(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)公開番号
特開2023-67819
(P2023-67819A)
(43)公開日　令和5年5月16日(2023.5.16)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
Ｃ１０Ｍ　169/04	*(2006.01)*	Ｃ１０Ｍ	169/04	４Ｈ１０４
Ｃ１０Ｍ　133/04	*(2006.01)*	Ｃ１０Ｍ	133/04	
Ｃ１０Ｍ　137/12	*(2006.01)*	Ｃ１０Ｍ	137/12	
Ｃ１０Ｍ　129/26	*(2006.01)*	Ｃ１０Ｍ	129/26	
Ｃ１０Ｍ　129/54	*(2006.01)*	Ｃ１０Ｍ	129/54	

審査請求　未請求　請求項の数　40　ＯＬ　外国語出願　（全46頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2022-171579(P2022-171579)
(22)出願日　令和4年10月26日(2022.10.26)
(31)優先権主張番号　21205667.5
(32)優先日　令和3年10月29日(2021.10.29)
(33)優先権主張国・地域又は機関
欧州特許庁(EP)

(71)出願人　500010875
インフィニューム インターナショナル リミテッド
イギリス オックスフォードシャー オーエックス１３　６ビービー アービングドン ミルトン ヒル ピーオーボックス　１
(74)代理人　100094569
弁理士　田中 伸一郎
(74)代理人　100103610
弁理士　▲吉▼田 和彦
(74)代理人　100109070
弁理士　須田 洋之
(74)代理人　100119013
弁理士　山崎 一夫
(74)代理人　100123777
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　二酸化窒素汚染による化学分解を制限する方法

(57)【要約】　（修正有）
【課題】高温での運転における二酸化窒素汚染による炭化水素液の化学分解を制限するための添加剤組成物および制限する方法を提供する。
【解決手段】炭化水素液用の添加剤組成物であって、前記添加剤組成物はイオン液及び洗浄剤添加剤を含み、前記イオン液は：（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオンを含み；前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含み；前記添加剤組成物は更に任意にキャリア液又は希釈剤を含む、添加剤組成物とする。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
炭化水素液用の添加剤組成物であって、前記添加剤組成物はイオン液及び洗浄剤添加剤を含み、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含み；前記添加剤組成物は更に任意にキャリア液又は希釈剤を含む、添加剤組成物。
【請求項２】
炭化水素液組成物であって、前記炭化水素液組成物は主量の炭化水素液、並びに少量の洗浄剤添加剤及び少量のイオン液を含み、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含む、炭化水素液組成物。
【請求項３】
前記イオン液の前記各カチオン（ｉ）は窒素を含有する、請求項１又は２に記載の組成物。
【請求項４】
前記各カチオン（ｉ）は、置換アンモニウムカチオン、又は窒素を組み込んでカチオン電荷を有する脂環式もしくは芳香環系から成る、請求項３に記載の組成物。
【請求項５】
前記各カチオン（ｉ）は四置換アンモニウムカチオンである、請求項３又は４に記載の組成物。
【請求項６】
前記イオン液の前記各カチオン（ｉ）は窒素を含まない、請求項５に記載の組成物。
【請求項７】
前記イオン液の前記各カチオン（ｉ）は、カチオン電荷を有するテトラヒドロカルビル置換中心原子又は環系から成る、請求項６に記載の組成物。
【請求項８】
前記イオン液の前記各カチオン（ｉ）はテトラアルキル置換ホスホニウムカチオンである、請求項７に記載の組成物。
【請求項９】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まない、請求項１～８のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項１０】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）はカルボキシレート官能基を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項１１】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）はヘキサン酸アニオンである、請求項１０に記載の組成物。

【請求項１２】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）はカルボキシレート基、及び更にヘテロ原子含有官能基を含む、請求項１０に記載の組成物。
【請求項１３】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）は、芳香環であるヒドロカルビル基を含み、前記環はカルボキシレート基及び更にヘテロ原子含有官能基を有し、これらの官能基は前記芳香環と共役し、この共役系はアニオン電荷を有する、請求項１２に記載の組成物。
【請求項１４】
前記イオン液の前記１種以上のアニオン（ｉｉ）は１種以上のサリチル酸アニオンである、請求項１３に記載の組成物。
【請求項１５】
前記イオン液の前記各アニオン（ｉｉ）の前記芳香環は、更に１つ以上の直鎖又は分岐鎖アルキル置換基を有する、請求項１３に記載の組成物。
【請求項１６】
前記イオン液の前記１種以上のアニオン（ｉｉ）は１種以上のアルキル置換サリチル酸アニオンであり、前記各アニオンの前記アルキル置換基はそれぞれ独立して、炭素原子数が１２～２４個のアルキル基から選択される、請求項１５に記載の組成物。
【請求項１７】
前記イオン液の前記各カチオン（ｉ）はトリヘキシルテトラデシル‐ホスホニウムカチオンである、請求項１１、１４、及び１６のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項１８】
前記洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換芳香族酸又はフェノールの１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、請求項１～１７のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項１９】
前記洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換ベンゼンスルホン酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、請求項１８に記載の組成物。
【請求項２０】
前記洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換ヒドロキシ安息香酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、請求項１８に記載の組成物。
【請求項２１】
前記洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のアルカリ土類金属塩である、請求項２０に記載の組成物。
【請求項２２】
前記洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のマグネシウム塩である、請求項２１に記載の組成物。
【請求項２３】
前記洗浄剤活性成分を構成する前記各サリチル酸塩の前記アルキル置換基はそれぞれ独立して、炭素原子数が９～３０個であるアルキル基から選択される、請求項２１又は２２に記載の組成物。
【請求項２４】
無灰分散剤添加剤、好ましくはリン含有化合物を更に含む請求項１～２３のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項２５】
前記炭化水素液は潤滑油、より好ましくは内燃機関用のクランク室潤滑油である、請求項２、又は請求項２と合わせて読む場合の、請求項３～２４のいずれか１項に記載の組成物。
【請求項２６】

６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の化学分解を制限する方法であって、前記分解は運転中の二酸化窒素汚染から生じる前記液体の硝化により開始され、前記方法は：
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に適し、老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない、炭化水素液を調製、又は新しく調製した炭化水素液を取得する工程；並びに
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に先立って、イオン液及び洗浄剤添加剤を前記炭化水素液に添加する工程であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中、前記イオン液及び洗浄剤活性成分を、その後に前記炭化水素液の硝化を阻害するために協働的に有効な量で添加する工程；並びに
前記炭化水素液を運転に供し、それにより前記イオン液及び前記洗浄剤添加剤は、結果として生じる前記液体の化学分解を制限する工程
を含む、方法。
【請求項２７】
前記化学分解は、６０～１８０℃のバルク液温度で二酸化窒素での前記炭化水素液の硝化により運転中に形成される炭化水素系硝酸エステルの分解に起因するものであり；前記イオン液及び前記洗浄剤活性成分はその運転の際に前記炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する、請求項２６に記載の方法。
【請求項２８】
前記炭化水素系硝酸エステルの分解は、前記炭化水素液を運転中、周期的又は連続的に１１０～１６０℃のバルク液温度に供することに起因し；前記イオン液及び前記洗浄剤活性成分はその運転の際に前記炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する、請求項２７に記載の方法。
【請求項２９】
運転中の前記炭化水素系硝酸エステル形成の阻害は、それぞれ同じ量のイオン液又は洗浄剤活性成分単独で観察された硝酸エステルピークと比較して前記イオン液及び前記洗浄剤活性成分の複合的な存在下で硝酸エステルピーク領域が低いことを観察することにより判断し、前記ピーク領域は、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って、赤外線分光法で測定する、請求項２７又は２８に記載の方法。
【請求項３０】
硝化の阻害を協働的に達成するために前記炭化水素液に添加するイオン液及び洗浄剤活性成分の量は、前記イオン液では前記炭化水素液の質量当たり０．１～５．０質量％であり、前記洗浄剤活性成分では前記炭化水素液の質量当たり０．２～５．０質量％である、請求項２６～２９のいずれか１項に記載の方法。
【請求項３１】
前記イオン液及び前記洗浄剤添加剤は、請求項１、又は請求項１と合わせて読む場合の、請求項３～２４のいずれか１項に記載の前記添加剤組成物の形態で添加する、請求項２６～３０のいずれか１項に記載の方法。
【請求項３２】
前記炭化水素液は潤滑油である、請求項２６～３１のいずれか１項に記載の方法。
【請求項３３】

炭化水素液の化学分解を、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に制限するための、イオン液と洗浄剤添加剤との協働的使用であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
前記化学分解は、運転中の二酸化窒素汚染から生じる炭化水素液の硝化により開始され；
前記イオン液及び前記洗浄剤添加剤を、運転前に、老化成分及び二酸化窒素を含まない前記炭化水素液に添加し、その後、前記イオン液及び前記洗浄剤活性成分は、二酸化窒素汚染の存在下、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に前記炭化水素液の硝化を阻害する、協働的使用。
【請求項３４】
前記イオン液及び前記洗浄剤添加剤は、請求項１、又は請求項１と合わせて読む場合の、請求項３～２４のいずれか１項に記載の前記添加剤組成物の形態で添加する、請求項３３に記載の使用。
【請求項３５】
６０～１８０℃のバルク液温度での運転において運転での二酸化窒素汚染に起因する炭化水素液の硝化を阻害するためのイオン液添加剤の効力を高めるための、活性成分としてヒドロカルビル置換した１種以上の中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤の使用であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転及び二酸化窒素汚染への曝露の前に、前記イオン液添加剤を含有する前記炭化水素液に添加する、使用。
【請求項３６】
前記炭化水素液は潤滑油である、請求項３３～３５のいずれか１項に記載の使用。
【請求項３７】
前記洗浄剤活性成分は請求項１８～２３のいずれか１項で特定した特徴を有し、前記イオン液は請求項３～１７のいずれか１項で特定した特徴を有する、請求項２６～３６のいずれか１項に記載の方法又は使用。
【請求項３８】
前記洗浄剤活性成分は請求項２０～２３のいずれか１項で特定した特徴を有する、請求項２６～３７のいずれか１項に記載の方法又は使用。
【請求項３９】
前記イオン液は請求項１３～１７のいずれか１項で特定した特徴を有する、請求項２６～３８のいずれか１項に記載の方法又は使用。
【請求項４０】
前記方法又は使用から得られる前記炭化水素液は更に、無灰分散剤添加剤、及び好ましくはリン含有化合物を含む、請求項２６～３９のいずれか１項に記載の方法又は使用。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】

【０００１】
本発明は、高温での運転における二酸化窒素汚染による炭化水素液の化学分解を制限する方法に関する。この方法は基本的に、所定のイオン液及び洗浄剤添加剤を含む添加剤組成物を炭化水素液に添加することを含み、このイオン液と洗浄剤との組み合わせは、分解を開始する二酸化窒素による炭化水素液の硝化を阻害するように働く。
【背景技術】
【０００２】
炭化水素液は、様々な機械装置用途において運転流体として使用され、特に、潤滑剤、保護剤、油圧流体、グリース、並びに工学部品及び装置の熱伝達流体として使用されている。このような液体の組成及び特性は、その意図する用途に応じて選択し、高分子量の炭化水素種がすぐに利用できるため、このような流体は、水性流体が使用できなくなる高温、特に１００℃を超える運転用に調合することが可能になる。
このような炭化水素液は通常、石油もしくは合成源から、又はバイオマテリアルなどの再生可能材料の処理から得てもよい。特に、炭化水素系潤滑剤及び油圧流体は、エンジン潤滑油のような自動車用及び動力伝達用流体などの様々な用途において標準となってきている。
運転液の基本的な性能特性とは、その運用寿命に渡って有益な特性を保持する能力のことである。過酷条件下での運転は液体に物理的及び化学的な負担を掛け、その結果生じる液体分解を制限することは、液体の選択及び調合の際の主要な検討事項である。運転流体は通常、運用寿命の維持に関連する開発及び認証において多くの性能要件を満たす必要があり、候補となる液体は、分解を促進する関連運転条件下での試験に供する。
運転温度が高く、化学反応性汚染物質が存在すると、炭化水素液への要求が高まる。バルク液体の温度が高く反応性汚染物質が蓄積すると、分解反応が促進され、運用寿命が深刻に減少し、液体による周囲の機械装置の運転又は保護が十分にできなくなる可能性がある。
当技術分野では一般的に、運転条件下でバルク中での化学分解に対する耐性を向上させることにより、上昇したバルク温度で運転する炭化水素液、特に潤滑剤の運用寿命を向上させることが求められている。
【０００３】
炭化水素液の分解、特に高温バルク温度での分解は通常、当技術分野では「酸化」と呼ばれてきた。この酸化は、分解の原因となる化学反応が基本的に、運転中にその場で形成される過酸化物を含むフリーラジカル経路を介して老化炭化水素種と酸素との反応に関与しているという従来の理解に基づく。これらの老化炭化水素種が時間と共に蓄積されると、液体の分解が進み、バルク液体の特性や運転性能が劣化する。従来「抗酸化剤」と呼ばれてきた様々な添加剤が当技術分野で提案されてきた。抗酸化剤はこの酸化経路を阻害し、炭化水素可溶性ヒンダードフェノール及びアミンを含み、運転中での液体老化に伴う結果的な酸化分解の蓄積を遅らせる。
【０００４】
しかし、本出願人による研究は、老化成分を含まない新しく調製した炭化水素流体において発現する別の化学分解経路を特徴付けた。この分解は、酸素又は過酸化物との反応によってではなく、運転中の汚染で液体中に取り込まれた二酸化窒素の高温での直接的な化学作用から開始する。二酸化窒素は炭化水素液との硝化反応を介して化学分解を開始し、この反応により、液体がまだ新しいうちに始まる過程で液体が大幅に破壊されることが分かっている。二酸化窒素はまた、バルク液体環境内で硝酸へと酸化し、液体、及びそれを保護するように設計した機械装置への酸性攻撃を引き起こす可能性がある。その結果、高温での炭化水素液中の二酸化窒素汚染による分解効果を制限する特定の必要性が存在する。この分解効果は運用寿命の早い段階で分解を引き起こし、また従来の酸素由来酸化により起こる問題を悪化させる可能性もある。
二酸化窒素によるこのような汚染は、炭化水素液が運転中に二酸化窒素の供給源に曝露される場合に生じる。二酸化窒素（NO_2）は、例えば燃焼反応中に、高頻度に酸化窒素

（ＮＯ）の中間体形成を介して、高温に曝露されたときに空気中の自然に存在する窒素と酸素との反応を経て形成される。二酸化窒素は、石油又は多くの生物源由来の燃料の燃焼生成物でもある。石油及び生物源はどちらも多量の結合窒素を含有し、結合窒素は完全燃焼時に二酸化窒素として放出され、それに接触する運転液に取り込まれる可能性がある。このような曝露は：燃焼装置、例えば、二酸化窒素を生成し、排気ガスに曝露した炭化水素液により潤滑される内燃機関；特に、シリンダ領域においてエンジン表面上に存在しながら排気ガスと直接接触し、また、吹き抜け排気ガスを介して、ピストンリングを越えてクランク室油貯蔵部に二酸化窒素を誘導するクランク室潤滑油：で特に多く発生し、そこで二酸化窒素は潤滑剤と共に取り込まれる。

エンジンの燃料効率を向上させ、炭素質粒子状物質の排出を最小限に抑えることを目的とした現代のエンジン及び後処理の開発により、燃焼温度が高くなり、「ＮＯｘ‐微粒子交換」として知られる効果により、エンジン排出排気ガス中に高レベルの二酸化窒素が生じるようになった。エンジン温度が高くなると、バルク潤滑剤運転温度も高くなり、二酸化窒素により開始される化学分解が増加する条件となる。

また、現代は内燃機関の燃費を向上させることに的を絞っており、従ってピストンリングとシリンダ裏面との間の隙間を大きく設計することにより内部摩擦を低減する設計となり、その結果、ピストンリングがクランク室に吹き込む排気ガスの量が増え、排気ガスがバルクエンジン潤滑剤に取り込まれる自走エンジンがもたらされた。

【０００５】

従って、高温での運転中に二酸化窒素汚染を受けた炭化水素液は、液体寿命の初期に作用して炭化水素の従来の酸化では開始されないような化学的硝化経路が原因で、特定の課題に直面している。この課題は、エンジン用潤滑剤の場合に特に深刻であり、この場合、様々な工学的手段が、高い動作温度におけるバルク潤滑剤への二酸化窒素の取り込みの程度を大きくしている。結果として生じる硝化経路は、６０～１８０℃のバルク液温度で特に顕著であり、１１０～１６０℃のバルク液温度で特に深刻であり、この温度は、厳しい動作条件又は現代の高温走行エンジン設計で使用するクランク室潤滑剤では、より顕著になっており、従って潤滑剤分解に対するこの化学経路の影響は悪化していると本出願人は判断している。

本発明は、二酸化窒素を不活性化し、それにより炭化水素液の硝化を阻害する特定の協働能力を有する所定のイオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせの配合を通じて、この課題に対する解決策を提供する。この予想外の作用を通じて、イオン液と洗浄剤添加剤との所定の組み合わせは、硝化が開始する化学分解を制限し、炭化水素液の運用寿命を向上させる。

本発明ではまた、特に分散剤添加剤の存在下で、分散剤が従来のリン系抗酸化剤の効果を中和するような二酸化窒素汚染条件下で、油剤中の酸化が予想外に制御される。

【０００６】

炭化水素系運転液における化学分解の物理的結果の１つは、運転中の液体粘度の増加である。この粘度の増加により、液体は指定の粘度基準を満たせなくなり、液体をすぐに早期交換しなければならなくなる可能性がある。本発明で定義したイオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせを含む添加剤組成物の配合により、運転時の粘度増加を制限し、粘度増加の結果としての運用寿命の制限を抑制するという利点がもたらされる。

多くの炭化水素液、とりわけエンジン潤滑剤などの潤滑剤は、液体中の酸種の形成に起因する酸化過程が引き起こす酸性度の増加、及びその後の酸性腐食又は摩耗を制御するために調合する。従って、運用寿命に渡る酸種の蓄積を制御することはこのような液体にとって更なる利点となる。本発明で定義したイオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせを含む添加剤組成物の配合により、液体中の酸蓄積の制御が向上するという利点がもたらされ、調合者には改良した運転液を調製できるというこの追加の利点ももたらされる。

【０００７】

従って、本発明で定義したイオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせにより、炭化水素液の添加剤として使用するために当技術分野で従来考えられていた従来の抗酸化剤及び他の

イオン液を凌ぐ利点がもたらされ、運転液性能及び運用寿命を高める特性の範囲が広がる。洗浄剤添加剤の共存により、所定のイオン液のみの有利な効果よりも性能が良好になり、運用寿命や本発明の他の利点が向上する。

好ましい実施形態では、イオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせを無灰分散剤添加剤と合わせて配合し、この３成分の組み合わせは、その効果を有益にするための分散剤の使用を可能にしながら、二酸化窒素汚染から生じる硝化を特に有利に制御する。

米国特許第８，２７８，２５３号明細書では、添加剤量のイオン液を添加することにより潤滑油の耐酸化性を強化している。この発明及び実施例１の記述から、その方法は、本発明が扱う二酸化窒素由来の分解ではなく、ヒドロ過酸化物による酸化を低減することに的を絞っていることが明確に分かる。イオン液の可能な構成要素として、非常に多様なカチオン及びアニオンが別途収載されているが、そのうち好ましいアニオン及び実施例における全てのアニオンはフッ素を含有する非芳香族構造体であり、その大部分は更にホウ素を含む。この文献は、本発明のイオン液に必要な所定のカチオン‐アニオンの組み合わせを開示しておらず、新品の老化していない油剤の二酸化窒素による硝化を阻害する利点、及び他の関連する特性を向上させる利点は教示していない。

