物であって、前記基油が低分子量のエチレン/ - オレフィン共重合体を含む潤滑剤組成物が提供される。本明細書中に提供される潤滑剤組成物における基油の量は組成物全体の約50重量%を超えることができる。いくつかの実施形態において、前記基油は、組成物全体の約50重量%から約99.99重量%まで、組成物全体の約60重量%から約90重量%まで、組成物全体の約70重量%から約80重量%までが可能である。いくつかの実施形態において、組成物における基油は、組成物全体の約50重量%、約60重量%、約70重量%、約75重量%、約80重量%、約85重量%、約90重量%、約99重量%または約99.99重量%である。いくつかの実施形態において、前記潤滑剤組成物は40 cStでの動粘性率が $5 \text{ mm}^2/\text{s} \sim 250 \text{ mm}^2/\text{s}$ の間であり、その総酸価（指示薬法に従って）が好ましくは $0.01 \text{ mg KOH/g} \sim 0.5 \text{ mg KOH/g}$ の間に含まれる。

#### 【0030】

##### 基油

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、低分子量のエチレン/ - オレフィン共重合体を基油として単独で、または、当分野において公知の他の基油との配合物として含有することができる。本明細書中に提供される潤滑剤組成物での基油における低分子量エチレン/ - オレフィン共重合体の量は、基油の総重量の約50重量%を超えることができる。いくつかの実施形態において、前記基油における低分子量エチレン/ - オレフィン共



重合体の量は、基油の約 50 重量% から約 100 重量% まで、基油の約 60 重量% から約 95 重量% まで、基油の約 70 重量% から約 90 重量% まで変化し得る。いくつかの実施形態において、本明細書中に提供される潤滑剤組成物での基油における低分子量エチレン / - オレフィン共重合体の量は、基油の約 50 重量%、約 60 重量%、約 70 重量%、約 75 重量%、約 80 重量%、約 85 重量%、約 90 重量%、約 95 重量%、約 99 重量%、約 100 重量% である。

#### 【0031】

低分子量のエチレン / - オレフィン共重合体

本明細書中に提供される潤滑剤組成物において使用される低分子量のエチレン / - オレフィン共重合体は、エチレンおよび 1 つ以上の共重合可能な - オレフィンモノマーを、化学的特性または物理的特性において異なる 2 種以上の重合したモノマーユニットの多数のブロックまたはセグメントによって特徴づけられる重合形態で含有し（ブロック共重合体）、いくつかの実施形態ではマルチブロックコポリマーである。

#### 【0032】

いくつかの実施形態において、低分子量のエチレン / - オレフィン共重合体は、昇溶離分別法（「TREF」）を使用して分画されたとき、40 と 130 との間で溶離する分子画分を有し、前記分子画分は、同じ温度の間で溶離する比較可能なランダムエチレン共重合体画分のモノマーモル含有量よりも高いモノマーモル含有量（好ましくは、少なくとも 5 パーセント高いモノマーモル含有量、より好ましくは、少なくとも 10 パーセント高いモノマーモル含有量）を有することを特徴とし、ただし、比較可能なランダムエチレン共重合体は前記ブロック共重合体と同じモノマーを含み、かつ、メルトインデックス、密度およびモノマーモル含有量（全ポリマーに基づく）を、前記ブロック共重合体のメルトインデックス、密度およびモノマーモル含有量から 10 パーセント以内で有する。好ましくは、比較可能な前記共重合体の  $M_w / M_n$  もまた、前記ブロック共重合体の  $M_w / M_n$  から 10 パーセント以内であり、かつ / または、比較可能な共重合体は総モノマー含有量を前記ブロック共重合体の総モノマー含有量の 10 パーセント以内で有する。

#### 【0033】

別の実施形態において、本発明の低分子量エチレン / - オレフィン共重合体は、ゼロよりも大きく、約 1.0 までである平均ブロックインデックス（ABI）、および、約 1.3 よりも大きい分子量分布  $M_w / M_n$  によって特徴づけられる。平均ブロックインデックス（ABI）は、5 の増分による 20 ~ 110 の調製用 TREF で得られたポリマー画分のそれぞれについてのブロックインデックスの重量平均である：

$$ABI = \sum (w_i BI_i)$$

式中、 $BI_i$  は、調製用 TREF で得られた本発明のエチレン / - オレフィン共重合体の  $i$  番目の画分についてのブロックインデックスであり、 $w_i$  は  $i$  番目の画分の重量百分率である。

#### 【0034】

それぞれのポリマー画分について、BI は 2 つの下記の式（これらはともに、同じ BI 値を与える）の 1 つによって定義される：

#### 【数 1】

$$BI = \frac{1/T_x - 1/T_{x0}}{1/T_A - 1/T_{AB}} \text{ or } BI = -\frac{\ln P_x - \ln P_{x0}}{\ln P_A - \ln P_{AB}}$$

式中、 $T_x$  は  $i$  番目の画分についての調製用 ATREF 溶離温度（好ましくはケルビン単位で表される）であり、 $P_x$  は  $i$  番目の画分についてのエチレンモル分率（これは、下記に記載されるように、NMR または IR によって測定することができる）である。 $P_{AB}$  はエチレン / - オレフィン共重合体全体（分画化前）のエチレンモル分率であり、これもまた、NMR または IR によって測定することができる。 $T_A$  および  $P_A$  は、純粋な「ハードセグメント」（これは前記共重合体の結晶質セグメントを示す）についての ATREF

10

20

30

40

50

溶離温度およびエチレンモル分率である。「ハードセグメント」についての実際の値が得られないならば、一次近似として、 $T_A$ および $P_A$ の値は高密度ポリエチレンホモポリマーについての値に設定される。本明細書中で行われる計算のために、 $T_A$ は372°Kであり、 $P_A$ は1である。

#### 【0035】

$T_{AB}$ は、同じ組成で、 $P_{AB}$ のエチレンモル分率を有するランダムコポリマーについてのATREF温度である。 $T_{AB}$ は下記の式から計算することができる：

$$\ln P_{AB} = \quad / T_{AB} +$$

式中、およびは、数多くの既知のランダムエチレンコポリマーを使用して較正することによって求めることができる2つの定数である。およびは装置毎に変化し得ることに留意しなければならない。そのうえ、目的とするポリマー組成に関して、また、前記画分と類似する分子量範囲でもまた、それら自身の検量線を作成する必要がある。わずかな分子量効果が存在する。検量線が、類似する分子量範囲から得られるならば、そのような効果は本質的には無視できる。いくつかの実施形態において、ランダムエチレンコポリマーは下記の関係を満たす：

$$\ln P = -237.83 / T_{ATREF} + 0.639$$

$T_{XO}$ は、同じ組成で、 $P_X$ のエチレンモル分率を有するランダムコポリマーについてのATREF温度である。 $T_{XO}$ は、 $\ln P_X = \quad / T_{XO} +$  から計算することができる。逆に、 $P_{XO}$ は、同じ組成で、 $T_X$ のATREF温度を有するランダムコポリマーについてのエチレンモル分率であり、 $\ln P_{XO} = \quad / T_X +$  から計算することができる。

#### 【0036】

それぞれの調製用TREF画分についてのブロックインデックスが得られると、ポリマー全体についての重量平均ブロックインデックス(ABI)を計算することができる。いくつかの実施形態において、ABIはゼロよりも大きく、しかし、約0.3未満であるか、または、約0.1～約0.3である。他の実施形態において、ABIは約0.3よりも大きく、約1.0までである。好ましくは、ABIは、約0.4～約0.7の範囲、約0.5～約0.7の範囲、または、約0.6～約0.9の範囲でなければならない。いくつかの実施形態において、ABIは、約0.3～約0.9の範囲、約0.3～約0.8の範囲、または、約0.3～約0.7の範囲、約0.3～約0.6の範囲、約0.3～約0.5の範囲、または、約0.3～約0.4の範囲である。他の実施形態において、ABIは、約0.4～約1.0の範囲、約0.5～約1.0の範囲、または、約0.6～約1.0の範囲、約0.7～約1.0の範囲、約0.8～約1.0の範囲、または、約0.9～約1.0の範囲である。

#### 【0037】

本発明の低分子量エチレン/ -オレフィン共重合体の別の特徴は、本発明のエチレン/ -オレフィン共重合体が、調製用TREFによって得ることができる少なくとも1つのポリマー画分を含むことであり、この場合、このポリマー画分は、約0.1よりも大きく、約1.0までのブロックインデックスと、約1.3よりも大きい分子量分布( $M_w/M_n$ )とを有する。いくつかの実施形態において、前記ポリマー画分は、約0.6よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、約0.7よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、または、約0.9よりも大きく、約1.0までのブロックインデックスを有する。他の実施形態において、前記ポリマー画分は、約0.1よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、約0.2よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、約0.3よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、約0.4よりも大きく、約1.0までのブロックインデックス、または、約0.4よりも大きく、約1.0までのブロックインデックスを有する。さらに他の実施形態において、前記ポリマー画分は、約0.1よりも大きく、約0.5までのブロックインデックス、約0.2よりも大きく、約0.5までのブロックインデックス、約0.3よりも大きく、約0.5までのブロックインデックス、または、約0.4よりも大きく、約0.5までのブロックインデックスを有する。さ

らに他の実施形態において、前記ポリマー画分は、約 0.2 よりも大きく、約 0.9 までのブロックインデックス、約 0.3 よりも大きく、約 0.8 までのブロックインデックス、約 0.4 よりも大きく、約 0.7 までのブロックインデックス、または、約 0.5 よりも大きく、約 0.6 までのブロックインデックスを有する。

【0038】

コモノマー含有量は、任意の適切な技術を使用して測定することができ、核磁気共鳴 (NMR) 分光法に基づく技術が好ましい。そのうえ、比較的広い TREF 曲線を有するポリマーまたはポリマーブレンドについては、ポリマーは望ましくは、最初に、TREF を使用して、それぞれ 10 以下の溶離温度範囲を有する画分に分画される。すなわち、それぞれの溶離された画分は 10 以下の回収温度域を有する。この技術を使用したとき、前記ブロック化共重合体は、比較可能な共重合体の対応する画分よりも高いコモノマーモル含有量を有する少なくとも 1 つのそのような画分を有する。

