(19) **日本国特許庁(JP)**

(12) 特 許 公 報(B2)

(11)特許番号

特許第4646345号 (P4646345)

(45) 発行日 平成23年3月9日(2011.3.9)

(24) 登録日 平成22年12月17日(2010.12.17)

(51) Int.Cl. F 1

C 1 O L 1/228 (2006.01) C 1 O L 1/238 (2006.01) C 1 O L 1/228 C 1 O L 1/238

請求項の数 2 (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願平11-371506

(22) 出願日 平成11年12月27日 (1999.12.27)

(65) 公開番号 特開2001-181656 (P2001-181656A)

(43) 公開日 平成13年7月3日 (2001.7.3) 審査請求日 平成18年7月24日 (2006.7.24)

|(73)特許権者 000004444

J X 日鉱日石エネルギー株式会社 東京都千代田区大手町二丁目6番3号

(74)代理人 100093540

弁理士 岡澤 英世

(74)代理人 100103285

弁理士 森田 順之

(72) 発明者 土師 勝彦

神奈川県横浜市中区千鳥町8番地 日石三

菱株式会社中央技術研究所内

(72) 発明者 長尾 正基

神奈川県横浜市中区千鳥町8番地 日石三

菱株式会社中央技術研究所内

最終頁に続く

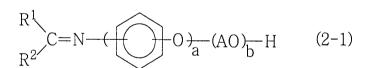
(54) 【発明の名称】燃料油添加剤及び該添加剤を含有してなる燃料油組成物

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記一般式(2-1)で表される化合物からなる燃料油添加剤。

【化1】



(一般式(2-1)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ別個に炭素数 $1\sim4$ の直鎖状又は分岐状のアルキル基を表し、Aは炭素数 $2\sim4$ のアルキレン基を示し、aは 0 又は 1 であり、そして b は $2\sim1$ 00の整数であり、複数の A は、同一分子中で同じでも異なっていても良い。)

【請求項2】

燃料油に請求項1に記載の燃料油添加剤を含有してなる燃料油組成物。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料油に対する溶解性に優れ、特にガソリンエンジンの吸気系および燃焼室内の清浄性、ディーゼルエンジンの噴射ノズルの清浄性に優れた燃料油添加剤および該添加剤を含有してなる燃料油組成物に関するものである。

20

[0002]

【従来技術】

内燃エンジンの燃料系統や燃焼室内にスラッジやデポジットなどの沈積物を生じると、エンジンの機能が低下したり、排気ガス中の一酸化炭素濃度や未燃炭化水素濃度が上昇するなどの不都合が起こる。このため、気化器または電子制御式噴射装置、吸気弁などのデポジットの除去や付着防止を主な目的として、ガソリンなどの燃料油には、ポリエーテルアミン系やポリアミン系などのガソリン清浄剤で代表される燃料添加剤が添加される場合が多い。

この種の燃料添加剤の中では、米国特許第4,247,301号明細書や同第4,160,648号明細書などに開示されたポリエーテル系ガソリン清浄剤が、吸気弁のデポジットの除去や付着防止に優れた性能を発揮して来た。

10

[0003]

【発明が解決しようとする課題】

昨今においては自動車の燃費を向上させることに加えて、自動車排気ガスが及ぼす人体および環境への悪影響を払拭することに関心が集まっている。しかし、ポリエーテルアミン系やポリアミン系などを代表例とする従来のガソリン清浄剤は、吸気弁のデポジットの除去や付着防止には優れた性能を発揮する一方で、燃焼室内のデポジットを増加させる傾向にあり、総合的に排出ガスを改善するには至っておらず、ガソリンエンジンの吸気系および燃焼室内の清浄性に一段と優れ、特にエンジンの冷機時などの過酷な条件下においても、優れた清浄効果を発揮する燃料油添加剤の開発が待ち望まれている。

20

また、ディーゼルエンジンにおいては、噴射ノズル等にデポジットが堆積することで、燃料流量が変化したり、遅れが生じることで、運転性や排気ガスが悪化することが指摘されており、ガソリンエンジン同様優れた清浄効果を発揮する燃料油添加剤の開発が待ち望まれている。

[0004]

そこで、本発明は、このような実情に鑑みなされたものであり、その目的は、従来のガソリン清浄剤を凌駕する性能を備え、さらにディーゼルエンジンの噴射ノズル清浄性にも優れ、しかもそれ自身はスラッジ化することのない新規な燃料油添加剤及び該添加剤を含有する燃料油組成物を提供することにある。

30

[0005]

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、ガソリンエンジンの吸気系および燃焼室内およびディーゼルエンジンの噴射ノズルの清浄性により優れた燃料油添加剤を開発すべく研究を重ねた結果、一般式(2-1)で表される化合物が、従来のガソリン清浄剤より非常に優れた性能を有することを見出したのである。

すなわち、本発明に係る燃料油添加剤は、下記一般式(2 - 1)で表される化合物からなるものである。

【化2】

 R^{1} C=N-(-O) (AO) H (2-1)

(一般式(2-1)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ別個に炭素数1~4の直鎖状又は分岐状のアルキル基を表し、A は炭素数2~4のアルキレン基を示し、a は0又は1であり、そしてb は 2~100の整数であり、複数のA は、同一分子中で同じでも異なっていても良い。)

また本発明に係る燃料油組成物は、内燃機関用燃料油に、上記一般式(2-1)で表される化合物からなる燃料油添加剤を含有してなるものである。

[0006]

【発明の実施の形態】

以下、本発明の内容をさらに詳細に説明する。

本発明の燃料油添加剤は、下記一般式(1)で表される基を有する化合物からなるものである。

> C = N - (1)

上記一般式(1)で表される基を有する化合物は、通常第1アミンとカルボニル化合物を 反応させて得られる。

上記一般式(1)で表される基を有する化合物としては、例えば、一般式(2)で表される化合物が挙げられる。

[0007]

【化3】

10

$$\begin{array}{c}
R^1 \\
C = N - (Y)_a - X \\
R^2
\end{array} (2)$$

[8 0 0 0]

一般式(2)における R 1 及び R 2 は、それぞれ別個に水素原子又は炭素数 1 ~ 3 0 の炭化水素基を表す。 X は、下記の X 1 ~ X 3 の中から選ばれる基を示し、 Y は下記の Y 1 ~ Y 4 の中から選ばれる基を示し、そして a は 0 又は 1 である。

X1:下記一般式(3)で表される基

20

(一般式(3)において、Aは炭素数2~18のアルキレン基を示し、bは0~200の 整数であり、R³は水素原子又は炭素数1~300の炭化水素基を示す。)

[0009]

X2:下記一般式(4)で表される含窒素基

【化4】

$$-(R^4 - N)_{c} - R^6$$
 (4)

[0010]

X3:下記一般式(5)で表される窒素含有環状化合物残基を有する基

[0011]

【化5】

$$-(R^{7}) - N \qquad (5)$$

40

50

30

(一般式(5)において、R 7 は炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示し、環状化合物は、水素原子、炭素原子、及び窒素原子の他に酸素原子を含有していても良く、そして d は 0 または 1 である。)

Y1:下記一般式(6)で表される基

[0012]

【化6】

$$-(R^{12}) = 0 - (6)$$

(一般式 (6)において、 $R^{1/2}$ は炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基を示し、eは 0 または

1である。)

Y2:下記一般式(7)で表される基

[0013]

【化7】

$$-(R^{13}) \int_{f} C - O - C$$
 (7)

(一般式(7)において、 R^{13} は炭素数 2 ~ 6 のアルキレン基を示し、f は 0 または 1 である。)

10

Y3:下記一般式(8)で表される基

[0014]

【化8】

$$\begin{array}{c|c}
-(R^{14}-N)-C-(O)-\\
& g & h \\
H & O
\end{array}$$
(8)

(一般式(8)において、 $R^{1/4}$ は炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基を示し、g は $1 \sim 5$ の整数であり、そして h は 0 または 1 である。)

Y4:下記一般式(9)で表される基

20

[0015]

【化9】

$$-R^{15}-(N-R^{16})-N - CH_{2}$$
(9)

(一般式(9)において、 $R^{1.5}$ および $R^{1.6}$ はそれぞれ別個に炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示し、そしてiは 0 ~ 5の整数である。)

30

40

[0016]

上記一般式(2)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ別個に水素原子又は炭素数 1 ~ 3 0 の炭化水素基を示すが、 R^1 及び R^2 がそれぞれ別個に水素原子、炭素数 1 ~ 2 4 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 5 ~ 1 3 のシクロアルキル基又はアルキルシクロアルキル基(アルキル基で置換されたシクロアルキル基)、炭素数 2 ~ 2 4 の直鎖状又は分枝状のアルケニル基、炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基またはアルキルアリール基(アルキル基で置換されたアリール基)、又は炭素数 7 ~ 1 9 のアリールアルキル基(アリール基で置換されたアルキル基)のいずれかであることが好ましい。

[0017]

R¹およびR²として好ましいアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、イソブチル基、sec - ブチル基、tert - ブチル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝へキシル基、直鎖または分枝へプチル基、直鎖または分枝オクチル基、直鎖または分枝ノニル基、直鎖または分枝デシル基、直鎖または分枝トリデシル基、直鎖または分枝トリデシル基、直鎖または分枝テトラデシル基、直鎖または分枝ペンタデシル基、直鎖または分枝へキサデシル基、直鎖または分枝へプタデシル基、直鎖または分枝オクタデシル基、直鎖または分枝ノナデシル基、直鎖または分枝イコシル基、直鎖または分枝トリコシル基及び直鎖または分枝テトラコシル基などが挙げられる。

[0018]

20

30

40

50

 R^{1} および R^{2} として好ましいシクロアルキル基の例としては、シクロペンチル基、シクロ ヘキシル基、シクロヘプチル基などが挙げられ、また同じく好ましいアルキルシクロアル キル基の例としては、メチルシクロペンチル基、ジメチルシクロペンチル基(すべての置 換異性体を含む)、エチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または 分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロペン チル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロペンチル基(すべての置換異性 体を含む)、ジエチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチル シクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロ ペンチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロペンチ ル基(すべての置換異性体を含む)、ジ・直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(す べての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルメチルシクロペンチル基(す べての置換異性体を含む)、メチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジ メチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロヘキシル基(すべ ての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロヘキシル基(すべての置換異性 体を含む)、エチルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチル シクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロヘキシル基(すべての 置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、 直鎖または分枝プロピルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖ま たは分枝プロピルエチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジ・直鎖また は分枝プロピルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピ ルエチルメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘプチル 基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含 む)、エチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピル シクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロヘプチル基(すべ ての置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、 ジエチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロヘプチ ル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロへプチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルエチルシクロヘプチル基(すべて の置換異性体を含む)、ジ・直鎖または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異 性体を含む)及び直鎖または分枝プロピルエチルメチルシクロへプチル基(すべての置換 異性体を含む)などが挙げられる。

[0019]

