

(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
2021年4月1日(01.04.2021)

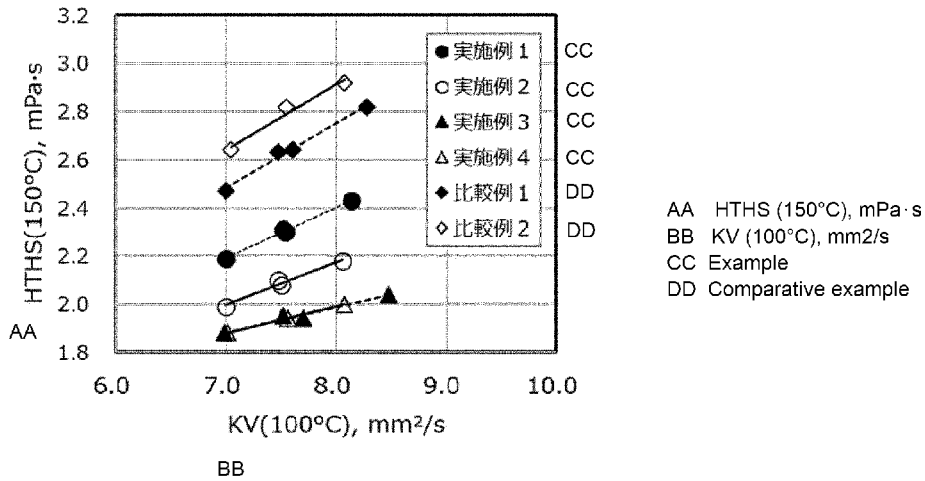


(10) 国際公開番号
WO 2021/060422 A1

- (51) 国際特許分類:
C10M 169/04 (2006.01) *C10N 40/25* (2006.01)
C10N 20/04 (2006.01) *C10M 145/14* (2006.01)
C10N 30/00 (2006.01) *C10M 149/06* (2006.01)
C10N 30/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/036145
- (22) 国際出願日: 2020年9月24日(24.09.2020)
- (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 2019-173571 2019年9月24日(24.09.2019) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区大手町一丁目2番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 高嶋 頼由 (TAKASHIMA, Yoriyuki); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 中野 妙子 (NAKANO, Taeko); 〒2990293 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP). 平野 幸喜 (HIRANO, Koki); 〒2990107 千葉縣市原市姉崎海岸24番地4 Chiba (JP). 石川 元治 (ISHIKAWA, Motoharu); 〒2990107 千葉縣市原市姉崎海岸24番地4 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人大谷特許事務所 (OHTANI PATENT OFFICE); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門ESビル7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,

(54) Title: VISCOSITY INDEX IMPROVER COMPOSITION AND LUBRICATING OIL COMPOSITION

(54) 発明の名称: 粘度指数向上剤組成物及び潤滑油組成物



(57) Abstract: The present invention addresses the problem of providing: a viscosity index improver composition which is capable of adequately adjusting the HTHS viscosity of a lubricating oil composition within the effective temperature range to a value in a lower range; and a lubricating oil composition that contains this viscosity index improver composition. A viscosity index improver composition according to the present invention is configured to contain a comb-shaped polymer (A) which contains a constituent unit derived from a macromonomer (α) and a constituent unit derived from a specific monomer (A1), said macromonomer (α) having a (meth)acryloyl group at one end, while having a constituent unit derived from a monomer (α 1) that is selected from among butadiene and hydrogenated butadiene.



WO 2021/060422 A1

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, IT, JO, JP, KE, KG, KH, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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))

(57) 要約: 実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低い範囲で適切に調整することのできる粘度指数向上剤組成物、及び当該粘度指数向上剤組成物を含有する潤滑油組成物を提供することを課題とし、マクロモノマー (α) 由来の構成単位と、特定の単量体 (A1) 由来の構成単位と、を含み、前記マクロモノマー (α) は、(メタ)アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる単量体 ($\alpha 1$) に由来する構成単位を有する、楕形ポリマー (A) を含有する、粘度指数向上剤組成物とした。

明 細 書

発明の名称： 粘度指数向上剤組成物及び潤滑油組成物

技術分野

[0001] 本発明は、粘度指数向上剤組成物及び潤滑油組成物に関する。

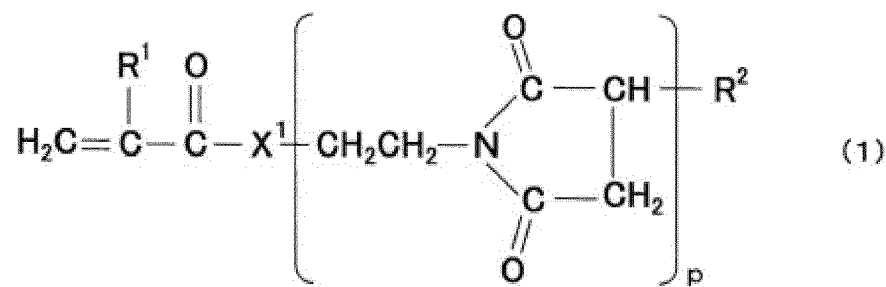
背景技術

[0002] 近年、石油資源の有効活用及びCO₂の排出削減の観点から、自動車等の車両の省燃費化が強く求められている。そのため、自動車等の車両のエンジンに用いられる潤滑油組成物に対しても、省燃費化への要求が強くなってきている。

省燃費化の方法の一つとして、潤滑油組成物を低粘度化することにより粘性抵抗を低減する方法が挙げられる。このような方法として、例えば、粘度指数向上剤組成物を潤滑油組成物に添加し、より燃費への影響が大きい実効温度域でのHTHS粘度（高温高せん断粘度）を低下させる方法が知られている。

[0003] 特許文献1には、下記一般式（1）で表されるエチレン性不飽和単量体を構成単位とする重合体と基油とを含有してなる粘度指数向上剤組成物であって、40℃動粘度を100℃動粘度で除した値（V1）が0.2～5の範囲である粘度指数向上剤組成物によって、潤滑油組成物のHTHS粘度を低下させることが記載されている。

[化1]



上記一般式（1）中、R¹は、水素原子又はメチル基である。-X¹-は、-O-、-O(AO)_m-又は-NH-で表される基であって、Aは炭素数2

～4の直鎖又は分岐アルキレン基であり、mは0～20の整数であり、mが2以上の場合のAは同一でも異なってもよく、(AO)_m部分はランダム結合でもブロック結合でもよい。R²は、イソブチレン及び／又は1, 2-ブチレンを必須構成単位とする炭化水素重合体から水素原子を1つ除いた残基である。pは0又は1の数である。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2017-31400号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 自動車等の車両のエンジンに用いられる潤滑油組成物に対する省燃費化への強い要求に伴い、より燃費への影響が大きい実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低い範囲で適切に調整することが求められている。

[0006] そこで、本発明は、実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低い範囲で適切に調整することのできる粘度指数向上剤組成物、及び当該粘度指数向上剤組成物を含有する潤滑油組成物を提供することを課題とする。

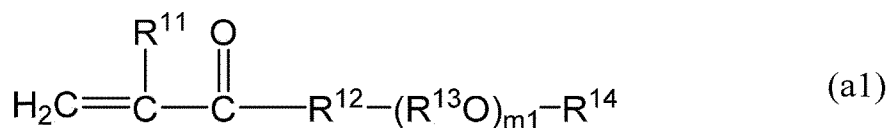
課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、特定の構造を有する楕円形ポリマーを含有する粘度指数向上剤組成物が、上記課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成させた。

[0008] すなわち、本発明は、下記[1]～[2]に関する。

[1] マクロモノマー(α)由来の構成単位と、下記一般式(a1)で表される単量体(A1)由来の構成単位と、を含み、

[化2]



[上記一般式(a1)中、R¹¹は、水素原子又はメチル基である。

R¹²は、単結合、-O-、又は-NH-を示す。

R^{13} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。 m_1 は、0～20の整数を示す。 m_1 が2以上の整数の場合の複数の R^{13} は、同一であっても異なってもよく、 $(R^{13}O)_{m_1}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4～8のアルキル基である。]

前記マクロモノマー(α)は、(メタ)アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる1種以上の単量体(α_1)に由来する構成単位を有する、楕形ポリマー(A)を含有する、粘度指数向上剤組成物。

[2] 上記[1]に記載の粘度指数向上剤組成物と、基油とを含有する、潤滑油組成物。

発明の効果

[0009] 本発明によれば、実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低い範囲で適切に調整することのできる粘度指数向上剤組成物、及び当該粘度指数向上剤組成物を含有する潤滑油組成物を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]実施例1～4及び比較例1～2の潤滑油組成物の100℃動粘度(KV(100℃))に対するHTHS粘度(150℃)をプロットした図である。

[図2]実施例1～4及び比較例1～2の潤滑油組成物の粘度指数をグラフ化した図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を実施するための形態について、詳細に説明する。

[0012] 本明細書中、好ましい数値範囲(例えば、含有量等の範囲)について、段階的に記載された下限値及び上限値は、それぞれ独立して組み合わせることができる。例えば、「好ましくは10以上、より好ましくは30以上、更に好ましくは40以上」という下限値の記載と、「好ましくは90以下、より好ましくは80以下、更に好ましくは70以下である」という上限値の記載

とから、好適範囲として、例えば、「10以上70以下」、「30以上70以下」、「40以上80以下」といったそれぞれ独立に選択した下限値と上限値とを組み合わせた範囲を選択することもできる。また、同様の記載から、例えば、単に、「40以上」又は「70以下」といった下限値又は上限値の一方を規定した範囲を選択することもできる。また、例えば、「好ましくは10以上90以下、より好ましくは30以上80以下、更に好ましくは40以上70以下である」、「好ましくは10~90、より好ましくは30~80、更に好ましくは40~70である」といった記載から選択可能な好適範囲についても同様である。なお、本明細書中、数値範囲の記載において、例えば、「10~90」という記載は「10以上90以下」と同義である。なお、数値範囲の記載に関する「以上」、「以下」、「未満」、「超」の数値もまた、任意に組み合わせることができる。

[0013] 本明細書中、「(メタ)アクリレート」とは、「アクリレート」と「メタクリレート」の双方を示し、他の類似用語も同様である。例えば、「(メタ)アクリロイル基」は、「アクリロイル基」と「メタクリロイル基」の双方を示す。

[0014] 本明細書において、各成分の質量平均分子量(Mw)及び数平均分子量(Mn)は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法で測定される標準ポリスチレン換算の値であり、具体的には実施例に記載の方法により測定された値を意味する。

[0015] 本明細書において、「40℃における動粘度」のことを「40℃動粘度」ともいう。同様に、「100℃における動粘度」のことを「100℃動粘度」ともいう。

[0016] 以下、本発明の実施態様について詳細に説明する。

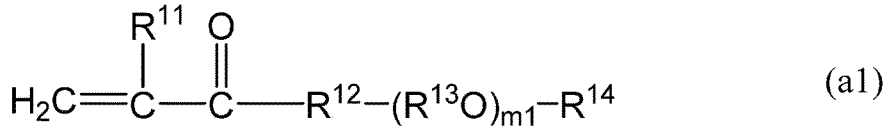
[0017] [粘度指数向上剤組成物の態様]

本発明の粘度指数向上剤組成物は、楕形ポリマー(A)を含有する。

本発明において、「楕形ポリマー」とは、高分子量の側鎖が出ている三叉分岐点を主鎖に複数もつ構造を有するポリマーを指す。

楕形ポリマー（A）は、マクロモノマー（ α ）由来の構成単位と、下記一般式（a1）で表される単量体（A1）由来の構成単位と、を含む。

[化3]



[上記一般式（a1）中、 R^{11} は、水素原子又はメチル基である。

R^{12} は、単結合、 $-\text{O}-$ 、又は $-\text{NH}-$ を示す。

R^{13} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。 $m1$ は、0～20の整数を示す。 $m1$ が2以上の整数の場合の複数の R^{13} は、同一であっても異なってもよく、 $(\text{R}^{13}\text{O})_{m1}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4～8のアルキル基である。]

前記マクロモノマー（ α ）は、（メタ）アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる1種以上の単量体（ $\alpha1$ ）に由来する構成単位を有する。

[0018] 本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物は、楕形ポリマー（A）のみからなるものであってもよい。すなわち、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物は、楕形ポリマー（A）を、粘度指数向上剤組成物の全量（100質量%）基準で、100質量%含有していてもよい。