【０００８】

国際公開第２００８／０７５０１６号は、非水性潤滑油組成物用のイオン液添加剤に関する。このイオン液添加剤は、摩耗の低減及び／又は摩擦特性の改変を目的としており、非ハロゲン化物や非芳香族イオン液として定義されている。ここではアニオンA⁻は少なくとも１つの酸素原子を含み、少なくとも１つのアルキル基又は脂環式ヒドロカルビル基に結合したイオン性ヘッド基を有する。この文献も、本発明のイオン液に必要である所定のカチオン‐芳香族アニオンの組み合わせを開示しておらず、新品の老化していない油剤の二酸化窒素による硝化を阻害する利点、及び他の関連する特性を向上させる利点は教示していない。

国際公開第２０１３／１５８４７３号は、イオン液を含む潤滑剤組成物及びそのような組成物を使用する方法に関するものであり、内燃機関における堆積物及びスラッジ形成を最小限にすることを目的としている。研究例は、潤滑油の試験前老化後に発生する高温堆積物形成を対象とし、その際、新品の油剤を多量の使用済み潤滑剤とブレンドし、そこに乾燥空気／二酸化窒素混合物を散布し、その後、模擬排気ガスに曝露しながら少なくとも２００℃、最適には３２０℃に加熱した金属表面上で堆積物生成工程を実施する。イオン液は、１組の窒素含有カチオン、Ｙがアルキル又は芳香族である構造体ＹＣＯＯ（－）で表されるアニオン、好ましくは炭素原子１～５０個のアルキル又はアルコキシル官能基、又はベンゼン基、又は前記アルキル基（単数又は複数）の炭素原子数が１～１０個であるアルキル化ベンゼン基を含む。この文献は、本発明で配合したイオン液の所定のカチオン‐アニオンの組み合わせを開示しておらず、２００℃未満のバルク液温度で新品の老化していない油剤の二酸化窒素による硝化を阻害する利点、及び他の関連する特性を向上させる利点は教示していない。

【０００９】

米国特許第２０１０／０１８７４８１号明細書は、合成油、鉱物油、又は天然油の潤滑効果を向上させるためのイオン液の使用に関する。この発明は、得られた潤滑剤組成物を熱的及び酸化的攻撃から保護することを開示している。このイオン液は、有機系へ溶解性があり、又は蒸気圧が極めて低いことから、熱的及び酸化的安定剤としてフェノール系又はアミン系の抗酸化剤より優れていると述べられている。イオン液の好ましいアニオンは、熱安定性が高いために高度にフッ化し、例えばビス（トリフルオロメチルスルホニル）イミドなどが挙げられ、二酸化窒素による分解の制御に関しては言及又は明言化していない。

【００１０】

本出願人は現在、所定のカチオン、並びにハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない所定のアニオンを含むイオン液と；活性成分として１つ以上のヒドロカルビル置換中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤との組み合わせを添加量で配合することにより、高温で

の二酸化窒素汚染による炭化水素液の硝化を阻害でき、新品で、運転により老化していない場合でさえ炭化水素液の化学分解を制限できる方法がもたらされることを見い出している。この方法により、このような汚染に遭遇する運転液の寿命は延び、本明細書で詳述するように、先行技術を凌ぐ更なる利点がもたらされる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【００１１】

【特許文献１】米国特許第８，２７８，２５３号明細書
【特許文献２】国際公開第２００８／０７５０１６号
【特許文献３】国際公開第２０１３／１５８４７３号
【特許文献４】米国特許第２０１０／０１８７４８１号明細書
【特許文献５】米国特許第２００８／０２５１７５９号明細書
【特許文献６】米国特許第６，１５３，５６５号明細書
【特許文献７】米国特許第６，２８１，１７９号明細書
【特許文献８】米国特許６，４２９，１７８号明細書
【特許文献９】米国特許第３，２０２，６７８号明細書
【特許文献１０】米国特許第３，１５４，５６０号明細書
【特許文献１１】米国特許第３，１７２，８９２号明細書
【特許文献１２】米国特許第３，０２４，１９５号明細書
【特許文献１３】米国特許第３，０２４，２３７号明細書
【特許文献１４】米国特許第３，２１９，６６６号明細書
【特許文献１５】米国特許第３，２１６，９３６号明細書
【特許文献１６】米国特許第３，０８７，９３６号明細書
【特許文献１７】米国特許第３，２５４，０２５号明細書
【特許文献１８】欧州特許出願公開第０９０　６４２号明細書
【特許文献１９】米国特許第３，１１３，９８６号明細書
【特許文献２０】米国特許第３，７００，６３３号明細書
【特許文献２１】米国特許第３，６３４，５９５号明細書
【特許文献２２】米国特許第３，６７０，０５４号明細書
【特許文献２３】米国特許第３，７００，６３３号明細書
【特許文献２４】米国特許再発行第２７，１４５号

【非特許文献】

【００１２】

【非特許文献１】Ｃｏｕｌｔａｓ、Ｄ．Ｒ．「Ｔｈｅ　Ｒｏｌｅ　ｏｆ　ＮＯｘ　ｉｎ　Ｅｎｇｉｎｅ　Ｌｕｂｒｉｃａｎｔ　Ｏｘｉｄａｔｉｏｎ」、ＳＡＥ　Ｔｅｃｈｎｉｃａｌ　Ｐａｐｅｒ、２０２０年、２０２０‐０１４２７号、デジタルオブジェクト識別子（ｄｏｉ）：１０．４２７１／２０２０‐０１‐１４２７
【非特許文献２】米国石油協会（ＡＰＩ）発行の「Ｅｎｇｉｎｅ　Ｏｉｌ　Ｌｉｃｅｎｓｉｎｇ　ａｎｄ　Ｃｅｒｔｉｆｉｃａｔｉｏｎ　Ｓｙｓｔｅｍ（「ＥＬＯＣＳ」）、Ｉｎｄｕｓｔｒｙ　Ｓｅｒｖｉｃｅｓ部門、１９９６年１２月、第１４版、付録１、１９９８年１２月

【発明の概要】

【００１３】

第１態様では、本発明は炭化水素液用の添加剤組成物を提供する。前記添加剤組成物は、イオン液及び洗浄剤添加剤を含み、前記イオン液は：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上の１つ以上のヘテロ原子含有官能基及びヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン

を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含み；前記添加剤組成物は更にキャリア液又は希釈剤を含む。
第２態様では、本発明は、主量の炭化水素液、並びに少量のイオン液及び洗浄剤添加剤を含む炭化水素液組成物を提供する。前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含む。
【００１４】
第３態様では、本発明は、６０～１８０℃のバルク液温度で運転中に炭化水素液の化学分解を制限する方法を提供する。前記分解は運転中の二酸化窒素汚染から生じる液体の硝化により開始され、前記方法は：
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に適し、老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない、炭化水素液を調製、又は新しく調製した炭化水素液を取得する工程；並びに
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に先立って、イオン液及び洗浄剤添加剤を前記炭化水素液に添加する工程であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中、前記イオン液及び洗浄剤活性成分を、その後に炭化水素液の硝化を阻害するために協働協働的に有効な量で添加する工程；並びに
前記炭化水素液を運転に供し、それによりイオン液及び洗浄剤添加剤は、結果として生じる液体の化学分解を制限する工程
を含む。
【００１５】
第４態様では、本発明は、イオン液と洗浄剤添加剤との協働的使用を提供する。前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
運転中の二酸化窒素汚染から生じる炭化水素液の硝化により開始される炭化水素液の化学分解を、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に制限し；
イオン液及び洗浄剤添加剤を、運転前に、老化成分及び二酸化窒素を含まない炭化水素液に添加し、その後、イオン液及び洗浄剤活性成分は、二酸化窒素汚染の存在下、６０～

１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害する。
【００１６】
第５態様では、本発明は、活性成分として、ヒドロカルビル置換した１種以上の中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤の使用を提供する。前記使用は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転において運転での二酸化窒素汚染に起因する炭化水素液の硝化を阻害するためのイオン液添加剤の効力を高めることを目的とし、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
洗浄剤添加剤は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転及び二酸化窒素汚染への曝露の前に、イオン液添加剤を含有する炭化水素液体に添加する。
【００１７】
本発明の更なる態様は、炭化水素液中におけるイオン液と洗浄剤添加剤との協働的使用である。前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、ヒドロカルビル置換した１種以上の中性又は過塩基性金属塩を含み；
前記使用は：
（ａ）運転の間、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の化学的酸化を阻害すること；及び／又は
（ｂ）運転の間、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の動粘度の増加を阻害すること；及び／又は
（ｃ）運転の間、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の総酸価の増加を阻害すること
を目的とし；
各使用では、運転前に、老化成分及び二酸化窒素を含まない炭化水素液にイオン液及び洗浄剤添加剤を添加し、その後、イオン液及び洗浄剤は、二酸化窒素汚染の存在下、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液において老化成分及び二酸化窒素の影響を阻害する。
【００１８】
好ましくは、第１及び第２態様の組成物は更に無灰分散剤添加剤を含む。また好ましくは、残りの各態様の方法及び使用は、無灰分散剤添加剤を追加して展開する。
以下、本発明のこれらの様々な態様の好ましい実施形態について説明する。
本明細書はまた、以下の図を参照する。
【図面の簡単な説明】
【００１９】
【図１】以下の実施例３．２で詳述する試験においてイオン液及び他の添加剤を含有する潤滑油組成物から得られた試験終了時の動粘度の結果を示す図である；
【図２】以下の実施例３．３で詳述する試験においてイオン液を含有する潤滑油組成物の試験終了時の総酸価を示す図である。
【発明を実施するための形態】
【００２０】

使用する種々の必須成分、更に任意成分及び慣用的成分は調合、保管、又は使用の条件下で反応してもよいこと、並びに本発明は、任意のこのような反応の結果として取得可能な製品又は取得する製品も提供することは理解されているものとする。

更に、本明細書に記載の量、範囲、及び比率の上限と下限は独立して組み合わせてもよいことは理解されているものとする。

また、本発明の各態様の好ましい特徴は、本発明の他のあらゆる態様の好ましい特徴と見なすことは理解されているものとする。従って、本発明の１態様の好ましい特徴及びより好ましい特徴は独立して、本発明の同じ態様又は異なる態様の他の好ましい特徴及び／又はより好ましい特徴と組み合わせてもよい。

高温での新品の潤滑剤における二酸化窒素による分解の重要性は、近年、Ｃｏｕｌｔａｓ、Ｄ．Ｒ．「Ｔｈｅ Ｒｏｌｅ ｏｆ ＮＯｘ ｉｎ Ｅｎｇｉｎｅ Ｌｕｂｒｉｃａｎｔ Ｏｘｉｄａｔｉｏｎ」、ＳＡＥ Ｔｅｃｈｎｉｃａｌ Ｐａｐｅｒ、２０２０年、２０２０‐１０１４２７号、デジタルオブジェクト識別子（ｄｏｉ）：１０．４２７１／２０２０‐０１‐１４２７として引用されている論文で本出願人が報告している。この論文は、その序文で、「ＮＯｘが潤滑剤を分解する主な機序はフリーラジカルニトロ酸化反応への関与によるものである」と記述している。以下の式は、二酸化窒素が液体炭化水素種からプロトンを抽出することにより過程を開始し、他の種を含む一連の反応を発動し、炭化水素液が化学分解されることを示している。二酸化窒素はまた、ＲＯ・ラジカルと反応して式$RONO_2$で表される炭化水素系硝酸エステルを形成することにより、更に後のこの分解経路で顕著に重要な役割を果たす。これらの炭化水素系硝酸エステルは潤滑剤中に蓄積し、硝酸エステルの貯蔵部を形成する。動作温度が高くなると、これらの硝酸エステルは徐々に解離して捕獲したＲＯ・ラジカルを放出し、この論文の図１４に図示する特徴的な硝酸エステルの「火山型曲線」を形成する。この硝酸エステルからフリーラジカルへの急速な解離により、液体中の炭化水素種の化学破壊が加速する。最初のプロトン抽出と。その後に形成される硝酸エステルの解離との両方を含む二酸化窒素のこの複数の反応は、本明細書では炭化水素液の「硝化」と称する。

【００２１】

二酸化窒素によるプロトン抽出を介したこの硝化反応経路の開始、並びに二酸化窒素の更なる作用における硝酸エステルの貯蔵部の形成及び解離は上昇したバルク液温度の機能であると本出願人は判断した。硝化反応シーケンスの開始は、６０℃で進行中であり、８０℃以上の高温で促進される。硝酸エステルの形成は、１１０～１８０℃の範囲で顕著に構築され、１３０℃から硝酸エステルの解離速度が上昇する。１１０～１６０℃の温度範囲では、硝酸エステルの生成及び解離は最も顕著になり、炭化水素液の化学分解がより促進される。従って、現代のエンジン潤滑剤におけるバルク液（油溜め）温度の（１３０℃以上の温度への）上昇傾向は、二酸化窒素汚染量の実際の結果を増加させ、これらのエンジンの潤滑剤はこのような分解形態に影響を受けやすくなる。

特定の理論に囚われることなく、技術的調査から、本発明で配合するイオン液及び洗浄剤添加剤は、炭化水素液中に汚染物質として存在する二酸化窒素を不活性化する特定の協働的能力を有すると本出願人は考えている。その結果、二酸化窒素が、炭化水素液種と反応すること、及びプロトン抽出を介して分解を開始して硝化反応経路を開始することを阻害する。更に、二酸化窒素が反応してより高い温度で火山型曲線を生成する硝酸エステルを形成すること、及び更なる分解をもたらすラジカルが噴出することを阻害する。

【００２２】

特に、本出願人は、活性成分として、ヒドロカルビル置換した１種以上の中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤を共添加すると、二酸化窒素を不活性化する所定のイオン液の効力が増加し、高温及び二酸化窒素汚染を受ける炭化水素液の硝化が更に阻害されることを見出した。この有利な効果は、炭化水素液中でのイオン液と洗浄剤との複合に起因することが見出され、この効果は運転中に硝化レベルを低下させる。

更に、本出願人は、本発明で配合する好ましいイオン液（アニオンの好ましい芳香族カルボン酸塩の実施形態を含む）を本発明の所定の洗浄剤と組み合わせると、他のイオン液

体と比較して、特に同等の粘度で、二酸化窒素への親和性が優れたものになることを見出した。本出願人はまた、この好ましいイオン液を含むと、高温に供する運転条件下で炭化水素液の硝化を阻害し、バルク液体酸性度の上昇を経時的に阻害する本発明の能力を相応に向上できることも実証した。

酸化、粘度増加、及び総酸価の阻害についての本発明の運転条件における他の利点は、本明細書で後述する研究例において実証する。

【００２３】

本発明の全態様において配合するイオン液

イオン液は従来から、１種以上のカチオン‐アニオン対を含み、工業的に有益な温度において液体物理形態で存在するイオン性化合物であると理解されている。本発明の全態様は、以下を含む所定のイオン液を配合している：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン。

１種以上のカチオン（ｉ）は、カチオン（正）電荷を担持し、イオン液に有機親和性を与え、イオン液が炭化水素系バルク液体と容易に混合できるようにする複数のヒドロカルビル置換基を含む。

本明細書では、用語「ヒドロカルビル置換基」は、水素原子及び炭素原子を含み、それぞれが炭素原子を介して化合物の残部に直接結合している基を指す。その基は、基の本質的なヒドロカルビル特性、即ち酸素及び窒素原子に影響を与えないのであれば、炭素及び水素以外の１種以上の原子（即ち、ヘテロ原子）を含んでもよく；このような基にはアミノ基、ニトロ基、及びアルコキシ基が挙げられる。しかし、好ましくは、ヒドロカルビル基は別段に指定されない限り、水素原子及び炭素原子から基本的に成り、より好ましくは、水素原子及び炭素原子から成る。好ましくは、ヒドロカルビル基は脂肪族ヒドロカルビル基であるか、又は脂肪族ヒドロカルビル基を含む。用語「ヒドロカルビル」は、本明細書において慣例的に使用している用語「アルキル」を包含する。好ましくは、用語「アルキル」は、炭素及び水素のラジカル（例えば、C_1～C_{30}、例えば、C_4～C_{20}基）を意味する。化合物中のアルキル基は通常、炭素原子を介して化合物に直接結合する。別段に指定しない限り、アルキル基は、直鎖状（即ち、非分岐状）又は分岐状であってもよく、環状、非環状、又は部分的に環状／非環状であってもよい。アルキル基は、直鎖又は分岐鎖非環状アルキル基を含んでもよい。アルキル基の代表的な例としては、メチル、エチル、ｎ‐プロピル、イソプロピル、ｎ‐ブチル、ｓｅｃ‐ブチル、イソブチル、ｔｅｒｔ‐ブチル、ｎ‐ペンチル、イソペンチル、ネオペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ジメチルヘキシル、ノニル、デシル、ウンデシル、ドデシル、トリデシル、テトラデシル、ペンタデシル、ヘキサデシル、ヘプタデシル、オクタデシル、ノナデシル、イコシル、及びトリアコンチルが挙げられるが、これらに限定されるものではない。置換アルキル基は、水素又は炭素をヘテロ原子（即ち、Ｈ又はＣではない）又はヘテロ原子含有基で置換しているアルキル基である。用語「置換した」は一般に、水素を炭素又はヘテロ原子含有基で置換したことを意味する。

【００２４】

第１実施形態では、イオン液における１種以上のカチオン（ｉ）は窒素を含んでもよい。この実施形態では、各カチオン（ｉ）は、ヒドロカルビル置換アンモニウムカチオン、又は窒素を組み込み、カチオン電荷を有するヒドロカルビル置換脂環式又は芳香環系であることが好ましい。

カチオンのこの第１実施形態では、各カチオン（ｉ）はヒドロカルビル置換アンモニウムカチオン、好ましくはテトラヒドロカルビル置換アンモニウムカチオンであることが好ましい。本実施形態では、ヒドロカルビル基はアルキル基であることが好ましい。このようなアンモニウムカチオンの置換基として好適なアルキル基には、炭素原子が１～２８個

、例えば４～２８個、好ましくは６～２８個、より好ましくは６～１４個の直鎖又は分岐鎖アルキル基が挙げられる。このようなホスホニウムカチオンの特に好適なアルキル置換基には、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、及びオクタデシル基、特にここではｎ‐アルキル基が挙げられる。好ましくは、アルキル置換基の少なくとも１つは、少なくとも１０個の炭素原子を含み、上記の例から選択される。炭素原子数が少ないアルキル置換基があってもよく、例えばメチル基が挙げられる。本実施形態において最も好ましくは、各カチオン（ｉ）は、テトラブチルアンモニウムカチオン、即ち、置換基として４つのブチル基を担持するカチオンであり、これらの置換基は好ましくは直鎖基である。このようなカチオンは場合により、当業界では、数字がそれぞれ４つのブチル基の炭素原子数（４，４，４，４）を表す略語「Ｎ４４４４」で知られている。他の最も好ましいカチオンの例には、テトラオクチルアンモニウム（Ｎ８８８８）、トリヘキシルテトラデシルアンモニウム（Ｎ６６６１４）、及びトリメチルテトラデシル（ｔｒｉｍｅｔｈｙｌｔｅｔｒａｄｅｃｙｌ）（Ｎ１１１１４）、又はトリメチルヘキサデシル（１１１１６）アンモニウムが挙げられる。

【００２５】

しかし、カチオンのより好ましい第２実施形態では、イオン液の各カチオン（ｉ）は、窒素を含まない。この実施形態のイオン液は、本発明においてより有利であることが分かった。イオン液はまた、例えば炭化水素液自体を燃焼に供する場合、例えば潤滑油がエンジンで消費される場合、消費時の二酸化窒素排出を低減するように寄与する。

この第２実施形態では、イオン液の各カチオン（ｉ）はカチオン電荷を有するテトラヒドロカルビル置換中心原子又は環系から成ることが更に好ましい。それらのヒドロカルビル基は同一であっても異なっていてもよく、直鎖状、分岐状、又は環状であってもよい。ヒドロカルビル基は、典型的にはアルキル基（直鎖又は分岐鎖アルキル基など）である。実施形態では、それらアルキル基は同じアルキルであり、例えば炭素原子数が１～２８個、例えば４～２８個、好ましくは６～２８個、より好ましくは６～１４個である直鎖又は分岐鎖アルキル基が挙げられる。このようなカチオンの特に好適なアルキル置換基には、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、及びオクタデシル基、特にここではｎ‐アルキル基が挙げられる。