R¹およびR²として好ましいアルケニル基の例としては、ビニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、直鎖または分枝プテニル基、ブタジエニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝ヘキセニル基、直鎖または分枝でセニル基、直鎖または分枝ウンデセニル基、直鎖または分枝ドデセニル基、直鎖または分枝・リデセニル基、直鎖または分枝でセニル基、直鎖または分枝でウンデセニル基、直鎖または分枝ペンタデセニル基、直鎖または分枝ヘキサデセニル基、直鎖または分枝ヘプタデセニル基、直鎖または分枝ヘクタデセニル基、直鎖または分枝ヘプタデセニル基、直鎖または分枝ハウタデセニル基、直鎖または分枝ノナデセニル基、直鎖または分枝イコセニル基、直鎖または分枝へンイコセニル基、直鎖または分枝ドコセニル基、直鎖または分枝トリコセニル基及び直鎖または分枝テトラコセニル基などが挙げられる。

[0020]

R¹およびR²として好ましいアリール基の例としては、フェニル基及びナフチル基などが挙げられ、また同じく好ましいアルキルアリール基の例としては、トリル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、ジエ

20

30

40

50

チルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ペンチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝へキシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝へプチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝スプチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝デシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝デシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝デシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ドデシルフェニル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられ、同じく好ましいアリールアルキル基の例としては、ベンジル基、メチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、フェネチル基、メチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

[0021]

これらの中でも、 R^1 および R^2 がそれぞれ別個に水素原子である場合、炭素数 $1 \sim 12$ の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基である場合、または炭素数 $6 \sim 18$ のアリール基もしくはアルキルアリール基である場合がより好ましく、炭素数 $1 \sim 6$ の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基である場合、フェニル基である場合または炭素数 $1 \sim 15$ の直鎖もしくは分枝アルキルアリール基である場合が最も好ましい。

[0022]

上記一般式(2)で表される化合物を得る際に用いられるカルボニル化合物は、 R^1 及び R^2 の少なくとも一方が水素原子である場合にはアルデヒド化合物を表し、 R^1 及び R^2 の 何れもが炭化水素基である場合にはケトン化合物を表す。

具体的には例えば、アルデヒド化合物としては、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、 ブチルアルデヒド及びベンズアルデヒド等が挙げられ、ケトン化合物としては、アセトン 、メチルエチルケトン、メチル- n - プロピルケトン、メチルイソプロピルケトン、メチル ブチルケトン(すべての異性体を含む)、メチルペンチルケトン(すべての異性体を含む)、メチルヘキシルケトン(すべての異性体を含む)、メチルヘプチルケトン(すべての 異性体を含む)、メチルオクチルケトン(すべての異性体を含む)、ジエチルケトン、エ チル-n-プロピルケトン、エチルイソプロピルケトン、エチルブチルケトン(すべての異 性体を含む)、エチルペンチルケトン(すべての異性体を含む)、エチルヘキシルケトン (すべての異性体を含む)、エチルヘプチルケトン(すべての異性体を含む)、エチルオ クチルケトン(すべての異性体を含む)、ジプロピルケトン(すべての異性体を含む)、 プロピルブチルケトン(すべての異性体を含む)、プロピルペンチルケトン(すべての異 性体を含む)、プロピルヘキシルケトン(すべての異性体を含む)、プロピルヘプチルケ トン(すべての異性体を含む)、プロピルオクチルケトン(すべての異性体を含む)、ジ ブチルケトン(すべての異性体を含む)、ブチルペンチルケトン(すべての異性体を含む)、ブチルヘキシルケトン(すべての異性体を含む)、ブチルヘプチルケトン(すべての 異性体を含む)、ブチルオクチルケトン(すべての異性体を含む)、アセトフェノン、プ ロピオフェノン、ベンゾフェノン、2-メチルナフトン、2-エチルナフトン、2-ベン ゾナフトン、メチルベンジルケトン、エチルベンジルケトン、プロピルベンジルケトン(すべての異性体を含む)、ブチルベンジルケトン(すべての異性体を含む)、シクロペン タノン、シクロヘキサノン、シクロヘプタノン及びシクロオクタノンが挙げられる。

[0023]

一般式(2)のXで表されるX1~X3について順に説明する。

X1:下記一般式(3)で表される基

 $-(AO)_{b}-R^{3}$ (3)

(一般式(3)において、Aは炭素数 2 ~ 18のアルキレン基を示し、bは 0 ~ 200の整数であり、そして R^3 は水素原子又は炭素数 1 ~ 300の炭化水素基を示す。)

[0024]

上記一般式(3)における R^3 の炭素数 $1 \sim 3 0 0$ の炭化水素基の例としては、 R^1 および

20

30

40

50

R 2 について先に説明した炭素数 1 ~ 2 4 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 5 ~ 1 3 のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 2 ~ 2 4 の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基またはアルキルアリール基及び炭素数 7 ~ 1 9 のアリールアルキル基等が挙げられる。また、R 3 は、エチレン、プロピレン、 1 - ブチレン、 2 - ブチレン又はイソブチレン等のオレフィン重合物(重量平均分子量 3 0 0 ~ 4 2 0 0、好ましくは 5 0 0 ~ 3 0 0 0)由来の残基などであっても良い。R 3 は、水素原子、炭素数 1 ~ 1 2 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロアルキル基、炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基もしくはアルキルアリール基、ポリプロピレン(重量平均分子量 5 0 0 ~ 3 0 0 0)由来の残基である場合がより好ましく、水素原子、炭素数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基、炭素数 7 ~ 1 5 のアルキルアリール基またはポリイソブチレン(重量平均分子量 7 0 0 ~ 2 0 0 0)由来の残基である場合が更に好ましく、水素原子またはポリイソブチレン(重量平均分子量 7 0 0 ~ 2 0 0 0)由来の残基である場合が最も好ましい。

[0025]

上記一般式(3)における A は、炭素数 2 ~ 18のアルキレン基を示すが、炭素数 2 ~ 6のアルキレン基である場合が好ましく、炭素数 2 ~ 4のアルキレン基である場合が更に好ましい。炭素数 2 ~ 4のアルキレン基としては、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1 - メチルエチレン基、2 - メチルエチレン基)、ブチレン基(1 - エチルエチレン基、2 - エチルエチレン基)、1 , 2 - ジメチルエチレン基、1 , 1 - ジメチルエチレン基及び 2 , 2 - ジメチルエチレン基が挙げられる。

bが2以上の場合に複数のAは、同一分子中で同じでも異なっていても良い。

[0026]

上記一般式(3)における(AO)は、アルキレンオキサイド由来の重合骨格を示す。ア ルキレンオキサイドとしては、具体的には例えば、エチレンオキサイド、プロピレンオキ サイド、1,2-ブチレンオキサイド、2,3-ブチレンオキサイド及びイソブチレンオ キサイドが挙げられる。これらのアルキレンオキサイドは、一種類の構成単位からなって いても、複数の構成単位からなる混合物からなっていてもよい。すなわち、アルキレンオ キサイドの単独重合体でも、共重合体(ランダム重合体、ブロック重合体)でもよい。 上記一般式(3)におけるりは0~200、好ましくは0~100の整数である。 b が 0 でない場合、 R^3 は水素原子、炭素数 $1 \sim 2$ 4 の直鎖状もしくは分枝状のアルキル 基、炭素数5~13のシクロアルキル基もしくはアルキルシクロアルキル基、炭素数2~ 2.4の直鎖状もしくは分枝状のアルケニル基、炭素数6~1.8のアリール基もしくはアル キルアリール基又は炭素数7~19のアリールアルキル基である場合が好ましく、水素原 子、炭素数1~12の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数5~7のシクロアルキ ル基又は炭素数6~18のアリール基もしくはアルキルアリール基である場合がより好ま しく、水素原子、炭素数1~6の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロヘキシル基 、フェニル基又は炭素数7~15のアルキルアリール基である場合がさらにより好ましく 、水素原子である場合が最も好ましい。

[0027]

X2:下記一般式(4)で表される含窒素基

[0028]

【化10】

$$--(R^4-N)\frac{1}{c}R^6$$
 (4)

(一般式(4)において、R 4 は炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示し、R 5 は水素原子、炭素数 1 ~ 4のアルキル基または上記一般式(3)で表される基(但し、b = 0の場合を除く)を示し、R 6 は水素原子、炭素数 1 ~ 3 0 0の炭化水素基または上記一般式(3

20

30

40

50

)で表される基(但し、 b = 0 の場合を除く)を示し、そして c は 1 ~ 5 の整数を示す。

[0029]

上記一般式(4)における R 4 は、炭素数 2~6のアルキレン基を示すが、このようなア ルキレン基としては、例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、プチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチル エチレン基)、1,2‐ジメチルエチレン基、2,2‐ジメチルエチレン基、1‐メチル トリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレ ン基、ペンチレン基(1-ブチルエチレン基、2-ブチルエチレン基)、1-エチル-1 - メチルエチレン基、1 - エチル - 2 - メチルエチレン基、1 , 1 , 2 - トリメチルエチ レン基、1,2,2-トリメチルエチレン基、1-エチルトリメチレン基、2-エチルト リメチレン基、3-エチルトリメチレン基、1,1-ジメチルトリメチレン基、1,2-ジメチルトリメチレン基、1,3-ジメチルトリメチレン基、2,3-ジメチルトリメチ レン基、3,3-ジメチルトリメチレン基、1-メチルテトラメチレン基、2-メチルテ トラメチレン基、3-メチルテトラメチレン基、4-メチルテトラメチレン基、ペンタメ チレン基、ヘキシレン基(1-ブチルエチレン基、2-ブチルエチレン基)、1-メチル - 1 - プロピルエチレン基、 1 - メチル - 2 - プロピルエチレン基、 2 - メチル - 2 - プ ロピルエチレン基、1,1-ジエチルエチレン基、1,2-ジエチルエチレン基、2,2 - ジエチルエチレン基、1 - エチル - 1 , 2 - ジメチルエチレン基、1 - エチル - 2 , 2 - ジメチルエチレン基、 2 - エチル - 1 , 1 - ジメチルエチレン基、 2 - エチル - 1 , 2 - ジメチルエチレン基、 1 , 1 , 2 , 2 - テトラメチルエチレン基、 1 - プロピルトリメ チレン基、2-プロピルトリメチレン基、3-プロピルトリメチレン基、1-エチル-1 - メチルトリメチレン基、1 - エチル・2 - メチルトリメチレン基、1 - エチル・3 - メ チルトリメチレン基、2-エチル・1-メチルトリメチレン基、2-エチル・2-メチル トリメチレン基、 2 - エチル - 3 - メチルトリメチレン基、 3 - エチル - 1 - メチルトリ メチレン基、3-エチル-2-メチルトリメチレン基、3-エチル-3-メチルトリメチ レン基、1,1,2-トリメチルトリメチレン基、1,1,3-トリメチルトリメチレン 基、1,2,2-トリメチルトリメチレン基、1,2,3-トリメチルトリメチレン基、 1 , 3 , 3 - トリメチルトリメチレン基、 2 , 2 , 3 - トリメチルトリメチレン基、 2 , 3,3-トリメチルトリメチレン基、1-エチルテトラメチレン基、2-エチルテトラメ チレン基、3-エチルテトラメチレン基、4-エチルテトラメチレン基、1,1-ジメチ ルテトラメチレン基、1,2-ジメチルテトラメチレン基、1,3-ジメチルテトラメチ レン基、1,4-ジメチルテトラメチレン基、2,2-ジメチルテトラメチレン基、2, 3.ジメチルテトラメチレン基、2,4.ジメチルテトラメチレン基、3,3.ジメチル テトラメチレン基、3,4-ジメチルテトラメチレン基、4,4-ジメチルテトラメチレ ン基、1-メチルペンタメチレン基、2-メチルペンタメチレン基、3-メチルペンタメ チレン基、 4 - メチルペンタメチレン基、 5 - メチルペンタメチレン基及びヘキサメチレ ン基などが挙げられる。