【0039】

別の態様において、本発明のポリマーは、オレフィンの共重合体で、好ましくは、エチレンおよび 1 種以上の共重合可能なコモノマーを、化学的特性または物理的特性において異なる 2 種以上の重合したモノマーユニットの多数のブロックまたはセグメントによって特徴づけられる重合形態で含むオレフィン共重合体であり (ブロック化共重合体)、最も好ましくはマルチブロックコポリマーであり、この場合、前記ブロック共重合体は、40 と 130 との間で溶離する (しかし、個々の画分を回収および / または単離することを伴わない) ピーク (しかし、これは単に分子画分ではない) を有し、前記ピークは、全幅 / 半値 (FWHM) 面積計算を使用して拡張されたとき、赤外分光法によって推定されるコモノマー含有量を有し、同じ溶離温度での比較可能なランダムエチレン共重合体のピークの、全幅 / 半値 (FWHM) 面積計算を使用して拡張される平均コモノマーモル含有量よりも高い平均コモノマーモル含有量 (好ましくは、少なくとも 5 パーセント大きい平均コモノマーモル含有量、より好ましくは、少なくとも 10 パーセント、15 パーセント、20 パーセントまたは 25 パーセント大きい平均コモノマーモル含有量) を有することを特徴とし、この場合、前記比較可能なランダムエチレン共重合体は前記ブロック化共重合体と同じコモノマーを含み、好ましくは、それは同じコモノマーであり、かつ、メルトインデックス、密度およびコモノマーモル含有量 (全ポリマーに基づく) を、前記ブロック化共重合体のメルトインデックス、密度およびコモノマーモル含有量から 10 パーセント以内で有する。好ましくは、比較可能な共重合体の  $M_w / M_n$  もまた、前記ブロック化共重合体の  $M_w / M_n$  から 10 パーセント以内であり、かつ / または、比較可能な共重合体は総コモノマー含有量を前記ブロック化共重合体の総コモノマー含有量から 10 重量パーセント以内で有する。全幅 / 半値 (FWHM) 計算は、ATREF 赤外検出器からのメチレン応答面積に対するメチル応答面積の比率  $[CH_3 / CH_2]$  に基づいており、この場合、最高 (最大) ピークがベースラインから特定され、その後、FWHM 面積が求められる。ATREF ピークを使用して測定された分布については、FWHM 面積が、T1 および T2 の間での曲線下面積として定義され、この場合、T1 および T2 は、ピーク高さを 2 によって割り、その後、ATREF 曲線の左部分および右部分と交わる、ベースラインに対して水平な線を引くことによって ATREF ピークの左側および右側に決定された点である。コモノマー含有量についての検量線が、ランダムエチレン / オレフィンコポリマーを使用し、NMR からのコモノマー含有量を TREF ピークの FWHM 面積比に対してプロットして作成される。この赤外法のために、検量線が、目的とする同じコモノマータイプについて作成される。本発明のポリマーの TREF ピークのコモノマー含有量は、TREF ピークのその FWHM でのメチル : メチレン面積比  $[CH_3 / CH_2]$  を使用してこの検量線を参照することによって求めることができる。

【0040】

コモノマー含有量は、任意の適切な技術を使用して測定することができ、核磁気共鳴 (NMR) 分光法に基づく技術が好ましい。この技術を使用したとき、前記ブロック化共重合体は、対応する比較可能な共重合体よりも高いコモノマーモル含有量を有する。

## 【0041】

好ましくは、エチレンおよび少なくとも1種の $\alpha$ -オレフィンからなる上記共重合体、特に、約 $0.855\text{ g/cm}^3$ ～約 $0.935\text{ g/cm}^3$ の全体的なポリマー密度を有するそのような共重合体について、より詳細には、約1モルパーセントを超えるコモノマーを有するポリマーについて、前記ブロック化共重合体は、40 と130 との間で溶離するTREF画分のコモノマー含有量が、所定量 $((-0.2013)T + 20.07)$ 以上であり、より好ましくは、所定量 $((-0.2013)T + 21.07)$ 以上であり、この場合、Tは、 の単位で測定された、比較されているTREF画分のピーク溶離温度の数値である。

## 【0042】

赤外検出器によるATREFピークのコモノマー組成測定

TREFピークのコモノマー組成を、Polymer Char (Valencia、スペイン) (<http://www.polymerchar.com/>) から入手可能なIR4赤外検出器を使用して測定することができる。

## 【0043】

検出器の「組成モード」は、 $2800\text{ cm}^{-1}$ ～ $3000\text{ cm}^{-1}$ の領域における固定された狭帯域赤外フィルターである測定センサー( $\text{CH}_2$ )および組成センサー( $\text{CH}_3$ )を備える。測定センサーにより、(溶液中のポリマー濃度に直接に関連する)ポリマーにおけるメチレン( $\text{CH}_2$ )炭素が検出され、一方、組成センサーにより、ポリマーのメチル( $\text{CH}_3$ )基が検出される。組成シグナル( $\text{CH}_3$ )が測定シグナル( $\text{CH}_2$ )によって除された数値比は、溶液における測定されたポリマーのコモノマー含有量の影響を受けやすく、その応答は既知のエチレン $\alpha$ -オレフィンコポリマースタANDARDにより較正される。

## 【0044】

検出器は、ATREF装置とともに使用されたとき、TREFプロセス中における溶離ポリマーの濃度( $\text{CH}_2$ )および組成( $\text{CH}_3$ )の両方のシグナル応答をもたらす。ポリマー固有の較正を、コモノマー含有量が既知である(好ましくは、NMRによって測定される)ポリマーについての $\text{CH}_3$ 対 $\text{CH}_2$ の面積比を測定することによって得ることができる。ポリマーのATREFピークのコモノマー含有量を、個々の $\text{CH}_3$ 応答および $\text{CH}_2$ 応答についての面積の比率の基準較正(すなわち、コモノマー含有量に対する面積比 $\text{CH}_3/\text{CH}_2$ )を適用することによって推定することができる。

## 【0045】

ピークの面積は、TREFクロマトグラムからの個々のシグナル応答を積分するための適切なベースラインを適用した後、全幅/半値(FWHM)計算を使用して計算することができる。全幅/半値の計算は、ATREF赤外検出器からのメチレン応答面積に対するメチル応答面積の比率 $[\text{CH}_3/\text{CH}_2]$ に基づいており、この場合、最高(最大)ピークがベースラインから特定され、その後、FWHM面積が求められる。ATREFピークを使用して測定された分布については、FWHM面積は、T1およびT2の間での曲線下面積として定義され、この場合、T1およびT2は、ピーク高さを2によって割り、その後、ATREF曲線の左部分および右部分と交わる、ベースラインに対して水平な線を引くことによってATREFピークの左側および右側に決定された点である。

## 【0046】

ポリマーのコモノマー含有量をこのATREF赤外法で測定するための赤外分光法の適用は、原理的には、下記の参考文献に記載されるようなGPC/FTIRシステムの適用と類似する: Markovich, Ronald P.; Hazlitt, Lonnie G.; Smith, Linley; "Development of gel-permeation chromatography-Fourier transform infrared spectroscopy for characterization of ethylene-based polyolefin copolymers", Polymer Materials Science and Engineering (1991)、65、98～100; および、Deslauriers, P.J.; Rohlfing, D.C.; Shieh, E.T.; Quantifying short chain branching microstructures in ethylene-1-olefin copolymers using size exclusion chromatography and Fourier transform infrared spectroscopy (SEC-FTIR), Polymer (2002)、43、59～170 (これらはともに、そ

10

20

30

40

50

の全体が参考として本明細書中に組み込まれる)。

#### 【0047】

いくつかの実施形態において、本明細書中に提供される低分子量エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体において使用される $\alpha$ -オレフィンは、 $C_3 \sim C_{20}$ - $\alpha$ -オレフィン、 $C_6 \sim C_{18}$ - $\alpha$ -オレフィンまたは $C_{10} \sim C_{12}$ - $\alpha$ -オレフィンであり得る。いくつかの実施形態において、本明細書中で使用される $\alpha$ -オレフィンはデセンまたはドデセンである。これらのコポリマーのブロック組成は、いくつかの実施形態では、高 $\alpha$ -オレフィン含有量ブロックについては50モル%を超える $\alpha$ -オレフィンであり、低 $\alpha$ -オレフィン含有量ブロックについては約20モル%~30モル%の $\alpha$ -オレフィンである。いくつかの実施形態において、十分な $\alpha$ -オレフィンが、完全に非晶質な組成物を両方のブロックにおいて確実にするために加えられる。いくつかの実施形態において、高 $\alpha$ -オレフィン含有量ブロック対低 $\alpha$ -オレフィン含有量ブロック比の範囲は5/95%から95/5%まで及び得る。

10

#### 【0048】

一般には、本明細書中に提供される基油において使用される共重合体は10,000g/モル未満の数平均分子量( $M_n$ )を有する。いくつかの実施形態において、前記共重合体は、1,000g/モルから10,000g/モルまで、1,000g/モルから7,000g/モルまで、1,000g/モルから5,000g/モルまで、または、2,000g/モルから5,000g/モルまでの数平均分子量範囲 $M_n$ を有する。低分子量エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体は、粘度が、当分野において公知の技術によって、例えば、ブルックフィールド粘度計によって測定されたとき、100 $cSt$ で約5 $cSt$ ~約30 $cSt$ の範囲である。いくつかの実施形態において、本明細書中における低分子量エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体は1.5~4.0の分子量分布を有する。いくつかの実施形態において、低分子量エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体の流動点は0 $^{\circ}C$ 未満である。

20

#### 【0049】

好ましくは、エチレンおよび1-オクテンの共重合体については、このブロック共重合体は、40 $^{\circ}C$ と130 $^{\circ}C$ との間で溶離するTREF画分のモノマー含有量が、所定量( $(-0.2013)T + 20.07$ )以上であり、より好ましくは、所定量( $(-0.2013)T + 21.07$ )以上であり、この場合、Tは、 $^{\circ}C$ の単位で測定された、比較されているTREF画分のピーク溶離温度の数値である。

30

#### 【0050】

エチレンおよび $\alpha$ -オレフィンのコポリマーについて、本発明の低分子量ポリマーは、好ましくは、(1)少なくとも1.3のPDI、より好ましくは、少なくとも1.5、少なくとも1.7または少なくとも2.0のPDI、最も好ましくは、少なくとも2.6で、5.0の最大値まで、より好ましくは、3.5の最大値まで、特に、2.7の最大値までのPDI；および/または(2)少なくとも50重量パーセントのエチレン含有量を有する。

#### 【0051】

このようなポリマーを作製するプロセスが下記の特許出願に開示されている：米国仮特許出願第60/553,906号(2004年3月17日出願)、米国仮特許出願第60/662,937号(2005年3月17日出願)、米国仮特許出願第60/662,939号(2005年3月17日出願)、米国仮特許出願第60/5662938号(2005年3月17日出願)、PCT出願番号PCT/US2005/008916(2005年3月17日出願)、PCT出願番号PCT/US2005/008915(2005年3月17日出願)およびPCT出願番号PCT/US2005/008917(2005年3月17日出願)(これらのすべてはその全体が参考として本明細書中に組み込まれる)。例えば、1つのそのような方法は、エチレンと、場合により、エチレン以外の1種以上の付加重合可能なモノマーとを、

40

高いモノマー取り込み指数を有する第1のオレフィン重合触媒、

触媒(A)のモノマー取り込み指数の90パーセント未満(好ましくは50パーセン

50

ト未満、最も好ましくは5パーセント未満)のコモノマー取り込み指数を有する第2のオレフィン重合触媒、および

可逆的連鎖移動(chain shuttling)剤  
を組み合わせることから生じる混合物または反応生成物  
を含む触媒組成物とともに付加重合条件下で接触させることを含む。