最も好ましくは、イオン液の各カチオン（ｉ）はリン含有カチオンである。

【００２６】

この実施形態では、各カチオン（ｉ）はアルキル置換ホスホニウムカチオン、理想的にはテトラアルキル置換ホスホニウムカチオンであることが好ましい。このようなホスホニウムカチオンの置換基として好適なアルキル基としては、炭素原子数が１～２８個、例えば４～２８個、好ましくは６～２８個、より好ましくは６～１４個の直鎖又は分岐鎖アルキル基が挙げられる。このようなホスホニウムカチオンの特に好適なアルキル置換基として、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、及びオクタデシル基、特にここではｎ‐アルキル基が挙げられる。好ましくは、アルキル置換基の少なくとも１つは、少なくとも１０個の炭素原子を含み、上記の例から選択される。

最も好ましくは、各カチオン（ｉ）は、トリヘキシルテトラデシルホスホニウムカチオン、即ち置換基として３つのヘキシル基及び１つのテトラデシル基を担持するカチオンであり、これらの置換基は好ましくは直鎖アルキル基である。このような基は場合により、当業界では、数字がそれぞれ３つのヘキシル基及び１つのテトラデシル基の炭素原子数（６、６、６、１４）を表す略語「Ｐ６６６１４」で知られている。

ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上のアニオン（ｉｉ）はそれぞれ、局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基を含む。１種以上のアニオン（ｉｉ）は、窒素原子を、特に硝酸塩又は窒素含有有機環構造の形態で含有してもよいが、好ましくは、各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まない。

好ましい実施形態では、１種以上のアニオン（ｉｉ）、好ましくは各アニオン（ｉｉ）

はカルボキシレート官能基を含み、この基はアニオン電荷を有する。
カルボン酸塩の第１実施形態では、カルボキシレート基に結合した１つ以上のヒドロカルビル基は脂肪族基であり、好ましくは炭素原子及び水素原子から成り、より好ましくはアルキル基、例えばＣ３‐Ｃ２７アルキル基、好ましくはＣ５‐Ｃ１７アルキル基、好ましくはｎ‐アルキル基である。このような好ましいアニオン（ｉｉ）としては特に、ヘキサン酸アニオン、オクタン酸アニオン、デカン酸アニオン、ドデカン酸アニオン、テトラデカン酸アニオン、ヘキサデカン酸アニオン、オクタデカン酸アニオンが挙げられる。このようなカルボン酸アニオン（ｉｉ）は、有利には、更なるヘテロ原子含有官能基、好ましくは酸素含有官能基、例えばヒドロキシ基を含んでもよい。

【００２７】

より好ましいカルボン酸塩の第２実施形態では、１種以上のアニオン（ｉｉ）、より好ましくは全てのアニオン（ｉｉ）は、ヘテロ原子を含む少なくとも２つの置換官能基を有する芳香環であるヒドロカルビル基を含み、これらの官能基は芳香環と共役し、この共役系はアニオン性（負）電荷を有する。本明細書では、用語「共役」は、これらの置換官能基が芳香環に直接結合しているという従来の化学的意味合いで使用しており、ここでは、これらの各官能基内に含まれる１つ以上の原子の１つ以上のｐ軌道が、隣接する芳香環のｐ軌道に連結し、芳香環の非局在化電子雲に関与している。この好ましい構成のアニオンは、二酸化窒素に対して特に親和性が高く、炭化水素化合物に対する反応性を著しく低下させるように二酸化窒素に結合できると考えられている。

芳香環は、炭素、及び任意に１種以上のヘテロ原子、例えばリン、窒素又は酸素を含む。しかし、イオン液の各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まないことが好ましい。このようなイオン液は本発明においてより有利であり、イオン液の一部が燃焼により消費される環境、例えばエンジン潤滑剤環境において、二酸化窒素の形成には寄与できないことが分かった。

【００２８】

アニオンのこの好ましい実施形態における有利な第１形態では、各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、ヘテロ原子を含む２つの共役置換官能基を有し、この系はアニオン（負）電荷を有している。この特徴としては、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環がカルボキシレート基、及び芳香環に直接結合した別のヘテロ原子含有官能基を有し、この系はアニオン電荷を有することが好ましい。より好ましくは、これらの官能基の両方におけるヘテロ原子（単数又は複数）は酸素原子から成る。より好ましくは、これらの官能基は、芳香環上で互いに「オルト」配置で隣接する環炭素原子上に位置する。

【００２９】

アニオンのこの実施形態では、各アニオン（ｉｉ）は、カルボキシレート基、及びヘテロ原子として酸素のみを含む第２ヘテロ原子含有官能基を有する二置換ベンゼン環であることが非常に好ましく、これらの２つの基は、芳香環上で互いに「オルト」配置で位置することが好ましい。第２官能基はヒドロキシル基であり、ヒドロキシ安息香酸アニオン（ｉｉ）を生成することが好ましい。イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は、１種以上のサリチル酸アニオン、即ちサリチル酸の脱プロトン化から形成されるアニオンであることが最も好ましい。

【００３０】

アニオンのこの好ましい実施形態における、より有利な第２形態では、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環自体は、アニオンの有利な第1形態の置換基、好ましくは前２項の置換基を有し、更に１つ以上のヒドロカルビル置換基を有する。これらのヒドロカルビル置換基は、イオン液に有機親和性を追加し、イオン液は炭化水素系バルク液体とより容易に混合できるようになる。

この第２実施形態のアニオンの芳香環上に追加したヒドロカルビル置換基（単数又は複数）は、前述で定義した通りである。好ましくは、これらの置換基（単数又は複数）はアルキル置換基である。好適なアルキル基としては、炭素原子数が６個以上、好ましくは６～２８個、より好ましくは６～１４個である直鎖又は分岐鎖アルキル基が挙げられる。特

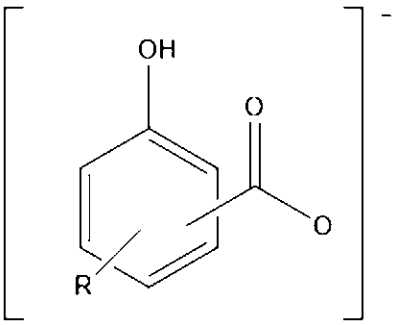
に好適なアルキル置換基としては、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、特にここではｎ‐アルキル基が挙げられる。

【００３１】

この第２実施形態のアニオン（ｉｉ）の芳香環が有するアルキル置換基は単一でも複数でもよい。結果として得られたイオン液は、アルキル置換基の数及び／又は位置が異なる複数のアニオン（ｉｉ）の混合物から構成してもよい。好ましくは、アルキル置換基の少なくとも１つは、炭素原子数が少なくとも１０個であり、上記の例から選択される。より好ましくは、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、炭素原子数が１０個を超える１つ以上の直鎖又は分岐鎖アルキル置換基を有する。

アニオンのより好ましい第２実施形態では、１種以上のアニオン（ｉｉ）は、好ましくは以下の構造のヒドロカルビル置換ヒドロキシ安息香酸塩である：

【化１】



式中、Ｒは、直鎖又は分岐鎖ヒドロカルビル基、より好ましくは直鎖又は分岐鎖アルキル基などの上記で定義したアルキル基である。ベンゼン環に結合しているＲ基は複数存在してもよい。カルボキシレート基及び水酸基は芳香環に共役しており、この系は負（アニオン）電荷を有する。カルボキシレート基は水酸基に対してオルト、メタ、又はパラ位に位置することが可能であり；オルト位が好ましい。Ｒ基は、水酸基に対してオルト、メタ、又はパラ位に位置することが可能である。

【００３２】

アニオンの第２実施形態では、イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は、最も好ましくは１種以上のアルキル置換サリチル酸アニオンである。ここでは各アニオンのアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が１２～２４個であるアルキル基から；より好ましくはドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、及びオクタデシル基から選択される。

このようなヒドロキシ安息香酸アニオン及びサリチル酸アニオンは通常、Ｋｏｌｂｅ‐Ｓｃｈｍｉｔｔ法によりフェノキシドのカルボキシル化を経て調製し、その場合、一般に、未カルボキシル化フェノールとの混合物中で（通常は希釈液中で）得られる。

アニオン（ｉｉ）の好ましい第１及び第２実施形態のいずれにおいても、各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まないことが好ましい。

イオン液は、上記実施形態から導かれる１種以上のカチオン（ｉ）及び１種以上のアニオン（ｉｉ）を含むことが好ましい。特に、イオン液は好ましくは、第１実施形態のカチオン（ｉ）と、カルボン酸塩の第１又は第２いずれかの実施形態のアニオン（ｉｉ）又はこれらの混合物との組み合わせから構成してもよい。より好ましくは、イオン液は、第２実施形態のカチオン（ｉ）と、カルボン酸塩の第１又は第２いずれかの実施形態のアニオン（ｉｉ）又はこれらの混合物との組み合わせを含む。

【００３３】

最も好ましくは、イオン液は、第２実施形態のカチオン（ｉ）と、カルボン酸塩の第２実施形態のアニオン（ｉｉ）との組み合わせを含む。このようなイオン液は、二酸化窒素に対する親和性が特に高く、本発明の様々な態様に従って配合される場合に、特に利点がある。この組み合わせにおいて、各カチオン（ｉ）及びアニオン（ｉｉ）が窒素を含まな

いことが最も好ましい。
特に、各カチオン（ｉ）が窒素を含まず、カチオン電荷を有するテトラヒドロカルビル置換中心原子又は環系から成り、各アニオン（ｉｉ）が、本明細書で上述したようなカルボキシレート基、ヘテロ原子を含む更なる官能基、及び更なるヒドロカルビル置換基を有する芳香環を含むイオン液が好ましい。このようなカチオン（ｉ）及びアニオン（ｉｉ）のそれぞれについて本明細書で上述した好ましい例は、組み合わせることが特に有用である。これらの両官能基におけるヘテロ原子（単数又は複数）が酸素原子から成るアニオン（ｉｉ）がより好ましい。これらの官能基は、芳香環上で互いに「オルト」配置で隣接する環炭素原子上に位置することが最も好ましい。

【００３４】

全ての好ましいイオン液、特に前３項のイオン液において、各カチオン（ｉ）は最も好ましくはアルキル置換ホスホニウムカチオンであり、理想的には本明細書で上述したようなテトラアルキル置換ホスホニウムカチオンである。トリヘキシルテトラデシルホスホニウムカチオン（Ｐ６６６１４カチオン）が最も好ましい。
本発明の全ての態様のイオン液は、所望のカチオン‐アニオンの組み合わせへの適合性に関する従来の合成基準に従って当業者が選択した当技術分野で公知の合成経路により調製してもよい。
従って、第１実施形態のカチオン（ｉ）を含むイオン液において、このカチオンは例えば、アルキル又はアリールハロゲン化物、好ましくはアルキルハロゲン化物であってもよいアルキル化剤又はアリール化剤との求核置換反応を利用し、対応するアミン又は窒素含有環化合物のアルキル化又はアリール化、好ましくはアルキル化により形成することが可能である。得られたカチオン‐ハロゲン化物複合体はその後、通常、乾燥有機溶剤中で所望の化学量論的量の所望のアニオン（ｉｉ）の金属塩と混合してもよい。この有機溶剤は、所望のイオン液を可溶化するがアニオン交換後に形成された金属ハロゲン化物を沈殿させる有機溶剤として選択している。交換反応を促進するためにアニオン交換樹脂を採用してもよい。
第２実施形態のカチオン（ｉ）を含むイオン液において、この液体は同様に、所望のカチオン（ｉｉ）、例えば好ましいホスホニウムカチオンのカチオン‐ハロゲン化物複合体から形成可能であり、この液体はその後、適切な溶剤中で所望のアニオン前駆体とのアニオン交換に供する。交換を促進するためにアニオン交換樹脂を再度採用してもよい。次いで、溶剤を除去し、イオン液を回収する。
イオン液の合成方法の例は、米国特許第２００８／０２５１７５９号明細書、及び本明細書で後述する研究例に記載している。また、個々のカチオン及びアニオン、又はそれらの前駆体は、化学産業の商品として入手可能である。

【００３５】

特定の理論に囚われることなく、二酸化窒素の分解作用を不活性化する上での本発明で定義するイオン液と洗浄剤との組み合わせの特定の利点は、イオン液の組成及び解明された作用機序から生じ、このことは、イオン液の効力が増大するように洗浄剤により増強又は促進されると本出願人は考えている。
初めに、イオン液のイオン対のアニオン（ｉｉ）は二酸化窒素分子と相互作用し、炭化水素液内の反応循環から効果的に二酸化窒素分子を除去することができる。その結果、バルク液体中の炭化水素成分の初期脱プロトン化を阻害し、硝化反応シーケンス及び硝酸エステルの形成も同様に阻害し、バルク液体の経時的な分解を遅らせる。
次に、結合した二酸化窒素の一部の酸化からその場で形成された硝酸は、イオン液の関連するカチオンに捕捉されると推測する。この硝酸はその酸性プロトンを、負に帯電したアニオン‐二酸化窒素複合体に奪われ、イオン液カチオン及び硝酸アニオンを含むイオン対が形成され、更にプロトン化アニオンと残りの結合した二酸化窒素との間に安定的な複合体が形成される。このシーケンスはまた、炭化水素液内の反応循環から硝酸を効果的に排除する。その結果、炭化水素液中の経時的な酸の蓄積も遅くなり、イオン液は、炭化水素液及びその下の機械装置の酸媒介性酸化及び酸性攻撃を封じ込めることを促進する。

このように、イオン液のカチオンとアニオンとは複合的に作用し、炭化水素液の二酸化窒素汚染の結果としての分解を阻害し、運用寿命を延長する。

【００３６】

洗浄剤の共存から生じる観察可能な利益は、イオン液カチオンと硝酸アニオンとのイオン対の形成中にプロトン輸送剤として作用する洗浄剤の能力に起因し、それによりプロトン化アニオンと残りの結合した二酸化窒素との間の更なる複合体の形成が促進される。このようにして、洗浄剤はイオン液と協働して炭化水素液内の反応循環から二酸化窒素を排除し、運転中に硝化を大幅に阻害する。

【００３７】

本発明の全態様において配合する洗浄剤

洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含む。洗浄剤組成物の残部は好適には溶剤又は担体流体であり、任意に、相溶化剤又は消泡剤などの補助材料を少量含有する。

金属含有（又は「灰形成」）洗浄剤は一般に、長い疎水性尾部を有する極性先端を含む。極性先端は酸性有機化合物の金属塩を含む。前記塩は、実質的に化学量論的量の金属を含有してよく、その場合、前記塩は通常、普通の塩又は中性の塩として説明され、その総塩基価又はＴＢＮ（ＡＳＴＭ規格（ＡＳＴＭ）Ｄ２８９６に従って測定可能）は０～１５０未満、例えば０～約８０又は１００である。過剰量の金属化合物（例えば酸化物又は水酸化物）と酸性ガス（例えば二酸化炭素）とを反応させることにより、大量の金属塩基を組み込んでもよい。得られる過塩基性洗浄剤は、金属塩基（例えば炭酸塩）ミセルの外層として中和洗浄剤を含む。このような過塩基性洗浄剤のＴＢＮ（ｍｇＫＯＨ／ｇ）は１５０以上であり、好ましくはＴＢＮは、又はその平均は、少なくとも約２００、例えば約２００～約５００；好ましくは少なくとも約２５０、例えば約２５０～約５００；より好ましくは少なくとも約３００、例えば約３００～約４５０となる。

【００３８】

本発明の全態様では、洗浄剤活性成分は、好ましくは、１種以上のヒドロカルビル置換芳香族酸又はフェノールの１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む。本発明の全態様において配合してもよいそのような好ましい活性成分としては、油溶性の中性及び過塩基性スルホン酸塩、フェネート、硫化フェネート、チオリン酸塩、サリチル酸塩、及びナフテン酸塩、並びに金属、特にアルカリ金属又はアルカリ土類金属、例えばバリウム、ナトリウム、カリウム、リチウム、カルシウム、及びマグネシウムの他の油溶性カルボン酸塩が挙げられる。最も一般的に使用されている金属はカルシウム及びマグネシウムであり、これらは両方とも潤滑剤に使用する洗浄剤中に、またカルシウム及び／又はマグネシウムとナトリウムとの混合物中に存在してもよい。過塩基性であるか、中性であるか、又はその両方であるかに関わらず、洗浄剤を組み合わせて使用してもよい。

より好ましくは、洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換ベンゼンスルホン酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む。このようなスルホン酸は、典型的には、石油の分別から得られるようなアルキル置換芳香族炭化水素のスルホン化、又は芳香族炭化水素のアルキル化により得られる。例えば、クロロベンゼン、クロロトルエン、及びクロロナフタレンなどの、ベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、ジフェニル、又はこれらのハロゲン誘導体をアルキル化することによって得られるものが挙げられる。アルキル化は、炭素原子数が約３～７０個超であるアルキル化剤を用いて、触媒の存在下で実施してもよい。アルカリルスルホン酸塩の炭素原子数は通常、１つのアルキル置換芳香族部分当たり約９～約８０個以上、好ましくは約１６～約６０個である。

【００３９】

油溶性スルホン酸塩又はアルカリルスルホン酸は、金属の酸化物、水酸化物、アルコキシド、炭酸塩、カルボン酸塩、硫化物、水硫化物、硝酸塩、ホウ酸塩、及びエーテルで中和してもよい。金属化合物の量は、最終生成物の所望のＴＢＮを考慮して選択するが、典

型的には、化学量論的に必要な約１００～２２０質量％（好ましくは少なくとも１２５質量％）の範囲である。

洗浄剤はまた、好ましくは、活性成分として、酸化物又は水酸化物などの適切な金属化合物との反応により調製したヒドロカルビル置換フェノール又は硫化フェノールの１種以上の金属塩を含むか、又はその金属塩から構成してもよく、中性又は過塩基性生成物は、当技術分野で周知の方法により得てもよい。硫化フェノールは、フェノールを硫黄、又は硫化水素、一ハロゲン化硫黄、もしくは二ハロゲン化硫黄などの硫黄含有化合物と反応させて、一般に２種以上のフェノールを硫黄含有ブリッジで架橋している化合物の混合物である生成物を形成することにより調製してもよい。

最も好ましくは、洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換カルボン酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩、より好ましくは１種以上のヒドロキシ安息香酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はそれを含む。

【００４０】

このようなカルボン酸塩洗浄剤は、芳香族カルボン酸を酸化物又は水酸化物などの適切な金属化合物と反応させることにより調製可能であり、中性又は過塩基性生成物は、当技術分野で周知の方法により得てもよい。芳香族カルボン酸の芳香族部分は、窒素及び酸素などのヘテロ原子を含有できる。好ましくは、前記部分は炭素原子のみを含み；より好ましくは、前記部分は６個以上の炭素原子を含み；例えば、ベンゼンが好ましい部分である。芳香族カルボン酸は、アルキレン架橋を介して縮合又は結合した１つ以上の芳香族部分、例えば１つ以上のベンゼン環を含んでもよい。カルボキシル部分は、芳香族部分に直接又は間接的に結合してもよい。好ましくは、カルボン酸基は、芳香族部分上の炭素原子、例えばベンゼン環上の炭素原子に直接結合している。より好ましくは、芳香族部分はヒドロキシ基又はスルホネート基などの第２官能基も含み、この基は芳香族部分上の炭素原子に直接又は間接的に結合可能である。

芳香族カルボン酸の好ましい例としては、サリチル酸及びその硫化誘導体、例えばヒドロカルビル置換サリチル酸及びその誘導体が挙げられる。例えばヒドロカルビル置換サリチル酸を硫化する方法は当業者に公知である。サリチル酸は典型的には、例えば、Ｋｏｌｂｅ‐Ｓｃｈｍｉｔｔ法を用いたフェノキシドのカルボキシル化により調製し、その場合は一般に、通常は希釈剤中で、未カルボキシル化フェノールとの混和物において得られる。