[0030]

これらの中でも R 4 は、炭素数 2 ~ 4 のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1 - メチルエチレン基、2 - メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1 - エチルエチレン基、2 - エチルエチレン基)、1 , 2 - ジメチルエチレン基、2 , 2 - ジメチルエチレン基、1 - メチルトリメチレン基、2 - メチルトリメチレン基又はテトラメチレン基である場合が好ましく、炭素数 2 ~ 3 のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1 - メチルエチレン基、2 - メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。

[0031]

上記一般式(4)における R 5 は、水素原子、炭素数 1 ~ 4 のアルキル基または上記一般式(3)で表される基(但し、 b = 0 の場合を除く)を示す。炭素数 1 ~ 4 のアルキル基としては、具体的には例えば、メチル基、エチル基、n - プロピル基、イソプロピル基、

20

30

40

50

n-ブチル基、イソブチル基、 sec-ブチル基及び tert-ブチル基などが挙げられる。これらの中でも R^5 は、水素原子、炭素数 1-3 のアルキル基または一般式(3)で表される基(但し、b=0 の場合を除く)である場合が好ましく、水素原子、メチル基またはエチル基である場合がより好ましい。

[0032]

上記一般式(4)における R^6 は、水素原子、炭素数 1 ~ 3 0 0 の炭化水素基または上記一般式(3)で表される基(但し、b = 0 の場合を除く)を示す。

上記炭素数 1 ~ 3 0 0 の炭化水素基の例としては、 R^1 および R^2 について先に説明した炭素数 1 ~ 2 4 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 5 ~ 1 3 のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 2 ~ 2 4 の直鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基またはアルキルアリール基、炭素数 7 ~ 1 9 のアリールアルキル基等が挙げられる。また、 R^6 は、エチレン、プロピレン、 1 - ブチレン、 2 - ブチレン又はイソブチレン等のオレフィン重合物(重量平均分子量 3 0 0 ~ 4 2 0 0、好ましくは 5 0 0 ~ 3 0 0 0) 由来の残基などであっても良い。

R⁶は、水素原子、炭素数 1 ~ 1 2 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基もしくはアルキルアリール基、ポリプロピレン(重量平均分子量 5 0 0 ~ 3 0 0 0) 由来の残基、ポリイソブチレン(重量平均分子量 5 0 0 ~ 3 0 0 0) 由来の残基又は一般式(3)で表される基(但し、b = 0 の場合を除く)である場合がより好ましく、水素原子、炭素数 1~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 7~ 1 5 のアルキルアリール基、ポリイソブチレン(重量平均分子量 7 0 0~ 2 0 0 0) 由来の残基又は一般式(3)で表される基(但し、b = 0 の場合を除く)である場合が最も好ましい。

一般式(4)におけるcは1~5、好ましくは1~4、より好ましくは1~3の整数である。

また、一般式(4)で表される基に含まれる下記の一般式(10)で表される基は、下記の一般式(11)で表される構成単位を1~5個、好ましくは1~4個、より好ましくは1~3個有している。

[0033]

【化11】

$$--(R^4--N)_{c}$$
 (10)

$$-R^4-N-$$
 (11)

(一般式(10)および(11)における R 4 、 R 5 および c は、それぞれ一般式(4)における R 4 、 R 5 および c と同一の基、整数を示す。)

従って、一般式(10)で表される基は、一般式(11)で表される構成単位が以下のように結合にして得られる基を表す。

[1] 一般式(11)で表される1種の構成単位を結合させたもの[2] 一般式(11)に含まれる2種以上の異なる構成単位を、ランダムに結合させたもの、交互に結合させたものまたはブロック結合させたもの

[0034]

一般式(4)で表される含窒素基は、R 4 が炭素数 2 ~ 4のアルキレン基であり、R 5 が水素原子、炭素数 1 ~ 3のアルキル基または一般式(3)で表される基(但し、b = 0の場合を除く)であり、R 6 が水素原子、炭素数 1 ~ 1 2の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 6 ~ 1 8のアリール基もしくはアルキルアリール基、ポリプロピレン(重量平均分子量 5 0 0 ~ 3 0 0 0)由来の残基、ポリイソブチレン(重量平均分子量 5 0 0 ~ 3 0 0 0)由来の残基、または一般式(3)で表される基(但し、b = 0 の場合を除く)であり、そして c が 1 ~ 4 である場合が好ましく、R 4 がエチレン基、プロピレン基(1 -

メチルエチレン基、 2 - メチルエチレン基)またはトリメチレン基であり、 R^5 が水素原子、メチル基、エチル基または一般式(3)で表される基(但し、 b=0 の場合を除く)であり、 R^6 が水素原子、炭素数 $1\sim6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $1\sim6$ のアルキルアリール基、ポリイソブチレン(重量平均分子量 $1\sim6$ $1\sim6$

ここで、 R ⁵と R ⁶が共に水素原子の場合、末端にはアミノ基が存在することになる。このアミノ基もカルボニル基と反応し、下記の一般式(12)で表されるような1分子内に2つの一般式(1)で表される基を有する化合物となるが、このような化合物も本発明に包含される。

[0035]

【化12】

(一般式(12)の R 1 、 R 2 、 Y および a は、それぞれ一般式(2)における R 1 、 R 2 、 Y および a と同一の基、整数を示し、 R 4 、 R 5 および c は、それぞれ一般式(4)における R 4 、 R 5 および c と同一の基、整数を示す。)

[0036]

X3:下記一般式(5)で表される窒素含有環状化合物残基を有する基

[0037]

【化13】

$$-(R^{3}-N)$$
 (5)

(一般式(5)において、 R 7 は炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示し、環状化合物は水素原子、炭素原子及び窒素原子の他に酸素原子を含有していても良く、そして d は 0 または 1 である。)

[0038]

上記一般式(5)における R 7 は炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示す。上記アルキレン基の例としては、具体的には R 4 として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でも R 7 は、炭素数 2 ~ 4のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1・メチルエチレン基、2・メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1・エチルエチレン基、2・エチルエチレン基)、1、2・ジメチルエチレン基、2、2・ジメチルエチレン基、1・メチルトリメチレン基、2・メチルトリメチレン基又はテトラメチレン基である場合が好ましく、炭素数 2 ~ 3のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1・メチルエチレン基、2・メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。

[0039]

一般式(5)で表される基は、下記一般式(13)で表される窒素含有環状化合物の残基を有する。

[0040]

【化14】



上記一般式(13)で表される窒素含有環状化合物は、環構成原子として、炭素原子、

10

30

20

40

20

30

40

50

窒素原子の他に酸素原子を有していても良い。また該環状化合物は、5員環化合物、6員環化合物及び7員環化合物の何れであっても良いが、5員環化合物又は6員環化合物である場合が好ましい。また、該環状化合物は環内に二重結合を有していても良い。

このような環状化合物としては、具体的には例えば、ピロール、ピペリジン、ピペラジン、及びモルホリンなどが挙げられる。この中でも、ピペリジン、ピペラジン又はモルホリンである場合が好ましい。

また、一般式(13)で表される化合物には、上記の他に、上記環状化合物に炭素数1~10の炭化水素基が結合した化合物も含まれる。

ここで、炭素数 1 ~ 1 0 の炭化水素基には、例えば、炭素数 1 ~ 1 0 の直鎖状または分枝状のアルキル基、炭素数 5 ~ 1 0 のシクロアルキル基またはアルキルシクロアルキル基、炭素数 2 ~ 1 0 の百鎖状または分枝状のアルケニル基、炭素数 6 ~ 1 0 のアリール基またはアルキルアリール基及び炭素数 7 ~ 1 0 のアリールアルキル基などが包含される。

[0041]

上記の好ましいアルキル基の例としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、直鎖または分枝ペンチル基、直鎖または分枝ペキシル基、直鎖または分枝ペプチル基、直鎖または分枝オクチル基、直鎖または分枝ノニル基及び直鎖または分枝デシル基などが挙げられる。

[0042]

上記の好ましいシクロアルキル基の例としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基及 びシクロヘプチル基などが挙げられ、また、上記の好ましいアルキルシクロアルキル基の 例としては、メチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロペ ンチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロペンチル基(すべての置換異性体 を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、エ チルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルシクロペンチル 基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含 む)、エチルジメチルシクロペンチル基 (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分 枝プロピルメチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロ ピルエチルシクロペンチル基(すべての置換異性体を含む)、メチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む) 、エチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシク ロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルシクロヘキシル基(すべての 置換異性体を含む)、トリメチルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、ジエ チルシクロヘキシル基(すべての置換異性体を含む)、エチルジメチルシクロヘキシル基 (すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルシクロヘキシル基 (すべ ての置換異性体を含む)、メチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、ジメ チルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)、エチルシクロヘプチル基(すべて の置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルシクロヘプチル基(すべての置換異性体 を含む)、エチルメチルシクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)及びトリメチル シクロヘプチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

[0043]

上記の好ましいアルケニル基の例としては、ビニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、直鎖または分枝プテニル基、ブタジエニル基、直鎖または分枝ペンテニル基、直鎖または分枝へキセニル基、直鎖または分枝へプテニル基、直鎖または分枝オクテニル基、直鎖または分枝ノネニル基及び直鎖または分枝デセニル基などが挙げられる。

[0044]

上記の好ましいアリール基の例としては、フェニル基、ナフチル基などが挙げられ、好ましいアルキルアリール基の例としては、トリル基(すべての置換異性体を含む)、キシリル基(すべての置換異性体を含む)、エチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、エチルメチルフェニ

ル基(すべての置換異性体を含む)、トリメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝ブチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、直鎖または分枝プロピルメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、ジエチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)、デトラメチルフェニル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。上記の好ましいアリールアルキル基の例としては、ベンジル基、メチルベンジル基(すべての置換異性体を含む)、フェネチル基、メチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)、フェネチル基、メチルフェネチル基(すべての置換異性体を含む)などが挙げられる。

[0045]

10

炭素数1~10の炭化水素基は、炭素数1~6のアルキル基である場合が好ましく、炭素数1~3のアルキル基である場合がより好ましい。

[0046]

上記一般式(5)におけるdは、0または1である。

一般式(5)で表される基は、 R^7 が炭素数 2 ~ 4のアルキレン基であり、ピペリジン、ピペラジンもしくはモルホリンまたはこれらに炭素数 1 ~ 6のアルキル基が結合した化合物の残基を有し、そして d が 0 または 1 である場合がより好ましく、 R^7 がエチレン基又はプロピレン基(1 - メチルエチレン基、2 - メチルエチレン基)であり、ピペラジンもしくはモルホリンまたはこれらに炭素数 1 ~ 3のアルキル基が結合した化合物の残基を有し、そして d が 0 または 1 である場合が最も好ましい。

20

[0047]