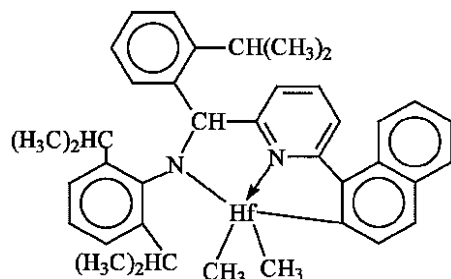
【0052】

代表的な触媒および可逆的連鎖移動剤は下記の通りである。

触媒(A1)は[N-(2,6-ジ(1-メチルエチル)フェニル)アミド](2-イソプロピルフェニル)(-ナフタレン-2-ジイル(6-ピリジン-2-ジイル)メタン)]ハフニウムジメチルであり、これは、WO03/40195、2003US0204017、米国特許出願第10/429,024号(2003年5月2日出願)およびWO04/24740の教示に従って調製される。

10

【化1】

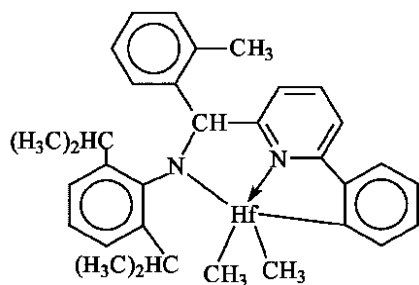


20

【0053】

触媒(A2)は[N-(2,6-ジ(1-メチルエチル)フェニル)アミド](2-メチルフェニル)(1,2-フェニレン-(6-ピリジン-2-ジイル)メタン)]ハフニウムジメチルであり、これは、WO03/40195、2003US0204017、米国特許出願第10/429,024号(2003年5月2日出願)およびWO04/24740の教示に従って調製される。

【化2】



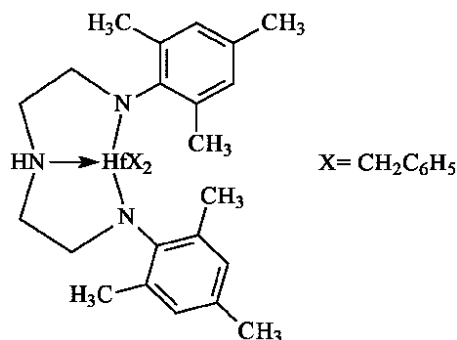
30

【0054】

触媒(A3)はビス[N,N'-(2,4,6-トリ(メチルフェニル)アミド)エチレンジアミン]ハフニウムジベンジルである。

【化3】

40

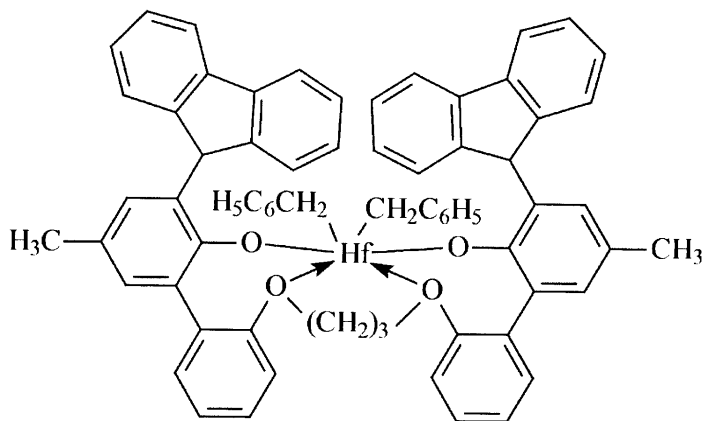


【0055】

50

触媒 (A 4) は、ビス ( ( 2 - オキソイル - 3 - ( ジベンゾ - 1 H - ピロール - 1 - イル ) - 5 - ( メチル ) フェニル ) - 2 - フェノキシメチル ) シクロヘキサン - 1 , 2 - ジイルハフニウム ( I V ) ジベンジルであり、これは実質的には米国特許出願公開第 2 0 0 4 / 0 0 1 0 1 0 3 号の教示に従って調製される。

【化 4】



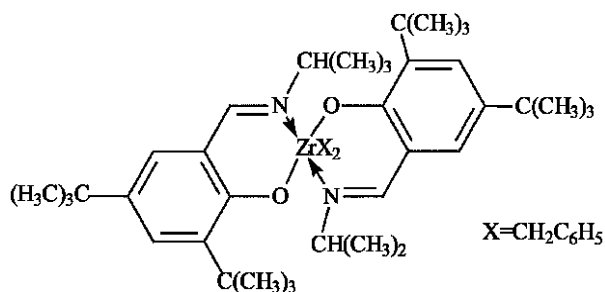
10

【 0 0 5 6 】

触媒 (B 1) は 1 , 2 - ビス - ( 3 , 5 - ジ - t - ブチルフェニル ) ( 1 - ( N - ( 1 - メチルエチル ) イミノ ) メチル ) ( 2 - オキソイル ) ジルコニウムジベンジルである。

20

【化 5】

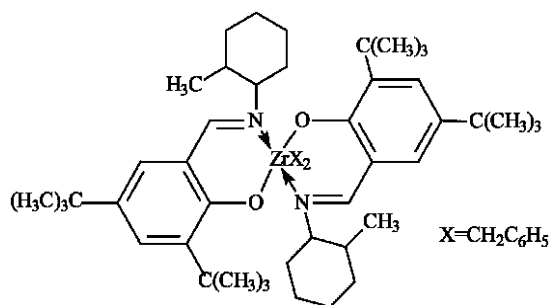


30

【 0 0 5 7 】

触媒 (B 2) は 1 , 2 - ビス - ( 3 , 5 - ジ - t - ブチルフェニル ) ( 1 - ( N - ( 2 - メチルシクロヘキシル ) イミノ ) メチル ) ( 2 - オキソイル ) ジルコニウムジベンジルである。

【化 6】

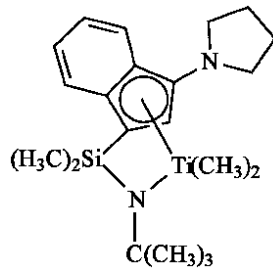


40

【 0 0 5 8 】

触媒 (C 1) は ( t - ブチルアミド ) ジメチル ( 3 - N - ピロリル - 1 , 2 , 3 , 3 a , 7 a - インデン - 1 - イル ) シランチタニウムジメチルであり、これは実質的には米国特許第 6 , 2 6 8 , 4 4 4 号の技術に従って調製される。

## 【化 7】

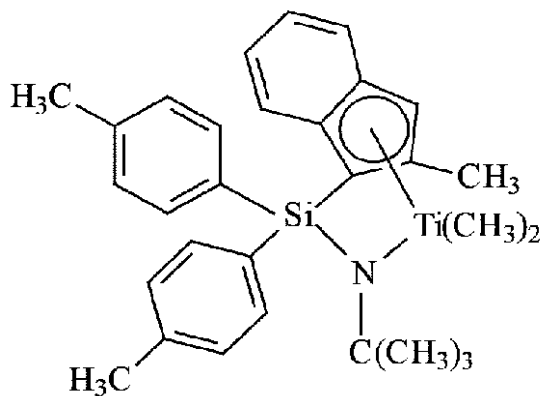


## 【 0 0 5 9 】

10

触媒 (C 2) は (t - ブチルアミド) ジ (4 - メチルフェニル) (2 - メチル - 1, 2, 3, 3 a, 7 a - - インデン - 1 - イル) シランチタニウムジメチルであり、これは実質的には米国特許出願公開第 2 0 0 3 / 0 0 4 2 8 6 号の教示に従って調製される：

## 【化 8】



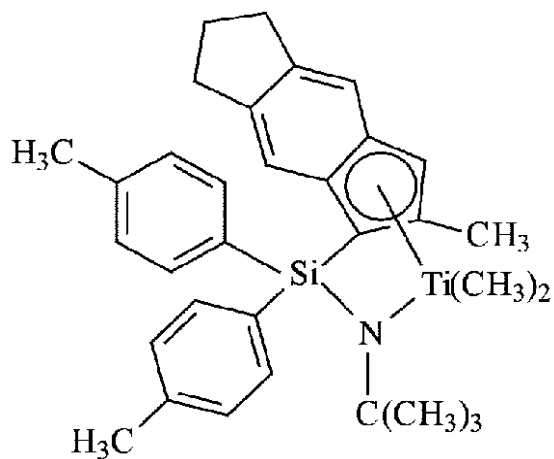
20

## 【 0 0 6 0 】

触媒 (C 3) は (t - ブチルアミド) ジ (4 - メチルフェニル) (2 - メチル - 1, 2, 3, 3 a, 8 a - - s - インダセン - 1 - イル) シランチタニウムジメチルであり、これは実質的には米国特許出願公開第 2 0 0 3 / 0 0 4 2 8 6 号の教示に従って調製される：

30

## 【化 9】



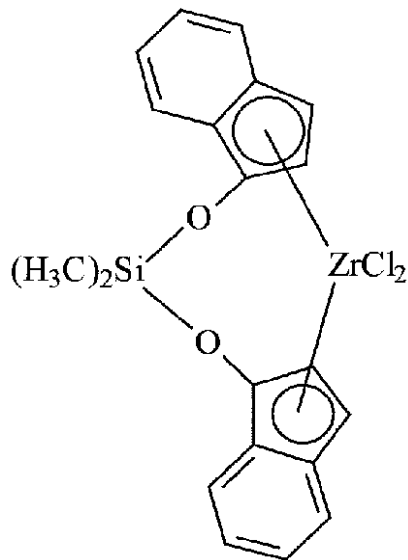
40

## 【 0 0 6 1 】

触媒 (D 1) は、Sigma - Aldrich から入手可能なビス (ジメチルジシロキサン) (インデン - 1 - イル) ジルコニウムジクロリドである：



## 【化 10】



10

## 【0062】

可逆的移動 (shuttling) 剤。用いられる可逆的移動剤には、ジエチル亜鉛、ジ (i - ブチル) 亜鉛、ジ (n - ヘキシル) 亜鉛、トリエチルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、トリエチルガリウム、i - ブチルアルミニウムビス (ジメチル (t - ブチル) シロキサン)、i - ブチルアルミニウムビス (ジ (トリメチルシリル) アミド)、n - オクチルアルミニウムジ (ピリジン - 2 - メトキシド)、ビス (n - オクタデシル) i - ブチルアルミニウム、i - ブチルアルミニウムビス (ジ (n - ペンチル) アミド)、n - オクチルアルミニウムビス (2, 6 - ジ - t - ブチルフェノキシド)、n - オクチルアルミニウムジ (エチル (1 - ナフチル) アミド)、エチルアルミニウムビス (t - ブチルジメチルシロキシド)、エチルアルミニウムジ (ビス (トリメチルシリル) アミド)、エチルアルミニウムビス (2, 3, 6, 7 - ジベンゾ - 1 - アザシクロヘプタンアミド)、n - オクチルアルミニウムビス (2, 3, 6, 7 - ジベンゾ - 1 - アザシクロヘプタンアミド)、n - オクチルアルミニウムビス (ジメチル (t - ブチル) シロキシド)、エチル亜鉛 (2, 6 - ジフェニルフェノキシド) およびエチル亜鉛 (t - ブトキシド) が含まれる。