【００４１】

油溶性サリチル酸における好ましい置換基はアルキル置換基である。アルキル置換サリチル酸において、アルキル基の炭素原子数は、有利には５～１００、好ましくは９～３０、特に１４～２０である。アルキル基が複数ある場合、全てのアルキル基の平均炭素原子数は好ましくは、十分な油溶性を確保するために少なくとも９個である。

本発明の全態様では、特に好ましくは、洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のアルカリ土類金属塩であり、最も好ましくはアルキル置換サリチル酸の１種以上のマグネシウム塩である。このような両実施形態では、洗浄剤活性成分を構成する各サリチル酸塩のアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が９～３０個、特に１４～２０個であるアルキル基から選択されることが最も好ましい。

【００４２】

本発明の実施においては、マグネシウム塩を含む洗浄剤が好ましい。本発明の全態様では、マグネシウム洗浄剤は、単独金属含有洗浄剤であってもよく、この場合、洗浄剤により潤滑油組成物に導入される金属の１００％はマグネシウムとなる。マグネシウム以外の金属をベースとする過塩基性又は中性洗浄剤を採用する場合、洗浄剤により潤滑油組成物に導入された金属の総量に対して好ましくは少なくとも約３０質量％、より好ましくは少なくとも約４０質量％、特に少なくとも約５０質量％がマグネシウムとなる。

潤滑油組成物の調合に一般に有用な洗浄剤としては、例えば米国特許第６，１５３，５６５号明細書；同第６，２８１，１７９号明細書；同６，４２９，１７８号明細書、及び同６，４２９，１７８号明細書に記載されているように、混合界面活性剤系、例えばフェ

ネート／サリチル酸塩、スルホン酸塩／フェネート、スルホン酸塩／サリチル酸塩、スルホン酸塩／フェネート／サリチル酸塩を用いて形成した「ハイブリッド」洗浄剤も挙げられる。

【００４３】

本発明の第２態様、第３態様、第４態様、及び第５態様等で配合した炭化水素液

本発明のこれらの態様においてバルク運転液として使用する炭化水素液は、石油もしくは合成源から、又はバイオマテリアル処理から得てもよい。

炭化水素液が石油、特に潤滑油である場合、このような油剤の粘度は、軽質留分鉱物油から、ガソリンエンジンオイル、鉱物潤滑油、及び高負荷ディーゼルオイルなどの重質潤滑油までの範囲である。一般に、油剤の動粘度は、１００℃で測定して（ＡＳＴＭ Ｄ４４５‐１９ａ）、約２mm^2／秒（センチストークス）～約４０mm^2／秒、特に約３mm^2／秒～約２０mm^2／秒、最も好ましくは約９mm^2／秒～約１７mm^2／秒の範囲である。

好適な油剤、特に潤滑油としては、動物油や植物油（例えば、ひまし油、ラード油）などの天然油；液体石油や、パラフィン系、ナフテン系、及びパラフィン‐ナフテン混合タイプの水素化精製処理、溶剤処理、又は酸処理した鉱物油が挙げられる。石炭又は頁岩由来の潤滑粘性のある油剤も有用なバルク油剤として機能する。

【００４４】

合成油、特に合成潤滑油としては、炭化水素特性を保持する炭化水素油及びハロ置換炭化水素油、例えば重合及び共重合オレフィン（例えば、エチレン‐プロピレン共重合体、ポリブチレン単重合体及び共重合体、ポリプロピレン単重合体及び共重合体、プロピレン‐イソブチレン共重合体、塩素化ポリブチレン、ポリ（１‐ヘキセン）、ポリ（１‐オクテン）、ポリ‐ｎ‐デセン（例えばデセン単重合体、又はデセンとデセン以外のＣ８‐Ｃ２０アルケン、例えばオクテン、ノネン、ウンデセン、ドデセン、テトラデセン等の１種以上との共重合体））；アルキルベンゼン類（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、ジ（２‐エチルヘキシル）ベンゼン）；ポリフェニル（例えばビフェニル、ターフェニル、アルキル化ポリフェノール）；並びにアルキル化ジフェニルエーテル及びアルキル化ジフェニルスルフィド、及びこれらの誘導体、類似体及び同族体が挙げられる。また、Ｆｉｓｃｈｅｒ‐Ｔｒｏｐｓｃｈ合成した炭化水素から、ガス～液体過程で得られる合成油も有用であり、これは一般にガス～液体、又は「ＧＴＬ」ベースオイルと呼ばれる。

エステルは炭化水素特性を有する合成油として有用であり、例えばＣ５‐Ｃ１２モノカルボン酸、並びにネオペンチルグリコール、トリメチロールプロパン、ペンタエリスリトール、ジペンタエリスリトール、及びトリペンタエリスリトールなどのポリオール及びポリオールエステルから形成されたものが挙げられる。

【００４５】

炭化水素液が潤滑油である場合、炭化水素液はＩ族、ＩＩ族、ＩＩＩ族、ＩＶ族、もしくはＶ族のベースストック、又は前述のベースストックのブレンドを含んでもよい。好ましくは、潤滑油は、ＩＩ族、ＩＩＩ族、ＩＶ族、もしくはＶ族のベースストック、又はこれらの混合物、例えばＩ族のベースストックと、ＩＩ族、ＩＩＩ族、ＩＶ族、もしくはＶ族の１種以上のベースストックとの混合物である。これらのベースストック及びベースオイルの定義は、米国石油協会（ＡＰＩ）発行の「Ｅｎｇｉｎｅ Ｏｉｌ Ｌｉｃｅｎｓｉｎｇ ａｎｄ Ｃｅｒｔｉｆｉｃａｔｉｏｎ Ｓｙｓｔｅｍ（「ＥＬＯＣＳ」）、Ｉｎｄｕｓｔｒｙ Ｓｅｒｖｉｃｅｓ部門、１９９６年１２月、第１４版、付録１、１９９８年１２月に記載されている。

好ましくは、ベースストック又はベースストックブレンドの飽和含有量は、少なくとも６５％、より好ましくは少なくとも７５％、例えば少なくとも８５％である。好ましくは、ベースストック又はベースストックブレンドは、ＩＩＩ族以上のベースストック又はベースストック混合物、又はＩＩ族ベースストックとＩＩＩ族以上のベースストック又はベースストック混合物の混合物である。最も好ましくは、ベースストック又はベースストッ

クブレンドの飽和含有量は９０％を超える。好ましくは、油剤又は油剤ブレンドの硫黄含有量は、１質量％未満、好ましくは０．６質量％未満、最も好ましくは０．４質量％未満、例えば０．３質量％未満である（ＡＰＩ　ＥＯＬＣＳに示されるように測定）。ＩＩＩ族ベースストックは、Ｉ族ベースストックと比較して摩耗信頼度（ｗｅａｒ　ｃｒｅｄｉｔ）が高いことが見出されており、従って、好ましい１実施形態では、潤滑油の少なくとも３０質量％、好ましくは少なくとも５０質量％、より好ましくは少なくとも８０質量％がＩＩＩ族ベースストックである。

好ましくは、潤滑油又は潤滑油ブレンドの揮発性は、Ｎｏａｃｋ試験（ＡＳＴＭ　Ｄ５８００）による測定では３０質量％以下、例えば、約２５質量％以下、好ましくは２０質量％以下、より好ましくは１５質量％以下、最も好ましくは１３質量％以下である。

好ましくは、油剤又は油剤ブレンドの粘度指数（ＶＩ）は、少なくとも８５、好ましくは少なくとも１００、最も好ましくは約１０５～１４０である（ＡＳＴＭ　Ｄ２２７０）。

【００４６】

本発明の第１態様の添加剤組成物

本発明の第１態様は炭化水素液用の添加剤組成物であり、前記添加剤組成物は上記イオン液、洗浄剤、及びキャリア液、任意に更に添加剤を含む。混合又はブレンドをより容易にするために、キャリア液（イオン液及び炭化水素液の両方と相互に適合する希釈剤又は溶剤）中のイオン液及び洗浄剤を含む濃縮物として添加剤組成物を調製することが望ましい場合もあり、それにより他の添加剤も同時に濃縮物に、ひいては炭化水素液に添加して炭化水素液組成物を形成できる（このような濃縮物を添加剤パッケージと称することもある）。イオン液は、濃縮物を炭化水素液と組み合わせ化する前に添加剤濃縮物に添加するか、又は添加剤濃縮物と炭化水素液との組み合わせに添加してもよい。イオン液は、パッケージを炭化水素液と組み合わせ化する前に添加剤パッケージに添加するか、又は添加剤パッケージと炭化水素液との組み合わせに添加してもよい。

【００４７】

添加剤濃縮物を使用する場合、その含有量は、活性成分に対して５～２５質量％、好ましくは５～２２質量％、典型的には１０～２０質量％であってもよく、濃縮物の残部は溶剤又は希釈剤である。

炭化水素液に複数の添加剤を同時に組み込む利便性のある方法として、添加剤組成物（好ましくは、濃縮物の形態）は追加の添加剤を含んでもよい。このような追加の添加剤は、対象の運転液の必要性に応じて特性及び用途を多様にできる。

炭化水素液が潤滑油又は動力伝達油、特にエンジン潤滑油である場合、油剤の他の特性を促進するために様々な追加の添加剤を組み込んでもよい。追加の添加剤は、１種以上の分散剤；リン含有化合物；非金属含有洗浄剤；耐摩耗剤；摩擦調整剤、粘度調整剤；抗酸化剤；及び他の共添加剤を含んでもよく、ただしこれらの添加剤は本明細書で上述した必須のイオン液及び洗浄剤とは異なる。これらの添加剤については以下でより詳細に述べる。

分散剤は、その主な機能として、不油溶性汚染物を懸濁液中に保持し、それにより汚染物を不動態化し、表面への沈着を減少させる添加剤である。例えば、分散剤は、使用中の酸化に起因する不油溶性物質を懸濁液中に維持し、固形物が機械装置部品上で凝集、沈殿、又は沈着することを防止する。

【００４８】

本発明における分散剤は、「無灰」であり、金属を含有することで灰を形成する材料とは対照的に、燃焼時に灰をほぼ形成しない非金属有機材料である。分散剤は、極性先端を有する長い炭化水素鎖を含み、その極性は、好ましくは酸素、リン、又は窒素原子を含むことに由来する。炭化水素は、油溶性を付与し、炭素原子数が例えば、４０～５００個、例えば、６０～２５０個である親油基である。従って、無灰分散剤は油溶性高分子骨格を含んでもよい。分散剤の炭化水素部分の数平均分子量（Ｍｎ）は８００～５０００ｇ／モル、例えば９００～３０００ｇ／モルであってもよい。

オレフィンポリマーの好ましい類型には、ポリブテン、具体的にはポリイソブテン（Ｐ

ＩＢ）、又はポリ‐ｎ‐ブテンが挙げられ、これらは例えばＣ４精製流の重合により調製してもよい。

【００４９】

分散剤としては、例えば、長鎖炭化水素置換カルボン酸の誘導体が挙げられ、その例としては、高分子量のヒドロカルビル置換コハク酸の誘導体が挙げられる。典型的には、ポリイソブチレンなどの炭化水素ポリマー材料をアシル化基（例えばマレイン酸又は無水物）と反応させ、炭化水素置換コハク酸（コハク酸塩）を形成する。分散剤の注目に値する基は、例えば、上記の酸（又は誘導体）を窒素含有化合物、有利にはポリアルキレンポリアミン、例えばポリエチレンポリアミンと反応させることにより形成した炭化水素置換コハク酸イミドから構成している。米国特許第３，２０２，６７８号；３，１５４，５６０号；３，１７２，８９２号；３，０２４，１９５号；３，０２４，２３７号、３，２１９，６６６号；及び３，２１６，９３６号明細書に記載されているような、ポリアルキレンポリアミンとアルケニルコハク酸無水物との反応生成物が特に好ましく、これらは、その特性を向上させるために後処理、例えば、ホウ酸化（米国特許第３，０８７，９３６号及び３，２５４，０２５号明細書に記載）、フッ化、又はオキシル化してもよい。例えば、ホウ酸化は、アシル窒素含有分散剤を、酸化ホウ素、ハロゲン化ホウ素、ホウ酸、及びホウ酸のエステルから選択されるホウ素化合物で処理することにより実施してもよい。

好ましくは、分散剤は、存在する場合、数平均分子量が８００～５０００ｇ／モル、例えば１０００～３０００ｇ／モル、好ましくは１５００～２５００ｇ／モルの範囲で、機能性が中程度であるポリイソブテン由来のコハク酸イミド分散剤である。コハク酸イミドは高反応性ポリイソブテン由来であることが好ましい。

【００５０】

使用してもよい分散剤タイプの別の例としては、欧州特許出願公開第０９０　６４２号明細書に記載されているような連結した芳香族化合物である。

ホウ酸化コハク酸イミドと非ホウ酸化コハク酸イミドとを組み合わせることは本明細書では有用である。

１種以上（例えば２種以上）の高Ｍｎ（１５００ｇ／モル以上、例えば２０００ｇ／モル以上のＭｎ）のコハク酸イミドと、１種以上（例えば２種以上）の低Ｍｎ（１５００ｇ／モル未満、例えば１２００ｇ／モル未満のＭｎ）のコハク酸イミドとを組み合わせることは本明細書では有用であり、その組み合わせは任意に１種、２種、３種、又はそれ以上のホウ酸化コハク酸イミドを含有してもよい。

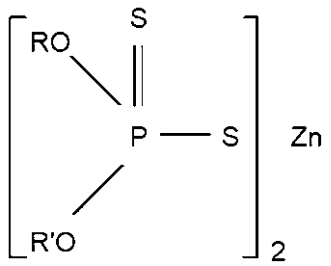
【００５１】

好適なリン含有化合物には、耐摩耗剤及び抗酸化剤として頻繁に使用されるジヒドロカルビルジチオリン酸金属塩が挙げられる。その金属は好ましくは亜鉛であるが、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属、又はアルミニウム、鉛、スズ、モリブデン、マンガン、ニッケル、もしくは銅であってもよい。亜鉛塩は潤滑油中に、潤滑油組成物の全質量に対して０．１～１０質量％、好ましくは０．２～２質量％の量で最も一般的に使用される。亜鉛塩は、最初に、通常１種以上のアルコール又はフェノールとP_2S_5とを反応させてジヒドロカルビルジチオリン酸（ＤＤＰＡ）を形成し、次いで形成したＤＤＰＡを亜鉛化合物で中和することにより、公知の技術に従って調製してもよい。例えば、ジチオリン酸は１級アルコールと２級アルコールとの混合物を反応させることにより製造してもよい。あるいは、一方のヒドロカルビル基が性質上完全に第二級であり、他方のヒドロカルビル基が性質上完全に第一級である場合、複数のジチオリン酸を調製できる。亜鉛塩を製造するためには、任意の塩基性又は中性の亜鉛化合物を使用できるが、酸化物、水酸化物、及び炭酸塩が最も一般的に使用される。市販の添加剤は、中和反応に過剰量の塩基性亜鉛化合物を使用するため、過剰量の亜鉛を含有していることが多い。

【００５２】

好ましいジヒドロカルビルジチオリン酸亜鉛は、ジヒドロカルビルジチオリン酸の油溶性塩であり、下記式で表してもよく：

【化２】



式中、Ｒ及びＲ’は、炭素原子数が１～１８個、好ましくは２～１２個である同一又は異なるヒドロカルビルラジカルであってもよく、アルキルラジカル、アルケニルラジカル、アリールラジカル、アリールアルキルラジカル、アルカリルラジカル、及び脂環式ラジカルなどのラジカルが挙げられる。この文脈でのＲ及びＲ’基は炭素原子数２～８個のアルキル基であることが特に好ましい。従って、このラジカルは、例えばエチル、ｎ－プロピル、ｉ－プロピル、ｎ－ブチル、ｉ－ブチル、ｓｅｃ－ブチル、アミル、ｎ－ヘキシル、ｉ－ヘキシル、ｎ－オクチル、デシル、ドデシル、オクタデシル、２－エチルヘキシル、フェニル、ブチルフェニル、シクロヘキシル、メチルシクロペンチル、プロペニル、ブテニルであってもよい。油溶性を得るために、ジチオリン酸の炭素原子（即ち、Ｒ及びＲ’）の総数は、一般に５以上となる。従って、ジヒドロカルビルジチオリン酸亜鉛（ＺＤＤＰ）は、ジアルキルジチオリン酸亜鉛を含むことが可能である。潤滑剤のための本発明の添加剤濃縮物におけるリン含有量は、ＡＳＴＭ　Ｄ５１８５に従って、１００～１５００ｐｐｍ、例えば２００～１２００ｐｐｍ、例えば６００～９００ｐｐｍ、例えば約０．０８質量％（８００ｐｐｍ）以下であってもよい。好ましくは、本発明の実施において、ＺＤＤＰは、許容最大量に近いか等しい量、好ましくは、リン含有量がリンの許容最大量である１００ｐｐｍ以内になるような量で使用する。従って、得られる潤滑油組成物はＺＤＤＰ又は他の亜鉛－リン化合物を、潤滑油組成物の総質量に対してリン含有量が０．０１～０．０８質量％、例えば０．０４～０．０８質量％、好ましくは０．０５～０．０８質量％になるような量で含有することが好ましい。

【００５３】

特定の性能要件を満たすことを可能にするために、本発明の添加剤濃縮物に追加の添加剤を組み込んでもよい。本発明の潤滑油組成物に含まれてもよいこのような添加剤の例としては、摩擦調整剤、粘度調整剤、金属錆防止剤、粘度指数向上剤、腐食防止剤、酸化防止剤、消泡剤、耐摩耗剤、及び流動点降下剤が挙げられる。

潤滑油組成物には、炭化水素液の他の成分と適合する摩擦調整剤を（また、エンジン潤滑剤では、燃料節約剤も）含有させてもよい。このような材料の例としては、高級脂肪酸のグリセリルモノエステル、例えばグリセリルモノオレイン酸塩；ジオールを含む長鎖ポリカルボン酸のエステル、例えば二量化不飽和脂肪酸のブタンジオールエステル；並びにアルコキシル化アルキル置換モノアミン、ジアミン、及びアルキルエーテルアミン、例えばエトキシル化獣脂アミン及びエトキシル化獣脂アーテルアミンが挙げられる。

他の公知の摩擦調整剤は油溶性有機モリブデン化合物を含む。このような有機モリブデン摩擦調整剤により、潤滑油組成物には抗酸化性及び耐摩耗信頼度（ａｎｔｉ－ｗｅａｒ　ｃｒｅｄｉｔｓ）がもたらされる。このような油溶性有機モリブデン化合物の例としては、ジチオカルバミド酸塩、ジチオリン酸塩、ジチオホスフィン酸塩、キサントゲン酸塩、チオキサントゲン酸塩、硫化物等、及びこれらの混合物が挙げられる。モリブデンジチオカルバミド酸塩、ジアルキルジチオリン酸塩、アルキルキサントゲン酸塩、及びアルキルチオキサントゲン酸塩が特に好ましい。

【００５４】

また、モリブデン化合物は、酸性モリブデン化合物であってもよい。これらの化合物は、ＡＳＴＭ試験Ｄ－６６４又はＤ－２８９６滴定手順で測定したところ塩基性窒素化合物と反応し、典型的には６価である。モリブデン化合物としては、モリブデン酸、モリブデ

ン酸アンモニウム、モリブデン酸ナトリウム、モリブデン酸カリウム、及び他のアルカリ金属モリブデン酸塩、並びに他のモリブデン塩、例えば、モリブデン酸水素ナトリウム、$MoOCl_4$、MoO_2Br_2、$Mo_2O_3Cl_6$、三酸化モリブデン、又は同様の酸性モリブデン化合物が挙げられる。

本発明の組成物に有用なモリブデン化合物の中には、下記式で表す有機モリブデン化合物がある：

$Mo(R''OCS_2)_4$、及び

$Mo(R''SCS_2)_4$

式中、R”は、一般に炭素原子数が１～３０個、好ましくは２～１２個のアルキル、アリール、アラルキル、及びアルコキシアルキルから成る群より選択される有機基であり、炭素原子数が２～１２個のアルキルが最も好ましい。モリブデンのジアルキルジチオカルバミド酸が特に好ましい。