一般式(2)におけるXは、X1又はX2である場合が好ましい。

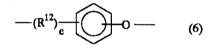
[0048]

次に、一般式(2)のYで表されるY1~Y4について順に説明する。

Y1:下記一般式(6)で表される基

[0049]

【化15】



30

40

(一般式(6)において、R 1 2は炭素数 2 ~ 6のアルキレン基を示し、 e は 0 または 1 である。)

[0050]

上記一般式(6)における R^{12} の炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基として好ましいものは、具体的には R^4 として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でも R^{12} は、炭素数 $2 \sim 4$ のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基又はテトラメチレン基である場合が好ましく、炭素数2~3のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。

上記一般式(6)におけるeは0または1である。

[0051]

Y2:下記一般式(7)で表される基

[0052]

【化16】

20

30

50

$$-(R^{13}) \int_{f} C - O - C - O$$

(一般式(7)において、 R^{13} は炭素数 2 ~ 6 のアルキレン基を示し、 f は 0 または 1 である。)

[0053]

上記一般式(7)における R^{13} の炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基として好ましいものは、具体的には R^4 として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でも R^{13} は、炭素数 $2 \sim 4$ のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基又はテトラメチレン基である場合が好ましく、炭素数2~3のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。

上記一般式(7)におけるfは0または1である。

[0054]

Y3:下記一般式(8)で表される基

[0055]

【化17】

$$\begin{array}{c|c}
-(R^{14}-N)-C-(O)-\\
\parallel g \parallel & h
\end{array}$$
(8)

(一般式(8)において、 $R^{1/4}$ は炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基を示し、g は $1 \sim 5$ の整数であり、そして h は 0 または 1 である。)

[0056]

上記一般式(8)における R^{14} の炭素数 $2 \sim 6$ のアルキレン基として好ましいものは、具体的には R^{4} として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でも R^{14} は、炭素数 $2 \sim 4$ のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基又はテトラメチレン基である場合が好ましく、炭素数2~3のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。

上記一般式(8)における g は 1 ~ 5 、好ましくは 1 ~ 4 、より好ましくは 1 ~ 3 の整数であり、 h は 0 または 1 である。

[0057]

40

Y 4: 下記一般式(9) で表される基 【0058】

【化18】

$$-R^{15}-(N-R^{16})-N \begin{array}{c} O \\ C-CH- \\ C-CH_2 \\ O \end{array}$$
(9)

(一般式 (9) において、 R^{15} および R^{16} はそれぞれ別個に炭素数 2 ~ 6のアルキ

レン基を示し、iは0~5の整数である。)

[0059]

上記一般式(9)における R 15 および R 16 の炭素数 2 ~ 6 のアルキレン基として好ましいものは、具体的には R 4 として先に説明した基と同一の基が挙げられる。これらの中でもR 15 および R 16 は、それぞれ別個に炭素数 2 ~ 4 のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)、トリメチレン基、ブチレン基(1-エチルエチレン基、2-エチルエチレン基)、1,2-ジメチルエチレン基、2,2-ジメチルエチレン基、1-メチルトリメチレン基、2-メチルトリメチレン基、3-メチルトリメチレン基、テトラメチレン基などである場合が好ましく、炭素数 2 ~ 3 のアルキレン基、具体的には例えば、エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)又はトリメチレン基である場合がより好ましい。上記一般式(9)におけるiは 0 ~ 5、好ましくは 0 ~ 4、より好ましくは 0 ~ 3 の整数である。

[0060]

上記式(2)におけるaは0または1である。

[0061]

本発明の一般式(1)で表される基を有する化合物として好ましいのは、一般式(2)で表される基を有する化合物が、下記の態様で示される化合物の場合である。

 R^{1} および R^{2} : それぞれ個別に水素原子、炭素数 1 ~ 1 2 の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基又は炭素数 6 ~ 1 8 のアリール基もしくはアルキルアリール基

X: X1~X3の中から選ばれる基

Y: Y1~Y4の中から選ばれる基

a : 0 または 1

[0062]

10

20

30

40

X1; 一般式(3): R^3 : 水素原子、炭素数 $1\sim12$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロアルキル基、炭素数 $6\sim18$ のアリール基もしくはアルキルアリール基、ポリプロピレン(重量平均分子量 $500\sim3000$)由来の残基基又はポリイソプチレン(重量平均分子量 $500\sim3000$)由来の残基

A: 炭素数 2~6のアルキレン基

 $b: 0 \sim 200$

X2: 一般式(4): $R^4:$ 炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基

 R^5 : 水素原子、炭素数 $1 \sim 3$ のアルキル基または一般

式(3)で表される基(但し、b=0の場合を除く)

 R^6 : 水素原子、炭素数 $1 \sim 1$ 2 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、炭素数 $6 \sim 1$ 8 のアリール基もしくはアルキルアリール基、ポリプロピレン(重量平均分子量 5 0 0 0 0 0 由来の残基、ポリイソプチレン(重量平均分子量 5 0 0 0 0 0 由来の残基、または一般式(2)で表される基(但し、b=0 の場合を除く)

 $c: 1 \sim 4$

X3: 一般式(5): $R^7:$ 炭素数 $2\sim 4$ のアルキレン基

窒素含有環状化合物残基:ピペリジン、ピペラジンもしくはモルホリン又は これらに炭素数1~6のアルキル基が結合した化合物の残基

d:0または1

[0063]

Y1: 一般式(6): R^{12} : 炭素数 $2 \sim 4$ のアルキレン基

e:0または1

Y2;一般式(7):R¹³:炭素数2~4のアルキレン基

f:0または1

Y3: 一般式(8): R^{14} : 炭素数 $2 \sim 4$ のアルキレン基

 $g: 1 \sim 4$

h:0または1

Y4; 一般式 (9): R^{15} および R^{16} : それぞれ個別に炭素数 $2\sim 4$ のアルキ

レン基

 $i: 0 \sim 4$

[0064]

本発明の一般式(1)で表される基を有する化合物として更に好ましいのは、一般式(2)で表される基を有する化合物が、下記の態様で示される化合物の場合である。

 R^{1} および R^{2} : それぞれ個別に炭素数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基、フェニル基、又は炭素数 7 ~ 1 5 の直鎖もしくは分枝アルキルアリール基

X: X1及びX2の中から選ばれる基

Y: Y1~Y4の中から選ばれる基

a:0または1

[0065]

X1; 一般式(3): R^3 : 水素原子、炭素数 $1\sim6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロアルキル基、フェニル基、炭素数 $7\sim1$ 5 のアルキルアリール基、又はポリイソプチレン(重量平均分子量 7 0 $0\sim2$ 0 0 0 由来の残基

A: 炭素数2~4のアルキレン基

 $b: 0 \sim 100$

10

X2; 一般式(4): R^4 : エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)又はトリメチレン基

 R^5 : 水素原子、メチル基、エチル基又は一般式 (3)

で表される基(但し、b=0の場合を除く)

 $R^6:$ 水素原子、炭素数 $1\sim6$ の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、フェニル基、炭素数 $7\sim1$ 5 のアルキルアリール基、ポリイソプチレン(重量平均分子量 7 0 $0\sim2$ 0 0 0 由来の残基、または一般式(3)で表される基(但し、b=0 の場合を除く)

20

 $c: 1 \sim 3$

[0066]

Y1:一般式(6):e:0

Y2:一般式(7):f:0

Y3; 一般式(8): R^{14} : エチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基) またはトリメチレン基

30

 $g: 1 \sim 3$

h: 1

Y4; 一般式 (9) : R^{15} および R^{16} : それぞれ個別にエチレン基、プロピレン基(1-メチルエチレン基、2-メチルエチレン基)またはトリメチレン基

 $i:0\sim3$

[0067]

40

本発明の一般式(1)で表される基を有する化合物として最も好ましいのは、一般式(2)で表される基を有する化合物が、下記の態様で示される化合物の場合である。

R 1 および R 2 : それぞれ個別に炭素数 1 ~ 4 の直鎖状もしくは分枝状のアルキル基、フェニル基又は炭素数 7 ~ 1 5 の直鎖もしくは分枝アルキルアリール基

X: X1で表される基

Y: Y 1 及び Y 3 の中から選ばれる基

a: 0または1

X 1 ; 一般式(3): R 3 : 水素原子、炭素数 1 ~ 6 の直鎖状もしくは分岐状のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基、炭素数 7 ~ 1 5 のアルキルアリール基又はポリイソブチレン(重量平均分子量 7 0 0 ~ 1 5 0 0)由来の残基

A: 炭素数 2~4のアルキレン基

b:0~100

Y 1;一般式(6):e:0

Y 3 ; 一般式(8): R 1 4 : エチレン基またはプロピレン基(1 - メチルエチレン基、2 - メチルエチレン基)

g: 1 ~ 2

h : 1

上記一般式(2)で表される基を有する化合物の内、下記の一般式(2 - 1)で示される化合物が最も好ましい。

【化19】

 $R^{1} C = N - (-1) \frac{1}{a} (AO)_{\overline{b}} H \qquad (2-1)$

(一般式(2-1)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ別個に炭素数 1~4の直鎖状又は分岐状のアルキル基を表し、Aは炭素数 2~4のアルキレン基を示し、aは 0 又は 1であり、そして b は 2~100の整数であり、複数の A は、同一分子中で同じでも異なっていても良い。)

[0068]

本発明に係る一般式(1)で表される基を有する化合物の合成法を以下に記載する。 本発明に係る一般式(1)で表される基を有する化合物は、任意の方法で製造することが できる。この化合物の合成法の一例としては、(14)式で表される分子中に第一アミノ 基を有する化合物と(15)式で表される分子中にカルボニル基を有する化合物とを加熱 、脱水反応させて合成する方法を挙げることができる。

[0069]

【化20】

$$H_2N - (Y) - X \tag{14}$$

$$R^{1} C=0 (15)$$

[0070]

(上記式(14)において、X及びYは、それぞれ一般式(2)におけるX及びYと同一の基を表し、aは、一般式(2)におけるaと同一の整数を表す。)

(上記式(15)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ一般式(2)における R^1 と R^2 と同一の基を表す。)

(14)式で表される分子中に第一アミノ基を有する化合物と(15)式で表される分子中にカルボニル基を有する化合物との反応は、等モルの反応であるが、反応をより促進させるため、通常、反応後未反応物を除去し易いカルボニル基を有する化合物を1.0~10.0倍モル程度過剰に加えて反応させることが好ましい。また、両者の反応温度は任意であるが、通常は40~180 の範囲にあり、好ましくは、80~150 の範囲である。

[0071]

上記一般式(1)で表される基を有する化合物からなる本発明の添加剤は、燃料油の添加剤として使用される。特に、ガソリンおよび軽油添加剤として非常に有用な化合物であり、ベースガソリンおよび必要に応じてその他のガソリン添加剤と混合して得られるガソリン組成物、ベース軽油および必要に応じてその他の軽油添加剤と混合して得られる軽油組成物として用いられる。