[0019] ここで、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物は、潤滑油組成物が含有する基油への溶解性を良好にする観点から、更に、希釈剤に溶解及び希釈されていることが好ましい。希釈剤としては、例えば、楕形ポリマー（A）の重合時に用いられる溶剤が挙げられる。溶剤は、好ましくは鉱油又は合成油であり、より好ましくは鉱油である。希釈剤は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

粘度指数向上剤組成物が、楕形ポリマー（A）と希釈剤とからなる場合、楕形ポリマー（A）の含有量は、粘度指数向上剤組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは5質量%～80質量%、より好ましくは10質量%

～70質量%、更に好ましくは10質量%～50質量%である。また、希釈剤の含有量は、粘度指数向上剤組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは20質量%～95質量%、より好ましくは20質量%～90質量%、更に好ましくは50質量%～90質量%である。

[0020] また、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物は、本発明の効果を大きく損なうことのない範囲で、添加剤を含有していてもよい。添加剤としては、例えば酸化防止剤等が挙げられる。

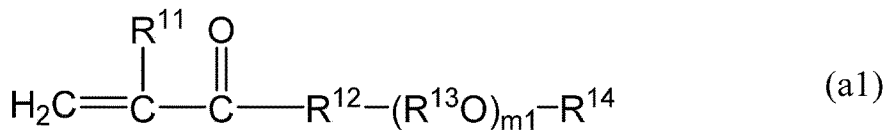
当該添加剤の含有量は、粘度指数向上剤組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01質量%～10質量%、より好ましくは0.05質量%～5.0質量%、更に好ましくは0.1質量%～3.0質量%である。

[0021] 以下、楕形ポリマー（A）について、詳細に説明する。

[0022] <楕形ポリマー（A）の態様：マクロモノマー（ α ）、単量体（A1）>

本発明の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー（A）は、マクロモノマー（ α ）由来の構成単位と、下記一般式（a1）で表される単量体（A1）由来の構成単位と、を含む。

[化4]



[上記一般式（a1）中、 R^{11} は、水素原子又はメチル基である。

R^{12} は、単結合、 $-\text{O}-$ 、又は $-\text{NH}-$ を示す。

R^{13} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。 $m1$ は、0～20の整数を示す。 $m1$ が2以上の整数の場合の複数の R^{13} は、同一であっても異なってもよく、 $(\text{R}^{13}\text{O})_{m1}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4～8のアルキル基である。]

マクロモノマー（ α ）は、（メタ）アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる単量体（ $\alpha1$ ）に由来する構成単位を有する。

[0023] 本発明者が鋭意検討した結果、マクロモノマー (α) 由来の構成単位を含む楕形ポリマーにおいて、上記一般式 (a 1) で表される単量体 (A 1) 由来の構成単位を含有する楕形ポリマー (A) が、実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低い範囲で適切に調整する効果を発揮することを見出し、本発明を完成するに至った。

なお、本明細書において、実効温度域とは、エンジンの実用領域を想定した80℃又はその近傍の温度領域を意味するものとする。

また、本明細書において、「HTHS粘度が低い」とは、粘度指数向上剤を配合して100℃動粘度を同一に調整した潤滑油組成物間で比較したときに、HTHS粘度が低いことを意味する。したがって、以降の説明において、「HTHS粘度を低く調整する」というときは、粘度指数向上剤を配合して100℃動粘度を同一に調整した潤滑油組成物間で比較したときに、HTHS粘度を低く調整することを意味する。

[0024] 上記一般式 (a 1) 中、 R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4~8のアルキル基である。

R^{14} が n -ブチル基であると、本発明の効果が発揮されない。また、 R^{14} の炭素数が4未満であると、本発明の効果が発揮されない。 R^{14} の炭素数が8超である場合、粘度指数向上剤組成物としての粘度指数向上効果が十分に発揮されなくなる。

[0025] ここで、150℃におけるHTHS粘度をより低く調整しつつも、実効温度域でのHTHS粘度を低く調整する観点から、上記一般式 (a 1) 中の R^{14} は、炭素数6~8の直鎖アルキル基又は炭素数6~8の分岐鎖アルキル基であることが好ましい。

炭素数6~8の直鎖アルキル基又は炭素数6~8の分岐鎖アルキル基の具体例としては、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、2-エチルヘキシル基、2-メチルペンチル基、2-メチルヘプチル基、2-エチルヘプチル基、2-エチルヘキシル基等が挙げられる。これらの中でも、 n -ヘキシル基及び2-エチルヘキシル基が好ましい。

[0026] また、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数を向上させやすくする観点から、上記一般式(a1)中のR¹⁴は、n-ブチル基を除く炭素数4～5の直鎖アルキル基もしくは炭素数4～5の分岐鎖アルキル基、又は炭素数6～8の環状アルキル構造を有する基であることが好ましい。なお、環状アルキル構造を有する基の炭素数は、環状アルキル構造を有する基に含まれる炭素原子の総数を意味する。

n-ブチル基を除く炭素数4～5の直鎖アルキル基又は炭素数4～5の分岐鎖アルキル基は、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数を向上させる効果をより発揮させやすくする観点から、炭素数4～5の分岐鎖アルキル基であることが好ましい。具体的には、3級炭素又は4級炭素を有する炭素数4～5の分岐鎖アルキル基であることが好ましく、3級炭素を有することがより好ましい。

[0027] n-ブチル基を除く炭素数4～5の直鎖アルキル基もしくは炭素数4～5の分岐鎖アルキル基の具体例としては、n-ペンチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ネオペンチル基、イソペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基、3-ペンチル基等が挙げられる。これらの中でも、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、ネオペンチル基、イソペンチル基、sec-ペンチル基、tert-ペンチル基、3-ペンチル基が好ましく、イソブチル基がより好ましい。

[0028] 炭素数6～8の環状アルキル構造を有する基の具体例を挙げると、シクロヘキシル基、メチルシクロヘキシル基、エチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、シクロヘキシルメチル基、メチルシクロヘキシルメチル基、シクロヘキシルエチル基等が挙げられる。これらの中でも、シクロヘキシル基が好ましい。

[0029] なお、上記一般式(a1)中、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しやすくする観点か

ら、 R^{11} は、メチル基であることが好ましい。

また、同様の観点から、 R^{12} は、 $-O-$ であることが好ましい。

すなわち、単量体(A1)は、重合性官能基として、アクリロイル基又はメタクリロイル基を有することが好ましく、メタクリロイル基を有することがより好ましい。

また、同様の観点から、 $m1$ は0~5であることが好ましく、0~2であることがより好ましく、0であることが更に好ましい。

[0030] また、本発明の効果を発揮させやすくする観点から、橢形ポリマー(A)における単量体(A1)由来の構成単位の含有量は、橢形ポリマー(A)の全構成単位基準で、60質量%以上であることが好ましい。

ここで、本発明の効果をより発揮させやすくする観点から、単量体(A1)由来の構成単位の含有量は、好ましくは60質量%超、より好ましくは62質量%以上、更に好ましくは64質量%以上である。

なお、単量体(A1)由来の構成単位の含有量の上限値は、潤滑油組成物が有する基油への溶解性が確保できる範囲であれば特に限定されないが、好ましくは80質量%以下、より好ましくは75質量%以下、更に好ましくは70質量%以下である。

[0031] また、橢形ポリマー(A)に含まれる単量体(A1)由来の構成単位は、1種単独であってもよいし、2種以上であってもよい。例えば、上記一般式(a1)中の R^{14} が異なる複数種の構成単位を含有する橢形ポリマー(A)を調製することで、HTHS粘度を所望の範囲に調整しやすい粘度指数向上剤組成物とすることができる。

[0032] 次に、マクロモノマー(α)は、(メタ)アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる1種以上の単量体($\alpha1$)に由来する構成単位を有する。

つまり、マクロモノマー(α)中における、単量体($\alpha1$)に由来する構成単位を有する重合体が、上述の「高分子量の側鎖」に該当する。なお、本発明において、上記の「マクロモノマー」とは、重合性官能基を有する高分

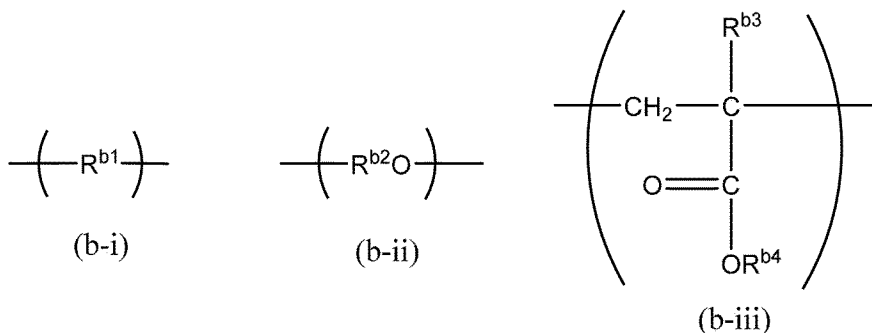
子量モノマーのことを意味し、重合性官能基は（メタ）アクリロイル基である。つまり、楕形ポリマー（A）の主鎖は、マクロモノマー（ α ）が有する重合性官能基である（メタ）アクリロイル基に由来する構成単位を有する。本発明の効果をより発揮させやすくする観点から、重合性官能基は、メタクリロイル基であることが好ましい。

[0033] マクロモノマー（ α ）の数平均分子量（ M_n ）は、好ましくは300以上、より好ましくは500以上、更に好ましくは1,000以上、より更に好ましくは2,000以上、更になお好ましくは4,000以上である。また、好ましくは100,000以下、より好ましくは50,000以下、更に好ましくは20,000以下、より更に好ましくは10,000以下である。

[0034] マクロモノマー（ α ）は、単量体（ $\alpha 1$ ）に由来する構成単位以外に、例えば、以下の一般式（b-i）～（b-iii）で表される繰り返し単位を1種以上有していてもよい。

なお、マクロモノマー（ α ）が共重合体である場合、共重合の形態としては、ブロック共重合体であってもよく、ランダム共重合体であってもよい。

[0035] [化5]



[0036] 上記一般式（b-i）中、 R^{b1} は、炭素数1～10の直鎖アルキレン基又は分岐鎖アルキレン基を示す。具体的には、メチレン基、エチレン基、1,2-プロピレン基、1,3-プロピレン基、ペンチレン基、ヘキシレン基、ヘプチレン基、オクチレン基、ノニレン基、デシレン基、2-エチルヘキシレン基等が挙げられる。

上記一般式（b-ii）中、 R^{b2} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は

分岐鎖アルキレン基を示す。具体的には、エチレン基、1,2-プロピレン基、1,3-プロピレン基、1,2-ブチレン基、1,3-ブチレン基、1,4-ブチレン基等が挙げられる。

上記一般式 (b-iii) 中、 R^{b3} は、水素原子又はメチル基を示す。

また、 R^{b4} は炭素数1~10の直鎖又は分岐鎖のアルキル基を示す。具体的には、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、 n -ブチル基、 n -ペンチル基、 n -ヘキシル基、 n -ヘプチル基、 n -オクチル基、 n -ノニル基、 n -デシル基、イソプロピル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、イソペンチル基、*tert*-ペンチル基、イソヘキシル基、*tert*-ヘキシル基、イソヘプチル基、*tert*-ヘプチル基、2-エチルヘキシル基、イソオクチル基、イソノニル基、イソデシル基等が挙げられる。

なお、上記一般式 (b-i) ~ (b-iii) で表される繰り返し単位をそれぞれ複数有する場合には、 R^{b1} 、 R^{b2} 、 R^{b3} 、 R^{b4} は、それぞれ同一であってもよく、互いに異なるものであってもよい。

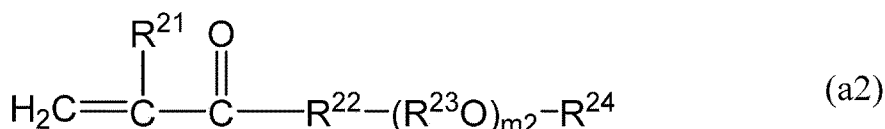
[0037] また、楕形ポリマー (A) におけるマクロモノマー (α) 由来の構成単位の含有量は、楕形ポリマー (A) の全構成単位基準で、好ましくは5質量%~40質量%、より好ましくは7質量%~25質量%、更に好ましくは8質量%~18質量%である。