【００５５】

本発明における追加の添加剤として有用な有機モリブデン化合物の別の群には、三核モリブデン化合物、特に式$Mo_3S_kA_nD_z$の化合物、及びその混合物が含まれる。式中、Aは、化合物を油中に可溶又は分散可能にするために十分な炭素原子数の有機基を有する独立して選択されたリガンドであり、ｎは１～４であり、ｋは４～７の範囲であり、Ｄは水、アミン、アルコール、ホスフィン、及びエーテルなどの中性電子供与性化合物の群から選択され、ｚは０～５の範囲で非化学量論値も含む。全てのリガンド有機基の中に少なくとも２１個の炭素原子、例えば少なくとも２５個、少なくとも３０個、又は少なくとも３５個の炭素原子が存在することが望ましい。

添加剤を潤滑油としての炭化水素液に使用する場合、添加剤は少なくとも１０ｐｐｍ、少なくとも３０ｐｐｍ、少なくとも４０ｐｐｍ、より好ましくは少なくとも５０ｐｐｍのモリブデンを含有することが好ましい。好適には、このような潤滑油組成物のモリブデン含有量は、１０００ｐｐｍ以下、７５０ｐｐｍ以下、又は５００ｐｐｍ以下である。本発明において有用な潤滑油組成物のモリブデン含有量は１０～１０００ｐｐｍ、例えば３０～７５０ｐｐｍ、又は４０～５００ｐｐｍ（モリブデン原子として測定）であることが好ましい。

【００５６】

炭化水素液、特に潤滑油の粘度指数は、粘度調整剤（ＶＭ）又は粘度指数向上剤（ＶＩＩ）として機能する特定のポリマー材料を添加剤組成物に組み込むことにより増加又は向上させてもよい。一般に、粘度調整剤として有用なポリマー材料の数平均分子量（Ｍｎ）は、５，０００～２５０，０００、好ましくは１５，０００～２００，０００、より好ましくは２０，０００～１５０，０００である。これらの粘度調整剤は、グラフト材料、例えば無水マレイン酸でグラフトすることが可能である。そのグラフト材料は、例えばアミン、アミド、窒素含有複素環式化合物又はアルコールと反応させて、多機能粘度調整剤（分散剤‐粘度調整剤）を形成することが可能である。

ジオレフィンを用いて調製したポリマーはエチレン性不飽和を含むことになり、このようなポリマーは水素化することが好ましい。ポリマーを水素化する場合、先行技術において公知の任意の技術により水素化を行ってよい。例えば、米国特許第３，１１３，９８６号明細書及び第３，７００，６３３号明細書で教示されるような方法を用いてエチレン性不飽和と芳香族不飽和の両方を変換する（飽和させる）ように水素化を行ってもよい。あるいは、例えば、米国特許第３，６３４，５９５号明細書；第３，６７０，０５４号明細書；第３，７００，６３３号明細書、及び再発行第２７，１４５号で教示されるように芳香族不飽和のほとんど又は全てを変換せずにエチレン性不飽和の大部分を変換するように水素化を選択的に行ってもよい。これらの方法のいずれも、エチレン性不飽和のみを含み、芳香族不飽和を含まないポリマーを水素化するためにも使用できる。

【００５７】

流動点降下剤（ＰＰＤ）は、バルク液体が流動する最低温度を低下させ、添加剤、特に潤滑油中に存在してもよい。ＰＰＤは、グラフト材料、例えば無水マレイン酸でグラフト

することが可能である。そのグラフト材料は、例えばアミン、アミド、窒素含有複素環式化合物、又はアルコールと反応させて、多機能添加剤を形成することが可能である。

本発明では、ブレンドの粘度の安定性を維持する共添加剤を含むことが有利である場合もある。このように、極性基含有添加剤は予備ブレンド段階で好適に低粘度を達成するが、長期間保存すると粘度が上昇する組成物もあることが観察されている。この粘度上昇を制御するために有効な添加剤としては、本明細書において前記で開示したような、無灰分散剤の調製に用いられるモノもしくはジカルボン酸又は無水物との反応により官能基化された長鎖炭化水素が挙げられる。

第１態様の添加剤がイオン液に加えて上述した追加の添加剤を１種以上含有する場合、追加の各添加剤は典型的には、添加剤が所望の機能を提供するような量でバルク液体にブレンドする。

【００５８】

本発明の第２態様の炭化水素液組成物

本発明の第２態様は、主量の炭化水素液、並びに少量のイオン液及び洗浄剤添加剤を含む炭化水素液組成物である。前記イオン液は：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン

を含み；

前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含む。

このような炭化水素液組成物は、本明細書に記載したイオン液、洗浄剤、及び炭化水素液から形成し、以下の本発明の第３、第４、又は第５態様の方法又は使用により取得するか、又は取得可能であることが好ましい。炭化水素液組成物は更に、本発明の第１態様で説明した追加の添加剤を含有してもよい。

【００５９】

クランク室潤滑剤である炭化水素液に使用する場合の、このような追加の添加剤の代表的な有効量を、下記表に収載する。収載した全ての値（洗浄剤は油中のコロイド分散剤の形態で使用するので洗浄剤の値を除く）は質量百分率で表す活性成分（Ａ．Ｉ．）として記載している。追加添加剤のこれらの量は、本明細書で上述したイオン液及び洗浄剤と組み合わせて使用する。

【表１】

添加剤	質量%（広義）	質量%（好ましい量）
分散剤	０．１～２０	１～８
金属洗浄剤	０．１～１５	０．２～９
腐食防止剤	０～５	０～１．５
金属ジヒドロカルビルジチオリン酸塩	０．１～６	０．１～４
抗酸化剤	０～５	０．０１～２．５
流動点降下剤	０．０１～５	０．０１～１．５
消泡剤	０～５	０．００１～０．１５
摩擦調整剤	０～５	０～１．５
粘度調整剤	０．０１～１０	０．２５～３
イオン液	０．１～５．０	０．１～３
炭化水素液（ベースストック）	残余分	残余分

【００６０】

イオン液、洗浄剤、及び他の所望の添加剤は、当技術分野で公知の物理的な混合又はブレンド技術により炭化水素液に添加してもよい。必須ではないが、混合又はブレンドをより容易にするために、キャリア液（イオン液及び炭化水素液の両方と相互に適合する希釈剤又は溶剤）中のイオン液及び洗浄剤を含む第１態様の１種以上の添加剤組成物を、理想的には濃縮物の形態（このような濃縮物を添加剤パッケージと称することもある）で、調製することが望ましい場合もあり、それにより他の添加剤も同時に濃縮物に、ひいては炭化水素液に添加して第２態様の組成物を形成できる。

【００６１】

本発明の第３態様の方法

本発明の第３態様は、６０～１８０℃のバルク液温度で運転中に炭化水素液の化学分解を制限する方法において、上記イオン液及び洗浄剤を組み合わせて配合する。前記分解は運転中の二酸化窒素汚染から生じる液体の硝化により開始される。前記方法は：

６０～１８０℃のバルク液温度での運転に適し、老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない、炭化水素液を調製、又は新しく調製した炭化水素液を取得する工程；並びに

６０～１８０℃のバルク液温度での運転に先立って、上記で定義したイオン液及び洗浄剤添加剤を前記炭化水素液に添加する工程であって、前記イオン液及び洗浄剤添加剤成分は、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中、その後に炭化水素液の硝化を阻害するために協働的に有効な量で添加する工程；並びに

前記炭化水素液を運転に供し、それによりイオン液及び洗浄剤添加剤は、結果として生じる液体の化学分解を制限する工程

を含む。

【００６２】

この方法では、高温における炭化水素化合物上の二酸化窒素により開始した硝化反応を阻害する際のイオン液及び洗浄剤の複合的な有効性は、この化学経路によるバルク液体の分解の開始を遅らせ、その運用寿命を延長させる。イオン液は初め、バルク液体の硝化を開始する二酸化窒素によるプロトン抽出の阻害を経て作用し、経路の更に先で他の化学反応をもたらすフリーラジカルの最初の形成を遅らせ、大幅な分解の開始を遅らせる。イオン液及び洗浄剤は更に、二酸化窒素とそれに続くＲＯラジカルとの反応から炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害することで経路の後半で作用し、バルク液体中のこれらの反応性化合物の蓄積を減少させる。その結果、バルク液体は、高温で、特に１１０℃を超える運転温度上昇（連続的又は周期的）下で、低濃度の放出ＲＯラジカルに曝露され、ここで、これらの硝酸エステルの解離速度は大幅に増加し、バルク液体の深刻な分解が増強する。

【００６３】

本発明の方法において硝化を協働的に阻害するために有効なイオン液及び洗浄剤活性成分の量は、対象の系において体験する高運転温度での二酸化窒素汚染を再現又はシミュレーションする条件下で、ルーチン試験により決定できる。

本方法の好ましい態様では、イオン液と洗浄剤との組み合わせにより阻害する化学分解は、６０～１８０℃のバルク液温度で二酸化窒素での炭化水素液の硝化により運転中に形成される炭化水素系硝酸エステルの分解に起因するものであり、イオン液及び洗浄剤活性成分はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する。このように、高運転温度における反応性炭化水素系硝酸エステルの貯蔵部の蓄積を直接阻害し、分解をより良好に制限する。

本方法のより好ましい態様では、イオン液と洗浄剤との組み合わせに阻害される化学分解は、炭化水素液を運転中、周期的又は連続的に１１０～１６０℃のバルク液温度に供することにより炭化水素系硝酸エステルが分解することに起因するものであり、イオン液及び洗浄剤活性成分はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する。このように、高温における運転の際に発生する、より迅速で深刻な分解を直接阻害する。

【００６４】

本発明のこれらの実施形態では、バルク液体中の硝酸エステル形成のレベルは、好適な

試験条件下でバルク液体中の硝酸エステルに関連する赤外線ピーク高さの経時的な増加を観察することにより分光法で決定できる。この分光学的アプローチにより、バルク液体中の硝酸エステル形成を阻害するために必要なイオン液及び洗浄剤の量を決定できる。運転中の炭化水素系硝酸エステル形成の阻害は、イオン液及び洗浄剤活性成分の複合的な存在下でバルク液体中の硝酸エステルピーク高さの低下を観察することにより判断する。このピーク高さは、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ドイツ工業規格（ＤＩＮ）５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０（ＤＩＮ５１　４５３とＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０との間に矛盾がある場合、ＤＩＮ５１　４５３に従う）に従って赤外線分光法で測定する。ＤＩＮ法によれば、１６３０ｃｍ$^{-1}$の単一赤外線吸収周波数の高さは、１６１５ｃｍ$^{-1}$及び１６４５ｃｍ$^{-1}$の吸光度で定義する直線ベースラインより高く測定される。ピークの高さが高いほど、バルク液体中の硝酸エステルが多くなる。経時的に採取した一連の試料を測定することで、運転液中の硝酸エステルレベルの経時的変化に伴うピーク高さの変化を追跡することも可能になる。ＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０標準試験方法によれば、酸化及び硝化のピーク高さは、初めに新品の油剤の赤外線スペクトルを差し引いて測定する。ベースラインは、１９５０ｃｍ$^{-1}$～１８５０ｃｍ$^{-1}$の吸光度で定義し、最高ピークは酸化では１７４０ｃｍ$^{-1}$～１７００ｃｍ$^{-1}$の範囲、硝化では１６４０ｃｍ$^{-1}$～１６２０ｃｍ$^{-1}$である。

【００６５】

潤滑油組成物中の硝酸エステル形成の低減又は制限の量は、イオン液を含有する潤滑油組成物の存在下での硝酸エステルピーク高さが（イオン液が、同じカチオンを有するがアニオンとしては同じ割合のヘキサン酸塩を有するイオン液と置き換えられた、同じ潤滑油組成物の硝酸エステルピークと比較して）低いこと（少なくとも１０％、例えば少なくとも２０％、例えば少なくとも３０％、例えば少なくとも４０％、例えば少なくとも５０％、例えば１００％低い）を観察することにより決定する。このピーク高さは、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って赤外線分光法で測定するが、但し、ＤＩＮ５１　４５３とＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０との間に矛盾がある場合、ＤＩＮ５１　４５３に従う。

しかし、通常の状況では、その後、二酸化窒素汚染の存在下で、６０℃以上、例えば１１０℃以上、例えば６０～１８０℃（例えば６０～１８０℃、例えば６０～１６０℃、例えば１１０～１６０℃、例えば１３０～１６０℃）のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害するために添加するイオン液の量は、炭化水素液の質量当たり０．１～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たり０．５～４．０質量％の範囲である。より好ましくは、イオン液は、炭化水素液の質量当たり１．０～３．５質量％；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たり１．０～３．０質量％の範囲の量で添加する。

【００６６】

通常の状況では、その後、二酸化窒素汚染の存在下、６０℃～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害するために添加する洗浄剤の量は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．２～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．５～４．０質量％の範囲である。最も好ましくは、洗浄剤は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．０～３．０質量％の範囲；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．５～２．５質量％の範囲の量で添加する。

本発明の方法で配合する炭化水素液は、６０℃以上、例えば１１０℃以上、例えば６０～１８０℃（例えば６０～１８０℃、例えば６０～１６０℃、例えば１１０～１６０℃、例えば１３０～１６０℃）のバルク液温度での運転に適し、運転前に老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない（又はほぼ含まない、例えば５ｐｐｍ未満の老化成分、及び１０ｐｐｍ未満の二酸化窒素の汚染）液体である。このような運転液は、工業用及び自動車用油、並びにエンジン潤滑油などの動力伝達用流体といった様々な用途で使用されている。

【００６７】

本使用では、炭化水素液は機械装置用潤滑油であることが好ましい。本使用においてより好ましくは、炭化水素液は内燃機関用のクランク室潤滑油であり、運転中に排気ガスに

由来する二酸化窒素汚染を受ける。この排気ガスは、クランク室へのガスの吹き抜け効果により潤滑剤に取り込まれ、エンジンのシリンダ壁に直接接触する。最も好ましくは、このクランク室潤滑油は、クランク室内の１１０～１６０℃のバルク液温度に周期的又は連続的に曝露されるものである。

本使用に利点をもたらすために重要なことは、運転に先立って、炭化水素液は初めは二酸化窒素汚染がなく、運転中に酸化的又は他の化学的破壊から生じる老化液体成分も初めは含まず、二酸化窒素が開始する硝化の代替的又は補完的分解経路をもたらす可能性のある反応性化学種を大量に液体中に散布しないようにすることである。従って、好ましくは、炭化水素液は新しく調製すべきであり、以前の運転で使用したものにすべきではなく；運転前に、以前に使用していた、又は二酸化窒素汚染を受けた老化液の一部と予備混合、もしくはその老化液で希釈すべきではない。

あるいは、運転に先立って、炭化水素液は初めは二酸化窒素汚染をほぼ含まない状態（１０ｐｐｍ以下、例えば５ｐｐｍ以下、例えば０ｐｐｍ）、また運転中に酸化的又は他の化学的破壊から生じる老化液体成分もほぼ含まない状態（１０ｐｐｍ以下、例えば５ｐｐｍ以下、例えば０ｐｐｍ）であってもよい（又は、例えば、老化成分が０．０００１質量％未満でほぼ含まれず、二酸化窒素汚染が１０ｐｐｍ未満でほぼ含まれない状態）。

【００６８】

また、運転、及び結果として生じる高温及び二酸化窒素汚染の開始に先立って、イオン液を添加して、その硝化阻害効果を最大にし、バルク液体中の二酸化窒素濃度の増加を妨害することが重要である。

本方法では、イオン液及び洗浄剤は、当技術分野で公知の物理的な混合又はブレンド技術により炭化水素液に添加できる。必須ではないが、混合又はブレンドをより容易にするために、キャリア液（イオン液及び炭化水素液の両方と相互に適合する希釈剤又は溶剤）中のイオン液及び洗浄剤を含む第１態様の１種以上の添加剤組成物を調製することが望ましい場合もあり、それにより他の添加剤も同時に濃縮物に、ひいては油剤に添加して潤滑油組成物を形成できる（このような濃縮物を添加剤パッケージと称することもある）。

添加剤濃縮物を使用する場合、その含有量は、イオン液の５～２５質量％、好ましくは５～２２質量％、典型的には１０～２０質量％であってもよく、濃縮物の残部は溶剤又は希釈剤である。

硝化による化学分解を制限する際の本使用の有利な性質を、以下、本発明の研究例において実証する。

【００６９】

本発明の第４態様の使用

本発明の第４態様は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の化学分解を制限するために、本明細書で上述したイオン液及び洗浄剤添加剤の協働的使用を提供する。前記分解は運転中の二酸化窒素汚染に起因する炭化水素液の硝化により開始される。その際、イオン液及び洗浄剤は、運転前に、老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない炭化水素液に添加し、イオン液及び洗浄剤はその後に、二酸化窒素汚染の存在下で６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害する。

本発明の第４態様は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転において、二酸化窒素汚染により開始される炭化水素液の硝化を阻害するためのイオン液及び洗浄剤を使用する。この使用において、イオン液及び洗浄剤は本明細書で上述したように作用し、二酸化窒素汚染に起因するバルク炭化水素液の化学分解を制限するために協働する。

本発明のこの使用の態様において好適かつ好ましいイオン液、洗浄剤、及び炭化水素液は、本明細書で既に説明したものである。

本発明のこの使用において硝化を阻害するために協働的に有効なイオン液及び洗浄剤の量は、対象の系において体験する高運転温度での二酸化窒素汚染を再現又はシミュレーションする条件下で、ルーチン試験により決定できる。

【００７０】

本使用の好ましい態様では、イオン液及び洗浄剤により阻害する化学分解は、６０～１

８０℃のバルク液温度で二酸化窒素での炭化水素液の硝化により運転中に形成される炭化水素系硝酸エステルの分解に起因するものであり、イオン液及び洗浄剤はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害する。このように、高運転温度における反応性炭化水素系硝酸エステルの貯蔵部の蓄積を直接阻害し、分解をより良好に制限する。

本使用のより好ましい態様では、イオン液及び洗浄剤に阻害される化学分解は、炭化水素液を運転中、周期的又は連続的に１１０～１６０℃のバルク液温度に供することにより炭化水素系硝酸エステルが分解することに起因するものであり、イオン液及び洗浄剤はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害する。このように、高温における運転の際に発生する、より迅速で深刻な分解を直接阻害する。

【００７１】

本発明のこれらの使用実施形態では、バルク液体中の硝酸エステル形成のレベルは、好適な試験条件下でバルク液体中の硝酸エステルに関連する赤外線ピーク高さの経時的な増加を観察することにより分光法で決定できる。この分光学的アプローチにより、バルク液体中の硝酸エステル形成を阻害するためのイオン液及び洗浄剤の効果を観察できるようになる。運転中の炭化水素系硝酸エステル形成の阻害は、イオン液及び洗浄剤の複合的存在下でバルク液体中の硝酸エステルピーク高さが相対的に低いことを観察することにより判断する。このピーク高さは、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って、イオン液又は洗浄剤活性成分単独で観察された硝酸エステルピークと比較して、赤外線分光法で測定する。このＤＩＮ法によれば、１６３０ｃｍ$^{-1}$の単一赤外線吸収周波数の高さは、１６１５ｃｍ$^{-1}$及び１６４５ｃｍ$^{-1}$の吸光度で定義する直線ベースラインより高く測定される。ピークの高さが高いほど、バルク液体中の硝酸エステルが多くなる。経時的に採取した一連の試料を測定することで、運転液中の硝酸エステルレベルの経時的変化に伴うピーク高さの変化を追跡することも可能になる。ＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０標準試験方法に従って、酸化及び硝化ピーク高さを、初めに新品の油剤の赤外線スペクトルを減算することにより測定する。ベースラインは、１９５０ｃｍ$^{-1}$～１８５０ｃｍ$^{-1}$の吸収により定義し、最高ピークは酸化で１７４０ｃｍ$^{-1}$～１７００ｃｍ$^{-1}$の範囲、硝化で１６４０ｃｍ$^{-1}$～１６２０ｃｍ$^{-1}$の範囲である。