また、本発明の添加剤は、筒内直接噴射式ガソリンエンジン用ガソリン添加剤および筒内直接噴射式ディーゼルエンジン用軽油添加剤としても非常に有用な化合物であり、筒内直

10

20

30

40

20

30

40

50

接噴射式ガソリンエンジン用ガソリン組成物、筒内直接噴射式ディーゼルエンジン用軽油組成物としても用いられる。

ガソリン及び軽油組成物中の一般式(1)で表される基を有する化合物からなる本発明の添加剤の含有量(合計量)は、特に限定されないが、通常はガソリンまたは軽油組成物全量基準で、0.001~10質量%となるように選ばれる。

ガソリンエンジンにおける吸気系および燃焼室内の清浄性、ディーゼルエンジンにおける噴射ノズル清浄性、さらには筒内直接噴射式ガソリンエンジンにおける燃焼室内、特にキャビティ内の清浄性を向上させるためには、含有量の下限値が 0 . 0 0 1 質量%、好ましくは 0 . 0 0 3 質量%、より好ましくは 0 . 0 0 5 質量%、さらにより好ましくは 0 . 0 1 質量%、最も好ましくは 0 . 0 1 5 質量%である。

また、ガソリンや軽油の諸性能に悪影響を及ぼさない、それ以上添加しても効果の向上が期待できないなどの点から、含有量の上限値が10質量%、好ましくは5質量%、より好ましくは4質量%、最も好ましくは3質量%である。

[0072]

まず、本発明の添加剤を含むガソリン組成物について説明する。

ベースガソリンは、従来周知の任意の方法で製造することができる。ガソリン基材としては、具体的には例えば、任意の性状を有する、原油を常圧蒸留して得られる軽質ナフサ;接触分解法、水素化分解法等で得られる分解ガソリン;接触改質法で得られる改質ガソリン;オレフィンの重合によって得られる重合ガソリン;イソブタン等の炭化水素に低級オレフィンを付加(アルキル化)することによって得られるアルキレート;軽質ナフサを異性化装置でイソパラフィンに転化して得られる異性化ガソリン;脱 n - パラフィン油;ブタン;芳香族炭化水素化合物;及びプロピレンを二量化し、続いてこれを水素化して得られるパラフィン留分等が挙げられる。

[0073]

典型的な配合例を示すと、無鉛ガソリンは、例えば

- (1)改質ガソリン:0~70容量%
- (2)改質ガソリンの軽質留分(沸点範囲: 25~120 程度):0~35容量%
- (3)改質ガソリンの重質留分(沸点範囲:110 ~200 程度):0~45容量%
- (4)分解ガソリン:0~50容量%
- (5)分解ガソリンの軽質留分(沸点範囲:25~90 程度):0~45容量%
- (6)分解ガソリンの重質留分(沸点範囲:90~200 程度):0~40容量%
- (7)アルキレート:0~40容量%
- (8) プロピレンを二量化し、続いてこれを水素化して得られるパラフィン留分: 0~3 0 容量%
- (9) 異性化ガソリン: 0~30容量%
- (10) M T B E: 0~15容量%
- (11)軽質ナフサ:0~20容量%
- (12)ブタン:0~10容量%

を調合することによって得ることができる。

また、ベースガソリンを製造するにあたっては、ベンゼンの含有量を低減させる必要がある場合がある。その際のベンゼンの低減方法は特に限定されず任意であるが、特にベンゼンは改質ガソリン中に多く含まれていることから、改質ガソリンの配合割合を少なくすること、及び

- (1)改質ガソリンを蒸留してベンゼン留分を除去する
- (2) 改質ガソリン中のベンゼンをスルホラン等の溶剤を用いて抽出する
- (3) 改質ガソリン中のベンゼンを他の化合物に転化する
- (A)ベンゼンを水素化しシクロヘキサン、メチルシクロペンタン等に転化する
- (B)ベンゼン及び炭素数9以上の芳香族炭化水素化合物とを反応させ、トルエン、キシレン、エチルベンゼン等に転化する
- (C)ベンゼンを低級オレフィン(エチレン、プロピレン等)又は低級アルコール(メタ

ノール、エタノール等)を用いてアルキル化する

(4)接触改質装置の原料として、炭素数6の炭化水素化合物を蒸留して除去した脱硫重質ナフサを用いる

(5)接触改質装置の運転条件を変更する

等の方法によって、改質ガソリン中のベンゼン濃度を低下させる処理を行なった改質ガソリンを用いることが好ましい。

[0074]

また、本発明の添加剤を含むガソリン組成物においては、本発明の添加剤以外の添加剤を併用することができる。

その他(本発明の添加剤以外)のガソリン添加剤としては、具体的には例えば、コハク酸イミド、ポリアルケニルアミン、ポリエーテルアミン及びポリエーテル等の清浄分散剤;フェノール系、アミン系等の酸化防止剤;シッフ型化合物やチオアミド型化合物等の金属不活性化剤;有機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、高級アルコール硫酸エステル等の助燃剤;アニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤等の帯電防止剤;アゾ染料等の着色剤;アルケニルコハク酸エステル等のさび止め剤;キリザニン、クマリン等の識別剤;及び天然精油合成香料等の着臭剤等が挙げられる。これらの添加剤は、1種又は2種以上を添加することができ、その合計添加量はガソリン組成物全量基準で0.1質量%以下とすることが好ましい。

[0075]

また、ベースガソリン、一般式(1)で表される基を有する化合物からなる本発明の添加剤及び必要に応じてその他のガソリン添加剤からなるガソリン組成物の性状、組成については、特に制限されない。しかしながら、JIS K 2254「石油製品-蒸留試験方法」によって測定される蒸留性状は、下記の通りであることが望ましい。

蒸留初留点(初留点0) : 20~45

10容量%留出温度(T₁₀):35~55

3 0 容量%留出温度(T₃₀): 5 5 ~ 7 5

5 0 容量%留出温度(T₅₀): 7 5 ~ 1 0 0

7 0 容量%留出温度(T₇₀): 1 0 0 ~ 1 3 0

9 0 容量%留出温度(T₉₀): 1 1 0 ~ 1 6 0

蒸留終点 : 130~210

初留点の下限値は好ましくは20 、より好ましくは25 である。20 に満たない場合には高温条件下で始動性が悪化する可能性がある。一方、初留点の上限値は好ましくは45 、より好ましくは40 、さらにより好ましくは35 である。45 を超える場合には低温始動性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{10} の下限値は好ましくは 3.5 、より好ましくは 4.0 である。 3.5 に満たない場合には高温条件下で始動性が悪化する可能性がある。一方、 T_{10} の上限値は好ましくは 5.5 、より好ましくは 5.0 、さらにより好ましくは 4.8 である。 5.5 を超える場合には低温始動性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{30} の下限値は好ましくは 5.5 、よりましくは 6.0 である。 5.5 に満たない場合には高温運転性に不具合を生じたりインジェクタ内でガソリンのコーキングを生じたりする可能性がある。一方、 T_{30} の上限値は好ましくは 7.5 、より好ましくは 7.0 、さらにより好ましくは 6.8 である。 7.5 を超える場合には低温運転性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{50} の下限値は好ましくは 75 、より好ましくは 80 である。 75 に満たない場合には高温運転性に不具合を生じる可能性がある。一方、 T_{50} の上限値は好ましくは 100 、より好ましくは 95 、更により好ましくは 93 である。 100 を超える場合には低温及び常温運転性に不具合を生じる可能性がある。

 T_{70} の下限値は $1\ 0\ 0$ であることが望ましい。一方、 T_{70} の上限値は好ましくは $1\ 3\ 0$ 、より好ましくは $1\ 2\ 5$ 、更により好ましくは $1\ 2\ 3$ 、最も好ましくは $1\ 2\ 0$ で

10

20

30

40

20

30

40

50

ある。130 を越える場合には低温及び常温運転性に不具合を生じる可能性がある。 T90の下限値は好ましくは110 、より好ましくは120 である。110 に満たない場合は燃費が低下する可能性がある。一方、T90の上限値は、低温及び常温運転性の悪化、排出ガスの増加、エンジンオイルの劣化およびスラッジの発生を抑制することができるなどの点から、好ましくは160 、より好ましくは150 、更により好ましくは140 である。

蒸留終点の下限値は130 であることが望ましい。一方、蒸留終点の上限値は、好ましくは210 、より好ましくは200 、更により好ましくは195 、最も好ましくは190 である。終点が210 を越える場合には常温運転性に不具合を生じる可能性がある。

[0076]

また、上記ガソリン組成物の蒸気圧には特に制限はないが、インジェクタ内でのガソリンコーキングの不具合が生じることがなく、またエバポエミッションの量が抑えられることから、蒸気圧は70kPa以下が好ましく、より好ましくは65kPa以下、さらにより好ましくは60kPa以下、最も好ましくは55kPa以下である。ここで蒸気圧とは、JIS K 2258「原油及び燃料油蒸気圧試験方法(リ・ド法)」により測定される蒸気圧(リード蒸気圧(RVP)を意味する。

上記ガソリン組成物の密度(15)には特に制限はないが、0.73~0.77g/ cm^3 であることが望ましい。密度の下限値は燃費の点からより好ましくは0.735g/ cm^3 である。一方、密度の上限値は加速性及びプラグのくすぶりの観点からより好ましくは0.76g/ cm^3 である。ここで密度とは、JIS K 2249「原油及び石油製品の密度試験方法並びに密度・質量・容量換算表」により測定される密度を意味する。上記ガソリン組成物は、四エチル鉛等のアルキル鉛化合物を実質的に含有しないガソリンであり、たとえ極微量の鉛化合物を含有する場合であっても、その含有量はJIS K 2255「ガソリン中の鉛分試験方法」の適用区分下限値以下である。

[0077]

上記ガソリン組成物のオクタン価には特に制限はないが、よりアンチノッキング性を高めるため、リサーチ法オクタン価(RON)は89以上であることが好ましく、より好ましくは90以上、さらにより好ましくは90、5以上、最も好ましくは91以上である。また、より高速走行中のアンチノック性を高めるために、モーター法オクタン価(MON)は80以上であることが好ましく、より好ましくは80、5以上、最も好ましくは81以上である。ここでリサーチ法オクタン価及びモーター法オクタン価とは、それぞれ、JIS K 2280「オクタン価及びセタン価試験方法」により測定されるリサーチ法オクタン価及びモーター法オクタン価をそれぞれ意味する。

上記ガソリン組成物において、飽和分、オレフィン分及び芳香族分の各含有量については 特に制限はないが、下記の割合であることが望ましい。

飽和分(V(P)) : 50~100容量%

オレフィン分(V (O)) : 0 ~ 1 5 容量 %

芳香族分(V(Ar)) : 0~35容量%

V (P) は、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止、及びプラグのくすぶりを低減させる、排出ガスのオゾン生成能を低く抑える、排出ガス中のベンゼン濃度を低減させる、すすを発生させない等の観点から、その値は、より好ましくは 6 0 ~ 1 0 0 容量 % できにより好ましくは 7 0 ~ 1 0 0 容量 % であり、最も好ましくは 7 5 ~ 1 0 0 質量 % である。

また、V (O)は、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止の観点からより好ましくは $0 \sim 1$ 0 容量 %、 さらにより好ましくは $0 \sim 7$ 容量 %、 最も好ましくは $0 \sim 5$ 容量 % である。

さらに、V(Ar)は、プラグのくすぶりを低減させる、排出ガスのオゾン生成能を低く抑える、排出ガス中のベンゼン濃度を低減させる、すすを発生させない等の観点からより好ましくは0~30容量%、最も好ましくは0~