[0038] また、楕形ポリマー (A) に含まれるマクロモノマー (α) 由来の構成単位は、1種単独であってもよいし、2種以上であってもよい。

[0039] <楕形ポリマー (A) の態様：単量体 (A2)>

本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー (A) は、下記一般式 (a2) で表される単量体 (A2) 由来の構成単位をさらに含むことが好ましい。

[化6]



[上記一般式 (a 2) 中、 R^{21} は水素原子又はメチル基である。

R^{22} は、単結合、 $-O-$ 、又は $-NH-$ を示す。

R^{23} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。

m_2 は、1～20の整数を示す。 m_2 が2以上の整数の場合の複数の R^{23} は、同一であっても異なっていてもよく、 $(R^{23}O)_{m_2}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{24} は、炭素数1～12の直鎖アルキル基又は炭素数1～12の分岐鎖アルキル基である。]

[0040] 楕形ポリマー (A) が、上記一般式 (a 2) で表される単量体 (A 2) 由来の構成単位をさらに含むことによって、潤滑油組成物が含有する基油への楕形ポリマー (A) の粘度指数をより向上させやすくできる。そのため、楕形ポリマー (A) における上記一般式 (a 1) で表される単量体 (A 1) 由来の構成単位の含有量と、上記一般式 (a 2) で表される単量体 (A 2) 由来の構成単位の含有量とを、適切に調整することで、本発明の効果をより発揮させやすくすることができる。具体的には、単量体 (A 1) 由来の構成単位の含有量と単量体 (A 2) 由来の構成単位の含有量との比 $[(A 1) / (A 2)]$ が、質量比で、好ましくは3.0～17.0、より好ましくは5.0～15.0、更に好ましくは6.0～12.0、より更に好ましくは7.0～9.0である。

[0041] なお、上記一般式 (a 2) 中、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に潤滑油組成物のHTHS粘度を低く調整しやすくする観点から、 R^{21} は、メチル基であることが好ましい。

また、同様の観点から、 R^{22} は、各々独立に、 $-O-$ であることが好ましい。

すなわち、単量体 (A 2) は、重合性官能基として、アクリロイル基又はメタクリロイル基を有することが好ましく、メタクリロイル基を有することがより好ましい。

また、同様の観点から、 m_2 は1～5であることが好ましく、1～2であることがより好ましく、1であることが更に好ましい。

また、同様の観点から、 R^{23} は、炭素数2～3の直鎖アルキレン基であることが好ましく、炭素数2の直鎖アルキレン基であることがより好ましい。

また、同様の観点から、 R^{24} は、炭素数1～12の直鎖アルキル基であることが好ましく、炭素数2～8の直鎖アルキル基であることがより好ましく、炭素数2～6の直鎖アルキル基であることが更に好ましく、 n -ブチル基であることがより更に好ましい。

[0042] また、楕形ポリマー(A)における単量体(A2)由来の構成単位の含有量は、楕形ポリマー(A)の全構成単位基準で、好ましくは0質量%～15質量%、より好ましくは3質量%～15質量%、更に好ましくは5質量%～12質量%、より更に好ましくは6質量%～10質量%である。

[0043] また、楕形ポリマー(A)に含まれる単量体(A2)由来の構成単位は、1種単独であってもよいし、2種以上であってもよい。

[0044] <楕形ポリマー(A)の態様：単量体(A3)>

本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー(A)は、炭素数10～30の直鎖アルキル基又は炭素数10～30の分岐鎖アルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート(A3)由来の構成単位をさらに含むことが好ましい。

[0045] 楕形ポリマー(A)が、単量体(A3)由来の構成単位をさらに含むことによって、潤滑油組成物が有する基油への溶解性を向上させやすくすることができ、本発明の効果がより発揮されやすくなる。

なお、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しやすくする観点から、アルキル(メタ)アクリレート(A3)は、アルキルメタクリレートであることが好ましい。

また、アルキル(メタ)アクリレート(A3)が有するアルキル基の炭素数は、好ましくは10～24、より好ましくは11～22、更に好ましくは12～20である。また、当該アルキル基は、直鎖アルキル基であることが

好ましい。

[0046] また、楕形ポリマー（A）における単量体（A3）由来の構成単位の含有量は、楕形ポリマー（A）の全構成単位基準で、好ましくは0質量%～40質量%、より好ましくは10質量%～40質量%、更に好ましくは12質量%～24質量%、より更に好ましくは14質量%～20質量%である。

[0047] また、楕形ポリマー（A）における単量体（A3）由来の構成単位は、1種単独であってもよいし、2種以上であってもよい。

[0048] <楕形ポリマー（A）の態様：他の単量体>

本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー（A）中の、マクロモノマー（ α ）由来の構成単位及び単量体（A1）由来の構成単位の合計含有量は、好ましくは65質量%以上、より好ましくは70質量%以上、更に好ましくは75質量%以上である。

また、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー（A）中には、単量体（A2）由来の構成単位及び単量体（A3）由来の構成単位から選択される1種以上の構成単位が含まれていてもよい。この場合の、マクロモノマー（ α ）由来の構成単位、単量体（A1）由来の構成単位、単量体（A2）由来の構成単位、及び単量体（A3）由来の構成単位の合計含有量は、好ましくは80質量%～100質量%、より好ましくは90質量%～100質量%、更に好ましくは95質量%～100質量%である。

なお、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー（A）は、本発明の効果を大きく阻害することのない範囲内で、マクロモノマー（ α ）、単量体（A1）、単量体（A2）、及び単量体（A3）以外の他の単量体に由来する構成単位が含まれていてもよい。

他の単量体としては、スチレン及びN-アルキル（メタ）アクリルアミド等から選択される1種以上が挙げられる。

[0049] <楕形ポリマー（A）の物性値>

（楕形ポリマー（A）の質量平均分子量（ M_w ）及び分子量分布（ M_w/M_n ））

本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する橢形ポリマー（A）は、本発明の効果をより発揮させやすくする観点から、質量平均分子量（ M_w ）が、30万以上150万以下であることが好ましい。

ここで、150℃におけるHTHS粘度をより低く調整しつつも、実効温度域でのHTHS粘度を低く調整する観点、及び基油への溶解性の観点から、橢形ポリマー（A）の質量平均分子量（ M_w ）は、好ましくは90万よりも大きく150万以下、より好ましくは95万以上140万以下、更に好ましくは100万以上135万以下である。

また、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数及び基油への溶解性を向上させる観点から、橢形ポリマー（A）の質量平均分子量（ M_w ）は、好ましくは30万以上90万以下、より好ましくは40万以上85万以下、更に好ましくは50万以上80万以下である。

[0050] また、本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物が含有する橢形ポリマー（A）は、本発明の効果をより発揮させやすくする観点から、分子量分布（ M_w/M_n ）が、1.2以上3.7以下であることが好ましい。

ここで、150℃におけるHTHS粘度をより低く調整しつつも、実効温度域でのHTHS粘度を低く調整する場合、橢形ポリマー（A）の分子量分布（ M_w/M_n ）は、2.5以上3.7以下であってもよく、2.55以上3.65以下であってもよく、2.60以上3.60以下であってもよい。

また、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数を向上させる観点から、橢形ポリマー（A）の分子量分布（ M_w/M_n ）は、好ましくは1.2以上2.0以下、より好ましくは1.25以上1.95以下、更に好ましくは1.30以上1.90以下である。

なお、本明細書において、橢形ポリマー（A）の質量平均分子量（ M_w ）及び数平均分子量（ M_n ）は、後述する実施例に記載の方法で測定することができる。

[0051] (単量体 (A 1) 由来の構成単位のリホポリマーのガラス転移温度)

本発明の粘度指数向上剤組成物が含有する楕形ポリマー (A) は、上記一般式 (a 1) で表される単量体 (A 1) 由来の構成単位を含む。

ここで、上記一般式 (a 1) で表される単量体 (A 1) 由来の構成単位からなるホモポリマーのガラス転移温度 (T_g) は、150℃におけるHTHS粘度をより低く調整しつつも、実効温度域でのHTHS粘度を低く調整する観点から、10℃以下であることが好ましい。また、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数を向上させる観点から、前記ガラス転移温度 (T_g) は、好ましくは20℃超、より好ましくは30℃以上、更に好ましくは40℃以上、より更に好ましくは50℃以上である。

なお、本明細書において、前記ホモポリマーのガラス転移温度 (T_g) は、示差走査熱量測定 (DSC) 又は動的粘弾性測定 (DMA) により測定することができる。

[0052] <楕形ポリマー (A) の合成方法>

楕形ポリマー (A) は、例えば、マクロモノマー (α) 及び単量体 (A 1) をラジカル重合することで得ることができる。また、楕形ポリマー (A) は、好ましくは、マクロモノマー (α) 及び単量体 (A 1) と共に、単量体 (A 2)、単量体 (A 3)、及び他の単量体から選択される1種以上の単量体とをラジカル重合することで得ることができる。

[0053] 重合方法としては、溶液重合法、乳化重合法、懸濁重合法、逆相懸濁重合法、薄膜重合法、及び噴霧重合法等、従来公知の方法を用いることができる。これらの中では、溶液重合法が好ましい。

楕形ポリマー (A) を溶液重合により製造する場合、溶剤中において、重合開始剤を用いて、マクロモノマー (α) 及び単量体 (A 1) をラジカル重合することで楕形ポリマー (A) 得ることができる。好ましくは、溶剤中において、重合開始剤を用いて、マクロモノマー (α) 及び単量体 (A 1) と共に、単量体 (A 2)、単量体 (A 3)、及び他の単量体から選択される1

種以上の単量体とをラジカル重合することで楕形ポリマー（A）を得ることができる。

[0054] 前記溶剤としては、前記単量体が溶解する溶剤であればよく、例えば、トルエン、キシレン、炭素数9～10のアルキルベンゼン等の芳香族炭化水素系溶剤；ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、オクタン等の炭素数5～18の脂肪族炭化水素系溶剤；2-プロパノール、1-ブタノール、2-ブタノール、1-オクタノール等の炭素数3～8のアルコール系溶剤；メチルイソブチルケトン、メチルエチルケトン等のケトン系溶剤；N，N-ジメチルホルムアミド、N-メチルピロリドン等のアミド系溶剤；酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル等のエステル系溶剤；ジエチルエーテル、メチルtert-ブチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶剤；及び後述する鉱油又は合成油；等を用いることができる。これらの中では、後述する鉱油又は合成油が好ましく、鉱油がより好ましい。

[0055] 前記重合開始剤としては、例えば、アゾ系開始剤、過酸化物系開始剤、レドックス系開始剤、及び有機ハロゲン化合物開始剤からなる群より選ばれる1種以上が挙げられる。これらの中では、アゾ系開始剤及び過酸化物系開始剤から選ばれる1種以上が好ましく、アゾ系開始剤及び有機過酸化物から選ばれる1種以上がより好ましく、有機過酸化物が更に好ましい。

アゾ系重合開始剤としては、例えば、2，2'-アゾビス（イソブチロニトリル）（略称：AIBN）、2，2'-アゾビス（2-メチルブチロニトリル）（略称：AMBN）、2，2'-アゾビス（2，4-ジメチルバレロニトリル）（略称：ADV N）、4，4'-アゾビス（4-シアノ吉草酸）（略称：ACVA）及びその塩（例えば塩酸塩等）、ジメチル2，2'-アゾビスイソブチレート、2，2'-アゾビス（2-アミジノプロパン）ヒドロクロライド、2，2'-アゾビス〔2-メチル-N-（2-ヒドロキシエチル）プロピオンアミド〕等が挙げられる。

過酸化物系開始剤としては、例えば、無機過酸化物及び有機過酸化物等が挙げられる。

無機過酸化物としては、例えば、過酸化水素、過硫酸アンモニウム、過硫酸カリウム、及び過硫酸ナトリウム等が挙げられる。

有機過酸化物としては、例えば、ベンゾイルパーオキシド、ジ-*t e r t*-ブチルパーオキシド、クメンヒドロパーオキシド、コハク酸パーオキシド、ジ(2-エトキシエチル)パーオキシジカーボネート、*t e r t*-ブチルパーオキシピバレート、*t e r t*-ヘキシルパーオキシピバレート、*t e r t*-ブチルパーオキシネオヘプタノエート、*t e r t*-ブチルパーオキシネオデカノエート、*t e r t*-ブチルパーオキシ2-エチルヘキサノエート、*t e r t*-ブチルパーオキシイソブチレート、*t e r t*-アミルパーオキシ2-エチルヘキサノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ2-エチルヘキサノエート、ジブチルパーオキシトリメチルアジペート、2, 2-ビス(4, 4-ジ-*t e r t*-ブチルパーオキシシクロヘキシル)プロパン、及びラウリルパーオキシド等が挙げられる。