20

30

## 【0063】

好ましくは、前記プロセスは、相互変換ができない多数の触媒を使用する、2 種以上のモノマー (より詳細には、エチレンおよび  $C_3 \sim 20$  のオレフィンまたはシクロオレフィン、最も詳細には、エチレンおよび  $C_4 \sim 20$  のオレフィン) のブロックコポリマー (特に、マルチブロックコポリマー、好ましくは、線状マルチブロックコポリマー) を形成するための連続溶液プロセスの形態を取る。すなわち、これらの触媒は化学的に異なる。連続溶液重合条件のもとでは、このプロセスは、モノマーの混合物を高いモノマー変換率で重合するために理想的に適している。このような重合条件のもとでは、可逆的連鎖移動剤から触媒への転換が、鎖の成長と比較して有利になり、マルチブロックコポリマー (特に、線状マルチブロックコポリマー) が高い効率で形成される。

40

## 【0064】

本発明の共重合体は、逐次モノマー付加、可動性触媒、アニオンまたはカチオンのリビング重合技術によって調製される従来のランダムコポリマー、ポリマーの物理的配合物、および、ブロックコポリマーから区別することができる。具体的には、本発明の共重合体は、(ホモポリマーのブロックを含めて) 異なるコモノマー含有量のブロックを含有することができる。本発明の共重合体はまた、密度またはコモノマー含有量が異なるポリマーブロックの数および/またはブロックサイズにおける分布 (これはシュルツ・フローリー型の分布である) を含有することができる。

## 【0065】

そのうえ、本発明の共重合体は、ブロック性 (blockiness) の程度またはレベルに影響

50

を及ぼす技術を使用して調製することができる。すなわち、モノマーの量と、それぞれのポリマーブロックまたはポリマーセグメントの長さとを、触媒および可逆的移動剤の比率および種類、ならびに、重合温度および他の重合変数を制御することによって変えることができる。具体的には、ポリマーにおけるブロックの平均数が増大するにつれて、ヘイズ(haze)が低下し、その一方で、透明性、引裂強度および高温回復特性が増大する。所望の連鎖移送能力(高い可逆的移動(shuttling)速度、低レベルの連鎖停止を伴う)を有する可逆的移動剤および触媒の組み合わせを選択することによって他の形態のポリマー停止が効果的に抑制される。従って、 $\alpha$ -ヒドリド脱離が、本発明の実施形態に従ったエチレン/ $\alpha$ -オレフィンモノマー混合物の重合において存在したとしても、ほとんど認められず、また、生じる結晶質ブロックは非常に線状であるか、または実質的に完全に線状であり、長鎖枝分かれをほとんどまたは全く有しない。

10

#### 【0066】

前記共重合体はさらに $C_4 \sim C_{18}$ ジオレフィンおよび/またはアルケニルベンゼンを含むことができる。エチレンと重合させるために有用な好適な不飽和モノマーには、例えば、エチレン性不飽和モノマー、共役ジエンまたは非共役ジエン、ポリエン、アルケニルベンゼンなどが含まれる。そのようなモノマーの例には、 $C_3 \sim C_{20}$ の $\alpha$ -オレフィン、例えば、プロピレン、イソブチレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネンおよび1-デセンなどが含まれる。1-ブテンおよび1-オクテンが特に好ましい。他の好適なモノマーには、スチレン、ハロ置換スチレンまたはアルキル置換スチレン、ビニルベンゾシクロブタン、1,4-ヘキサジエン、1,7-オクタジエンおよびナフテン系モノマー(例えば、シクロペンテン、シクロヘキセンおよびシクロオクテン)が含まれる。

20

#### 【0067】

エチレン/ $\alpha$ -オレフィン共重合体が好適なポリマーであるが、他のエチレン/ $\alpha$ -オレフィンポリマーもまた使用することができる。本明細書中で使用される場合、オレフィンは、少なくとも1つの炭素-炭素二重結合を有する一群の不飽和炭化水素系化合物を示す。触媒の選択に依存して、任意のオレフィンを本発明の実施形態において使用することができる。好ましくは、好適なオレフィンは、ビニル性不飽和を含有する $C_3 \sim C_{20}$ の脂肪族化合物および芳香族化合物、ならびに、環状化合物、例えば、シクロブテン、シクロペンテン、ジシクロペンタジエン、および、ノルボルネン( $C_1 \sim C_{20}$ のヒドロカルビル基またはシクロヒドロカルビル基により5位および6位において置換されたノルボルネン(これに限定されない)を含む)が含まれる。また、そのようなオレフィンの混合物、ならびに、そのようなオレフィンと、 $C_4 \sim C_{40}$ ジオレフィン化合物との混合物も含まれる。

30

#### 【0068】

オレフィンモノマーの例には、プロピレン、イソブチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4,6-ジメチル-1-ヘプテン、4-ビニルシクロヘキセン、ビニルシクロヘキセン、ノルボルナジエン、エチリデンノルボルネン、シクロペンテン、シクロヘキセン、ジシクロペンタジエン、シクロオクテン、 $C_4 \sim C_{40}$ ジエン(これには、1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、1,5-ヘキサジエン、1,7-オクタジエン、1,9-デカジエン、他の $C_4 \sim C_{40}$  $\alpha$ -オレフィンが含まれるが、これらに限定されない)などが含まれるが、これらに限定されない。ビニル基を含有する任意の炭化水素が潜在的には本発明の様々な実施形態において使用され得るが、実用的な問題、例えば、モノマーの入手性、コスト、および、生じたポリマーから未反応モノマーを都合良く除くことができることなどが、モノマーの分子量が大きくなりすぎると、より問題となり得る。

40

#### 【0069】

本明細書中に記載される重合プロセスは、スチレン、o-メチルスチレン、p-メチルスチレン、t-ブチルスチレンなどをはじめとするモノビニリデン芳香族モノマーを含む

50

オレフィンポリマーの製造のために十分に適する。具体的には、エチレンおよびスチレンを含む共重合体を本明細書中の教示に従うことによって調製することができる。場合により、エチレン、スチレンおよび $C_3 \sim 20$  - オレフィンを含み、場合により $C_4 \sim 20$  ジエンを含み、改善された特性を有するコポリマーを調製することができる。

#### 【0070】

好適な非共役ジエンモノマーは、6個～15個の炭素原子を有する直鎖、分枝鎖または環状の炭化水素ジエンであり得る。好適な非共役ジエンの例には、直鎖の非環状ジエン、例えば、1,4-ヘキサジエン、1,6-オクタジエン、1,7-オクタジエン、1,9-デカジエンなど、分枝鎖の非環状ジエン、例えば、5-メチル-1,4-ヘキサジエン、3,7-ジメチル-1,6-オクタジエン、3,7-ジメチル-1,7-オクタジエン、ならびに、ジヒドロミリセンおよびジヒドロオシネンの混合異性体など、単環の脂環状ジエン、例えば、1,3-シクロペンタジエン、1,4-シクロヘキサジエン、1,5-シクロオクタジエンおよび1,5-シクロデカジエンなど、ならびに、多環の脂環式の縮合環ジエンおよび架橋環ジエン、例えば、テトラヒドロインデン、メチルテトラヒドロインデン、ジシクロペンタジエン、ビシクロ-(2,2,1)-ヘプタ-2,5-ジエンなど、アルケニルノルボルネン、アルキリデンノルボルネン、シクロアルケニルノルボルネンおよびシクロアルキリデンノルボルネン、例えば、5-メチレン-2-ノルボルネン(MNB)、5-プロペニル-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、5-(4-シクロペンテニル)-2-ノルボルネン、5-シクロヘキシリデン-2-ノルボルネン、5-ビニル-2-ノルボルネンなど、および、ノルボルナジエンが含まれるが、これらに限定されない。EPDMを調製するために典型的に使用されるジエンの中で、特に好ましいジエンが、1,4-ヘキサジエン(HD)、5-エチリデン-2-ノルボルネン(ENB)、5-ビニリデン-2-ノルボルネン(VNB)、5-メチレン-2-ノルボルネン(MNB)およびジシクロペンタジエン(DCPD)である。とりわけ好ましいジエンが5-エチリデン-2-ノルボルネン(ENB)および1,4-ヘキサジエン(HD)である。

#### 【0071】

本発明の実施形態に従って作製され得る望ましいポリマーの1つのクラスが、エチレンと、 $C_3 \sim 20$  - オレフィン(特に、プロピレン)と、場合により使用される1種以上のジエンモノマーとの共重合体である。本発明のこの実施形態において使用される好ましい - オレフィンは式 $CH_2=CHR^*$ (式中、 $R^*$ は1個～12個の炭素原子の直鎖アルキル基または分枝状アルキル基である)によって示される。好適な - オレフィンの例には、プロピレン、イソブチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテンおよび1-オクテンが含まれるが、これらに限定されない。特に好ましい - オレフィンがプロピレンである。プロピレン系ポリマーは一般には、当技術分野ではEPポリマーまたはEPDMポリマーとして示される。

#### 【0072】

そのようなポリマー(特に、マルチブロックEPDMタイプのポリマー)を調製する際に使用される好適なジエンには、4個～20個の炭素を含有する共役型または非共役型の直鎖ジエン、分枝鎖ジエン、環状ジエンまたは多環状ジエンが含まれる。好ましいジエンには、1,4-ペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエンおよび5-ブチリデン-2-ノルボルネンが含まれる。特に好ましいジエンが5-エチリデン-2-ノルボルネンである。

#### 【0073】

前記エチレン/ - オレフィン共重合体は、少なくとも1つの官能基をそのポリマー構造に取り込むことによって官能化することができる。例示的な官能基には、例えば、エチレン性不飽和のモノ官能性カルボン酸および二官能性カルボン酸、エチレン性不飽和のモノ官能性カルボン酸無水物および二官能性カルボン酸無水物、それらの塩およびそれらのエステルが含まれ得る。そのような官能基はエチレン/ - オレフィン共重合体にグラフト化することができ、または、エチレンおよび場合により使用されるさらなるコモノマー

と共重合して、エチレン、官能性モノマーおよび場合により使用される他のモノマーの共重合体を形成することができる。官能基をポリエチレンにグラフト化するための手段が、例えば、米国特許第4,762,890号、同第4,927,888号および同第4,950,541号（これらの特許の開示はその全体が参考として本明細書中に組み込まれる）に記載される。1つの特に有用な官能基がリンゴ酸無水物である。