20容量%である。

上記のV(P)、V(O)及びV(Ar)は、全てJIS K 2536「石油製品-炭化水素タイプ試験方法」の蛍光指示薬吸着法により測定される値である。

[0078]

また、上記ガソリン組成物の各成分の含有量には特に制限はないが、以下のような条件を 満たすことが望ましい。

- (1) V (Bz): 0~1容量%
- (2) V (T o l) : 0 ~ 3 0 容量%
- (3) V (C 8 A) : 0 ~ 2 0 容量%
- (4) V (C 9 A) : 0 ~ 5 容量%
- (5) V (C 1 0 + A) : 0 ~ 3 容量%
- (6) V (PA) = 0

又は

V (P A) 0 の際に V (M A) / V (P A) : 1以上

- (7) V(C4):0~10容量%
- (8) V (C 5) : 1 0 ~ 3 5 容量%
- (9) V(C6):10~30容量%
- (10) V (C 7 + p) : 1 0 ~ 5 0 容量%
- (11) V (C 9 +) : 0 ~ 1 0 容量%

上記のV(Bz)は、ガソリン組成物全量基準のベンゼン含有量を示し、上記の範囲とすることで、排出ガス中のベンゼン濃度を低く抑えることができる。その値は、好ましくは、0~1容量%であり、より好ましくは0~0.5容量%である。

上記のV(To1)及びV(C8A)は、それぞれガソリン組成物全量基準のトルエン含有量及び炭素数8の芳香族炭化水素化合物含有量を示し、V(To1)の値は、好ましくは0~30容量%であり、より好ましくは0~20容量%、V(C8A)の値は、好ましくは0~20容量%であり、より好ましくは0~15容量%である。なお、炭素数8の芳香族炭化水素化合物としては、エチルベンゼン及びキシレン(全ての置換異性体を含む)等が挙げられる。

上記のV(C 9 A)は、ガソリン組成物全量基準の炭素数 9 の芳香族炭化水素化合物含有量を示し、排出ガスのオゾン生成能を低く抑えるために、その値は、好ましくは 0 ~ 5 容量%であり、より好ましくは 0 ~ 3 容量%である。炭素数 9 の芳香族炭化水素としては、例えば、n - プロピルベンゼン、イソプロピルベンゼン(クメン)、エチルメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)及びトリメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)等が挙げられる。

[0079]

上記のV(C10+A)は、ガソリン組成物全量基準の炭素数10以上の芳香族炭化水素化合物含有量を示し、排出ガスのオゾン生成能を低く抑えるために、その量が好ましくは0~3容量%であり、より好ましくは0~1容量%、最も好ましくは0容量%である。炭素数10以上の芳香族炭化水素化合物としては、例えば、ジエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、ジメチルエチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、テトラメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)、テトラメチルベンゼン(全ての置換異性体を含む)等が挙げられる。

上記のV(MA)及びV(PA)は、それぞれガソリン組成物全量を基準としたモノアルキル置換芳香族炭化水素化合物含有量(容量%)及び2つ以上のアルキル基で置換された芳香族炭化水素化合物含有量(容量%)を示すが、本発明にあってはV(PA)が0であるか、又はV(PA)が0でない場合は、前者の含有量と後者の含有量の比、V(MA)/V(PA)の値は、好ましくは1以上、より好ましくは1.5以上、更により好ましくは2以上に維持されることである。

なお、上記したV(Bz)、V(Tol)、V(C8A)、V(C9A)、V(C10+A)、V(MA)及びV(PA)は、NずれもJIS K 2536 「石油製品 - 炭化

10

20

30

40

20

30

40

50

水素タイプ試験方法」のガスクロマトグラフ法で定量して得られる値である。 上記のV(C4)は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数4の炭化水素化合物含有量 を示す。エバポエミッションの量をより低く抑えられる点から、V(C4)の値は好まし くは 0 ~ 1 0 容量 % であり、より好ましくは 0 ~ 5 容量 %、 更により好ましくは 0 ~ 3 容 量%である。炭素数4の炭化水素化合物としては、例えば、n-ブタン、2-メチルブタ ン(イソブタン)、1-ブテン、2-ブテン及び2-メチルプロペン等が挙げられる。 上記のV(C5)は、ガソリン全量を基準とした炭素数5の脂肪族炭化水素化合物含有量 を示し、その下限値は好ましくは10容量%、より好ましくは15容量%、上限値は好ま しくは35容量%、より好ましくは30容量%である。炭素数5の脂肪族炭化水素化合物 の含有量を10容量%以上にすることで、常温運転性により優れたガソリン組成物が得ら れる。また、これを35容量%以下にすることで高温運転性により優れたガソリン組成物 が得られる。そして、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防止の観点から、炭素数 5の脂肪族炭化水素化合物の中の不飽和炭化水素化合物の含有量(V (C 5 o)) (容量 %)は0であるか、あるいは炭素数5の脂肪族炭化水素化合物の中の飽和炭化水素化合物 の含有量(V(C5p))(容量%)とV(C5o)との比、すなわち、V(C5p)/ V(C5o)の値は好ましくは1以上、より好ましくは1.5以上、さらにより好ましく は2以上、最も好ましくは3以上である。炭素数5の飽和脂肪族炭化水素化合物としては 、例えば、n-ペンタン、2-メチルブタン(イソペンタン)、2,2-ジメチルプロパ ン(ネオペンタン)等が挙げられ、同じく不飽和脂肪族炭化水素化合物としては、1-ペ ンテン、 2 - ペンテン、 2 - メチル - 1 - ブテン、 2 - メチル - 2 - ブテン及び 3 - メチ ル・1・ブテン等が挙げられる。

[0800]

上記のV(C6)は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数6の脂肪族炭化水素化合物 の含有量を示し、その下限値は好ましくは10容量%、より好ましくは15容量%であり 上限値は好ましくは30容量%であり、より好ましくは25容量%である。炭素数6の 脂肪族炭化水素化合物の含有量を10容量%以上にすることで、常温運転性により優れた ガソリン組成物が得られる。また、これを30容量%以下にすることで高温運転性により 優れたガソリン組成物が得られる。そして、インジェクタ内でのガソリンのコーキング防 止の観点から、炭素数6の脂肪族炭化水素化合物の中の飽和炭化水素化合物の含有量(V (C6o))(容量%)が0であるか、或るいは炭素数6の脂肪族炭化水素化合物の中の 飽和炭化水素化合物の含有量(V(C6p))(容量%)とV(C6o)との比、すなわ ち、V(C6p)/V(C6o)の値は好ましくは2以上、より好ましくは3以上、さら により好ましくは5以上、最も好ましくは10以上である。炭素数6の飽和脂肪族炭化水 素化合物としては、例えば、n-ヘキサン、2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、 2,2-ジメチルブタン、2,3-ジメチルブタン等が挙げられ、同じく不飽和脂肪族炭 化水素化合物としては、例えば、1-ヘキセン、2-ヘキセン、3-ヘキセン、2-メチ ル・1 - ペンテン、3 - メチル・1 - ペンテン、4 - メチル・1 - ペンテン、2 - メチル - 2 - ペンテン、 3 - メチル - 2 - ペンテン、 4 - メチル - 2 - ペンテン、 2 , 3 - ジメ チル・1 - ブテン、3 , 3 - ジメチル・1 - ブテン及び2 , 3 - ジメチル・2 - ブテン等 が挙げられる。

[0081]

上記のV(C7+p)は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数7以上の飽和脂肪族炭化水素化合物の含有量を示し、その下限値は好ましくは10容量%であり、より好ましくは20容量%である。上限値は好ましくは50容量%であり、より好ましくは45容量%である。炭素数7以上の飽和脂肪族炭化水素化合物の含有量を10容量%以上にすることで、常温運転性により優れたガソリン組成物が得られ、これを50容量%以下にすることで高温運転性により優れたガソリン組成物が得られる。炭素数7以上の飽和脂肪族炭化水素化合物としては、例えば、n・ヘプタン、2・メチルヘキサン、3・メチルヘキサン、2,2・ジメチルペンタン、2,3・ジメチルペンタン、3・ジメチルペンタン、3・ジメチルペンタン、3・ジメチルペンタン、3・ジメチルペンタン、3・ジメチルペンタン、3・ジメチルプタン等が挙

20

30

40

50

げられる。

上記 V (C 9 +) は、ガソリン組成物全量を基準とした炭素数 9 以上の炭化水素化合物の含有量を示し、低温及び常温運転性の点から、またエンジンオイルのガソリン希釈を低減させ、排出ガスの増加、エンジンオイルの劣化及びスラッジ発生を防止できること等から、この値が好ましくは 0 ~ 1 0 容量%であり、より好ましくは 0 ~ 5 容量%であり、さらにより好ましくは 0 容量%である。

なお、上記した V (C 4)、 V (C 5)、 V (C 5 P)、 V (C 5 P)、 V (C 5 P)、 V (C 6 P) V (C 6 P) V (C 8 P) V (C 8 P) V (C 8 P) V (C 8 P) V (C 8 P) V (C 8 P) V (

[0082]

上記ガソリン組成物において含酸素化合物の含有量は特に制限はないが、ガソリン組成物全量基準で酸素元素換算で好ましくは0~2.7質量%、より好ましくは0~2.0質量%である。含有量が2.7質量%を越える場合は、ガソリン組成物の燃費が悪化し、また排出ガス中のNO×が増加する可能性がある。

ここで含酸素化合物とは、炭素数2~4のアルコール類、炭素数4~8のエーテル類等を意味する。本発明に係るガソリン組成物に配合可能な含酸素化合物としては、例えば、エタノール、メチルターシャリーブチルエーテル(MTBE)、エチルターシャリーブチルエーテル、ターシャリーアミルメチルエーテル(TAME)及びターシャリーアミルエチルエーテル等が挙げられ、これらの中でもMTBE及びTAMEが好ましく、最も好ましくはMTBEである。なお、メタノールは排出ガス中のアルデヒド濃度が高くなる可能性があり、腐食性もあるので好ましくない。

上記ガソリン組成物において硫黄分含有量は特に制限はないが、ガソリン組成物全量基準で、好ましく50ppm以下、より好ましくは30ppm以下、さらにより好ましくは20ppm以下、最も好ましくは10ppm以下である。硫黄分含有量が50ppmを越える場合、排出ガス処理触媒の性能に悪影響を及ぼし、排出ガス中のNOx、CO、HCの濃度が高くなる可能性があり、またベンゼンの排出量も増加する可能性がある。ここで硫黄分とは、JISK2541「原油及び石油製品・硫黄分試験方法」により測定される硫黄分を意味する。

[0083]

上記ガソリン組成物は、JIS K 2261「石油製品 - 自動車ガソリン及び航空燃料油 - 実在ガム試験方法 - 噴射蒸発法」により測定した未洗実在ガムの含有量が、一般に20mg/100mL以下であって、洗浄実在ガムの含有量が一般に3mg/100mL以下であり、好ましくは1mg/100mL以下である。未洗実在ガム及び洗浄実在ガムが上記の値を超えた場合は、燃料導入系統において析出物が生成したり、吸入弁が膠着する心配がある。