レドックス系開始剤としては、例えば、アルカリ金属の亜硫酸塩若しくは重亜硫酸塩(例えば、亜硫酸アンモニウム、重亜硫酸アンモニウム等)、塩化第一鉄、硫酸第一鉄、アスコルビン酸等の還元剤とアルカリ金属の過硫酸塩、過硫酸アンモニウム、過酸化水素、有機過酸化物等の酸化剤との組合せよりなるものなどが挙げられる。

[0056] ここで、前記ラジカル重合では、楕形ポリマー(A)の分子量等の物性を調整する目的等、必要に応じて、公知の連鎖移動剤を用いてもよい。

連鎖移動剤としては、例えば、メルカプタン類、チオカルボン酸類、イソプロパノール等の2級アルコール類、ジブチルアミン等のアミン類、次亜リン酸ナトリウム等の次亜リン酸塩類、塩素含有化合物、アルキルベンゼン化合物等が挙げられる。

メルカプタン類としては、例えば、*n*-ブチルメルカプタン、イソブチルメルカプタン、*n*-オクチルメルカプタン、*n*-ドデシルメルカプタン、*s e c*-ブチルメルカプタン、*t e r t*-ブチルメルカプタン、*t e r t*-ドデシルメルカプタン等の炭素数2~20のアルキル基を有するアルキルメル

カプタン化合物；メルカプトエタノール、メルカプトプロパノール等の水酸基含有メルカプタン化合物；等が挙げられる。

チオカルボン酸類としては、例えば、チオグリコール酸、チオリンゴ酸等が挙げられる。

[0057] 前記重合開始剤及び連鎖移動剤の使用量は、所望の重合体の物性を考慮して（例えば、分子量の調整等）、適宜選定することができる。

重合制御の方法としては、例えば、断熱重合法、温度制御重合法が挙げられる。重合時の反応温度としては、好ましくは30～140℃、より好ましくは50～130℃、更に好ましくは70℃～120℃である。

また、熱による重合開始の方法の他に、放射線、電子線、紫外線などを照射して重合を開始させる方法を採用することもできる。なお、好ましいのは温度制御重合法であり、より好ましくは温度制御した溶液重合法である。

共重合を行う場合は、ランダム付加重合又は交互共重合のいずれでもよく、また、グラフト共重合又はブロック共重合のいずれでもよい。

[0058] [潤滑油組成物の態様]

本発明の潤滑油組成物は、前記粘度指数向上剤組成物と、基油とを含有する。

潤滑油組成物が、前記粘度指数向上剤組成物を含有することで、150℃におけるのHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域でのHTHS粘度をより低く調整することができる。

前記粘度指数向上剤組成物の具体的態様及びその好適な態様については、前述のとおりであるため、ここでの説明は省略する。

[0059] <基油>

前記潤滑油組成物に用いる基油としては、特に制限はなく、従来、潤滑油の基油として使用されている鉱油及び合成油の中から任意のものを適宜選択して用いることができる。

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、溶剤脱れき処理；溶剤抽出又は水素化分解の少

なくとも1種の処理；溶剤脱ろう又は接触脱ろうの少なくとも1種の脱ろう処理；水素化精製処理；等のうちの1種以上の処理、好ましくは全ての処理を行って精製した油、又は鉱油系ワックスを異性化することによって製造される油等が挙げられる。これらのうち水素化精製により処理した油が好ましい。

合成油としては、例えば、ポリブテン、 α -オレフィン単独重合体、エチレン- α -オレフィン共重合体等の共重合体などのポリ α -オレフィン；ポリオールエステル、二塩基酸エステル、リン酸エステル等の各種のエステル；ポリフェニルエーテル等の各種のエーテル；ポリグリコール；アルキルベンゼン；アルキルナフタレン；GTLプロセスにおける残渣WAX（ガストゥリキッドワックス）を水素化異性化脱ろうすることによって製造されるGTL基油等が挙げられる。

これらの基油は、1種を単独で、又は2種以上を組み合わせて用いてもよい。

なお、潤滑油組成物が含有する基油には、粘度指数向上剤組成物が含有する橢形ポリマー（A）を重合する際に用いる溶剤として鉱油又は合成油を用いた場合であって、当該重合用溶剤として用いた鉱油又は合成油が、そのまま、潤滑油組成物に添加された場合、当該重合用溶剤として用いた鉱油又は合成油は、潤滑油組成物が含む基油の1種とみなすことができる。同様に、前述の本発明の一態様である粘度指数向上剤組成物が希釈剤として鉱油又は合成油を含む場合であって、当該希釈剤として用いた鉱油又は合成油が、そのまま、潤滑油組成物に添加された場合、当該希釈剤として用いた鉱油又は合成油も、潤滑油組成物が含む基油の1種とみなすことができる。

[0060] 前記基油の粘度については特に制限はないが、100℃動粘度が、好ましくは $2\text{ mm}^2/\text{s} \sim 30\text{ mm}^2/\text{s}$ 、より好ましくは $2\text{ mm}^2/\text{s} \sim 25\text{ mm}^2/\text{s}$ 、更に好ましくは $2\text{ mm}^2/\text{s} \sim 20\text{ mm}^2/\text{s}$ 、より更に好ましくは $2.5\text{ mm}^2/\text{s} \sim 20\text{ mm}^2/\text{s}$ である。100℃動粘度が $2\text{ mm}^2/\text{s}$ 以上であると、蒸発損失を抑えやすく、また、 $30\text{ mm}^2/\text{s}$ 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。

また、前記基油の粘度指数は、好ましくは50以上、より好ましくは80以上、更に好ましくは100以上、より更に好ましくは105以上である。前記基油の粘度指数が当該範囲であることで、潤滑油組成物の粘度特性を良好にしやすくなる。

基油の100℃動粘度及び粘度指数の値は、後述する実施例に記載された方法により測定及び算出されるものである。

[0061] 前記潤滑油組成物中、前記粘度指数向上剤組成物の含有量は、樹脂分換算で、好ましくは0.2質量%～5.0質量%、より好ましくは0.3質量%～3.0質量%、更に好ましくは0.4質量%～2.0質量%である。

[0062] <その他成分>

本発明の一態様である潤滑油組成物は、本発明の効果を損なわない範囲で、必要に応じて、前記粘度指数向上剤組成物及び基油以外のその他成分を、更に含有したものであってもよい。

その他成分としては、一般的に用いられる潤滑油用添加剤が挙げられ、当該潤滑油用添加剤としては、例えば、金属系清浄剤、耐摩耗剤、無灰系分散剤、極圧剤、流動点降下剤、酸化防止剤、消泡剤、界面活性剤、抗乳化剤、摩擦調整剤、油性向上剤、防錆剤及び金属不活性化剤からなる群から選ばれる1種以上が挙げられる。

これらの潤滑油用添加剤は、それぞれ、1種単独で、又は2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0063] これらの潤滑油用添加剤のそれぞれの含有量は、本発明の効果を損なわない範囲内で、適宜調整することができる。潤滑油用添加剤のそれぞれの含有量としては、例えば、潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.001～15質量%、より好ましくは0.005～10質量%、更に好ましくは0.01～8質量%である。

また、本発明の一態様の潤滑油組成物において、前記粘度指数向上剤組成物以外のこれらの潤滑油用添加剤を含有する場合、その合計含有量は、潤滑

油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0質量%超30質量%以下、より好ましくは0.001～25質量%、更に好ましくは0.001～20質量%、より更に好ましくは0.001～15質量%である。

[0064]（金属系清浄剤）

金属系清浄剤としては、例えば、アルカリ金属及びアルカリ土類金属から選ばれる金属原子を含有する有機酸金属塩化合物が挙げられ、具体的には、アルカリ金属及びアルカリ土類金属から選ばれる金属原子を含有する、金属サリシレート、金属フェネート、及び金属スルホネート等が挙げられる。

なお、本明細書において、「アルカリ金属」としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、及びフランシウムを指す。

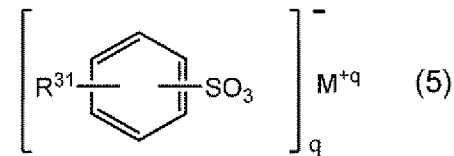
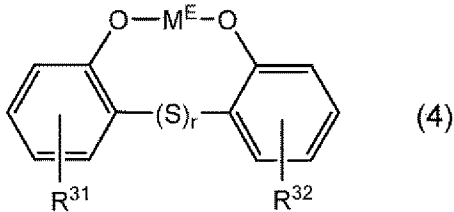
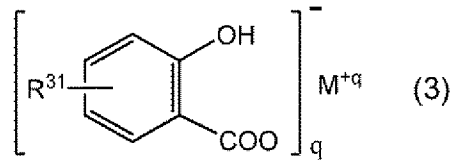
また、「アルカリ土類金属」としては、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、及びバリウムを指す。

金属系清浄剤に含まれる金属原子としては、高温での清浄性の向上の観点から、ナトリウム、カルシウム、マグネシウム、又はバリウムが好ましく、カルシウムがより好ましい。

[0065] 金属サリシレートとしては、下記一般式（3）で表される化合物が好ましく、当該金属フェネートとしては、下記一般式（4）で表される化合物が好ましく、当該金属スルホネートとしては、下記一般式（5）で表される化合物が好ましい。

[0066]

[化7]



[0067] 上記一般式(3)～(5)中、Mは、アルカリ金属及びアルカリ土類金属から選ばれる金属原子であり、ナトリウム、カルシウム、マグネシウム、又はバリウムが好ましく、カルシウムがより好ましい。また、M^Eは、アルカリ土類金属であり、カルシウム、マグネシウム、又はバリウムが好ましく、カルシウムがより好ましい。qはMの価数であり、1又は2である。R³¹及びR³²は、それぞれ独立して、水素原子又は炭素数1～18の炭化水素基である。Sは硫黄原子を表す。rは、0以上の整数であり、好ましくは0～3の整数である。

R³¹及びR³²として選択し得る炭化水素基としては、例えば、炭素数1～18のアルキル基、炭素数1～18のアルケニル基、環形成炭素数3～18のシクロアルキル基、環形成炭素数6～18のアリール基、炭素数7～18のアルキルアリール基、炭素数7～18のアリールアルキル基等が挙げられる。

[0068] 本発明の一態様において、これらの金属系清浄剤は、単独で又は2種以上を併用してもよい。これらの中でも、高温での清浄性の向上の観点、及び基油への溶解性の観点から、カルシウムサリシレート、カルシウムフェネート、及びカルシウムスルホネートから選ばれる1種以上であることが好ましい

。

[0069] 本発明の一態様において、これらの金属系清浄剤は、中性塩、塩基性塩、過塩基性塩及びこれらの混合物のいずれであってもよい。

前記金属系清浄剤の全塩基価としては、好ましくは0～600 mg KOH / g である。

本発明の一態様において、前記金属系清浄剤が塩基性塩又は過塩基性塩である場合には、当該金属系清浄剤の全塩基価としては、好ましくは10～600 mg KOH / g、より好ましくは20～500 mg KOH / g である。

なお、本明細書において、「塩基価」とは、JIS K 2501 : 2003「石油製品および潤滑油—中和価試験方法」の7. に準拠して測定される過塩素酸法による塩基価を意味する。

[0070] 本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、金属系清浄剤を含有する場合、金属系清浄剤の含有量は、潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～10質量%である。

なお、前記金属系清浄剤は、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。2種以上用いる場合の好適な合計含有量も、前述した含有量と同じである。

[0071]（耐摩耗剤）

耐摩耗剤としては、例えば、ジアルキルジチオリン酸亜鉛（ZnDTP）、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、ポリサルファイド類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、及びこれらのアミン塩又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、チオホスホン酸エステル類、及びこれらのアミン塩又は金属塩等の硫黄及びリン含有耐摩耗剤が挙げられる。

これらの中でも、ジアルキルジチオリン酸亜鉛（ZnDTP）が好ましい。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、耐摩耗剤を

含有する場合、耐摩耗剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量％）基準で、好ましくは0.05～5.0質量％である。

なお、前記耐摩耗剤は、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。2種以上用いる場合の好適な合計含有量も、前述した含有量と同じである。