【００７２】

しかし、通常の状況では、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害するために使用するイオン液の量は、炭化水素液の質量当たり０．１～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たり０．５～４．０質量％の範囲である。より好ましくは、イオン液は、炭化水素液の質量当たり１．０～３．５質量％の範囲；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たり１．０～３．０質量％の範囲の量で使用する。

また、通常の状況では、二酸化窒素汚染の存在下、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化をその後に阻害するために添加する洗浄剤の量は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．２～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．５～４．０質量％の範囲である。より好ましくは、洗浄剤は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．０～３．０質量％の範囲；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．５～２．５質量％の範囲の量で添加する。

【００７３】

本発明の第５態様の使用

第５態様は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転における、運転中の二酸化窒素汚染に起因する炭化水素液の硝化を阻害するためのイオン液添加剤の効力を高めるために、活性成分として１種以上のヒドロカルビル置換中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤の使用を提供する。前記イオン液は：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転及び二酸化窒素汚染への曝露に先立って、イオン液添加剤を含有する炭化水素液に添加する。
【００７４】
本発明の全ての使用の態様において好適かつ好ましいイオン液、洗浄剤、及び炭化水素液は、本明細書で既に説明したものである。
本発明のこの使用において硝化を阻害するイオン液の効力を向上させるために使用する洗浄剤の量は、対象の系において体験する高運転温度での二酸化窒素汚染を再現又はシミュレーションする条件下で、ルーチン試験により決定できる。
本使用の好ましい態様では、イオン液により阻害し、洗浄剤により促進する化学分解は、６０～１８０℃のバルク液温度で二酸化窒素での炭化水素液の硝化により運転中に形成される炭化水素系硝酸エステルの分解に起因するものであり、イオン液及び洗浄剤はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害する。このように、高運転温度における反応性炭化水素系硝酸エステルの貯蔵部の蓄積を直接阻害し、分解をより良好に制限する。
【００７５】
本使用のより好ましい態様では、イオン液により阻害し、洗浄剤により促進する化学分解は、炭化水素液を運転中、周期的又は連続的に１１０～１６０℃のバルク液温度に供することにより炭化水素系硝酸エステルが分解することに起因するものであり、イオン液及び洗浄剤はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害する。このように、高温における運転の際に発生する、より迅速で深刻な分解を直接阻害する。
本発明のこの使用実施形態では、第４態様と同様に、バルク液体中の硝酸エステル形成のレベルは、好適な試験条件下でバルク液体中の硝酸エステルに関連する赤外線ピーク高さの経時的な増加を観察することにより分光法で決定できる。この分光学的アプローチにより、洗浄剤の存在下でバルク液体中の硝酸エステル形成を阻害するためのイオン液の効力の増加を観察できるようになる。運転中の炭化水素系硝酸エステル形成の阻害は、イオン液及び洗浄剤の存在下でバルク液体中の硝酸エステルピーク高さが相対的に低いことを観察することにより判断する。このピーク高さは、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って、同量のイオン液活性成分単独で観察された硝酸エステルピークと比較して、赤外線分光法で測定する。このＤＩＮ法によれば、１６３０ｃｍ$^{-1}$の単一赤外線吸収周波数の高さは、１６１５ｃｍ$^{-1}$及び１６４５ｃｍ$^{-1}$の吸光度で定義する直線ベースラインより高く測定される。ピークの高さが高いほど、バルク液体中の硝酸エステルが多くなる。経時的に採取した一連の試料を測定することで、運転液中の硝酸エステルレベルの経時的変化に伴うピーク高さの変化を追跡することが可能になる。ＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０標準試験方法に従って、酸化及び硝化ピーク高さを、初めに新品の油剤の赤外線スペクトルを減算することにより測定する。ベースラインは、１９５０ｃｍ$^{-1}$～１８５０ｃｍ$^{-1}$の吸収により定義し、最高ピークは酸化で１７４０ｃｍ$^{-1}$～１７００ｃｍ$^{-1}$の範囲、硝化で１６４０ｃｍ$^{-1}$～１６２０ｃｍ$^{-1}$の範囲である。
【００７６】
しかし、通常の状況では、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害するために使用するイオン液の量は、炭化水素液の質量当たり０．１～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たり０．５～４．０質量％の範囲である。より好ましくは、イオン液は、炭化水素液の質量当たり１．０～３．５質量％の範囲；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たり１．０～３．０質量％の範囲の量で使用する。
また、通常の状況では、二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度で

の運転中に炭化水素液の硝化を阻害するイオン液の効力を増加させるために添加する洗浄剤の量は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．２～５．０質量％；好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として０．５～４．０質量％の範囲である。より好ましくは、洗浄剤は、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．０～３．０質量％の範囲；最も好ましくは、炭化水素液の質量当たりの活性成分として１．５～２．５質量％の範囲の量で添加する。

【００７７】

最も好ましくは、本発明の第３態様の方法及び本発明の他の全ての態様の使用は、エンジン潤滑油である炭化水素液の分解を制限することを目的とする。これらの油剤は、排気ガスが燃焼室からピストンリングを通ってクランク室へと吹き抜けることにより、運転中に二酸化窒素汚染を受ける。クランク室油とも呼ばれるこのような油剤は、特に油剤が新しく、老化油成分が他の機序により多量には形成されていないときに、油分解への硝化経路が顕著になるバルク液温度で動作する。比較的高温で稼働するエンジンは特に、このような分解に影響を受けやすく、特に、１１０～１６０℃、特に１３０～１６０℃のバルククランク室油の温度状況又はサイクルを行うエンジンは影響を受けやすい。

本発明の上記方法及び全ての使用において好ましいイオン液は、１種以上のアニオン（ｉｉ）、より好ましくは全てのアニオン（ｉｉ）がヘテロ原子を含む少なくとも２つの置換官能基を有する芳香環であるヒドロカルビル基を含み、これらの官能基が芳香環と共役し、この共役系がアニオン性（負）電荷を有するイオン液である。このような好ましい構成のアニオンは、二酸化窒素に対して特に親和性が高く、炭化水素化合物に対する反応性を著しく低下させるように二酸化窒素に結合できると考えられている。

【００７８】

芳香環は、炭素、及び任意に１種以上のヘテロ原子、例えば窒素又は酸素を含む。しかし、イオン液の各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まないことが好ましい。このようなイオン液は本発明においてより有利であり、イオン液の一部が燃焼により消費される環境、例えばエンジン潤滑剤環境において、二酸化窒素の形成には寄与できないことが分かった。

アニオンのこの好ましい実施形態における有利な第１形態では、各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、ヘテロ原子を含む２つの置換官能基を有する。より好ましくは、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、カルボキシレート基、及び更に、別のヘテロ原子含有官能基を有する。より好ましくは、これらの官能基の両方における両ヘテロ原子（単数又は複数）は酸素原子から成る。より好ましくは、これらの官能基は、芳香環上で互いに「オルト」配置で隣接する環炭素原子上に位置する。

【００７９】

アニオンのこの実施形態では、各アニオン（ｉｉ）は、カルボキシレート基、及びヘテロ原子として酸素のみを含む第２ヘテロ原子含有官能基を有する二置換ベンゼン環であることが非常に好ましく、これらの２つの基は、芳香環上で互いに「オルト」配置で位置することが好ましい。第２官能基はヒドロキシル基であり、ヒドロキシ安息香酸アニオン（ｉｉ）を生成することが好ましい。イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は、１種以上のサリチル酸アニオン、即ちサリチル酸の脱プロトン化から形成されるアニオンであることが最も好ましい。

アニオンのこの好ましい実施形態における、より有利な第２形態では、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環自体は更に１つ以上のヒドロカルビル置換基を有する。これらの置換基はイオン液に疎水性を追加し、イオン液は炭化水素系バルク液体とより容易に混合できるようになる。

本第２実施形態のアニオンの芳香環上に追加したヒドロカルビル置換基（単数又は複数）は、前述で定義した通りである。好ましくは、これらの置換基（単数又は複数）はアルキル置換基である。好適なアルキル基としては、炭素原子数が６個以上、好ましくは６～２８個、より好ましくは６～１４個である直鎖又は分岐鎖アルキル基が挙げられる。特に好適なアルキル置換基としては、ヘキシル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、オクタデシル基、特にここではｎ‐アルキル基が挙げられ

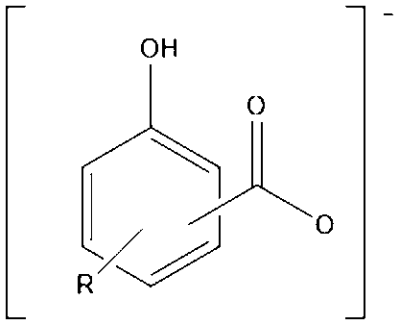
る。

【００８０】

この第２実施形態のアニオン（ｉｉ）の芳香環が有するアルキル置換基は単一でも複数でもよい。結果として得られたイオン液は、アルキル置換基の数及び／又は位置が異なる複数のアニオン（ｉｉ）の混合物から構成してもよい。そのアルキル置換基は好ましくは、上記で指定したアルキル置換基から選択される。好ましくは、アルキル置換基の少なくとも１つは、炭素原子数が少なくとも１０個であり、上記の例から選択される。より好ましくは、イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、炭素原子数が１０個を超える１つ以上の直鎖又は分岐鎖アルキル置換基を有する。

アニオンのより好ましい第２実施形態では、１種以上のアニオン（ｉｉ）は、好ましくは以下の構造のヒドロカルビル置換ヒドロキシ安息香酸塩である：

【化３】



式中、Ｒは、直鎖又は分岐鎖ヒドロカルビル基、より好ましくは直鎖又は分岐鎖アルキル基などの上記で定義したアルキル基である。ベンゼン環に結合しているＲ基は複数存在してもよい。カルボキシレート基及び水酸基は芳香環に共役しており、この系は負（アニオン）電荷を有する。カルボキシレート基は水酸基に対してオルト、メタ、又はパラ位に位置することが可能であり；オルト位が好ましい。Ｒ基は、水酸基に対してオルト、メタ、又はパラ位に位置することが可能である。

【００８１】

アニオンの第２実施形態では、イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は、最も好ましくは１種以上のアルキル置換サリチル酸アニオンである。ここでは各アニオンのアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が１２～２４個であるアルキル基から；より好ましくはドデシル基、テトラデシル基、ヘキサデシル基、及びオクタデシル基から選択される。

このようなヒドロキシ安息香酸アニオン及びサリチル酸アニオンは通常、Ｋｏｌｂｅ‐Ｓｃｈｍｉｔｔ法によりフェノキシドのカルボキシル化を経て調製し、その場合、一般に、未カルボキシル化フェノールとの混合物中で（通常は希釈液中で）得られる。

また、本方法及び使用における好ましい洗浄剤は、活性成分が１種以上のヒドロカルビル置換カルボン酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩、より好ましくは１種以上のヒドロキシ安息香酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はそれを含む洗浄剤である。

このようなカルボン酸塩洗浄剤は、芳香族カルボン酸を酸化物又は水酸化物などの適切な金属化合物と反応させることにより調製可能であり、中性又は過塩基性生成物は、当技術分野で周知の方法により得てもよい。芳香族カルボン酸の芳香族部分は、窒素及び酸素などのヘテロ原子を含有できる。好ましくは、前記部分は炭素原子のみを含有し；より好ましくは、前記部分は６個以上の炭素原子を含み；例えば、ベンゼンが好ましい部分である。芳香族カルボン酸は、アルキレン架橋を介して縮合又は結合した１つ以上の芳香族部分、例えば１つ以上のベンゼン環を含んでもよい。カルボキシル部分は、芳香族部分に直接又は間接的に結合してもよい。好ましくは、カルボン酸基は、芳香族部分上の炭素原子、例えばベンゼン環上の炭素原子に直接結合している。より好ましくは、芳香族部分はヒ

ドロキシ基又はスルホネート基などの第２官能基も含み、この基は芳香族部分上の炭素原子に直接又は間接的に結合可能である。

【００８２】

芳香族カルボン酸の好ましい例としては、サリチル酸及びその硫化誘導体、例えばヒドロカルビル置換サリチル酸及びその誘導体が挙げられる。例えばヒドロカルビル置換サリチル酸を硫化する方法は当業者に公知である。サリチル酸は典型的には、例えば、Ｋｏｌｂｅ‐Ｓｃｈｍｉｔｔ法を用いてフェノキシドのカルボキシル化により調製し、その場合は一般に、通常は希釈剤中で、未カルボキシル化フェノールとの混和物において得られる。

油溶性サリチル酸における好ましい置換基はアルキル置換基である。アルキル置換サリチル酸において、アルキル基の炭素原子数は、有利には５～１００、好ましくは９～３０、特に１４～２０である。アルキル基が複数ある場合、全てのアルキル基の平均炭素原子数は好ましくは、十分な油溶性を確保するために少なくとも９個である。

【００８３】

本発明のこの態様では、特に好ましくは、洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のアルカリ土類金属塩であり、最も好ましくはアルキル置換サリチル酸の１種以上のマグネシウム塩である。このような両実施形態では、洗浄剤活性成分を構成する各サリチル酸塩のアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が９～３０個、特に１４～２０個であるアルキル基から選択されることが最も好ましい。

本発明の実施においては、マグネシウム塩を含む洗浄剤が好ましい。本発明のこの態様では、マグネシウム洗浄剤は、単独金属含有洗浄剤であってもよく、この場合、洗浄剤により潤滑油組成物に導入される金属の１００％はマグネシウムとなる。マグネシウム以外の金属をベースとする過塩基性又は中性洗浄剤を採用する場合、洗浄剤により潤滑油組成物に導入された金属の総量に対して好ましくは少なくとも約３０質量％、より好ましくは少なくとも約４０質量％、特に少なくとも約５０質量％がマグネシウムとなる。

【００８４】

本発明は更に以下に関する：

１．炭化水素液用の添加剤組成物であって、前記添加剤組成物はイオン液及び洗浄剤添加剤を含み、前記イオン液は：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン

を含み；

前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含み；前記添加剤組成物は更にキャリア液又は希釈剤を含む、

添加剤組成物。

２．炭化水素液組成物であって、前記炭化水素液組成物は主量の炭化水素液、並びに少量のイオン液及び洗浄剤添加剤を含み、前記イオン液は：

（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに

（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン

を含み；

前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上の中性又は過塩基性ヒドロカルビル置換金属塩を含む、

炭化水素液組成物。

３．イオン液の各カチオン（ｉ）は窒素を含有する、パラグラフ１又は２に記載の組成物

。
４．各カチオン（ｉ）は、置換アンモニウムカチオン、又は窒素を組み込んでカチオン電荷を有する脂環式もしくは芳香環系から成る、パラグラフ３に記載の組成物。
５．各カチオン（ｉ）は四置換アンモニウムカチオンである、パラグラフ３又は４に記載の組成物。
６．イオン液の各カチオン（ｉ）は窒素を含まない、パラグラフ５に記載の組成物。
７．イオン液の各カチオン（ｉ）は、カチオン電荷を有するテトラヒドロカルビル置換中心原子又は環系から成る、パラグラフ６に記載の組成物。
８．イオン液の各カチオン（ｉ）は、テトラアルキル置換ホスホニウムカチオンである、パラグラフ７に記載の組成物。
９．イオン液の各アニオン（ｉｉ）は窒素を含まない、パラグラフ１～８のいずれかに記載の組成物。
１０．イオン液の各アニオン（ｉｉ）はカルボキシレート官能基を含む、パラグラフ１～９のいずれかに記載の組成物。
１１．イオン液の各アニオン（ｉｉ）はヘキサン酸アニオンである、パラグラフ１０に記載の組成物。
１２．イオン液の各アニオン（ｉｉ）はカルボキシレート基、及び更にヘテロ原子含有官能基を含む、パラグラフ１０に記載の組成物。
１３．イオン液の各アニオン（ｉｉ）は芳香環であるヒドロカルビル基を含み、この環はカルボキシレート基及び更にヘテロ原子含有官能基を有し、これらの官能基は芳香環と共役し、この共役系はアニオン電荷を有する、パラグラフ１２に記載の組成物。
１４．イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は１種以上のサリチル酸アニオンである、パラグラフ１３に記載の組成物。
１５．イオン液の各アニオン（ｉｉ）の芳香環は、更に１つ以上の直鎖又は分岐鎖アルキル置換基を有する、パラグラフ１３に記載の組成物。
１６．イオン液の１種以上のアニオン（ｉｉ）は１種以上のアルキル置換サリチル酸アニオンであり、各アニオンのアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が１２～２４個のアルキル基から選択される、パラグラフ１５に記載の組成物。
１７．イオン液の各カチオン（ｉ）はトリヘキシルテトラデシル‐ホスホニウムカチオンである、パラグラフ１１、１４、及び１６のいずれかに記載の組成物。
１８．洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換芳香族酸又はフェノールの１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、パラグラフ１～１７のいずれかに記載の組成物。
１９．洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換ベンゼンスルホン酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、パラグラフ１８に記載の組成物。
２０．洗浄剤活性成分は、１種以上のヒドロカルビル置換ヒドロキシ安息香酸の１種以上の中性又は過塩基性金属塩であるか、又はその金属塩を含む、パラグラフ１８に記載の組成物。
２１．洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のアルカリ土類金属塩である、パラグラフ２０に記載の組成物。
２２．洗浄剤活性成分はアルキル置換サリチル酸の１種以上のマグネシウム塩である、パラグラフ２１に記載の組成物。
２３．洗浄剤活性成分を構成する各サリチル酸塩のアルキル置換基（単数又は複数）はそれぞれ独立して、炭素原子数が９～３０個であるアルキル基から選択される、パラグラフ２１又は２２に記載の組成物。
２４．無灰分散剤添加剤、好ましくはリン含有化合物を更に含むパラグラフ１～２３のいずれかに記載の組成物。
２５．炭化水素液は潤滑油、より好ましくは内燃機関用のクランク室潤滑油である、パラグラフ２、又はパラグラフ２と合わせて読む場合の、パラグラフ３～２４のいずれかに記

載の組成物。
２６．６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の化学分解を制限する方法であって、前記分解は運転中の二酸化窒素汚染から生じる液体の硝化により開始され、前記方法は：
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に適し、老化成分及び二酸化窒素汚染を含まない、炭化水素液を調製、又は新しく調製した炭化水素液を取得する工程；並びに
６０～１８０℃のバルク液温度での運転に先立って、イオン液及び洗浄剤添加剤を前記炭化水素液に添加する工程であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
二酸化窒素汚染の存在下で、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中、前記イオン液及び洗浄剤活性成分を、その後に炭化水素液の硝化を阻害するために協働的に有効な量で添加する工程；並びに
前記炭化水素液を運転に供し、それによりイオン液及び洗浄剤添加剤は、結果として生じる液体の化学分解を制限する工程
を含む、
方法。
２７．化学分解は、６０～１８０℃のバルク液温度で二酸化窒素での炭化水素液の硝化により運転中に形成される炭化水素系硝酸エステルの分解に起因するものであり；イオン液及び洗浄剤活性成分はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する、パラグラフ２６に記載の方法。
２８．炭化水素系硝酸エステルの分解は、炭化水素液を運転中、周期的又は連続的に１１０～１６０℃のバルク液温度に供することに起因し；イオン液及び洗浄剤活性成分はその運転の際に炭化水素系硝酸エステルの形成を阻害するために決定した量で添加する、パラグラフ２７に記載の方法。
２９．運転中の炭化水素系硝酸エステル形成の阻害は、それぞれ同じ量のイオン液又は洗浄剤活性成分単独で観察された硝酸エステルピークと比較してイオン液及び洗浄剤活性成分の複合的な存在下で硝酸エステルピーク領域が低いことを観察することにより判断し、このピーク領域は、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って、赤外線分光法で測定する、パラグラフ２７又は２８に記載の方法。
３０．硝化の阻害を協働的に達成するために炭化水素液に添加するイオン液及び洗浄剤活性成分の量は、イオン液では炭化水素液の質量当たり０．１～５．０質量％であり、洗浄剤活性成分では炭化水素液の質量当たり０．２～５．０質量％である、パラグラフ２６～２９のいずれかに記載の方法。
３１．イオン液及び洗浄剤添加剤は、パラグラフ１、又はパラグラフ１と合わせて読む場合の、パラグラフ３～２４のいずれかに記載の添加剤組成物の形態で添加する、パラグラフ２６～３０のいずれかに記載の方法。
３２．炭化水素液は潤滑油である、パラグラフ２６～３１のいずれかに記載の方法。
３３．炭化水素液の化学分解を、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に制限するための、イオン液と洗浄剤添加剤との協働的使用であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び