#### 【0074】

官能性共重合体に存在する官能基の量は変化し得る。官能基は典型的には、コポリマータイプの官能化された共重合体において、少なくとも約1.0重量パーセントの量で、好ましくは、少なくとも約5重量パーセントの量で、より好ましくは、少なくとも約7重量パーセントの量で存在させることができる。官能基は典型的には、コポリマータイプの官能化された共重合体において、約40重量パーセント未満の量で、好ましくは、約30重量パーセント未満の量で、より好ましくは、約25重量パーセント未満の量で存在する。

10

#### 【0075】

##### 他の基油

前記エチレン/ - オレフィン共重合体は、単独で、または、本明細書中に提供される潤滑剤組成物を調製するために当分野において公知の他の基油とのブレンドとして使用することができる。そのような基油が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第2版、London、Springer、第1章および第2章（1996））（これは参考として本明細書中に組み込まれる）に記載される。本明細書中に記載されるようなエチレン/ - オレフィン共重合体とのブレンドとして使用される例示的な基油。

20

#### 【0076】

いくつかの実施形態において、基油は、米国石油協会（American Petroleum Institute、API）刊行物1509（第14版、1996年12月）（すなわち、乗用自動車モーター油およびジーゼルエンジン油のためのAPI基油互換性ガイドライン）（これは参考として本明細書中に組み込まれる）において指定されるような第I類～第IV類での基剤ストックのいずれかを含有する。このAPIガイドラインでは、様々な異なるプロセスを使用して製造され得る潤滑剤成分としての基剤ストックが規定される。第I類、第II類および第III類の基剤ストックは鉱油であり、それぞれが、飽和物質（saturates）、イオウ含有量および粘度指数の特定の範囲を有する。第IV類の基剤ストックはポリアルファオレフィン（PAO）である。第V類の基剤ストックには、第I類、第II類、第III類または第IV類に含まれないすべての他の基剤ストックが含まれる。いくつかの実施形態において、基油は第I類～第V類での基剤ストックの組合せを含有する。

30

#### 【0077】

他の実施形態において、基油は、天然油、合成油またはそれらの組合せを含有する。好適な天然油の限定されない例には、動物油（例えば、ラード油）、植物油（例えば、トウモロコシ油、ひまし油およびピーナッツ油）、石炭または頁岩に由来するオイル、鉱油（例えば、液状の石油、および、パラフィン系、ナフテン系または混合パラフィン-ナフテン系の溶媒処理または酸処理された鉱油）、および、それらの組合せが含まれる。好適な合成潤滑油の限定されない例には、ポリ- - オレフィン、アルキル化芳香族、ポリブテン、脂肪族ジエステル、ポリオールエステル、ポリアルキレングリコール、リン酸エステル、および、それらの組合せが含まれる。いくつかの実施形態において、基油は、当分野で公知の石油系基油を含有する。

40

#### 【0078】

さらなる実施形態において、基油は、炭化水素油（例えば、ポリオレフィン（例えば、ポリブチレン、ポリプロピレン、プロピレンイソブチレンコポリマー、ポリヘキセン、ポリオクテンおよびポリデセンなど）、アルキルベンゼン（例えば、ドデシルベンゼン、テトラデシルベンゼン、ジノニルベンゼンおよびジ（2-エチルヘキシル）ベンゼンなど）、ポリフェニル（例えば、ピフェニル、ターフェニルおよびアルキル化ポリフェニルなど）、アルキル化ジフェニルエーテル、アルキル化ジフェニルスルフィド、ならびに、それらの誘導体、異性体、類縁体、同族体および組合せなど）を含有する。

50

## 【 0 0 7 9 】

さらなる実施形態において、基油はポリ - - オレフィン ( P A O ) を含有する。一般には、ポリ - - オレフィンは、約 2 個 ~ 約 3 0 個の炭素原子、または、約 4 個 ~ 約 2 0 個の炭素原子、または、約 6 個 ~ 約 1 6 個の炭素原子を有する - オレフィンに由来し得る。好適なポリ - - オレフィンの限定されない例には、オクテン、デセン、それらの混合物などに由来するものが含まれる。これらのポリ - - オレフィンは、約 2 センチストークス ~ 約 1 5 センチストークス、または、約 3 センチストークス ~ 約 1 2 センチストークス、または、約 4 センチストークス ~ 約 8 センチストークスの粘度を 1 0 0 で有し得る。

## 【 0 0 8 0 】

さらなる実施形態において、基油はポリアルキレングリコールまたはポリアルキレングリコール誘導体 ( この場合、ポリアルキレングリコールの末端ヒドロキシル基は、エステル化、エーテル化、アセチル化などによって修飾され得る ) を含有する。好適なポリアルキレングリコールの限定されない例には、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリイソプロピレングリコール、および、それらの組合せが含まれる。好適なポリアルキレングリコール誘導体の限定されない例には、ポリアルキレングリコールのエーテル ( 例えば、ポリイソプロピレングリコールのメチルエーテル、ポリエチレングリコールのジフェニルエーテル、ポリプロピレングリコールのジエチルエーテルなど )、ポリアルキレングリコールのモノカルボン酸エステルおよびポリカルボン酸エステル、ならびに、それらの組合せが含まれる。いくつかの場合において、前記ポリアルキレングリコールまたはポリアルキレングリコール誘導体は他の基油 ( 例えば、ポリ - - オレフィンおよび鉱油など ) と一緒に使用することができる。

## 【 0 0 8 1 】

さらなる実施形態において、基油は、様々なアルコール ( 例えば、ブチルアルコール、ヘキシルアルコール、ドデシルアルコール、2 - エチルヘキシルアルコール、エチレングリコール、ジエチレングリコールモノエーテル、プロピレングリコールなど ) とのジカルボン酸 ( 例えば、フタル酸、コハク酸、アルキルコハク酸、アルケニルコハク酸、マレイン酸、アゼライン酸、スベリン酸、セバシン酸、フマル酸、アジピン酸、リノール酸二量体、マロン酸、アルキルマロン酸、アルケニルマロン酸など ) のエステルのいずれかを含有する。これらのエステルの限定されない例には、アジピン酸ジブチル、セバシン酸ジ ( 2 - エチルヘキシル )、フマル酸ジ n - ヘキシル、セバシン酸ジオクチル、アゼライン酸ジイソオクチル、アゼライン酸ジイソデシル、フタル酸ジオクチル、フタル酸ジデシル、セバシン酸ジエイコシル、および、リノール酸二量体の 2 - エチルヘキシルジエステルなどが含まれる。

## 【 0 0 8 2 】

さらなる実施形態において、基油は、フィッシャー・トロプシュプロセスによって調製される炭化水素を含有する。フィッシャー・トロプシュプロセスにより、炭化水素が、水素および一酸化炭素を含有するガスから、フィッシャー・トロプシュ触媒を使用して調製される。これらの炭化水素は、基油として有用であるためには、さらなる処理が要求される場合がある。例えば、前記炭化水素は、当業者に公知のプロセスを使用して、脱ろう化、水素添加異性化および / または水素添加分解することができる。

## 【 0 0 8 3 】

さらなる実施形態において、基油は、精製油、未精製油または再精製油を含有する。未精製油は、さらなる精製処理を伴うことなく、天然または合成の供給源から直接に得られるものである。未精製油の限定されない例には、レトルト処理操作から直接に得られる頁岩油、一次蒸留から直接に得られる石油、および、エステル化プロセスから直接に得られ、さらなる処理を伴うことなく使用されるエステル油が含まれる。精製油は、1 つ以上の特性を改善するために、1 つ以上の精製プロセスによってさらに処理されていることを除いて、未精製油と類似する。多くのそのような精製プロセスが当業者には公知である ( 例えば、溶媒抽出、二次蒸留、酸または塩基による抽出、ろ過、パーコレーションなど ) 。

再精製油は、精製油を得るために使用されるプロセスと類似するプロセスを精製油に適用することによって得られる。そのような再精製油はまた、再生油または再処理油として知られており、多くの場合、使用済み添加剤およびオイル分解生成物の除去に関するプロセスによってさらに処理される。

#### 【 0 0 8 4 】

##### オイル添加剤

場合により、潤滑剤組成物はさらに、潤滑剤組成物の何らかの望ましい特性を付与または改善することができるオイル添加剤または調整剤（これらは以降、「添加剤」と称される）を少なくとも含むことができる。当業者に公知の任意の添加剤を、本明細書中に提供される潤滑剤組成物において使用することができる。いくつかの好適な添加剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第2版、London、Springer（1996））、および、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker（2003））（これらはともに参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。いくつかの実施形態において、前記添加剤は、粘度指数向上剤、清浄剤、分散剤、摩擦調整剤、流動点降下剤、抗乳化剤、消泡剤、腐食防止剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、防錆剤、および、それらの組合せからなる群から選択することができる。一般に、添加剤が使用されるとき、潤滑剤組成物における添加剤のそれぞれの濃度は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.001wt%～約20wt%、約0.01wt%～約10wt%、または、約0.1wt%～約5wt%の範囲が可能である。

#### 【 0 0 8 5 】

##### 粘度指数向上剤

いくつかの実施形態では、PCT特許出願番号PCT/US2005/008917および米国仮特許出願第60/718,129号（これらは、発明の名称が「潤滑剤組成物のための粘度指数向上剤(Viscosity Index Improver For Lubricant Compositions)」であり、Cheung他の名で2005年9月17日に出願された）（これらはその全体が参考として組み込まれる）に記載される、より高分子量のエチレン/オレフィンブロックコポリマーが、本明細書中に提供される潤滑剤組成物における粘度指数向上剤として使用される。本明細書中に提供される潤滑剤組成物において使用される他の好適な粘度指数向上剤、または、粘度調整剤には、オレフィンポリマー（例えば、ポリブテンなど）、スチレンとイソブレンおよび/またはブタジエンとの水素化されたポリマーおよびコポリマーおよびターポリマー、アルキルアクリレートまたはアルキルメタクリレートのポリマー、アルキルメタクリレートとN-ビニルピロリドンまたはジメチルアミノアルキルメタクリレートとのコポリマー、エチレンおよびプロピレンと活性モノマー（例えば、アルコールまたはアルキレンポリアミンとさらに反応させることができるマレイン酸無水物など）とのポストグラフト化（post-grafted）ポリマー、アルコールおよびアミンにより後処理されたスチレン-マレイン酸無水物ポリマーなどが含まれるが、これらに限定されない。これらは、公知の配合技術に従って、仕上がったオイルにおいて所望される粘度範囲を提供するために要求に応じて使用される。

#### 【 0 0 8 6 】

##### 清浄剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、不溶性の粒子をコロイド状懸濁物に保つことによって、また、ある場合には酸を中和することによって、ワニス状被膜（varnish）、環帯沈着物および錆を抑制することができる清浄剤を含有することができる。当業者に公知の任意の清浄剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な清浄剤の限定されない例には、金属スルホナート、金属フェナート、金属サリチレート、金属ホスホナート、金属チオホスホナート、および、それらの組合せが含まれる。前記金属は、スルホナート系清浄剤、フェナート系清浄剤、サリチレート系清浄剤またはホスホナート系清浄剤を作製するために好適な任意の金属が可能である。好適な金属の限定されない例には、アルカリ金属、アルカリ土類金属および遷移金属が含まれる。いくつかの実施形態において