[0072]（無灰系分散剤）

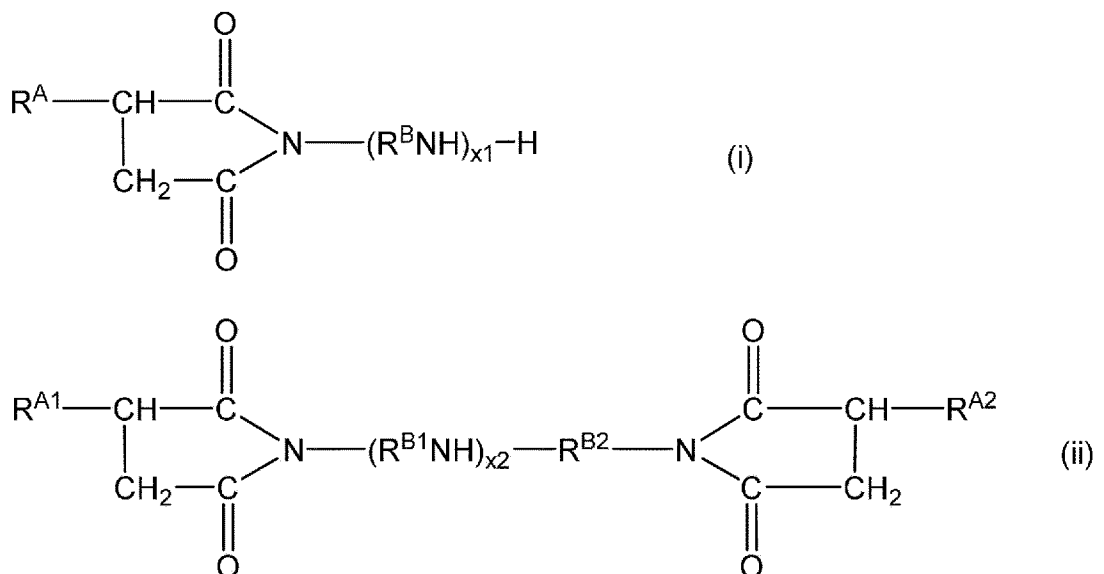
無灰系分散剤としては、例えば、コハク酸イミド、ベンジルアミン、コハク酸エステル又はこれらのホウ素変性物等が挙げられるが、アルケニルコハク酸イミド及びホウ素変性アルケニルコハク酸イミドが好ましい。

[0073] アルケニルコハク酸イミドとしては、下記一般式（i）で表されるアルケニルコハク酸モノイミド、もしくは下記一般式（ii）で表されるアルケニルコハク酸ビスイミドが挙げられる。

なお、当該アルケニルコハク酸イミドは、下記一般式（i）又は（ii）で示される化合物と、アルコール、アルデヒド、ケトン、アルキルフェノール、環状カーボネート、エポキシ化合物、及び有機酸等から選ばれる1種以上とを反応させた変性アルケニルコハク酸イミドとしてもよい。

また、ホウ素変性アルケニルコハク酸イミドとしては、下記一般式（i）又は（ii）で表される化合物のホウ素変性物が挙げられる。

[0074] [化8]



[0075] 上記一般式 (i)、(ii) 中、 R^A 、 R^{A1} 及び R^{A2} は、それぞれ独立に、質量平均分子量 (Mw) が 500~3,000 (好ましくは 1,000~3,000) のアルケニル基であり、ポリブテニル基又はポリイソブテニル基が好ましい。

R^B 、 R^{B1} 及び R^{B2} は、それぞれ独立に、炭素数 2~5 のアルキレン基である。

$x1$ は 1~10 の整数であり、好ましくは 2~5 の整数、より好ましくは 3 又は 4 である。

$x2$ は 0~10 の整数であり、好ましくは 1~4 の整数、より好ましくは 2 又は 3 である。

[0076] 本発明の一態様において、ホウ素変性アルケニルコハク酸イミドを構成するホウ素原子と窒素原子の比率 [B/N] としては、清浄性を向上させる観点から、好ましくは 0.5 以上、より好ましくは 0.6 以上、更に好ましくは 0.8 以上、より更に好ましくは 0.9 以上である。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、無灰系分散剤を含有する場合、無灰系分散剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量 (100 質量%) 基準で、好ましくは 0.1~20 質量% である。

[0077] (極圧剤)

極圧剤としては、例えば、スルフィド類、スルフォキシド類、スルフォン類、チオホスフィネート類等の硫黄系極圧剤、塩素化炭化水素等のハロゲン系極圧剤、有機金属系極圧剤等が挙げられる。また、上述の耐摩耗剤の内、極圧剤としての機能を有する化合物を用いることもできる。

本発明の一態様において、これらの極圧剤は、単独で又は 2 種以上を併用してもよい。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、極圧剤を含有する場合、極圧剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量 (100 質量%) 基準で、好ましくは 0.1~10 質量% である。

[0078] (酸化防止剤)

酸化防止剤としては、従来潤滑油の酸化防止剤として使用されている公知の酸化防止剤の中から、任意のものを適宜選択して用いることができ、例えば、アミン系酸化防止剤、フェノール系酸化防止剤、モリブデン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤、リン系酸化防止剤等が挙げられる。

アミン系酸化防止剤としては、例えば、ジフェニルアミン、炭素数3～20のアルキル基を有するアルキル化ジフェニルアミン等のジフェニルアミン系酸化防止剤； α -ナフチルアミン、フェニル- α -ナフチルアミン、炭素数3～20のアルキル基を有する置換フェニル- α -ナフチルアミン等のナフチルアミン系酸化防止剤；等が挙げられる。

フェノール系酸化防止剤としては、例えば、2,6-ジ-tert-ブチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、イソオクチル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート等のモノフェノール系酸化防止剤；4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)等のジフェノール系酸化防止剤；ヒンダードフェノール系酸化防止剤；等を挙げられる。

モリブデン系酸化防止剤としては、例えば、三酸化モリブデン及び／又はモリブデン酸とアミン化合物とを反応させてなるモリブデンアミン錯体等が挙げられる。

硫黄系酸化防止剤としては、例えば、ジラウリル-3,3'-チオジプロピオネイト等が挙げられる。

リン系酸化防止剤としては、例えば、ホスファイト等が挙げられる。

本発明の一態様において、これらの酸化防止剤は単独で又は2種以上を任意に組合せて含有させることができ、好ましくはフェノール系酸化防止剤及び／又はアミン系酸化防止剤である。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、酸化防止剤

を含有する場合、酸化防止剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.05～7質量%である。

[0079]（流動点降下剤）

前記流動点降下剤としては、例えば、エチレン-酢酸ビニル共重合体、塩素化パラフィンとナフタレンとの縮合物、塩素化パラフィンとフェノールとの縮合物、ポリメタクリレート系（PMA系；ポリアルキル（メタ）アクリレート等）、ポリビニルアセテート、ポリブテン、ポリアルキルスチレン等が挙げられ、ポリメタクリレート系が好ましく用いられる。これらの流動点降下剤は、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。

流動点降下剤の質量平均分子量（Mw）は、通常、50,000～150,000である。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、流動点降下剤を含有する場合、流動点降下剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～10質量%である。

[0080]（消泡剤）

消泡剤としては、例えば、ジメチルポリシロキサン等のシリコーン油、フルオロシリコーン油及びフルオロアルキルエーテル等が挙げられる。これら消泡剤は、単独で又は2種以上を組合せて用いてもよい。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、消泡剤を含有する場合、消泡剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.005～5質量%、より好ましくは0.005～0.5質量%である。

[0081]（界面活性剤又は乳化剤）

界面活性剤又は抗乳化剤としては、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及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。これら界面活性剤又は抗乳化剤は、単独で又は2種以上を任意に組合せて含有させることができる。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、界面活性剤又は抗乳化剤を含有する場合、界面活性剤又は抗乳化剤の含有量は、それぞれ独立に、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～3質量%である。

[0082]（摩擦調整剤）

摩擦調整剤としては、例えば、ジチオカルバミン酸モリブデン（MoDTC）、ジチオリン酸モリブデン（MoDTP）、モリブテン酸のアミン塩等のモリブデン系摩擦調整剤；炭素数6～30のアルキル基又はアルケニル基を分子中に少なくとも1個有する、脂肪族アミン、脂肪酸エステル、脂肪酸アミド、脂肪酸、脂肪族アルコール、脂肪族エーテル等の無灰摩擦調整剤；油脂類、アミン、アミド、硫化エステル、リン酸エステル、亜リン酸エステル、リン酸エステルアミン塩等が挙げられる。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、摩擦調整剤を含有する場合、摩擦調整剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.05～4質量%である。

[0083]（油性向上剤）

油性向上剤としては、ステアリン酸、オレイン酸等の脂肪族飽和又は不飽和モノカルボン酸；ダイマー酸、水添ダイマー酸等の重合脂肪酸；リシノレイン酸、12-ヒドロキシステアリン酸等のヒドロキシ脂肪酸；ラウリルアルコール、オレイルアルコール等の脂肪族飽和又は不飽和モノアルコール；ステアリルアミン、オレイルアミン等の脂肪族飽和又は不飽和モノアミン；ラウリン酸アミド、オレイン酸アミド等の脂肪族飽和又は不飽和モノカルボン酸アミド；グリセリン、ソルビトール等の多価アルコールと脂肪族飽和又は不飽和モノカルボン酸との部分エステル；等が挙げられる。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、油性向上剤を含有する場合、油性向上剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～5質量%である。

[0084]（防錆剤）

防錆剤としては、例えば、脂肪酸、アルケニルコハク酸ハーフエステル、脂肪酸セッケン、アルキルスルホン酸塩、多価アルコール脂肪酸エステル、脂肪酸アミン、酸化パラフィン、アルキルポリオキシエチレンエーテル等が挙げられる。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、防錆剤を含有する場合、防錆剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～3質量%である。

[0085] （金属不活化剤）

金属不活性化剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系化合物、トリルトリアゾール系化合物、チアジアゾール系化合物、イミダゾール系化合物、ピリミジン系化合物等が挙げられる。

本発明の一態様の潤滑油組成物において、その他成分として、金属不活性化剤を含有する場合、金属不活性化剤の含有量は、当該潤滑油組成物の全量（100質量%）基準で、好ましくは0.01～5質量%である。

[0086] [潤滑油組成物の物性]

<100℃動粘度、粘度指数>

本発明の一態様の潤滑油組成物の100℃動粘度は、好ましくは4.0 mm²/s～16.3 mm²/s、より好ましくは5.0 mm²/s～16.3 mm²/s、更に好ましくは6.1 mm²/s～12.5 mm²/s、より更に好ましくは6.9 mm²/s～9.3 mm²/sである。

[0087] 本発明の一態様の潤滑油組成物の粘度指数は、好ましくは200以上、より好ましくは250以上、更に好ましくは300以上である。また、通常400以下である。

[0088] 潤滑油組成物の100℃動粘度及び粘度指数の値は、後述する実施例に記載された方法により測定及び算出されるものである。

[0089] <HTHS粘度>

本発明の一態様の潤滑油組成物の150℃におけるHTHS粘度は、省燃費性の向上の観点から、好ましくは2.6 mPa・s未満、より好ましくは

2. 4 mPa·s未満、更に好ましくは2. 2 mPa·s未満、より更に好ましくは2. 0 mPa·s未満である。また、潤滑性能の観点から、好ましくは1. 8 mPa·s以上である。

本発明の一態様の粘度指数向上剤組成物は、潤滑油組成物の150℃におけるHTHS粘度を、好ましくは2. 6 mPa·s未満、より好ましくは2. 4 mPa·s未満、更に好ましくは2. 2 mPa·s未満、より更に好ましくは2. 0 mPa·s未満に調整する機能を発揮し得る。

[0090] 本発明の一態様の潤滑油組成物の100℃におけるHTHS粘度は、潤滑性能、粘度特性、及び省燃費性の向上の観点から、好ましくは3. 0~5. 0 mPa·s、より好ましくは3. 5~4. 5 mPa·s、更に好ましくは3. 5~4. 0 mPa·s、より更に好ましくは3. 5~3. 76 mPa·sである。

[0091] 本発明の一態様の潤滑油組成物の80℃におけるHTHS粘度は、潤滑性能、粘度特性、及び省燃費性の向上の観点から、好ましくは3. 0~7. 0 mPa·s、より好ましくは3. 5~6. 5 mPa·s、更に好ましくは4. 0~6. 0 mPa·s、より更に好ましくは4. 5~5. 55 mPa·sである。