１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
前記洗浄剤添加剤は、活性成分として、１種以上のヒドロカルビル置換した中性又は過塩基性金属塩を含み；
前記化学分解は、運転中の二酸化窒素汚染から生じる炭化水素液の硝化により開始され；
イオン液及び洗浄剤添加剤を、運転前に、老化成分及び二酸化窒素を含まない炭化水素液に添加し、その後、イオン液及び洗浄剤活性成分は、二酸化窒素汚染の存在下、６０～１８０℃のバルク液温度での運転中に炭化水素液の硝化を阻害する、
協働的使用。
３４．イオン液及び洗浄剤添加剤は、パラグラフ１、又はパラグラフ１と合わせて読む場合の、パラグラフ３～２４のいずれかに記載の添加剤組成物の形態で添加する、パラグラフ３３に記載の使用。
３５．６０～１８０℃のバルク液温度での運転において運転での二酸化窒素汚染に起因する炭化水素液の硝化を阻害するためのイオン液添加剤の効力を高めるための、活性成分としてヒドロカルビル置換した１種以上の中性又は過塩基性金属塩を含む洗浄剤添加剤の使用であって、前記イオン液は：
（ｉ）カチオン電荷を有する中心原子又は環系及び複数のペンダントヒドロカルビル置換基をそれぞれ含む１種以上の有機カチオン、並びに
（ｉｉ）局在化又は非局在化アニオン電荷を有する１つ以上のヘテロ原子含有官能基及び１つ以上のヒドロカルビル基をそれぞれ含む、ハロゲン、硫黄、及びホウ素を含まない１種以上の有機アニオン
を含み；
洗浄剤添加剤は、６０～１８０℃のバルク液温度での運転及び二酸化窒素汚染への曝露の前に、イオン液添加剤を含有する炭化水素液に添加する、使用。
３６．炭化水素液は潤滑油である、パラグラフ３３～３５のいずれかに記載の使用。
３７．洗浄剤活性成分はパラグラフ１８～２３のいずれかで特定した特徴を有し、イオン液はパラグラフ３～１７のいずれかで特定した特徴を有する、パラグラフ２６～３６のいずれかに記載の方法又は使用。
３８．洗浄剤活性成分はパラグラフ２０～２３のいずれかで特定した特徴を有する、パラグラフ２６～３７のいずれかに記載の方法又は使用。
３９．イオン液はパラグラフ１３～１７のいずれかで特定した特徴を有する、パラグラフ２６～３８のいずれかに記載の方法又は使用。
４０．前記方法又は使用から得られる炭化水素液は更に、無灰分散剤添加剤、及び好ましくはリン含有化合物を含む、パラグラフ２６～３９のいずれかに記載の方法又は使用。
【実施例】
【００８５】
本発明の実施及び利点を、以下に実施例を参照して説明する。
本発明及び本発明に対する特許請求の範囲の目的として、潤滑油組成物中の硝酸エステル形成の低減又は制限の量は、イオン液を含有する潤滑油組成物の存在下での硝酸エステルピーク高さが（イオン液が、同じカチオンを有するがアニオンとしては同じ割合のヘキサン酸塩を有するイオン液と置き換えられた、同じ潤滑油組成物の硝酸エステルピークと比較して）低いこと（例えば、少なくとも１０％、例えば少なくとも２０％、例えば少なくとも３０％、例えば少なくとも４０％、例えば少なくとも５０％、例えば１００％低い）を観察することにより決定する。このピーク高さは、運転及び二酸化窒素汚染の同様の条件下で、ＤＩＮ５１　４５３又はＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０に従って赤外線分光法で測定するが、但し、ＤＩＮ５１　４５３とＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０との間に矛盾がある場合、ＤＩＮ５１　４５３に従う。
【００８６】

実施例１　―　研究例で使用するためのイオン液の調製
　イオン交換樹脂を配合する以下の方法を用いてイオン液を合成した。
【００８７】
実施例１．１：［Ｐ６６６１４］［サリチル酸塩］（本発明のイオン液の例）
　市販の塩化トリヘキシルテトラデシルホスホニウム、［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（ＣＹＰＨＯＳ　ＩＬ‐１０１、＞９５％、ＣＡＳ番号：２５８８６４‐５４‐９）を開始物質とする二段階合成法を用いて［Ｐ６６６１４］［サリチル酸塩］を生成した。
　第１段階では、市販の塩基性アニオン交換樹脂（Ａｍｂｅｒｌｉｔｅ　ＩＲＮ‐７８、ＯＨ形態樹脂、ＣＡＳ番号：１１１２８‐９５‐３）を用いて、［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］から［Ｐ６６６１４］［ＯＨ］を合成した。［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（１００ｇ、０．１９３モル）を２Ｌ丸底フラスコに添加し、無水エタノール（９００ｍＬ、１９．５モル、ＣＡＳ番号：６４‐１７‐５）で希釈した。これに１００ｇのイオン交換樹脂を添加し、混合液を２２℃で５時間攪拌した。その後、樹脂を濾別し、１００ｇの新しい樹脂を添加した。この工程を３回、又は銀ハロゲン化物試験の陰性が観察されてイオン交換の完了が示されるまで、繰り返した。
【００８８】
　銀ハロゲン化物試験は次のように行った：反応混合物の小さいアリコート（０．２ｍＬ）を２ｍＬバイアルに移し、１ｍＬの無水エタノールで希釈した。２～３滴のHNO_3を添加し、溶液を酸性にし、次いで２～３滴の$AgNO_3$（≧９９質量％、Ｓｉｇｍａ‐Ａｌｄｒｉｃｈ社製、ＣＡＳ番号：７７６１‐８８‐８）飽和水溶液を添加した。析出物のない透明な溶液が観察されると、イオン交換が完了したことが分かった。
　第２段階では、^{1}H　ＮＭＲによりエタノール中の［Ｐ６６６１４］［ＯＨ］の濃度を測定した。次いで、市販サリチル酸（≧９９．０質量％、ＣＡＳ番号：６９‐７２‐７）を１００ｍＬのエタノールに溶解したもの（収率１００％としてサリチル酸２６．６ｇ、０．１９３モル）を等モル量で滴下し、その後２２℃で一晩攪拌した。次いで、この溶液をロータリーエバポレーション下で乾燥し、その後、減圧下（10^{-3}Ｐａ）、５０℃で９６時間以上乾燥し、乾燥した純粋イオン液を得た（以下のようにＮＭＲにより決定）。
　［Ｐ６６６１４］［サリチル酸塩］：^{1}H　ＮＭＲ（５００ＭＨｚ，ＤＭＳＯ‐ｄ６）：δ（ｐｐｍ）＝０．８７（ｓ，１２Ｈ，CH_3‐‐（Ｐ）），１．２４～１．５８（ｍ，４８Ｈ，‐CH_2‐（Ｐ）），２．１７（ｓ，８Ｈ，‐CH_2‐（Ｐ）），６．６２（ｍ，２Ｈ），７．１７（ｍ，１Ｈ），７．６５（ｍ，１Ｈ）；^{13}C　ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，ＤＭＳＯ‐ｄ６）：δ（ｐｐｍ）＝１３．８６，１３．９５，１７．１４，１７．２８，１７．５６，１７．６５，２０．５０，２１．８１，２２．１０，２８．０８，２８．６３，２８．７２，２８．９６，２９．０５，２９．６８，２９．８０，３０．４０，３１．３０，１１６．００，１２９．９２，１３１．９７，１６２．７９，１７１．３１。
【００８９】
実施例１．２：［Ｐ６６６１４］［アルキル‐サリチル酸塩］（本発明のイオン液の例）
　実施例１．１の［Ｐ６６６１４］［サリチル酸塩］に用いた手順により［Ｐ６６６１４］［アルキル‐サリチル酸塩］を合成した。初めに、［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（１００ｇ、０．１９３モル）から［Ｐ６６６１４］［ＯＨ］を調製した。実施例１．１のサリチル酸の代わりに第２工程で使用したアルキル‐サリチル酸は、炭素原子数１４及び１６のアルキル置換基を有するモノアルキルサリチル酸混合物であるＩｎｆｉｎｅｕｍ　ＵＫ社製の市販試料であった。この場合、サリチル酸の酸価（０．００２６１ｇH^+／モル）を用いて中和反応に必要な酸の量（等モル）を計算したところ、７３．９６ｇであった。
　乾燥後、材料をＮＭＲで特性把握した。
　［Ｐ６６６１４］［アルキル‐サリチル酸塩］：^{1}H　ＮＭＲ（５００ＭＨｚ、ＤＭＳＯ‐ｄ６）：δ（ｐｐｍ）＝　０．６９～０．８８（ｓ），１．０４～１．２９（ｍ），１．３７（ｍ），１．４６（ｍ），２．１５（ｍ），２．２９（ｓ），３．３４（ｓ），３．４３（ｍ），４．３６（ｓ），６．４９（ｍ），６．７２（ｍ），６．９３（ｍ），

７．１８（ｍ），７．２５（ｍ），７．４１（ｓ），７．４７（ｍ），７．６５（ｓ），７．７０（ｓ），８．１６（ｓ），９．０７（ｓ），９．１１（ｓ），９．１５（ｓ）。

【００９０】

以下のスケールアップした手順により［Ｐ６６６１４］［アルキル‐サリチル酸塩］の別の試料を調製した。

［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（８０８ｇ、１．５６モル）を５Ｌのガラス製反応器に充填し、無水エタノール（７７０ｍＬ、１３．２モル）で希釈した。発熱を２３℃に制限するために水浴を用い、この溶液に、無水エタノール（７７０ｍＬ、１３．２モル）中に予め調製したＫＯＨ（８７．３ｇ、１．５６モル）の溶液を、２８分かけて添加した。この混合物を９０～２５０分間熟成し、セライト濾過助剤（１６４ｇ、２０質量％）とブレンドし、濾過してＫＣｌを除去し、濾過ケーキを無水エタノール（１６０ｍＬ、２．７４モル）ですすいだ。濾液を清浄な５Ｌガラス製反応器に移し、Ａｍｂｅｒｌｉｔｅイオン交換樹脂ＩＲＮ‐７８（４００ｇ、５０質量％）で３０～７０分間処理し、濾過分離した後、樹脂を無水エタノール（２×１６０ｍＬ、２×２．７４モル）ですすいだ。濾液を清浄な５Ｌガラス製反応器に移し、発熱を２８℃に制限するために水浴を用いて、この濾液に、キシレン溶液として同じアルキル‐サリチル酸を等モル量、３３分かけて添加した。この混合物を１６時間熟成させた後、揮発性成分をロータリーエバポレーションにより、６０～８０℃、１０ｍｂａｒで、３時間以上かけて除去した。

【００９１】

実施例１．３：［Ｐ６６６１４］［ヘキサン酸塩］（本発明のイオン液の例）

実施例１．１の［Ｐ６６６１４］［サリチル酸塩］に用いた手順により［Ｐ６６６１４］［ヘキサン酸塩］を合成した。初めに、［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（１００ｇ、０．１９３モル）から［Ｐ６６６１４］［ＯＨ］を調製した。第２工程でのサリチル酸の代わりにヘキサン酸（≧９９質量％、ＣＡＳ番号：１４２‐６２‐１）を等モルで添加し（２２．４ｇ、０．１９３モル）、所望のイオン液を生成し、その後、乾燥させた。

【００９２】

実施例１．４：［Ｐ６６６１４］［NTf_2］（比較例）

塩化トリヘキシルテトラデシルホスホニウム、［Ｐ６６６１４］［Ｃｌ］（１００ｇ、０．１９３モル）を、１Ｌ丸底フラスコ中で、最小量のジクロロメタン（＞９９％、ＣＡＳ番号：７５‐０９‐２）に溶解させた。これに、市販$LiNTf_2$（５５．３ｇ、０．１９３モル；９９質量％、ＣＡＳ番号：９００７６‐６５‐６）の水溶液を滴下した。反応混合物を２２℃で１２時間撹拌し、二相性溶液を形成した。有機層を抽出し、超純水で５回洗浄してＬｉＣｌ副生成物を除去し、ハロゲン化物試験で陰性が確認されるまで洗浄した。次いで、この溶液をロータリーエバポレーション下で乾燥した後、減圧下（10^{-3} Ｐａ）、５０℃で９６時間以上乾燥し、乾燥純粋トリヘキシルテトラデシルホスホニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド、［Ｐ６６６１４］［NTf_2］を得て、ＮＭＲにより以下のように判定した：

［Ｐ６６６１４］［NTf_2］：^{1}H ＮＭＲ（５００ＭＨｚ、$CDCl_3$）：δ（ｐｐｍ）＝０．８８（ｍ，１２Ｈ，ＣＨ３‐‐（Ｐ）），１．２３～１．２９（ｍ，３２Ｈ，‐CH_2‐（Ｐ）），１．４６（ｍ，１６Ｈ，‐CH_2‐（Ｐ）），２．０８（ｍ，８Ｈ，‐CH_2‐（Ｐ））；^{13}C ＮＭＲ（１２６ＭＨｚ，$CDCl_3$）：δ（ｐｐｍ）＝１３．８５，１４．１２，１８．５６，１８．９４，２１．５５，２２．２８，２２．６９，２８．８０，２９．２５，２９．３６，２９．４９，２９．６５，３０．１７，３０．５２，３０．８９，３１．９２，１１８．６２，１２１．１７。

これらの合成により調製したイオン液を以下の更なる実施例において使用した。

【００９３】

実施例２　―　研究例で使用するための洗浄剤及び分散剤添加剤

実施例で使用するために、以下の追加の添加剤を調製した。

【００９４】

実施例２．１：アルキルスルホン酸カルシウム洗浄剤、３００ＴＢＮ（本発明の洗浄剤）

実施例２．１では、少量の水を含むメタノールの存在下、アルキルスルホン酸を、トルエン還流下で、水酸化カルシウムと反応させ、続いて反応容器に二酸化炭素を吹き込み、更に還流を行い、ヒートソーク期間を経た後にベースオイルの希釈及び蒸留を行い、冷却及び遠心分離を行って固形分を除去し、真空下で溶剤を除去して仕上げることにより、アルキルスルホン酸カルシウムを生成した。

【００９５】

実施例２．２：アルキルサリチル酸カルシウム洗浄剤、３５０ＴＢＮ（本発明の好ましい洗浄剤）

実施例２．２では、少量の水を含むメタノールの存在下、アルキル‐サリチル酸を、キシレン還流下で、水酸化カルシウムと反応させ、続いて同温度で反応容器に二酸化炭素を吹き込み、更に還流を行った後、冷却及び遠心分離を行って固形分を除去し、真空下で溶剤を除去して仕上げることにより、アルキル‐サリチル酸カルシウムを生成した。生成物は、取り扱いを容易にするためにベースオイルに希釈した。

【００９６】

実施例２．３：熱性ポリイソブチレンコハク酸イミド分散剤（本発明の分散剤）

実施例２．３では、初めに２３００ｇ／モルの高反応性ポリイソブチレン（ＰＩＢ）を無水マレイン酸と熱反応させてＰＩＢＳＡ（ポリイソブチレン無水コハク酸）を生成し、その後ＰＩＢＳＡと、１モル当たり２．３程度の第一級Ｎを含有するＮ７ポリアミン（ＰＡＭ）とを反応させ、結果として窒素分が約１．２％（活性材料５８％として）である分散剤を生成する２段階法でＰＩＢＳＡ‐ＰＡＭ分散剤を生成した。

【００９７】

実施例２．４：ジアルキルジチオリン酸亜鉛（従来の抗酸化剤）

実施例２．４では、初めに第一級Ｃ８及び第二級Ｃ４アルコールの混合物とP_4S_{10}とを反応させてジアルキルジチオリン酸（ＤＤＰＡ）を得て、その後ＤＤＰＡとやや過剰量の酸化亜鉛とを反応させて最終ＺＤＤＰを形成する２段階法でＺＤＤＰ（ジアルキルジオリン酸亜鉛）を生成した。

上記の調製例から得た材料を、以下に続く更なる実施例において使用した。

【００９８】

実施例３　―　運転条件下におけるイオン液と洗浄剤添加剤との組み合わせの評価

本発明のイオン液と洗浄剤との組み合わせの利点について有効性を評価するために、二酸化窒素汚染を受けた炭化水素液における硝化の開始及び進行を、赤外線分光法により観察及び測定することが可能である。動粘度及び総酸価（ＴＡＮ）の増加も、本発明の他の利点を観察するために好適な試験条件下で追跡可能である。

炭化水素液の進行する硝化のモニタリングには、実際の、又は模擬的な運転条件下で使用中の液体の試料を定期的に採取する工程、赤外線スペクトル上の指紋領域硝化ピーク高さの進展を追跡する工程が含まれる。硝化ピーク高さの増加率から、バルク液中の硝化及び硝酸エステル貯蔵部の蓄積による化学分解の速度に関する情報が得られる。

ＤＩＮ５１４５３ピーク高さ法［規格ＤＩＮ　５１４５３（２００４‐１０）：潤滑剤の試験　―　使用済みモーター油の酸化及び硝化の判定　―　赤外線分光法］によれば、炭化水素系硝酸エステルの形成に起因する$1630\ cm^{-1}$の単一赤外線吸収周波数の高さは、$1615\ cm^{-1}$及び$1645\ cm^{-1}$の吸収により定義した直線ベースラインより高く測定される。ピークの高さが高いほど、バルク液体中の炭化水素系硝酸エステルが多くなる。上記ＤＩＮ法により、酸化の結果として形成されるカルボニル部分（ケトン、アルデヒド、エステル、及びカルボン酸）に起因する$1710\ cm^{-1}$のピーク高さの測定を通じて、バルク液体の従来の酸化の進行もモニタリングできる。このピーク高さは、$1970\ cm^{-1}$及び$1650\ cm^{-1}$での吸収で定義した直線的なベースラインとの相対値で測定する。ここでも、ピーク高さの増加率から、バルク液体中の化学的酸化の速度に関する情報が得られる。

【００９９】

Ｖｏｌｖｏ（Ｍａｃｋ）Ｔ‐１３ディーゼルエンジンにおけるディーゼルエンジンオイ

ルを評価するためのＡＳＴＭ　Ｄ８０４８‐２０標準試験法に従って、酸化及び硝化ピーク高さを、初めに新品の油剤の赤外線スペクトルを減算することにより測定する。ベースラインは、１９５０ｃｍ$^{-1}$～１８５０ｃｍ$^{-1}$の吸収により定義し、最高ピークは酸化で１７４０ｃｍ$^{-1}$～１７００ｃｍ$^{-1}$の範囲、硝化で１６４０ｃｍ$^{-1}$～１６２０ｃｍ$^{-1}$の範囲である。

運転条件下で試験する炭化水素液の試料は上記の方法により測定可能であり、硝化及び酸化による分解の進行に対する、炭化水素液中に存在する異なるイオン液及び洗浄剤の効果、並びに／又はその分解の阻害レベルを報告できる。