、前記金属は、Ca、Mg、Ba、K、NaまたはLiなどである。清浄剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%～約10wt%、約0.05wt%～約5wt%、または、約0.1wt%～約3wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な清浄剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第2版、London、Springer、第3章、75頁～85頁（1996））、および、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker、第4章、113頁～136頁（2003））（これらはともに参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0087】

##### 分散剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、粒子をコロイド状態で懸濁されているように保つことによって、スラッジ、ワニス状被膜および他の沈着物を防止することができる分散剤を含有することができる。当業者に公知の任意の分散剤を前記潤滑剤組成物において使用することができる。好適な分散剤の限定されない例には、スクシンイミド系分散剤、スクシンアミド系分散剤、ベンジルアミン系分散剤、スクシナートエステル系分散剤、スクシナートエステルアミド系分散剤、マンニツヒ型の分散剤、リン含有分散剤、ホウ素含有分散剤、および、それらの組合せが含まれる。分散剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%～約10wt%、約0.05wt%～約7wt%、または、約0.1wt%～約4wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な分散剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第2版、London、Springer、第3章、86頁～90頁（1996））、および、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker、第5章、137頁～170頁（2003））（これらはともに参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0088】

##### 摩擦調整剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、可動部の間での摩擦を低下させることができる摩擦調整剤を含有することができる。当業者に公知の任意の摩擦調整剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な摩擦調整剤の限定されない例には、脂肪性カルボン酸；脂肪性カルボン酸の誘導体（例えば、エステル、アミドおよび金属塩など）；モノアルキル置換、ジアルキル置換またはトリアルキル置換のリン酸またはホスホン酸；モノアルキル置換、ジアルキル置換またはトリアルキル置換のリン酸またはホスホン酸の誘導体（例えば、エステル、アミドおよび金属塩など）；モノアルキル置換、ジアルキル置換またはトリアルキル置換のアミン；モノアルキル置換またはジアルキル置換のアミド、および、それらの組合せが含まれる。いくつかの実施形態において、前記摩擦調整剤は、脂肪族アミン、エトキシ化脂肪族アミン、脂肪族カルボン酸アミド、エトキシ化脂肪族エーテルアミン、脂肪族カルボン酸、グリセロールエステル、脂肪族カルボン酸エステル-アミド、脂肪性イミダゾリン、脂肪性第三級アミン（これらにおいて、脂肪族基または脂肪性基は、化合物を好適には油溶性にするように約8個を超える炭素原子を含有する）からなる群から選択される。他の実施形態において、前記摩擦調整剤は、脂肪族コハク酸または脂肪族コハク酸無水物をアンモニアまたは第一級アミンと反応することによって形成される脂肪族置換スクシンイミドを含有する。前記摩擦調整剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%～約10wt%、約0.05wt%～約5wt%、または、約0.1wt%～約3wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な摩擦調整剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第2版、London、Springer、第6章、183頁～187頁（1996））、および、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker、第6章および第7章、171頁～222頁（2003））（これらはともに参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0089】

#### 流動点降下剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、潤滑剤組成物の流動点を低下させることができる流動点降下剤を含有することができる。当業者に公知の任意の流動点降下剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な流動点降下剤の限定されない例には、ポリメタクリラート、ポリアクリラート、ジ(テトラ-パラフィンフェノール)フタラート、テトラ-パラフィンフェノールの縮合物、塩素化パラフィンとナフタレンとの縮合物、および、それらの組合せが含まれる。いくつかの実施形態において、前記流動点降下剤は、エチレン-酢酸ビニルコポリマー、塩素化パラフィンおよびフェノールの縮合物、または、ポリアルキルスチレンなどを含有する。流動点降下剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%~約10wt%、約0.05wt%~約5wt%、または、約0.1wt%~約3wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な流動点降下剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”(第2版、London、Springer、第6章、187頁~189頁(1996))、および、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”(New York、Marcel Dekker、第11章、329頁~354頁(2003)) (これらはともに参考として本明細書中に組み込まれる)に記載されている。

10

#### 【0090】

##### 抗乳化剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、水または水蒸気にさらされる潤滑剤組成物における油水分離を促進させることができる抗乳化剤を含有することができる。当業者に公知の任意の抗乳化剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な抗乳化剤の限定されない例には、アニオン性界面活性剤(例えば、アルキル-ナフタレンスルホナートおよびアルキルベンゼンスルホナートなど)、非イオン性のアルコキシ化アルキルフェノール樹脂、アルキレンオキシドのポリマー(例えば、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、エチレンオキシドのブロックコポリマー、および、プロピレンオキシドのブロックコポリマーなど)、油溶性酸のエステル、および、それらの組合せが含まれる。前記抗乳化剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%~約10wt%、約0.05wt%~約5wt%、または、約0.1wt%~約3wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な抗乳化剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”(第2版、London、Springer、第6章、190頁~193頁(1996)) (これは参考として本明細書中に組み込まれる)に記載されている。

20

30

#### 【0091】

##### 消泡剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、オイルにおける泡を壊すことができる消泡剤を含有することができる。当業者に公知の任意の消泡剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な消泡剤の限定されない例には、シリコンオイルまたはポリジメチルシロキサン、フルオロシリコン、アルコキシ化脂肪族酸、ポリエーテル(例えば、ポリエチレングリコール)、分枝状ポリビニルエーテル、ポリアクリラート、ポリアルコキシアミン、および、それらの組合せが含まれる。いくつかの実施形態において、前記消泡剤は、グリセロールモノステアラート、ポリグリコールパルミタート、トリアルキルモノチオホスホファート、スルホン化リシノール酸のエステル、ベンゾイルアセトン、メチルサリチラート、グリセロールモノオレアートまたはグリセロールジオレアートを含む。前記消泡剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約0.01wt%~約5wt%、約0.05wt%~約3wt%、または、約0.1wt%~約1wt%の範囲であり得る。いくつかの好適な消泡剤が、Mortier他、“Chemistry and Technology of Lubricants”(第2版、London、Springer、第6章、190頁~193頁(1996)) (これは参考として本明細書中に組み込まれる)に記載されている。

40

#### 【0092】

##### 腐食防止剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、腐食を低下させることができる腐食防止剤を

50



含有することができる。当業者に公知の任意の腐食防止剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な腐食防止剤の限定されない例には、ドデシルコハク酸、ホスファートエステル、チオホスファート、アルキルイミダゾリン、サルコシン類のハーフエステルまたはハーフアミド、および、それらの組合せが含まれる。腐食防止剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約 0.01 wt % ~ 約 5 wt %、約 0.05 wt % ~ 約 3 wt %、または、約 0.1 wt % ~ 約 1 wt % の範囲であり得る。いくつかの好適な腐食防止剤が、Mortier 他、“Chemistry and Technology of Lubricants”（第 2 版、London、Springer、第 6 章、193 頁 ~ 196 頁（1996））（これは参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0093】

##### 摩耗防止剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、摩擦および過度な摩耗を低下させることができる摩耗防止剤を含有することができる。当業者に公知の任意の摩耗防止剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な摩耗防止剤の限定されない例には、亜鉛ジチオホスファート、ジチオホスファートの金属塩（例えば、Pb 塩、Sb 塩および Mo 塩など）、ジチオカルバマートの金属塩（例えば、Zn 塩、Pb 塩、Sb 塩および Mo 塩など）、脂肪酸の金属塩（例えば、Zn 塩、Pb 塩および Sb 塩など）、ホウ素化合物、ホスファートエステル、ホスファイトエステル、リン酸エステルまたはチオリン酸エステルのアミン塩、ジシクロペンタジエンおよびチオリン酸の反応生成物、および、それらの組合せが含まれる。前記摩耗防止剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約 0.01 wt % ~ 約 5 wt %、約 0.05 wt % ~ 約 3 wt %、または、約 0.1 wt % ~ 約 1 wt % の範囲であり得る。いくつかの好適な摩耗防止剤が、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker、第 8 章、223 頁 ~ 258 頁（2003））（これは参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0094】

##### 極圧添加剤（EP 剤）

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、滑る金属表面が極端な圧力の条件のもとで焼き付くことを防止することができる極圧添加剤（EP 剤）を含有することができる。当業者に公知の任意の極圧添加剤を潤滑剤組成物において使用することができる。一般には、前記極圧添加剤は、高負荷のもとでの向き合う金属表面における凸凹部の溶着を防止する表面皮膜を形成するために金属と化学的に化合することができる化合物である。好適な極圧添加剤の限定されない例には、動物性または植物性の硫化された油またはオイル、動物性または植物性の硫化された脂肪酸エステル、リンの三価酸または五価酸の完全エステル化エステルまたは部分エステル化エステル、硫化オレフィン、ジヒドロカルビルポリスルフィド、硫化ディールス・アルダー付加物、硫化ジシクロペンタジエン、脂肪酸エステルおよびモノ不飽和オレフィンの硫化混合物または共硫化混合物、脂肪酸、脂肪酸エステルおよび - オレフィンの共硫化配合物、官能置換されたジヒドロカルビルポリスルフィド、チアアルデヒド、チアケトン、エピチオ化合物、イオウ含有アセタール誘導体、テルペンおよび非環状オレフィンの共硫化配合物、および、ポリスルフィドオレフィン生成物、リン酸エステルまたはチオリン酸エステルのアミン塩、ならびに、それらの組合せが含まれる。前記極圧添加剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約 0.01 wt % ~ 約 5 wt %、約 0.05 wt % ~ 約 3 wt %、または、約 0.1 wt % ~ 約 1 wt % の範囲であり得る。いくつかの好適な極圧添加剤が、Leslie R. Rudnick、“Lubricant Additives: Chemistry and Applications”（New York、Marcel Dekker、第 8 章、223 頁 ~ 258 頁（2003））（これは参考として本明細書中に組み込まれる）に記載されている。

#### 【0095】

##### 酸化防止剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、基油の酸化を低下または防止することができる酸化防止剤を含有することができる。当業者に公知の任意の酸化防止剤を潤滑剤組成物

10

20

30

40

50

において使用することができる。好適な酸化防止剤の限定されない例には、アミン系酸化防止剤（例えば、アルキルジフェニルアミン、フェニル - - ナフチルアミン、アルキル置換またはアラルキル置換されたフェニル - - ナフチルアミン、アルキル化 p - フェニレンジアミンおよびテトラメチルジアミノジフェニルアミンなど）、フェノール系酸化防止剤（例えば、2 - tert - ブチルフェノール、4 - メチル - 2, 6 - ジ - tert - ブチルフェノール、2, 4, 6 - トリ - tert - ブチルフェノール、2, 6 - ジ - tert - ブチル - p - クレゾール、2, 6 - ジ - tert - ブチルフェノール、4, 4' - メチレンビス - (2, 6 - ジ - tert - ブチルフェノール) および 4, 4' - チオビス (6 - ジ - tert - ブチル - o - クレゾール) など）、イオウ系酸化防止剤（例えば、ジラウリル - 3, 3' - チオジプロピオナートおよび硫化フェノール系酸化防止剤など）、リン系酸化防止剤（例えば、ホスファイトなど）、ジチオリン酸亜鉛、油溶性銅化合物、および、それらの組合せが含まれる。前記酸化防止剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約 0.01 wt % ~ 約 10 wt %、約 0.05 wt % ~ 約 5 wt %、または、約 0.1 wt % ~ 約 3 wt % の範囲であり得る。いくつかの好適な酸化防止剤が、Leslie R. Rudnick、"Lubricant Additives: Chemistry and Applications" (New York, Marcel Dekker、第 1 章、1 頁 ~ 28 頁 (2003)) (これは参考として本明細書中に組み込まれる) に記載されている。