上記ガソリン組成物の、JIS K 2279「原油及び石油製品 - 発熱量試験方法及び計算による推定方法」により測定した総発熱量は、一般に40000 J/g以上、好ましくは45000 J/g以上である。

上記ガソリン組成物の、JIS K 2287「ガソリン酸化安定度試験方法(誘導期間法)」によって測定した酸化安定度は、一般に480分以上、好ましくは1440分以上である。酸化安定度が480分に満たない場合は、貯蔵中にガムが生成する可能性がある

上記ガソリン組成物は、銅板腐食(50、3h)が一般に1、好ましくは1aである。 銅板腐食が1を越える場合は、燃料系統の導管が腐食する可能性がある。ここで銅板腐食 とは、JIS K 2513「石油製品-銅板腐食試験方法」(試験温度50、試験時 間3時間)に準拠して測定されるものである。

さらに、上記ガソリン組成物は、灯油混入量は4容量%以下であることが望ましい。ここで、灯油混入量とはガソリン組成物全量基準での炭素数13~14の炭化水素含有量(容量%)を表し、この量は以下に示すガスクロマトグラフィー法により定量して得られるものである。すなわち、カラムにはメチルシリコンのキャピラリーカラム、キャリアガスにはヘリウム又は窒素を、検出器には水素イオン化検出器(FID)を用い、カラム長25~50m、キャリアガス流量0.5~1.5mL/分、分割比1:50~1:250、注入口温度150~250 、初期カラム温度 - 10~10 、終期カラム温度150~250 、検出器温度150~250 の条件で測定した値である。

[0084]

次に、本発明の添加剤を含む軽油組成物について説明する。

ベース軽油は、任意の方法で製造することができる。軽油基材としては、具体的には例えば、原油の常圧蒸留装置から得られる直留軽油;常圧蒸留装置から得られる直留重質油や残査油を減圧蒸留装置にかけて得られる減圧軽油;減圧蒸留装置から得られる減圧軽油を水素化精製して得られる水素化精製軽油;直留軽油を通常の水素化精製より苛酷な条件で一段階又は多段階で水素化脱硫して得られる水素化脱硫軽油;脱硫又は未脱硫の減圧軽油、減圧重質軽油あるいは脱硫重油を接触分解して得られる接触分解軽油;原油の常圧蒸留により得られる直留灯油;直留灯油を水素化精製して得られる水素化精製灯油;及び原油の常圧蒸留によって得られる軽油留分を分解して得られる分解灯油等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が使用可能である。

[0085]

また、本発明の添加剤を含む軽油組成物においては、本発明の添加剤以外の添加剤を併用することができる。

その他(本発明の添加剤以外)の軽油添加剤としては、まず潤滑性向上剤及びセタン価向 上剤等が挙げられる。

潤滑性向上剤としては、例えば、カルボン酸系、エステル系、アルコール系及びフェノール系の各潤滑性向上剤の1種又は2種以上が任意に使用可能である。この中でも、カルボン酸系及びエステル系の潤滑性向上剤が好ましい。

カルボン酸系の潤滑性向上剤としては、例えば、リノ・ル酸、オレイン酸、サリチル酸、 パルミチン酸、ミリスチン酸、ヘキサデセン酸及び上記カルボン酸の2種以上の混合物等 が挙げられる。

エステル系の潤滑性向上剤としては、グリセリンのカルボン酸エステル等が挙げられる。 カルボン酸エステルを構成するカルボン酸は、1種であっても2種以上であってもよく、 その具体例としては、リノ・ル酸、オレイン酸、サリチル酸、パルミチン酸、ミリスチン 酸及びヘキサデセン酸等が挙げられる。

潤滑性向上剤の含有量には特に制限はない。しかし、潤滑性向上剤の効能を引き出すためには、具体的には、分配型噴射ポンプを搭載したディーゼルエンジンにおいて、運転中のポンプの駆動トルク増を抑制し、ポンプの摩耗を低減させるためには、潤滑性向上剤の配合量は、組成物全量基準で35質量 p p m 以上であることが好ましく、50質量 p p m 以上であることがより好ましい。そして、配合量の上限値はそれ以上加えても添加量に見合う効果が得られないことから、150質量 p p m 以下であることが好ましく、100質量 p p m 以下であることがより好ましい。

なお、潤滑性向上剤と称して市販されている商品は、それぞれ潤滑性向上に寄与する有効成分が適当な溶剤で希釈された状態で入手されるのが通例である。こうした市販品を本発明の添加剤を含む軽油組成物に配合した場合にあっては、潤滑性向上剤に関して上述した配合量は、有効成分としての配合量を意味する。

[0086]

セタン価向上剤としては、当業界でセタン価向上剤として知られる各種の化合物を任意に 使用することができ、例えば、硝酸エステルや有機過酸化物等が使用可能である。しかし 、本発明では、セタン価向上剤として硝酸エステルを用いることが好ましい。硝酸エステ 10

20

30

40

20

30

40

50

ルには、例えば、2 - クロロエチルナイトレート、2 - エトキシエチルナイトレート、イソプロピルナイトレート、ブチルナイトレート、第一アミルナイトレート、第二へキシルナイトレート、第二へキシルナイトレート、第二へキシルナイトレート、n - ヘプチルナイトレート、n - オクチルナイトレート、2 - エチルヘキシルナイトレート、シクロヘキシルナイトレート及びエチレングリコールジナイトレート等の種々のナイトレート等が包含される。これらの中でも、炭素数6~8のアルキルナイトレートが好ましい。セタン価向上剤は、上記の化合物のうちの1種の化合物を単独で用いても良く、2種以上の化合物を組み合わせて用いても良い。

本発明の添加剤を含む軽油組成物におけるセタン価向上剤の含有量は、ディーゼルエンジン排出ガスのNO×濃度、PM濃度、アルデヒド濃度等をより低減させるために、組成物全量基準で500質量ppm以上であることが好ましく、600質量ppm以上であることがより好ましく、700質量ppm以上であることがさらにより好ましく、800質量ppm以上であることがおいが、セタン価も好ましい。一方、セタン価向上剤の含有量の上限値は特には限定されないが、セタン価向上剤の含有量は軽油組成物全量基準で、1400質量ppm以下であることが好ましく、1250質量ppm以下であることがより好ましく、1100質量ppm以下であることがおり好ましく、1000質量ppm以下であることが最も好ましい。

なお、セタン価向上剤と称して市販されている商品は、セタン価向上に寄与する有効成分、つまり、セタン価向上剤を適当な溶剤で希釈した状態で入手されるのが通例である。こうした市販品を使用して本発明の添加剤を含む軽油組成物を調製する場合には、上記セタン価向上剤の含有量は軽油組成物中の前記有効成分の含有量を表す。

[0087]

また、本発明の添加剤を含む軽油組成物においては、本発明の添加剤以外の清浄剤を併用することも可能である。

本発明の添加剤以外の清浄剤としては、例えば、ポリプテニルアミンなどのポリアルケニルアミン;ポリエーテルアミン;ポリエーテル;ポリアルキレンオキサイド;イミド系化合物;ポリプテニルコハク酸無水物とエチレンポリアミン類とから合成されるポリプテニルコハク酸イミド等のアルケニルコハク酸イミド;ペンタエリスリトール等の多価アルコールとポリプテニルコハク酸無水物から合成されるポリブテニルコハク酸エステル等のコハク酸エステル;ジアルキルアミノエチルメタクリレート、ポリエチレングリコールメタクリレート、ビニルピロリドン等とアルキルメタクリレートとのコポリマー等の共重合系ポリマー、カルボン酸とアミンの反応生成物等の無灰清浄剤等が挙げられる。これらの中でも、アルケニルコハク酸イミド及びカルボン酸とアミンとの反応生成物の使用が好ましい。

アルケニルコハク酸イミドを使用する例としては、分子量1000~3000程度のアルケニルコハク酸イミドを単独使用する場合と、分子量700~2000程度のアルケニルコハク酸イミドと分子量10000~20000程度のアルケニルコハク酸イミドを混合使用する場合等がある。

カルボン酸とアミンとの反応生成物を構成するカルボン酸は1種であっても2種以上であってもよく、その具体例としては、炭素数12~24の脂肪酸及び炭素数7~24の芳香族カルボン酸等が挙げられる。炭素数12~24の脂肪酸としては、リノール酸、オレイン酸、パルミチン酸及びミリスチン酸等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、炭素数7~24の芳香族カルボン酸としては、例えば、安息香酸及びサリチル酸等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。また、カルボン酸とアミンとの反応生成物を構成するアミンは、1種であっても2種以上であっても良い。ここで用いられるアミンとしては、オレイルアミンが代表的であるが、これに限定されるものではなく、各種アミンが使用可能である。

[0088]

本発明の添加剤以外の清浄剤の配合量にも特に制限はない。しかし、本発明以外の清浄剤と本発明の添加剤とを配合した効果、具体的には、燃料噴射ノズルの閉塞抑制効果を引き

出すためには、本発明以外の清浄剤の配合量を組成物全量基準で30質量ppm以上とすることが好ましく、60質量ppm以上とすることがより好ましく、80質量ppm以上とすることがさらにより好ましい。30質量ppmに満たない量を添加しても効果が現れない可能性がある。一方、配合量が多すぎても、それに見合う効果が期待できず、逆にディーゼルエンジン排出ガス中のNOx、PM、アルデヒド等を増加させる恐れがあることから、清浄剤の配合量は300質量ppm以下であることが好ましく、180質量ppm以下であることがより好ましい。

なお、先のセタン価向上剤の場合と同様、清浄剤と称して市販されている商品は、それぞれ清浄に寄与する有効成分が適当な溶剤で希釈された状態で入手されるのが通例である。 こうした市販品を本発明の添加剤を含む軽油組成物に配合した場合にあっては、その他の 清浄剤に関して上述した配合量は、有効成分としての配合量を意味する。

[0089]

さらに、本発明の添加剤を含む軽油組成物には、他の性能をさらに高める目的でその他の公知の燃料油添加剤を単独で、又は数種類組み合わせて添加することもできる。これらの添加剤としては、例えば、エチレン・酢酸ビニル共重合体、アルケニルコハク酸アミド等の低温流動性向上剤;フェノール系、アミン系等の酸化防止剤;サリチリデン誘導体等の金属不活性化剤;ポリグリコールエーテル等の氷結防止剤;脂肪族アミン、アルケニルコハク酸エステル等の腐食防止剤;アニオン系、カチオン系、両性系界面活性剤等の帯電防止剤;アゾ染料等の着色剤;及びシリコン系等の消泡剤等が挙げられる。

上記の添加剤の添加量は特に限定されず任意に決めることができるが、添加剤個々の添加量は、軽油組成物全量基準でそれぞれ0.5質量%以下が好ましく、より好ましくは0. 2質量%以下である。

[0090]

また、ベース軽油、一般式(1)で表される基を有する化合物からなる本発明の添加剤及びその他の軽油添加剤からなる軽油組成物の性状、組成については、特に制限されない。 しかしながら、蒸留性状について下記の性状を満たしていることが望ましい。