[0092] 潤滑油組成物の各種温度でのHTHS粘度は、後述する実施例に記載された方法により測定されるものである。

[0093] <CCS粘度>

本発明の一態様の潤滑油組成物の-30℃におけるCCS粘度は、低温でのエンジンの始動性を良好なものとする観点から、好ましくは1, 640 mPa·s未満、より好ましくは1, 630 mPa·s以下、更に好ましくは1, 620 mPa·s以下である。また、通常、1, 400 mPa·s以上である。また、本発明の一態様の潤滑油組成物の-35℃におけるCCS粘度は、同様の観点から、好ましくは3, 050 mPa·s未満、より好ましくは3, 020 mPa·s以下、更に好ましくは3, 000以下である。また、通常、2, 700 mPa·s以上である。

潤滑油組成物の各種温度でのCCS粘度は、後述する実施例に記載された方法により測定されるものである。

[0094] [潤滑油組成物の製造方法]

本発明の一実施形態である潤滑油組成物の製造方法は、前記粘度指数向上剤組成物と、基油とを配合する工程を含む。

また、当該製造方法では、必要に応じて、前記粘度指数向上剤組成物及び基油以外のその他成分を更に配合してもよい。

前記粘度指数向上剤組成物、基油、及びその他成分のそれぞれは、前記潤滑油組成物について説明したものと同様であるとともに、それぞれの好適な態様も同様であり、当該製造方法で得られる潤滑油組成物も前述した通りであるため、それらの記載は省略する。

当該製造方法では、前記粘度指数向上剤組成物及び基油、並びに必要に応じて添加されるその他成分は、いかなる方法で配合されてもよく、その手法は限定されない。

[0095] [潤滑油組成物の用途]

本発明の潤滑油組成物は、実効温度域における使用において、優れた省燃費性を発現することができる。

そのため、本発明の潤滑油組成物は、エンジン油として使用されることが好ましく、ガソリンエンジン油として使用されることがより好ましい。

本発明の潤滑油組成物の使用に適したエンジンとしては、自動車等の車両用エンジン等が挙げられるが、自動車用エンジンが好ましく、自動車用ガソリンエンジンがより好ましい。また、ハイブリッド機構を搭載した自動車用エンジンにも好適に使用することができる。

なお、本発明の一態様の潤滑油組成物は、自動車等に使用される内燃機関用潤滑油組成物（内燃機関用エンジンオイル）としての用途が好適であるが、他の用途にも適用し得る。

[0096] [エンジン]

本発明は、上述の本発明の潤滑油組成物を含むエンジンも提供する。

当該エンジンとしては、上述のとおり、自動車等の車両用エンジン等が挙げられるが、自動車用エンジンが好ましく、自動車用ガソリンエンジンがより好ましい。また、ハイブリッド機構を搭載した自動車用エンジンも好ましい。

本発明の潤滑油組成物は、実効温度域における使用においても、優れた省燃費性を発現することができる。したがって、本発明のエンジンによれば、実効温度域において、優れた省燃費性を発現し得る。

[0097] [エンジンの潤滑方法]

本発明は、上述の本発明の潤滑油組成物を用いて、エンジンを潤滑する、エンジンの潤滑方法も提供する。

当該エンジンとしては、上述のとおり、自動車等の車両用エンジン等が挙げられるが、自動車用エンジンが好ましく、自動車用ガソリンエンジンがより好ましい。また、ハイブリッド機構を搭載した自動車用エンジンも好ましい。

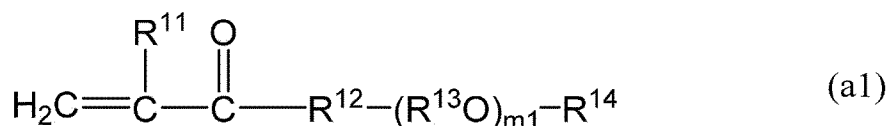
本発明の潤滑油組成物は、実効温度域における使用においても、優れた省燃費性を発現することができる。したがって、本発明のエンジンの潤滑方法によれば、実効温度域において、優れた省燃費性をエンジンに付与し得る。

[0098] [提供される本発明の一態様]

本発明の一態様によれば、下記 [1] ~ [7] が提供される。

[1] マクロモノマー (α) 由来の構成単位と、下記一般式 (a 1) で表される単量体 (A 1) 由来の構成単位と、を含み、

[化9]



[上記一般式 (a 1) 中、 R^{11} は、水素原子又はメチル基である。

R^{12} は、単結合、 $-\text{O}-$ 、又は $-\text{NH}-$ を示す。

R^{13} は、炭素数 2 ~ 4 の直鎖アルキレン基又は炭素数 2 ~ 4 の分岐鎖アルキレン基を示す。 $m 1$ は、0 ~ 20 の整数を示す。 $m 1$ が 2 以上の整数の場合

合の複数の R^{13} は、同一であっても異なってもよく、 $(R^{13}O)_{m1}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

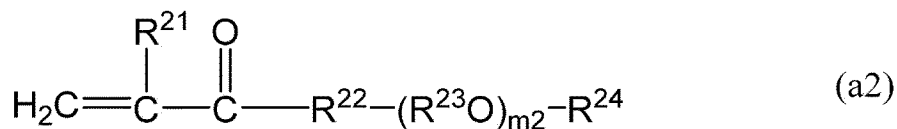
R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4～8のアルキル基である。]

前記マクロモノマー(α)は、(メタ)アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる1種以上の単量体($\alpha 1$)に由来する構成単位を有する、楕形ポリマー(A)を含有する、粘度指数向上剤組成物。

[2] 前記楕形ポリマー(A)における前記単量体(A1)由来の構成単位の含有量が、全構成単位基準で、60質量%以上である、上記[1]に記載の粘度指数向上剤組成物。

[3] 前記楕形ポリマー(A)が、下記一般式(a2)で表される単量体(A2)由来の構成単位をさらに含む、上記[1]又は[2]に記載の粘度指数向上剤組成物。

[化10]



[上記一般式(a2)中、 R^{21} は水素原子又はメチル基である。

R^{22} は、単結合、 $-O-$ 、又は $-NH-$ を示す。

R^{23} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。 $m2$ は、1～20の整数を示す。 $m2$ が2以上の整数の場合の複数の R^{23} は、同一であっても異なってもよく、 $(R^{23}O)_{m2}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{24} は、炭素数1～12の直鎖アルキル基又は炭素数1～12の分岐鎖アルキル基である。]

[4] 前記楕形ポリマー(A)が、炭素数10～30の直鎖アルキル基又は炭素数10～30の分岐鎖アルキル基を有するアルキル(メタ)アクリレート(A3)由来の構成単位をさらに含む、上記[1]～[3]のいずれか1つに記載の粘度指数向上剤組成物。

[5] 前記櫛形ポリマー (A) の質量平均分子量 (Mw) が、30万以上150万以下である、上記 [1] ~ [4] のいずれか1つに記載の粘度指数向上剤組成物。

[6] 前記櫛形ポリマー (A) の分子量分布 (Mw/Mn) が、1.2以上3.7以下である、上記 [1] ~ [5] のいずれか1つに記載の粘度指数向上剤組成物。

[7] 上記 [1] ~ [6] のいずれか1つに記載の粘度指数向上剤組成物と、基油とを含有する、潤滑油組成物。

実施例

[0099] 本発明について、以下の実施例により具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0100] [各種物性値]

各種物性値の測定法は、以下のとおりとした。

(1) 基油の40℃動粘度、100℃動粘度、及び粘度指数

基油 (A) の40℃動粘度、100℃動粘度、及び粘度指数は、JIS K 2283 : 2000に準拠して測定及び算出した。

(2) 潤滑油組成物の40℃動粘度、100℃動粘度、及び粘度指数

基油 (A) の40℃動粘度、100℃動粘度、及び粘度指数は、JIS K 2283 : 2000に準拠して測定及び算出した。

(3) 潤滑油組成物のHTHS粘度

ASTM D4683に準拠し、TBS高温粘度計 (Tapered Bearing Simulator Viscometer) を用いて、80℃、100℃、又は150℃の温度条件下、せん断速度 $10^6/s$ にて測定した。

(4) CCS粘度 (Cold Cracking Simulator)

JIS K 2010 : 1993に準拠して、-30℃におけるCCS粘度と-35℃におけるCCS粘度を測定した。

(5) 質量平均分子量 (Mw)、数平均分子量 (Mn)

Waters社製の「1515アイソクラティックHPLCポンプ」、
「2414示差屈折率(RI)検出器」に、東ソー社製のカラム「TSKguardcolumn SuperHZ-L」を1本、及び「TSK Super Multipore HZ-M」を2本、上流側からこの順で取り付け、
測定温度：40℃、移動相：テトラヒドロフラン、流速：0.35 mL/分、
試料濃度1.0 mg/mLの条件で測定し、標準ポリスチレン換算にて求めた。

[0101] [製造例]

本製造例において使用した原料を以下に示す。

[0102] <マクロモノマー (α) >

(片末端メタクリル化水添ポリブタジエン)

単量体 ($\alpha 1$) として、片末端をメタクリレート化した水素化ブタジエンに由来する構成単位を有する、片末端メタクリル化水添ポリブタジエン(株式会社クラレ製、Kraton Liquid (登録商標) L-1253)を用いた。質量平均分子量は約7,000、数平均分子量は約6,800である。

[0103] <単量体 (A1) >

(*n*-ブチルメタクリレート、Alfa Aesar社製)

上記一般式(a1)において、 R^{11} がメチル基であり、 R^{12} が-O-であり、 $m_1=0$ であり、 R^{14} が*n*-ブチル基である単量体である。ホモポリマーのガラス転移温度(T_g)は20℃(カタログ値)である。以降の説明では、「nC4MA」ともいう。

(イソブチルメタクリレート、富士フィルム和光純薬株式会社製)

上記一般式(a1)において、 R^{11} がメチル基であり、 R^{12} が-O-であり、 $m_1=0$ であり、 R^{14} がイソブチル基である単量体である。ホモポリマーのガラス転移温度(T_g)は53℃(カタログ値)である。以降の説明では、「iC4MA」ともいう。

(シクロヘキシルメタクリレート、富士フィルム和光純薬株式会社製)

上記一般式 (a 1) において、 R^{11} がメチル基であり、 R^{12} が $-O-$ であり、 $m_1 = 0$ であり、 R^{14} がシクロヘキシル基である単量体である。ホモポリマーのガラス転移温度 (T_g) は 80°C (カタログ値) である。以降の説明では、「cC6MA」ともいう。

(n -ヘキシルメタクリレート、Aldrich社製)

上記一般式 (a 1) において、 R^{11} がメチル基であり、 R^{12} が $-O-$ であり、 $m_1 = 0$ であり、 R^{14} が n -ヘキシル基である単量体である。ホモポリマーのガラス転移温度 (T_g) は 10°C (カタログ値) である。以降の説明では、「nC6MA」ともいう。

(2-エチルヘキシルメタクリレート、富士フィルム和光純薬株式会社製)

上記一般式 (a 1) において、 R^{11} がメチル基であり、 R^{12} が $-O-$ であり、 $m_1 = 0$ であり、 R^{14} が2-エチルヘキシル基である単量体である。ホモポリマーのガラス転移温度 (T_g) は -10°C (カタログ値) である。以降の説明では、「2-EHMA」ともいう。

[0104] <単量体 (A 2) >

(n -ブトキシエチルメタクリレート、共栄社化学株式会社製)

ライトエステルBOを用いた。ライトエステルBOは、上記一般式 (a 2) において、 R^{21} がメチル基であり、 R^{22} が $-O-$ であり、 R^{23} が炭素数2の直鎖アルキレン基であり、 $m_2 = 1$ であり、 R^{24} が $n-C_4H_9$ 基である単量体である。以降の説明では、「BOEMA」ともいう。

[0105] <単量体 (A 3) >

n -ドデシルメタクリレートと n -トリデシルメタクリレートの混合物 ($C_{12}/C_{13} = 45/55\%$) である、ライトエステルL-7 (共栄社化学株式会社製) を用いた。以降の説明では、「nC1213MA」ともいう。

[0106] <ラジカル重合開始剤>

・パーテトラA : 2, 2-ビス (4, 4-ジ-tert-ブチルパーオキシシクロヘキシル) プロパン (日油株式会社製)