#### 【0096】

##### 防錆剤

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、二価鉄の金属表面の腐食を阻害することができる防錆剤を含有することができる。当業者に公知の任意の防錆剤を潤滑剤組成物において使用することができる。好適な防錆剤の限定されない例には、油溶性のモノカルボン酸（例えば、2 - エチルヘキサン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、オレイン酸、リノール酸、リノレン酸、ベヘン酸およびセロチン酸など）、油溶性のポリカルボン酸（例えば、トール油脂肪酸、オレイン酸およびリノール酸などから製造されるポリカルボン酸）、アルケニルコハク酸（この場合、アルケニル基は 10 個以上の炭素原子を含有する）（例えば、テトラプロペニルコハク酸、テトラデセニルコハク酸およびヘキサデセニルコハク酸など）、分子量が 600 ダルトン ~ 3000 ダルトンの範囲にある長鎖の、 - ジカルボン酸、および、それらの組合せが含まれる。前記防錆剤の量は、潤滑剤組成物の総重量に基づいて約 0.01 wt % ~ 約 10 wt %、約 0.05 wt % ~ 約 5 wt %、または、約 0.1 wt % ~ 約 3 wt % の範囲であり得る。

#### 【0097】

##### 希釈剤

前記添加剤は、2 種以上の添加剤を有する添加剤濃縮物の形態である場合がある。添加剤濃縮物は、好適な希釈剤、最も好ましくは、好適な粘度の炭化水素油を含有することができる。そのような希釈剤は、天然油（例えば、鉱油）、合成油およびそれらの組合せからなる群から選択することができる。前記鉱油の限定されない例には、パラフィン系油、ナフテン系油、アスファルト系油、および、それらの組合せが含まれる。合成基油の限定されない例には、ポリオレフィン油（特に、水素化された - オレフィンオリゴマー）、アルキル化芳香族、ポリアルキレンオキシド、芳香族エーテル、および、カルボキシレートエステル（特に、ジエステル油）、ならびに、それらの組合せが含まれる。いくつかの実施形態において、前記希釈剤は軽質炭化水素油（天然物および合成物の両方）である。一般に、前記希釈剤オイルは粘度を 40 で 13 センチストークス ~ 35 センチストークスの範囲で有することができる。

#### 【0098】

##### 使用

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、モーター油（またはエンジン油またはクランクケース油）、トランスミッション液、ギア油、パワーステアリング液、ショックアブソーバー液、ブレーキ液、油圧油および/またはグリースとしての使用に好適であり得る。

#### 【0099】

10

20

30

40

50

### モーター油

いくつかの実施形態において、本明細書中に提供される潤滑剤組成物はモーター油である。そのようなモーター油組成物は、任意の往復動内燃機関、往復動圧縮機、および、クランクケース設計の蒸気機関におけるすべての主要な可動部を潤滑するために使用することができる。自動車用途において、前記モーター油組成物はまた、高温のエンジン部分を冷却するために、また、エンジンを錆および沈着物から守るために、また、燃焼ガスが漏れないようにリングおよびバルブをシールするために使用することができる。前記モーター油組成物は基油および前記エチレンノ - オレフィン共重合体を含有することができる。前記モーター油組成物はさらに、添加剤を少なくとも含有することができる。いくつかの実施形態において、前記モーター油組成物はさらに、流動点降下剤、清浄剤、分散剤、摩耗防止剤、酸化防止剤、摩擦調整剤、防錆剤、または、それらの組合せを含有する。

10

### 【0100】

#### ギア油

他の実施形態において、本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、自動車用途または産業用途のギア油である。ギア油組成物は、ギア、後車軸、自動車トランスミッション、最終駆動軸、農業用設備および建築用設備における付属品、ギアハウジングおよび密閉されたチェーン駆動装置を潤滑するために使用することができる。前記ギア油組成物は基油および前記エチレンノ - オレフィン共重合体を含有することができる。前記ギア油組成物はさらに、添加剤を少なくとも含有することができる。いくつかの実施形態において、前記ギア油組成物はさらに、摩耗防止剤、極圧添加剤、防錆剤、または、それらの組合せを含有する。

20

### 【0101】

#### トランスミッション液

さらなる実施形態において、本明細書中に提供される潤滑剤組成物はトランスミッション液である。前記トランスミッション液組成物は、伝動損失を減らすために、自動変速機またはマニュアル変速機のどちらにおいても使用することができる。前記トランスミッション液組成物は基油および前記エチレンノ - オレフィン共重合体を含有することができる。前記トランスミッション液組成物はさらに、添加剤を少なくとも含有することができる。いくつかの実施形態において、前記トランスミッション液組成物はさらに、摩擦調整剤、清浄剤、分散剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、流動点降下剤、消泡剤、腐食防止剤、または、それらの組合せを含有する。

30

### 【0102】

#### グリース

さらなる実施形態において、本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、長期間にわたる潤滑が要求され、また、オイルが、例えば、垂直な軸に保持されない様々な用途において使用されるグリースである。前記グリース組成物は、基油、前記エチレンノ - オレフィン共重合体および増粘剤を含有することができる。いくつかの実施形態において、前記グリース組成物はさらに、錯化剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、極圧添加剤、消泡剤、腐食防止剤、または、それらの組合せを含有する。いくつかの実施形態において、前記増粘剤は、金属水酸化物（例えば、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化カルシウムおよび水酸化亜鉛など）を、脂肪、脂肪酸またはエステルと反応することによって形成される石けんである。一般には、使用される石けんのタイプは、所望されるグリース特性に依存する。他の実施形態において、前記増粘剤は、粘土、シリカゲル、カーボンブラック、様々な合成有機物質、および、それらの組合せからなる群から選択される非石けん増粘剤であり得る。さらなる実施形態において、前記増粘剤は、石けんおよび非石けん増粘剤の組合せを含有する。

40

### 【0103】

#### 潤滑剤組成物を調製する一般的プロセス

本明細書中に提供される潤滑剤組成物は、潤滑性オイルを作製するための、当業者に公知の任意の方法によって調製することができる。いくつかの実施形態において、前記エチ

50

レン / - オレフィン共重合体の基油が少なくとも1つの添加剤と配合または混合され得る。前記組成物が2種以上の添加剤を含有する実施形態では、前記添加剤が前記エチレン / - オレフィン共重合体の基油に1回または複数回の添加で個々に添加され、その添加は任意の順序であり得る。いくつかの実施形態において、前記エチレン / - オレフィン共重合体の基油における前記添加剤の可溶化が、混合物を、約25 ~ 約200 の間の温度、約50 ~ 約150 の間の温度、または、約75 ~ 約125 の間の温度に加熱することによって促進され得る。

#### 【0104】

当業者に公知の任意の混合装置または分散化装置を、成分を配合、混合または可溶化するために使用することができる。配合、混合または可溶化を、当分野において公知のブレンダー、攪拌機、ディスペンサー、ミキサー（例えば、Ross二重遊星形ミキサーおよびCollette遊星形ミキサー）、ホモジナイザー（例えば、GaulinホモジナイザーおよびRannieホモジナイザー）、ミル（例えば、コロイドミル、ボールミルおよびサンドミル）、または、任意の他の混合装置もしくは分散化装置を用いて行うことができる。

#### 【0105】

下記の実施例は、本発明の実施形態を例示するために示され、しかし、本発明を示された特定の実施形態に限定することは意図されない。別途示されない限り、すべての部および百分率は重量比である。すべての数値が概算である。数値範囲が示されるとき、言及された範囲の外側の実施形態が依然として本発明の範囲に含まれ得ることが理解されるべきである。それぞれの実施例において記載される具体的な細部は、本発明の必要な特徴として解釈してはならない。

#### 【実施例】

#### 【0106】

##### A T R E F

分析的昇温溶離分別法（A T R E F）分析を、米国特許第4,798,081号およびWilde, L. Ryle, T.R., Knobloch, D.C., Peat, I.R., Determination of Branching Distributions in Polyethylene and Ethylene Copolymers, J. Polym. Sci., 20, 441~455 (1982)（これらはその全体が参考として本明細書中に組み込まれる）に記載される方法に従って行う。分析される組成物をトリクロロベンゼンに溶解し、温度を0.1 / 分の冷却速度で20 にゆっくり下げることによって、不活性な担体（ステンレススチールの球状物）を含有するカラムにおいて結晶化させる。カラムは赤外検出器を備える。その後、A T R E Fクロマトグラム曲線を、溶離溶媒（トリクロロベンゼン）の温度を20 から120 に1.5 / 分の割合でゆっくり上げることによって、結晶化ポリマーのサンプルをカラムから溶離することによって得る。

#### 【0107】

##### <sup>13</sup>C - NMR 分析

サンプルを、テトラクロロエタン - d<sup>2</sup> / オルトジクロロベンゼンの50 / 50混合物の約3 gを10 mmのNMRチューブにおいて0.4 gのサンプルに加えることによって調製する。サンプルを、チューブおよびその内容物を150 に加熱することによって溶解および均質化する。データを、100.5 MHzの<sup>13</sup>C共鳴周波数に対応するJOEL Eclipse（商標）400 MHz分光計またはVarian Unity Plus（商標）400 MHz分光計を使用して集める。データを、6秒のパルス反復遅延により、データファイルあたり4000の過渡信号を使用して取得する。定量分析のための最小のシグナル対ノイズを達成するために、多数のデータファイルを加えて1つにする。スペクトル幅は25,000 Hzであり、最小ファイルサイズは32 Kのデータ点からなる。サンプルを130 で10 mmの広帯域プローブにおいて分析する。コモノマー取り込みを、Randallのトライアッド法（Randall, J.C., JMS-Rev. Macromol. Chem. Phys., C29, 201~317 (1989)；これはその全体が参考として本明細書中に組み込まれる）を使用して求める。

## 【0108】

## 触媒

用語「一晚」は、使用されるならば、約16時間～18時間の時間を示す。用語「室温」は20～25の温度を示し、用語「混合アルカン」は、Isopar E（登録商標）の商品名でExxon Mobil Chemical Companyから得ることができる、 $C_6 \sim 9$ 脂肪族炭化水素の市販されている混合物を示す。本明細書中の化合物の名称がその構造的表示と一致しない場合、構造的表示が優先するものとする。すべての金属錯体の合成およびすべてのスクリーニング実験の準備は、ドライボックス技術を使用して乾燥窒素雰囲気下で行った。使用されたすべての溶媒はHPLC規格であり、その使用に先だって乾燥した。