試験条件下での動粘度の増加及び総酸価の増加は、それぞれＡＳＴＭ　Ｄ４４５及びＡＳＴＭ　Ｄ６６４の試験方法によりモニタリングする。

【０１００】

実施例３．１　―　硝化により生じた分解の阻害に対するイオン液及び洗浄剤の寄与

本発明の性能におけるイオン液及び洗浄剤の複合的寄与を説明するために、ＤＩＮ５１４５３法を用いた。

以下の試験試料をエンジン潤滑剤として、運転条件の実験室シミュレーションに供した。ここでは、油剤を油溜めの作動温度に曝露し、運転中の汚染を模倣するために二酸化窒素の供給源に曝露した。このシミュレーションでは、グリコール濃縮器を取り付け、電気ホットプレート上で加熱した２５０ｍＬの３つ首コニカルフラスコを使用する。空気中の７６６ｐｐｍのNO_2を含む気体を、毎分１０リットルの速度で２５０ｇの試験潤滑剤により泡立てる。焼結ガラスフリットを使用し、油剤中に気体を分散させる。気体流速を、マスフローコントローラを用いて調節する。第３の首から、ホットプレートに戻る熱電対を導入し、温度を一定に保つ。試験試料はそれぞれ１３０℃で９６時間稼働させ、試験終了時に上記のＤＩＮ　５１４５３法により硝化及び酸化のピーク高さを測定した。次いで、イオン液を含有する２つの試料の結果を対照油調合物と比較し、それぞれのイオン液の影響を、対照に対する硝化及び酸化ピーク高さの低下の百分率として報告した。

【０１０１】

バルク炭化水素液として新しく調製した潤滑油について試験を実施した。この出発ベースオイル組成物に、油剤質量当たり２質量％の実施例２．１又は２．２の洗浄剤、又は５質量％の実施例２．３の分散剤、又は１質量％の実施例２．４の従来の抗酸化剤を添加し、これらの添加剤単独での硝化及び酸化に対するベースライン効果を確立した。実施例１．２、実施例１．３、及び実施例１．４の単独のイオン液に対する同じベースオイル中のベースライン効果も等モルレベルで確立し、それらは実施例１．２で２．８質量％、実施例１．３で２．０質量％、又は実施例１．４で２．５５質量％の質量％レベルに相当した。市販ベースオイルが提供するベースラインを設定するために、出発ベースオイル組成物をコントロールランとしても使用した。

【０１０２】

結果を下表に示す。

結果

【表２】

試験	試験油剤試料（全て質量％）	対照と比較するピーク高さ低下％	
		酸化	硝化
1	ベースオイル（対照）	０．０	０．０
2	ベースオイル＋実施例２．１（２％）	－２．８％	１．１％
3	ベースオイル＋実施例２．２（２％）	４．８％	１２．４％
4	ベースオイル＋実施例２．３（５％）	－８７．２％	－０．９％
5	ベースオイル＋実施例２．４（１％）	９５．１％	２３．２％
6	ベースオイル＋実施例１．２（２．８％）	９９．２％	８４．７％
7	ベースオイル＋実施例１．３（２．０％）	－５．２％	－４．１％
8	ベースオイル＋実施例１．４（２．５５％）	６９．４％	－１４．９％
9	ベースオイル＋実施例１．２（２．８％）＋実施例２．１（２％）	９９．５％	９０．０％
１０	ベースオイル＋実施例１．２（２．８％）＋実施例２．２（２％）	９９．５％	９３．７％
１１	ベースオイル＋実施例１．３（２．０％）＋実施例２．１（２％）	２．９％	－６．１％
１２	ベースオイル＋実施例１．３（２．０％）＋実施例２．２（２％）	８３．３％	６４．１％
１３	ベースオイル＋実施例１．４（２．５５％）＋実施例２．１（２％）	－８．６％	０．４％
１４	ベースオイル＋実施例１．４（２．５５％）＋実施例２．２（２％）	０．８％	８．９％
１５	ベースオイル＋実施例２．１（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	４．７％	－６．９％
１６	ベースオイル＋実施例１．２（２．８％）＋実施例２．１（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	９７．６％	８４．４％
１７	ベースオイル＋実施例１．３（２．０％）＋実施例２．１（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	６３．４％	３７．８％
１８	ベースオイル＋実施例１．４（２．５５％）＋実施例２．１（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	２１．５％	－０．４％
１９	ベースオイル＋実施例２．２（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	２８．１％	５．４％
２０	ベースオイル＋実施例１．２（２．８％）＋実施例２．２（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	９７．９％	９２．７％
２１	ベースオイル＋実施例１．３（２．０％）＋実施例２．２（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	９８．３％	８７．７％
２２	ベースオイル＋実施例１．４（２．５５％）＋実施例２．２（２％）＋実施例２．３（５％）＋実施例２．４（１％）	５２．１％	１４．９％

【０１０３】

洗浄剤、分散剤、及びリン系抗酸化剤のベースライン結果（試験１～５）を最初に考慮すると、分散剤（実施例２．３）は、二酸化窒素汚染試験条件下での硝化制御において自体の利益を示さず、試験の酸化の面では悪影響を示し、酸化ピーク高さを大きく増加させた（即ち負の％減少）ことは明らかである。実施例２．１の洗浄剤は酸化と硝化の両方にほとんど影響を与えず、一方、実施例２．２の洗浄剤は、酸化と硝化両方のピーク高さの減少が小さい。予想通り、実施例２．４の抗酸化剤は強い抗酸化性能を示したが、硝化の制御はかなり小さく、油剤の硝化は従来の酸化が主要因ではない別の機序で進行することが証明された。

ベースオイル中のイオン液単独を等モル比較した結果（試験６～８）を踏まえると、実施例１．３のイオン液はベースオイルと比較して、それ自体では硝化を阻害する効果を示さないことが分かる。対照的に、実施例１．２の好ましいイオン液は、既に非常に高い硝化阻害効果を示しており、好ましい芳香族カルボン酸アニオンを含む好ましいイオン液として自体の優れた性能が証明されている。実施例１．３とは対照的に、好ましい実施例１．２も、酸化に対して活性が非常に高い。ハロゲン及び硫黄を含有する実施例１．４のイオン液は、硝化に対する負の影響とは対照的に、抗酸化性が顕著であり、油剤の硝化が異なる機序を介して進行することを再び証明している。

【０１０４】

実施例１．４の比較イオン液への実施例２．１又は２．２の洗浄剤の共添加（試験１３及び１４）により、イオン液単独（試験８）の抗酸化性の利益が排除され、結果的に、各洗浄剤がそれぞれ単独で提供する利点（試験２及び３）より硝化制御が小さくなる。対照的に、実施例１．２の好ましいイオン液への各洗浄剤の共添加（試験９及び１０）により、既に高い硝化制御が更に高まり、このイオン液のほぼ完全な抗酸化効果に悪影響を及ぼすことはない（試験６参照）。得られた組み合わせは、硝化、更に酸化の複合的制御を優れたものにし、異なる機序による油剤分解の制御を模索する油剤の調合者に多大な利点を提供する。実施例２．２のより好ましい洗浄剤と、実施例１．３のあまり好ましくないイオン液との共添加により、硝化の減少及び抗酸化性が増大するが（試験１２）、これらは実施例１．２のイオン液で達成した非常に高いレベルには達していない。あまり好ましくない実施例２．１の洗浄剤を、実施例１．３のあまり好ましくないイオン液に添加することにより（試験１１）、このイオン液単独での酸化促進効果は排除される。

試験１５～２２における分散剤（実施例２．３）及び抗酸化剤（実施例２．４）の共添加も、本発明の組み合わせの利点を示した。

【０１０５】

分散剤及び抗酸化剤と実施例２．１の洗浄剤との共導入（試験１５）は、洗浄剤単独（試験２）と比較して、硝化促進効果が小さく、酸化の純減少も小さかった。この結果から、実施例２．４の強い抗酸化作用は分散剤によりほぼ完全に中和され、実施例２．４の中程度の硝化制御はほぼ排除されたことが分かった。従って、洗浄剤に添加した場合の追加添加剤のこの二成分の組み合わせは、硝化制御にとって全く有意ではなかった。しかし、実施例１．２の好ましいイオン液の更なる共存（試験１６）により、抗酸化性が非常に高く、硝化制御に優れた油剤が得られた。このことは同様に、分散剤の存在により打ち消されるものではなかった。同様に、実施例１．３のイオン液の共添加（試験１７）は、分散剤の存在下でさえ強い抗酸化性の利点及び評価に値する硝化制御を示した。従って、本発明のイオン液と洗浄剤との組み合わせは、硝化及び酸化制御に対する本発明の利点を打ち消すことなく、分散剤を更に含むことを可能にし、油剤が硝化及び従来の酸化による化学分解を受けやすくならずに、その有益な効果のために分散剤を組み込むことが可能な油剤調合物を調製可能にする。対照的に、実施例１．４のハロゲン及び硫黄含有イオン液の共添加は、硝化制御せず、抗酸化効果もかなり低かった。

同様に、実施例２．２のより好ましい洗浄剤を用いた試験１９～２２では、分散剤の存在下でさえ、また分散剤及び実施例２．４の従来の抗酸化剤の存在下で実施例２．２の洗浄剤のベースライン純硝化制御が明らかに減少したにも関わらず（試験１９）、この洗浄剤並びに実施例１．２及び１．３のイオン液との組み合わせにより硝化制御が非常に高くなったことが示された（試験２０及び２１）。また、対照的に、実施例１．４のハロゲン及び硫黄含有イオン液は、硝化制御及び抗酸化がかなり小さかった。このように、これらの好ましい調合物は実施例２．３の分散性の利益を油剤に付与しつつ、二酸化窒素汚染の存在下で油剤硝化の上昇を阻害し、更に高い抗酸化性の利益ももたらす。

【０１０６】

実施例１．３より優れた実施例１．２のイオン液の性能はこれらの組み合わせの試験においても維持され、実施例１．２タイプのイオン液が最も好ましいことが確認された。同様に、実施例２．１より優れていると分かった実施例２．２の洗浄剤の効果により、実施

例２．２タイプが最も好ましいことが確認された。

【０１０７】

実施例３．２　―　動粘度制御に対するイオン液及び洗浄剤の寄与

二酸化窒素汚染条件下での炭化水素油の動粘度（４０℃）の増加を、ＡＳＴＭ　Ｄ４４５標準試験法を用いて測定した。簡単に言えば、この標準法に従って、決定した体積の液体が較正ガラス毛細管粘度計を重力下で流れるためにかかる時間を、再生可能な駆動ヘッド下、制御温度で測定する。動粘度は粘度計の較正定数及び液体流動時間から決定する。

各試験運転は、図に収載した添加剤例の組み合わせを用いて行った。各例では、油剤中に使用した添加剤例（単数又は複数）の量は、実施例３．１と同じであった。

試験の結果は、試験終了時にベースオイルが示した粘度の百分率で表す試験終了時に達成された動粘度として図１に示す。従って、１００％より低い結果はベースオイルより粘度増加が少ないことを示し、一方、１００％より高い結果は粘度増加が多いことを示す。粘度増加が最小であるということは、その油剤が試験条件下で分解に対して耐性がより高いことを示す。

【０１０８】

図１の結果を下から読み上げると、これらの試験はまず、実施例２．１及び２．２の洗浄剤自体は、ベースオイルと比較して粘度増加を低減し、一方、実施例２．３の分散剤自体は粘度をわずかに増加させたことを説明している。実施例２．４の抗酸化剤自体は、粘度増加の強い減少を示した。

実施例１．２及び１．３のイオン液自体はいずれも粘度増加を減少させ、好ましい実施例１．２は、実施例２．１及び２．２の洗浄剤の存在下で維持される、はるかに大きい利益をもたらす。これらの各洗浄剤を実施例１．３のイオン液に添加すると、このイオン液のみの場合より粘度増加が明らかに更に減少し、実施例２．２の好ましい洗浄剤では、このイオン液は、実施例１．２の好ましいイオン液を含む組み合わせと実質的に同じ性能レベルになった。洗浄剤と実施例１．４のイオン液の対応する二成分の組み合わせ（比較例）では粘度の向上は小さかった。

【０１０９】

ベースオイルへの洗浄剤、分散剤、及び抗酸化剤の添加により、粘度増加はベースオイルで見られる粘度増加より小さかったが、実施例２．４の抗酸化剤のみで見られる粘度増加より依然として大きく、このことは、分散剤の存在がこれらの組み合わせにおいて粘度制御を幾分か不活性化したことを示している。しかし、これらの組み合わせに実施例１．２又は１．３のイオン液を更に共添加すると、粘度増加が更に顕著に減少した。このことは、本発明の組み合わせは分散剤の存在下でさえ粘度減少レベルが高く、イオン液と洗浄剤との組み合わせによりもたらされる粘度制御と同時に分散剤を使用できることを実証した。

【０１１０】

実施例３．３　―　総酸価数制御に対するイオン液及び洗浄剤の寄与

二酸化窒素汚染条件下での炭化水素油の総酸価（ＴＡＮ）の増加を、ＡＳＴＭ　Ｄ６６４標準試験法を用いて測定した。簡単に言えばこの標準法に従って、試験試料を、水酸化カリウムを用いた電位差滴定に供し、油剤中に存在する酸性物質（単数又は複数）の量を求める。

各試験運転は、図に収載した添加剤例の組み合わせを用いて行った。各例では、油剤中に使用した添加剤例（単数又は複数）の量は、実施例３．１と同じであった。

試験の結果は、試験終了時にベースオイルが示したＴＡＮの百分率で表す試験終了時に達成されたＴＡＮとして図１に示す。従って、１００％より低い結果はベースオイルよりＴＡＮ増加が少ないことを示し、一方、１００％より高い結果はＴＡＮ増加が多いことを示す。ＴＡＮ増加が最小であるということは、その油剤が試験条件下で酸性度上昇及びそれに続く分解に対して耐性がより高いことを示す。

図１の結果を下から読み上げると、これらの試験はまず、実施例２．１、２．２、及び２．３の洗浄剤自体はベースオイルと比較してＴＡＮ増加を低減し、実施例２．４の抗酸

化剤自体はＴＡＮ増加を強く減少させたことを説明している。

【０１１１】

実施例１．２及び１．３のイオン液自体はいずれもＴＡＮ増加を減少させ、好ましい実施例１．２は、実施例２．１及び２．２の洗浄剤の存在下で維持される基本的に完全な制御をもたらす。これらの各洗浄剤を実施例１．３のイオン液に添加すると、このイオン液のみの場合よりＴＡＮ増加が明らかに更に減少し、実施例２．２の好ましい洗浄剤では、このイオン液は、実施例１．２の好ましいイオン液を含む組み合わせに近い性能レベルになった。洗浄剤と実施例１．４のイオン液の対応する二成分の組み合わせ（比較例）ではＴＡＮの向上は小さかった。

ベースオイルへの洗浄剤、分散剤、及び抗酸化剤の添加により、ＴＡＮ増加はベースオイルで見られるＴＡＮ増加より小さかったが、実施例２．４の抗酸化剤のみで見られる粘度増加より依然として大きかった。しかし、これらの組み合わせに実施例１．２又は１．３のイオン液を更に共添加すると、ＴＡＮ増加が更に顕著に減少した。このことは、本発明の組み合わせは分散剤の存在下でさえ粘度減少レベルが高く、イオン液と洗浄剤との組み合わせによりもたらされるＴＡＮ制御と同時に分散剤を使用できることを実証した。

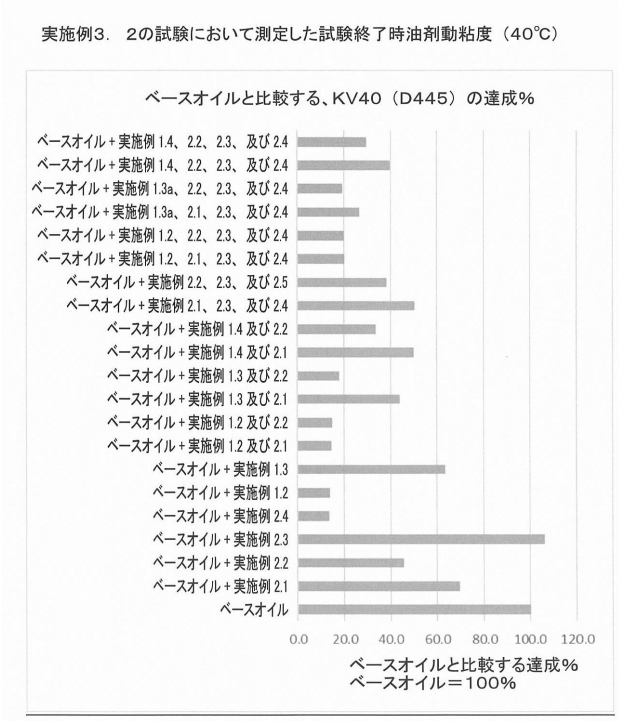
従って、これらの実施例を通じて、本発明の組み合わせの利点は、硝化制御、酸化制御、粘度増加、及びＴＡＮ増加のうちの１つ以上において見られる。

【０１１２】

本明細書に記載の全ての文書は、本文と矛盾しない範囲で、任意の優先権文書及び／又は試験手順を包含して参照により本明細書に援用される。前述の全般的な説明及び特定の実施形態から明らかなように、本発明の形態を図示し、説明してきたが、本発明の精神及び範囲から逸脱することなく、様々な修正を加えることが可能である。従って、本発明が修正により限定されることは意図していない。用語「を含む」は、記載した特徴、工程、整数、又は構成要素の存在を特定するが、１つ以上の他の特徴、工程、整数、構成要素、又はそれらの群の存在又は追加を排除するものではない。同様に、用語「を含む（ｃｏｍｐｒｉｓｉｎｇ）」は、用語「を含む（ｉｎｃｌｕｄｉｎｇ）」と同義であると見なす。同様に、組成物、要素、又は要素群に移行句「を含む」が先行するときはいつでも、組成物、要素、又は要素群の言及に先行して移行句「から基本的に成る」、「から成る」、「から成る群より選択される」、又は「である」が付く同じ組成物又は要素群も考えられると理解し、その逆もまた同様であると理解すべきである。更に、ある範囲がＡとＢとの間と記載されている場合、その範囲は終点Ａ及びＢを含むため、「ＡとＢとの間」は「ＡからＢまで」と同義である。

【図面】

【図１】



【図２】



【外国語明細書】

2023067819000008.pdf

フロントページの続き

(51)国際特許分類			FI			テーマコード（参考）
C10M	*159/22*	*(2006.01)*	C10M	159/22		
C10M	*129/10*	*(2006.01)*	C10M	129/10		
C10M	*129/40*	*(2006.01)*	C10M	129/40		
C10M	*159/20*	*(2006.01)*	C10M	159/20		
C10M	*159/24*	*(2006.01)*	C10M	159/24		
C10M	*135/10*	*(2006.01)*	C10M	135/10		
C10N	*10/04*	*(2006.01)*	C10N	10:04		
C10N	*30/00*	*(2006.01)*	C10N	30:00	Z	
C10N	*40/25*	*(2006.01)*	C10N	40:25		

弁理士　市川 さつき
(74)代理人　100111796
弁理士　服部 博信
(74)代理人　100123766
弁理士　松田 七重
(72)発明者　マシュー デイヴィッド アーヴィング
イギリス オーエックス１３ ６ビービー オックスフォードシャー アービングドン ミルトン ヒル ピーオーボックス １ インフィニューム ユーケー リミテッド内
(72)発明者　デイヴィッド ロバート コールタス
イギリス オーエックス１３ ６ビービー オックスフォードシャー アービングドン ミルトン ヒル ピーオーボックス １ インフィニューム ユーケー リミテッド内
(72)発明者　ネイサン ホリングスワース
イギリス オーエックス１３ ６ビービー オックスフォードシャー アービングドン ミルトン ヒル ピーオーボックス １ インフィニューム ユーケー リミテッド内
(72)発明者　アダム グリアー
イギリス オーエックス１３ ６ビービー オックスフォードシャー アービングドン ミルトン ヒル ピーオーボックス １ インフィニューム ユーケー リミテッド内
(72)発明者　クリストファー ハーデカー
イギリス エム１３ ９ピーエル マンチェスター オックスフォード ロード ユニバーシティ オブ マンチェスター内

Ｆターム（参考）　4H104　BB05C BB14C BB17C BB24C BE01C BG06C BH11C DB05C DB06C DB07C FA02 LA20 PA41