・ AMBN : 2, 2' -アゾビス (2-メチルブチロニトリル) (富士フィルム和光純薬株式会社製)

・ ADVN : 2, 2' -アゾビス (2, 4-ジメチルバレロニトリル) (富士フィルム和光純薬株式会社製)

[0107] <重合溶剤用基油>

100°C動粘度 : 4.2 mm²/s、粘度指数 : 123の鉱油を用いた。

[0108] 上記原料を表1に示す配合で用い、楕形ポリマー (A) として、重合体E1、E2、E3、E4、C1、C2を重合した。

[0109] (1) 製造実施例1 (重合体E1)

温度計、ジムロート冷却器、バキュームシール攪拌翼、窒素流入口、及び窒素流出口を備えた4口セパラブルフラスコに、マクロモノマー (α) を4.95 g、n-ブトキシエチルメタクリレート (3.60 g)、nC1213MAを7.20 g、イソブチルメタクリレート (29.25 g)、重合溶剤用基油を15 g、パーテトラAを0.26 g仕込み、当該仕込組成で窒素置換を行った。窒素気流下 (窒素ガス : 50 mL/分)、バス温95~105°Cにて、加熱攪拌した。1時間後、重合溶剤用基油を30 g加えた。更に、3時間後、重合溶剤用基油を135 g加え、2時間攪拌した。次いで、バス温75~85°Cに冷却し、テトラヒドロフランを150 mL加え、65~70°Cにて2時間加熱攪拌した。一晩放置し、65~70°Cにて8時間加熱攪拌し、重合溶剤用基油を225 g加え、バス温を120~130°Cまで昇温しながら、ディーンスタークを用いて、テトラヒドロフランを留去した。更に、減圧下 (0.02 MPa以下)、120~130°Cにて、2時間かけて未反応のモノマーを留去し、下記表1記載の重合体E1を含む粘度指数向上剤組成物 (E-1) を得た。

[0110] (2) 製造実施例2 (重合体E2)

製造実施例1の仕込組成について、イソブチルメタクリレート (3.60 g) をシクロヘキシルメタクリレート (3.60 g) に変更し、パーテトラAの仕込量を0.23 gに変更して、製造実施例1と同様の方法で、重合体E2を含む粘度指数向上剤組成物 (E-2) を得た。

物（E-2）を得た。

[0111] （3）製造実施例3（重合体E3）

製造実施例1の仕込組成について、イソブチルメタクリレートにn-ヘキシルメタクリレートに変更し、パーテトラAの仕込量を0.22gに変更して、窒素置換を行った。窒素気流下（窒素ガス：50mL/分）、バス温95～105℃にて、加熱攪拌した。2時間後、重合溶剤用基油を30g加え、7時間反応させた。一晩放置し、更に、バス温95～105℃にて3時間加熱攪拌し、重合溶剤用基油を135g加えた。減圧下（0.02MPa以下）、バス温120～130℃まで昇温し、2時間かけて未反応のモノマーを留去し、下記表1記載の重合体E3を含む粘度指数向上剤組成物（E-3）を得た。

[0112] （4）製造実施例4（重合体E4）

製造実施例1の仕込組成について、イソブチルメタクリレートに2-エチルヘキシルメタクリレートに変更し、パーテトラAの仕込量を0.20gに変更して、窒素置換を行った。窒素気流下（窒素ガス：50mL/分）、バス温95～105℃にて、加熱攪拌した。1時間後、重合溶剤用基油を30g加え、2時間反応させた。重合溶剤用基油を135g加え、更に2時間加熱攪拌した。一晩放置し、バス温95～105℃にて10時間加熱攪拌し、減圧下（0.02MPa以下）、バス温120～130℃まで昇温し、2時間かけて未反応のモノマーを留去し、下記表1記載の重合体E4を含む粘度指数向上剤組成物（E-4）を得た。

[0113] （5）製造比較例1（重合体C1）

温度計、ジムロート冷却器、バキュームシール攪拌翼、窒素流入口及び窒素流出口を備えた4口セパラブルフラスコに、マクロモノマー（ α ）を7.70g、n-ブトキシエチルメタクリレート5.60g、nC1213MAを11.20g、n-ブチルメタクリレート45.50g、重合溶剤用基油23.7g、パーテトラAを0.40g仕込み、窒素置換を行った。窒素気流下（窒素ガス：50mL/分）、バス温95～105℃にて、加熱

攪拌した。2時間後、重合溶剤用基油を46.3g加え、7時間反応させた。次いで、重合溶剤用基油を70g加え、更に1時間加熱攪拌した。一晩放置し、バス温95~105℃にて3時間加熱攪拌し、重合溶剤用基油を140g加えた。1時間加熱攪拌後、重合溶剤用基油を350g加え、2時間加熱攪拌した。減圧下(0.02MPa以下)、バス温120~130℃まで昇温し、2時間かけて未反応のモノマーを留去し、下記表1記載の重合体C1を含む粘度指数向上剤組成物(C-1)を得た。

[0114] (6) 製造比較例2 (重合体C2)

温度計、ジムロート冷却器、バキュームシール攪拌翼、窒素流入口及び窒素流出口を備えた4口セパラブルフラスコに、マクロモノマー(α)を5.72g、*n*-ブトキシエチルメタクリレート(4.16g)、*n*C1213MAを8.32g、*n*-ブチルメタクリレート(33.80g)、重合溶剤用基油を20g、AMBNを0.0428g、ADV Nを0.0574g仕込み、窒素置換を行った。窒素気流下(窒素ガス:50mL/分)、バス温75~85℃にて、加熱攪拌した。2時間後、重合溶剤用基油を188g加え、16時間反応させた。減圧下(0.02MPa以下)、バス温120~130℃まで昇温し、2時間かけて未反応のモノマーを留去し、下記表1記載の重合体C2を含む粘度指数向上剤組成物(C-2)を得た。

[0115] また、重合体E1、E2、E3、E4、C1、C2の質量平均分子量(M_w)、数平均分子量(M_n)、分子量分布(M_w/M_n)を表1に示す。表1中、ガラス転移温度(T_g)は、単量体(A1)のホモポリマーのガラス転移温度である。

[0116]

[表1]

表 1

		製造実施例1	製造実施例2	製造実施例3	製造実施例4	製造比較例1	製造比較例2
重合体		E1	E2	E3	E4	C1	C2
単量体 (質量%) ^{*1}	nC4MA	—	—	—	—	65	65
	iC4MA	65	—	—	—	—	—
	cC6MA	—	65	—	—	—	—
	nC6MA	—	—	65	—	—	—
	2-EHMA	—	—	—	65	—	—
	nC1213MA	16	16	16	16	16	16
	マクロモノマー(α)	11	11	11	11	11	11
	BOEMA	8	8	8	8	8	8
単量体全量(質量%)		100	100	100	100	100	100
分子量	Mn	419,161	546,902	478,883	287,954	349,745	231,990
	Mw	597,722	760,386	1,307,391	1,009,913	658,057	396,352
	Mw/Mn	1.43	1.39	2.73	3.51	1.88	1.71
ガラス転移温度Tg(°C)		53	80	10	-10	20	20
粘度指数向上剤組成物		E-1	E-2	E-3	E-4	C-1	C-2
重合体(質量%) ^{*2}		10.00	10.00	20.00	20.00	10.00	20.00
鉱油(質量%) ^{*2}		90.00	90.00	80.00	80.00	90.00	80.00

*1: 単量体全量100質量%中の各単量体の含有量(質量%)

*2: 粘度指数向上剤組成物全量100質量%中の各成分の含有量(質量%)

[0117] [実施例1～4、比較例1～2]

表2に示す配合で粘度指数向上剤組成物と基油(100°C動粘度: 4.2 mm²/s、粘度指数: 123の鉱油)とを配合して、100°C動粘度を7.5 mm²/s近傍に調整した潤滑油組成物EC-1、EC-2、EC-3、EC-4、CC-1、CC-2を調製した。そして、当該潤滑油組成物の40°C動粘度、100°C動粘度、粘度指数、-30°CにおけるCCS粘度、-35°CにおけるCCS粘度、80°CにおけるHTHS粘度、100°CにおけるHTHS粘度、及び150°CにおけるHTHS粘度を測定した。

測定結果を表2に示す。表2中の括弧内の数値は、粘度指数向上剤組成物中の樹脂分換算の含有量である。また、表2には、潤滑油組成物の100°C動粘度が同一である場合のHTHS粘度の大小を評価するため、各種温度に

におけるHTHS粘度を潤滑油組成物の100°C動粘度(KV_{100})で除した値を掲載した。

[0118] [表2]

表2

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
潤滑油組成物		EC-1	EC-2	EC-3	EC-4	CC-1	CC-2
組成 (質量%)	基油	80.85	83.85	94.76	94.59	71.00	82.76
	C-1	—	—	—	—	29.00 (2.900)	—
	C-2	—	—	—	—	—	17.24 (3.449)
	E-1	19.15 (1.915)	—	—	—	—	—
	E-2	—	16.15 (1.615)	—	—	—	—
	E-3	—	—	5.24 (1.048)	—	—	—
	E-4	—	—	—	5.41 (1.081)	—	—
物性	40°C動粘度(mm ² /s)	22.09	22.64	24.30	31.00	22.79	23.90
	100°C動粘度(mm ² /s)	7.519	7.475	7.517	7.563	7.474	7.553
	粘度指数	350	336	309	227	333	318
	CCS(-30°C), mPa s	1,620	1,550	1,520	1,590	1,640	1,680
	CCS(-35°C), mPa s	2,950	2,970	2,820	3,000	3,050	3,200
	HTHS(80°C), mPa s	5.50	5.37	5.57	5.76	5.72	5.86
	HTHS(100°C), mPa s	3.75	3.67	3.77	3.83	3.77	4.01
	HTHS(150°C), mPa s	2.31	2.10	1.95	1.94	2.63	2.82
	HTHS(80°C)/ KV_{100}	0.731	0.718	0.741	0.762	0.765	0.776
HTHS(100°C)/ KV_{100}	0.499	0.491	0.502	0.506	0.504	0.531	
HTHS(150°C)/ KV_{100}	0.307	0.281	0.259	0.257	0.352	0.373	

[0119] また、実施例1～4及び比較例1～2の潤滑油組成物の100°C動粘度の変化に対する150°CにおけるHTHS粘度の変化のプロットを図1に示し、実施例1～4及び比較例1～2の潤滑油組成物の粘度指数をグラフ化した

ものを図2に示す。なお、潤滑油組成物の100℃動粘度は、粘度指数向上剤組成物の配合量により調整した。

[0120] 図1に示す結果から、同一の100℃動粘度間で比較したときに、上記一般式(a1)において、R¹⁴がイソブチル基、シクロヘキシル基、n-ヘキシル基、及び2-エチルヘキシル基であると、R¹⁴がn-ブチル基である場合よりも150℃におけるHTHS粘度を低下させることが可能であることがわかり、特に、R¹⁴がn-ヘキシル基、及び2-エチルヘキシル基において、この効果が顕著であることがわかる。

また、図2に示す結果から、上記一般式(a1)において、R¹⁴がイソブチル基、シクロヘキシル基である場合、R¹⁴がn-ブチル基である場合よりも粘度指数を向上させることができることがわかる。

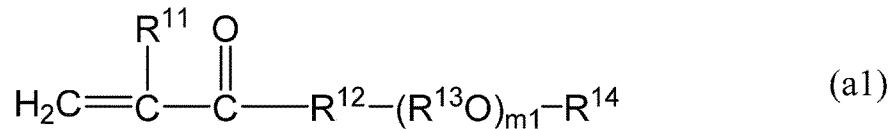
したがって、表2に掲載した各種温度におけるHTHS粘度を潤滑油組成物の100℃動粘度(KV₁₀₀)で除した値も総合的に判断すると、粘度指数向上剤を配合して潤滑油組成物の100℃動粘度を同一に調整し比較したときに、150℃におけるHTHS粘度をより低く調整しつつも、実効温度域でのHTHS粘度を低く調整する観点からは、上記一般式(a1)において、R¹⁴がn-ヘキシル基、及び2-エチルヘキシル基であることが好ましいことがわかる。また、粘度指数向上剤を配合して潤滑油組成物の100℃動粘度を同一に調整し比較したときに、150℃におけるHTHS粘度を低く調整すると共に実効温度域での潤滑油組成物のHTHS粘度をより低く調整しながらも、粘度指数を向上させる観点から、R¹⁴がイソブチル基、シクロヘキシル基であることが好ましいことがわかる。