10

## 【0109】

MMAOは修飾メチルアルモキサンを示し、Akzo-Noble Corporationから市販されているトリイソブチルアルミニウム修飾のメチルアルモキサンである。

## 【0110】

触媒(B1)の調製を下記のように行う。

## 【0111】

a) (1-メチルエチル)(2-ヒドロキシ-3,5-ジ(t-ブチル)フェニル)メチルイミンの調製

3,5-ジ-t-ブチルサリチルアルデヒド(3.00g)を10mLのイソプロピルアミンに加える。溶液が急速に明黄色になる。周囲温度で3時間攪拌した後、揮発物を真空下で除いて、明黄色の結晶性固体を得る(97パーセントの収率)。

20

## 【0112】

b) 1,2-ビス-(3,5-ジ-t-ブチルフェニレン)(1-(N-(1-メチルエチル)イミノ)メチル)-(2-オキソイル)ジルコニウムジベンジルの調製

5mLのトルエンにおける(1-メチルエチル)(2-ヒドロキシ-3,5-ジ(t-ブチル)フェニル)イミン(605mg、2.2mmol)の溶液を、50mLのトルエンにおける $Zr(CH_2Ph)_4$ (500mg、1.1mmol)の溶液にゆっくり加える。得られる暗黄色溶液を30分間攪拌する。溶媒を減圧下で除いて、所望の生成物を赤褐色の固体として得る。

30

## 【0113】

触媒(B2)の調製を下記のように行う。

## 【0114】

a) (1-(2-メチルシクロヘキシル)エチル)(2-オキソイル-3,5-ジ(t-ブチル)フェニル)イミンの調製

2-メチルシクロヘキシルアミン(8.44mL、64.0mmol)をメタノール(90mL)に溶解し、ジ-t-ブチルサリチアルデヒド(10.00g、42.67mmol)を加える。反応混合物を3時間攪拌し、その後、-25に12時間冷却する。得られる黄色固体の析出物をろ過によって集め、冷メタノール(15mLで2回)により洗浄し、その後、減圧下で乾燥する。収量は11.17gの黄色固体である。 $^1H-NMR$ は異性体の混合物として所望の生成物と一致する。

40

## 【0115】

ビス-(1-(2-メチルシクロヘキシル)エチル)(2-オキソイル-3,5-ジ(t-ブチル)フェニル)イミノ)ジルコニウムジベンジルの調製

200mLのトルエンにおける(1-(2-メチルシクロヘキシル)エチル)(2-オキソイル-3,5-ジ(t-ブチル)フェニル)イミン(7.63g、23.2mmol)の溶液を、600mLのトルエンにおける $Zr(CH_2Ph)_4$ (5.28g、11.6mmol)の溶液にゆっくり加える。得られる暗黄色溶液を25で1時間攪拌する。溶液をさらに680mLのトルエンにより希釈して、0.00783Mの濃度を有する溶液を得る。

50

## 【0116】

助触媒1。テトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボラートのメチルジ(C<sub>14</sub>~<sub>18</sub>アルキル)アンモニウム塩の混合物(以降、アルメエニウムボラート)。これは、実質的には米国特許第5,919,988号(実施例2)に開示されるように、長鎖トリアルキルアミン(Armeen(商標)M2HT、Akzo-Nobel, Inc.から入手可能)、HClおよびLi[B(C<sub>6</sub>F<sub>5</sub>)<sub>4</sub>]の反応によって調製される。

## 【0117】

助触媒2。ビス(トリス(ペンタフルオロフェニル)アルマン)-2-ウンデシルイミダゾリドの混合C<sub>14</sub>~<sub>18</sub>アルキルジメチルアンモニウム塩。これは米国特許第6,395,671号(実施例16)に従って調製される。

## 【0118】

可逆的移動剤。用いられる可逆的移動剤には、ジエチル亜鉛(DEZ、SA1)、ジ(i-ブチル)亜鉛(SA2)、ジ(n-ヘキシル)亜鉛(SA3)、トリエチルアルミニウム(TEA、SA4)、トリオクチルアルミニウム(SA5)、トリエチルガリウム(SA6)、i-ブチルアルミニウムビス(ジメチル(t-ブチル)シロキサン)(SA7)、i-ブチルアルミニウムビス(ジ(トリメチルシリル)アミド)(SA8)、n-オクチルアルミニウムジ(ピリジン-2-メトキシド)(SA9)、ビス(n-オクタデシル)i-ブチルアルミニウム(SA10)、i-ブチルアルミニウムビス(ジ(n-ペンチル)アミド)(SA11)、n-オクチルアルミニウムビス(2,6-ジ-t-ブチルフェノキシド)(SA12)、n-オクチルアルミニウムジ(エチル(1-ナフチル)アミド)(SA13)、エチルアルミニウムビス(t-ブチルジメチルシロキシド)(SA14)、エチルアルミニウムジ(ビス(トリメチルシリル)アミド)(SA15)、エチルアルミニウムビス(2,3,6,7-ジベンゾ-1-アザシクロヘプタンアミド)(SA16)、n-オクチルアルミニウムビス(2,3,6,7-ジベンゾ-1-アザシクロヘプタンアミド)(SA17)、n-オクチルアルミニウムビス(ジメチル(t-ブチル)シロキシド)(SA18)、エチル亜鉛(2,6-ジフェニルフェノキシド)(SA19)およびエチル亜鉛(t-ブトキシド)(SA20)が含まれる。

## 【0119】

一般的なハイスループット並行重合条件

重合を、Symyx technologies, Inc.から入手可能であり、実質的には米国特許第6,248,540号、同第6,030,917号、同第6,362,309号、同第6,306,658号および同第6,316,663号に従って操作されるハイスループット並行重合反応装置(PPR)を使用して行う。エチレンの共重合を、使用された総触媒に基づいて1.2当量の助触媒1(MMAOが存在するときには1.1当量)を使用して、要求されるエチレンを用いて130 および200 psi(1.4 MPa)で行う。一連の重合を、事前に重量測定されたガラスチューブがはめ込まれている6x8配列での48個の個々の反応槽セルから構成される並行圧力反応装置(PPR)で行う。各反応槽セルにおける作業体積は6000 µLである。各セルは温度および圧力が制御され、個々の攪拌パドルによって攪拌が提供される。モノマーガスおよびクエンチガスがPPRユニットに直接に送られ、自動バルブによって制御される。液体試薬がシリンジによって各反応槽セルにロボットにより加えられ、リザーバー溶媒は混合アルカンである。添加順序は、混合アルカン溶媒(4 ml)、エチレン、1-オクテンコモノマー(1 ml)、助触媒1または助触媒1/MMAO混合物、可逆的移動剤および触媒または触媒混合物である。助触媒1およびMMAOの混合物、または、2つの触媒の混合物が使用されるとき、試薬は反応槽への添加の直前に小さいバイアルにおいて事前に混合される。試薬が実験において省かれるとき、上記の添加順序はそれ以外では維持される。重合が、所定のエチレン消費に達するまで、約1分間~2分間行われる。COによる反応停止の後、反応槽を冷却し、ガラスチューブを取り外す。チューブを遠心分離/真空乾燥装置に移し、60 で12時間乾燥する。乾燥ポリマーを含有するチューブを重量測定し、この重量と風袋重量との差により、ポリマーの正味の収量がもたらされる。

10

20

30

40

50

## 【 0 1 2 0 】

本発明の実施形態に従って作製された潤滑剤は下記の利点の1つまたは複数を有する場合がある：改善された剪断安定性、酸化安定性および費用有効性。

## 【 0 1 2 1 】

## ( 実施例 1 )

本発明の低分子量共重合体は、85 wt % のコンポジット 1 - オクテン含有量、0.851 g / cc の密度、-10 の DSC ピーク融点、2 J / g の融解熱、4500 の数平均分子量、15 cST の 100 でのブルックフィールド粘度、および、-5 の流動点を有する、エチレン / 1 - オクテンのオレフィンコポリマーである。本発明の低分子量共重合体は 0.65 の平均ブロックインデックスを有し、少なくとも 0.5 のブロックインデックス ( 0.6、0.8 および 0.8 ) を有する少なくとも 3 つの A T R E F 画分を有する。このコポリマーは潤滑油として有用である。

10

## 【 0 1 2 2 】

本発明は、限られた数の実施形態に関して記載されているが、1つの実施形態の具体的な特徴は本発明の他の実施形態に属すると考えてはならない。どの1つだけの実施形態によっても、本発明のすべての態様は表されない。いくつかの実施形態において、組成物または方法は、本明細書中で述べられていない数多くの化合物または工程を含む場合がある。他の実施形態において、組成物または方法は、本明細書中で列挙されていない何らかの化合物または工程を含まないか、または、実質的に含まない。記載された実施形態からの様々な変形および改変が存在する。最後に、本明細書中に開示される数字はどれも、「約」または「おおよそ」の語が、その数字を記載する際に使用されるかどうかにかかわらず、概算を意味するように解釈されなければならない。添付された請求項は、本発明の範囲に含まれるようなすべてのそのような改変および変形を包含することを意図する。

20

## フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
C 1 0 N 20/02 (2006.01)	C 1 0 N 20:00	C	
C 1 0 N 20/04 (2006.01)	C 1 0 N 20:00	Z	
C 1 0 N 30/00 (2006.01)	C 1 0 N 20:02		
C 1 0 N 40/00 (2006.01)	C 1 0 N 20:04		
C 1 0 N 40/04 (2006.01)	C 1 0 N 30:00	Z	
C 1 0 N 40/08 (2006.01)	C 1 0 N 40:00	Z	
	C 1 0 N 40:04		
	C 1 0 N 40:08		

## 前置審査

- (72)発明者 ウォルトン, キム, ルイス  
アメリカ合衆国, テキサス州 7 7 5 6 6, レイク ジャクソン, ハックルベリー ドライブ 2  
1 9
- (72)発明者 ハッジス, モルガン, マーク  
アメリカ合衆国, テキサス州 7 7 5 1 5, アングルトン, ミルトン ストリート 7 0 8
- (72)発明者 ラス, ゲリー, エル.  
アメリカ合衆国, テキサス州 7 7 5 8 4, パールランド, オールド オークス ブーラバード  
6 5 0 5
- (72)発明者 チェウン, ユンワ, ウィルソン  
アメリカ合衆国, ニューヨーク州 1 4 5 3 4, ピッツフォード, コービー コート 3

審査官 藤原 浩子

- (56)参考文献 特表平09-511776(JP, A)  
国際公開第03/038017(WO, A1)  
特開2000-351813(JP, A)  
特開昭57-117595(JP, A)  
特開昭62-121710(JP, A)  
特許第5054668(JP, B2)

## (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08F 293/00  
C10M 101/00-111/06  
C10N 20/00- 20/06  
C10N 30/00- 30/20  
C10N 40/00- 40/36