また、粘度指数向上剤を配合して潤滑油組成物の100℃動粘度を同一に調整し比較したときに、100℃におけるHTHS粘度も低く調整しやすくする観点から、上記一般式(a1)において、R¹⁴がイソブチル基、シクロヘキシル基であることが好ましいことがわかる。

請求の範囲

[請求項1] マクロモノマー (α) 由来の構成単位と、下記一般式 (a1) で表される単量体 (A1) 由来の構成単位と、を含み、

[化1]



[上記一般式 (a1) 中、 R^{11} は、水素原子又はメチル基である。

R^{12} は、単結合、 $-\text{O}-$ 、又は $-\text{NH}-$ を示す。

R^{13} は、炭素数2~4の直鎖アルキレン基又は炭素数2~4の分岐鎖アルキレン基を示す。 m_1 は、0~20の整数を示す。 m_1 が2以上の整数の場合の複数の R^{13} は、同一であっても異なってもよく、 $(\text{R}^{13}\text{O})_{m_1}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

R^{14} は、 n -ブチル基を除く炭素数4~8のアルキル基である。

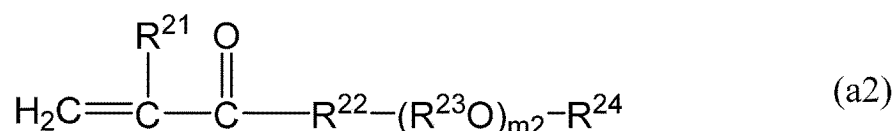
]

前記マクロモノマー (α) は、(メタ)アクリロイル基を片末端に有すると共に、ブタジエン及び水素化ブタジエンから選ばれる1種以上の単量体 (α_1) に由来する構成単位を有する、楕形ポリマー (A) を含有する、粘度指数向上剤組成物。

[請求項2] 前記楕形ポリマー (A) における前記単量体 (A1) 由来の構成単位の含有量が、全構成単位基準で、60質量%以上である、請求項1に記載の粘度指数向上剤組成物。

[請求項3] 前記楕形ポリマー (A) が、下記一般式 (a2) で表される単量体 (A2) 由来の構成単位をさらに含む、請求項1又は2に記載の粘度指数向上剤組成物。

[化2]



[上記一般式 (a 2) 中、 R^{21} は水素原子又はメチル基である。

R^{22} は、単結合、 $-O-$ 、又は $-NH-$ を示す。

R^{23} は、炭素数2～4の直鎖アルキレン基又は炭素数2～4の分岐鎖アルキレン基を示す。 m_2 は、1～20の整数を示す。 m_2 が2以上の整数の場合の複数の R^{23} は、同一であっても異なってもよく、 $(R^{23}O)_{m_2}$ 部分はランダム共重合でもブロック共重合でもよい。

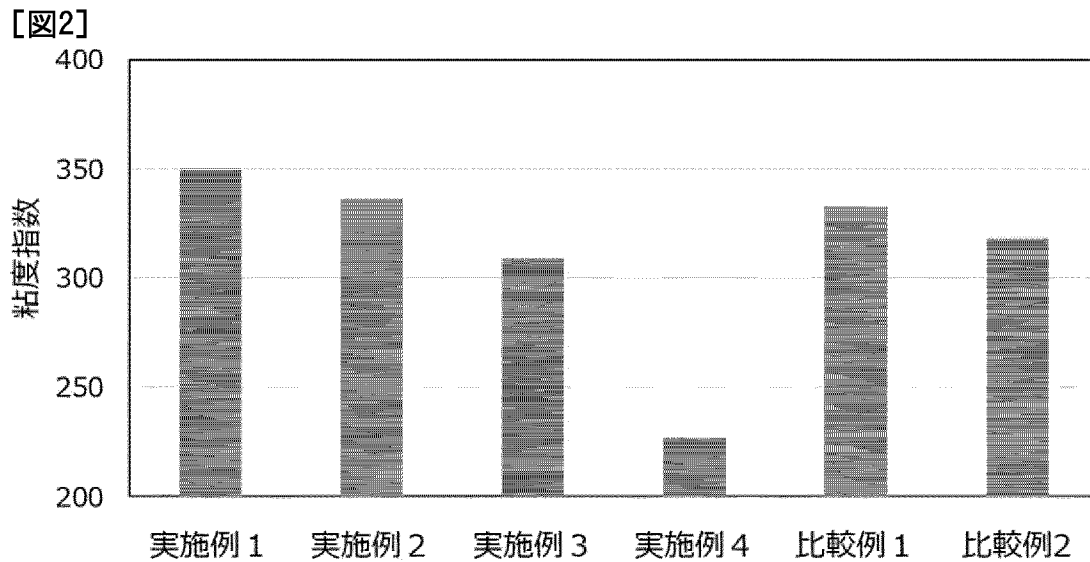
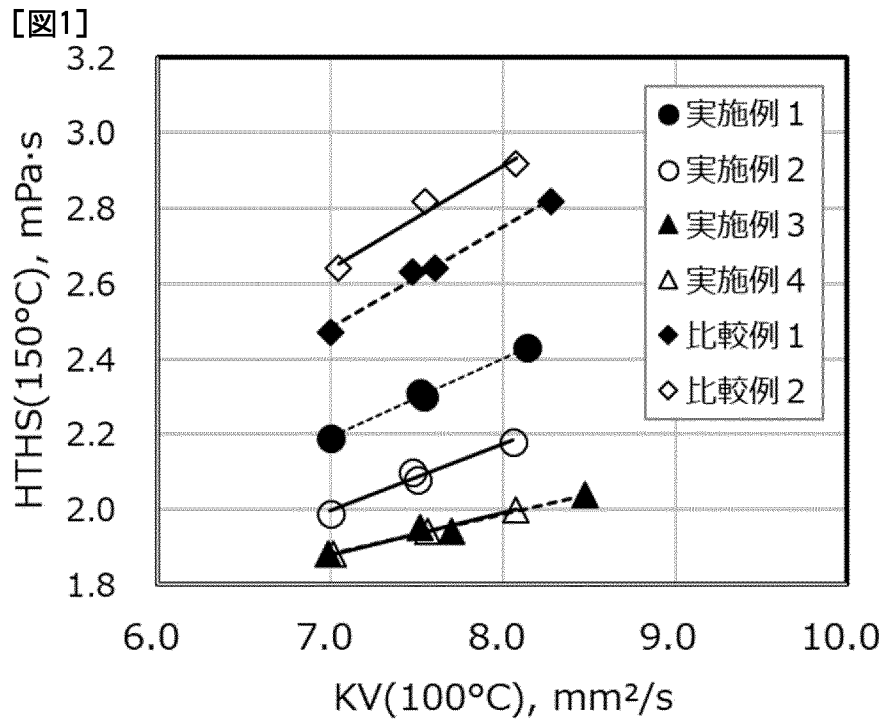
R^{24} は、炭素数1～12の直鎖アルキル基又は炭素数1～12の分岐鎖アルキル基である。]

[請求項4] 前記楕形ポリマー (A) が、炭素数10～30の直鎖アルキル基又は炭素数10～30の分岐鎖アルキル基を有するアルキル (メタ) アクリレート (A3) 由来の構成単位をさらに含む、請求項1～3のいずれか1項に記載の粘度指数向上剤組成物。

[請求項5] 前記楕形ポリマー (A) の質量平均分子量 (Mw) が、30万以上150万以下である、請求項1～4のいずれか1項に記載の粘度指数向上剤組成物。

[請求項6] 前記楕形ポリマー (A) の分子量分布 (Mw/Mn) が、1.2以上3.7以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載の粘度指数向上剤組成物。

[請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の粘度指数向上剤組成物と、基油とを含有する、潤滑油組成物。



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/036145

<p>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C10M 169/04(2006.01)i; C10N 20/04(2006.01)n; C10N 30/00(2006.01)n; C10N 30/02(2006.01)n; C10N 40/25(2006.01)n; C10M 145/14(2006.01)i; C10M 149/06(2006.01)i FI: C10M145/14; C10M149/06; C10M169/04; C10N20:04; C10N30:02; C10N30:00 Z; C10N40:25 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC</p>																	
<p>B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C10M169/04; C10N20/04; C10N30/00; C10N30/02; C10N40/25; C10M145/14; C10M149/06, C08F290/00 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 1971-2020 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAplus/REGISTRY (STN)</p>																	
<p>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</p> <table border="1" style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <thead> <tr> <th style="width:10%;">Category*</th> <th style="width:70%;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="width:20%;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td align="center">X</td> <td>JP 6-306130 A (ROEHM GMBH) 01 November 1994 (1994-11-01) claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]</td> <td align="center">1-2, 4-7</td> </tr> <tr> <td align="center">A</td> <td>claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]</td> <td align="center">3</td> </tr> <tr> <td align="center">X</td> <td>JP 2019-23270 A (NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) 14 February 2019 (2019-02-14) claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3</td> <td align="center">1-2, 4-7</td> </tr> <tr> <td align="center">A</td> <td>claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3</td> <td align="center">3</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	JP 6-306130 A (ROEHM GMBH) 01 November 1994 (1994-11-01) claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]	1-2, 4-7	A	claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]	3	X	JP 2019-23270 A (NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) 14 February 2019 (2019-02-14) claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3	1-2, 4-7	A	claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3	3
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.															
X	JP 6-306130 A (ROEHM GMBH) 01 November 1994 (1994-11-01) claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]	1-2, 4-7															
A	claims 1, 3, paragraphs [0021]-[0032], [0043]-[0045], [0057], [0065]-[0069]	3															
X	JP 2019-23270 A (NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.) 14 February 2019 (2019-02-14) claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3	1-2, 4-7															
A	claims 1, 6, paragraphs [0026]-[0028], [0084], [0137], [0141], [0156], table 3	3															
<p><input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.</p>																	
<p>* 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 "I" 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</p>																	
Date of the actual completion of the international search 11 November 2020 (11.11.2020)		Date of mailing of the international search report 24 November 2020 (24.11.2020)															
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.															

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/036145

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 6-306130 A	01 Nov. 1994	US 5565130 A claims, column 4, line 1 to column 5, line 3, column 6, line 57 to column 7, line 15, column 9, line 40 to column 10, line 64 EP 621293 A1 DE 4312715 A AT 268787 T	
JP 2019-23270 A	14 Feb. 2019	US 2019/0211281 A1 claims, paragraphs [0037]-[0038], [0112]-[0113], [0194]-[0195], [0207], table 3 WO 2018/056316 A1	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C10M 169/04(2006.01)i; C10N 20/04(2006.01)n; C10N 30/00(2006.01)n; C10N 30/02(2006.01)n; C10N 40/25(2006.01)n; C10M 145/14(2006.01)i; C10M 149/06(2006.01)i FI: C10M145/14; C10M149/06; C10M169/04; C10N20:04; C10N30:02; C10N30:00 Z; C10N40:25		
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）） C10M169/04; C10N20/04; C10N30/00; C10N30/02; C10N40/25; C10M145/14; C10M149/06, C08F290/00 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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語） CAplus/REGISTRY (STN)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 6-306130 A (レーム ゲゼルシャフト ミット ベシユレンクテル ハフツング) 01.11.1994 (1994-11-01) 請求項1, 請求項3, 段落0021-段落0032, 段落0043-段落0045, 段落0057, 段落0065-段落0069	1-2, 4-7
A	同上	3
X	JP 2019-23270 A (株式会社日本触媒) 14.02.2019 (2019-02-14) 請求項1, 請求項6, 段落0026-段落0028, 段落0084, 段落0137, 段落0141, 段落0156, 表3	1-2, 4-7
A	同上	3
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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、一般的な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抵触するものではなく、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 11.11.2020	国際調査報告の発送日 24.11.2020	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 齊藤 光子 4V 3030 電話番号 03-3581-1101 内線 3483	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/036145

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 6-306130 A	01.11.1994	US 5565130 A 特許請求の範囲, 第4欄1行- 第5欄3行, 6欄57行-7欄15 行, 第9欄40行-第10欄64行 EP 621293 A1 DE 4312715 A AT 268787 T	
JP 2019-23270 A	14.02.2019	US 2019/0211281 A1 特許請求の範囲, 段落0037- 段落0038, 段落0112-段落 0113, 段落0194-段落0195, 段 落0207, TABLE3 WO 2018/056316 A1	