初留点 : 1 3 5 ~ 2 0 0

10容量%留出温度(T₁₀):155~230

3 0 容量%留出温度(T₃₀): 1 7 5 ~ 2 6 0

5 0 容量%留出温度(T₅₀): 1 9 0 ~ 3 0 0

7 0 容量%留出温度(T₇₀): 2 2 0 ~ 3 3 0

9 0 容量%留出温度(T₉₀): 2 5 0 ~ 3 5 0

9 5 容量%留出温度(T₉₅): 2 7 0 ~ 3 6 0

蒸留終点 : 3 3 0 ~ 3 7 0

[0091]

軽油組成物の初留点が低すぎる場合には、一部の軽質留分が気化して噴霧範囲が広がりすぎ、未燃分として排ガスに同伴される炭化水素量が増加する恐れがあることから、初留点は好ましくは135 以上、より好ましくは140 以上、さらにより好ましくは145 以上である。一方、初留点が高すぎる場合は、低温始動性及び低温運転性に不具合を生

じる可能性があるため、初留点の上限は200 以下であることが望ましい。 軽油組成物の工物が低すぎる場合は、初留点が低すぎる場合と同様な理由から、排ガスに

軽油組成物の T_{10} が低すぎる場合は、初留点が低すぎる場合と同様な理由から、排ガスに同伴される炭化水素量の増大が懸念されるため、 T_{10} は好ましくは 155 以上、より好ましくは 165 以上である。一方、これが高すぎると、低温始動性及び低温運転性に不具合を生じる心配があるため、 T_{10} は 230 以下であることが望ましい。

軽油組成物の T_{30} が低すぎる場合は、上に述べたと同じ理由から、排ガスに同伴される炭化水素量の増大が懸念される。従って、 T_{30} は好ましくは175 以上、より好ましくは180 以上、更により好ましくは185 以上である。一方、これが高すぎる場合は、低温始動性及び低温運転性に不具合を生じる可能性がある点から、260 以下であることが望ましい。

軽油組成物のT50は、燃費及びエンジン出力の面から、好ましくは190 以上、より好

10

20

30

40

ましくは 195 以上、更により好ましくは 200 以上である。そして、排出ガス中の粒子状物質(PM)濃度を増加させないために T_{50} は 300 以下であることが好ましい

軽油組成物の T_{70} も T_{50} と同様、燃費とエンジン出力を左右する。燃費をより向上させ、エンジンの出力をより高めるために、 T_{70} は好ましくは 2 2 0 以上、より好ましくは 2 2 5 以上、更により好ましくは 2 3 0 以上である。そして、低温運転性の点から及び排出ガス中の P M 濃度を増加させないために T_{70} は 3 3 0 以下であることが望ましい。

[0092]

軽油組成物のTgのは、燃料噴射ポンプにおける潤滑性の点から、好ましくは250 以上、より好ましくは270 以上である。そして、低温運転性の点から及び排出ガス中のPM濃度を増加させないために350 以下であることが望ましい。

軽油組成物のT₉₅は、燃料噴射ポンプにおける潤滑性の点から、270 以上であることが好ましく、低温運転性の点から及び排出ガス中のPM濃度を増加させないためには、T₉₅は360 以下であることが好ましい。

軽油組成物の蒸留終点は、燃料噴射ポンプにおける潤滑性の点から、330 以上であることが好ましい。しかし、低温運転性の点から及び排出ガス中のPM濃度を増加させないためには、蒸留終点は370 以下であることが好ましい。ここで蒸留性状(初留点、T $_{10}$ 、 $_{10}$ 、 $_{10}$

[0093]

また、軽油組成物の硫黄分についても特に制限はないが、排出ガスの後処理装置の耐久性やエンジン内部の腐食を抑える点から、硫黄分0.05質量%以下であることが好ましく、0.02質量%以下であることがさらにより好ましく、0.01質量%以下であることがさらにより一層好ましく、0.005質量%以下であることが最も好ましい。ここで硫黄分とはJIS К 2541「硫黄分試験方法」により測定される硫黄分の含有量を意味する。

軽油組成物のセタン指数、セタン価には特に制限はない。しかし、排出ガス中のNOx、PM、アルデヒドの各濃度をより低減させるために、セタン指数は45以上であることが好ましく、50以上であることがさらにより好ましい。セタン価は45以上であることが好ましく、48以上であることがより好ましく、50以上であることがさらにより好ましい。ここでセタン指数とは、JIS K 2280「石油製品・燃料油・オクタン価及びセタン価試験方法並びにセタン指数算出方法」の「8.4変数方程式を用いたセタン指数の算出方法」によって算出した価を意味する。またセタン価とは、JIS K 2280「石油製品・燃料油・オクタン価及びセタン価試験方法並びにセタン指数算出方法」の「7.セタン価試験方法」に準拠して測定されるセタン価を意味する。

[0094]

本発明の添加剤を含む軽油組成物の動粘度は特に制限はない。しかし、燃料噴射時期の制御及びエンジンに付設された分配型燃料噴射ポンプの潤滑性の点から、30 における動粘度の上限値は $1.7\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以上であることが好ましく、 $1.9\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以上であることがより好ましく、 $2.0\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以上であることがさらにより好ましい。また、排出ガス中のPM 濃度を増加させないためにも、また低温での始動性に及ぼす影響を小さくさせるためにも、30 における動粘度の下限値は $6.0\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以下であることが好ましく、 $5.0\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以下であることがより好ましく、 $4.5\,\mathrm{mm}^2/$ 秒以下であることがおらにより好ましい。ここで動粘度とはJISK 2283 「原油及び石油製品・動粘度試験方法及び粘度指数算出方法」により測定される動粘度を指す。

本発明の添加剤を含む軽油組成物の 1.5 における密度については特に制限はない。しかし、燃料消費率及び加速性をより向上させるために、その下限値は 8.0.0 k g / m 3 以上であることが好ましい。一方、 1.5 における密度の上限値は、排出ガス中の P M 濃度をより低下させるために、 8.6.0 k g / m 3 以下であることが好ましく、 8.5.0 k g / m 3 以

20

10

30

40

下であることがより好ましい。ここで密度とはJIS K 2249「原油及び石油製品の密度試験方法並びに密度・質量・容量換算表」により測定される密度を意味する。

[0095]

本発明の添加剤を含む軽油組成物において、飽和分、オレフィン分及び芳香族分の各含有量は特に制限はないが、下記の割合であることが望ましい。

飽和分含有量 : 60~95容量%

オレフィン分含有量: 0 ~ 5 容量% 芳香族分含有量: 5 ~ 4 0 容量%

軽油組成物の飽和分含有量の下限値は、排出ガス中のNOx及びPMの各濃度を低下させるうえで、60容量%以上であることが好ましく、より好ましくは70容量%以上であり、更により好ましくは75容量%以上である。一方、低温始動性及び低温運転性を良好に維持するうえで、飽和分含有量の上限値は、95容量%以下であることが好ましく、より好ましくは90容量%以下であり、さらにより好ましくは80容量%以下である。

軽油組成物のオレフィン分含有量は、当該組成物の安定性の観点から、0~5容量の範囲であることが好ましく、より好ましくは0~3容量%の範囲、さらにより好ましくは0~1容量%の範囲である。

軽油組成物の芳香族分含有量は、燃料消費率及びエンジン出力に関係するので、好ましくは5容量%以上、より好ましくは10容量%以上、更により好ましくは20容量%以上、最も好ましくは25容量%以上である。一方、この芳香族分含有量は、排出ガスに含まれるNOx及びPMの各濃度に関係することから、この含有量は好ましくは40容量%以下、より好ましくは35容量%以下、更により好ましくは30%以下である。ここで飽和分含有量、オレフィン分含有量及び芳香族分含有量は、JISK2536に規定する「石油製品-成分試験方法」の蛍光指示薬吸着法に準拠して測定される飽和分、オレフィン分及び芳香族分の容量百分率(容量%)を意味する。

[0096]

本発明の添加剤を含む軽油組成物は、その流動点(PP)について特に制限されない。しかし、低温始動性ないしは低温運転性の観点から、組成物のPPは0 以下であることが好ましく、より好ましくは - 5 以下、さらにより好ましくは - 1 0 以下である。ここでPPとは、JIS K 2 2 6 9「原油及び石油製品の流動点並びに石油製品曇り点試験方法」により測定される流動点を意味する。

同様にして、本発明の添加剤を含む軽油組成物は、その目詰まり点(CFPP)については特に制限はない。しかし、組成物のCFPPは 0 以下であることが好ましく、-5以下であることがより好ましく、-10以下であることがさらにより好ましく、-20以下であることが最も好ましい。ここでCFPPとはJIS K 2288「軽油-目詰まり点試験方法」により測定される目詰まり点を意味する。

また、同様に、本発明の添加剤を含む軽油組成物は、その曇り点(CP)について特に制限されない。しかし、曇り点は 0 以下であることが好ましい。ここで曇り点とは、JISK2269「原油及び石油製品の流動点並びに石油製品曇り点試験方法」により測定される曇り点を意味する。

[0097]

【実施例】

以下に本発明の実施例を説明するが、これらの実施例は本発明を限定するものではない。

[0098]

実施例の記述に先立ち、実施例で用いた一般式(1)で表される基を有する化合物の合成例を以下に示す。

合成例1(化合物1の合成)

[0099]

【化21】

20

10

30

[化合物1]

[0100]

還流管及び温度計を付けた内容量500mLの四つ口フラスコにエタノールアミン61. 1 g (1 . 0 モル) メチルイソブチルケトン 1 3 0 . 2 g (1 . 3 モル) を入れ、 1 1 5 で20時間還流し、生成した水17.5mLを系外に排出した。その後、過剰のメチル イソブチルケトン、未反応のエタノールアミン及び系内に残存する水を留去することによ り、ケチミン化物131.8gを得た。

次いで、このケチミン化物71.6g(0.5モル)及び水酸化カリウム5.6g(0. 1 モル)を内容量 1 Lのオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、 9 0 に過熱 し、生成した水を留去した。その後、トルエン100mL及びプロピレンオキサイド23 2.0g(4.0モル)を加え、95 で5時間反応させた。反応終了後、反応生成物を 固体酸により中和、ろ過した後、溶媒のトルエンを留去して精製することにより、油状液 体(化合物1)285.0gを得た。

[0101]

合成例2(化合物2の合成)

[0102]

【化22】

[化合物2]

[0103]

上記合成例1において、プロピレンオキサイド232.0gの代わりにブチレンオキサイ ド 7 2 0 . 0 g (1 0 . 0 モル) を用いたこと以外は同様にして油状液体(化合物 2) 7 45.5gを得た。

[0104]

合成例3(化合物3の合成)

[0105]

【化23】

[化合物3]

[0106]

還流管及び温度計を付けた内容量500mLの四つ口フラスコに4-アミノフェノール1 09.0g(1.0モル)とメチルエチルケトン108.0g(1.5モル)を入れ、1 15 で20時間還流し、生成した水17.2mLを系外に排出した。その後、過剰のメ チルエチルケトン、未反応の4-アミノフェノール及び系内に残存する水を留去すること によりケチミン化物146.7gを得た。

次いで、このケチミン化物81.5g(0.5モル)及び水酸化カリウム5.6g(0. 1 モル)を内容量1Lのオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、90 に過熱 し、精製した水を留去した。その後、トルエン100mL及びプロピレンオキサイド43 5 . 0 g (7 . 5 モル) を加え、 9 5 で 5 時間反応させた。反応終了後、反応生成物を 10

20

30

40

固体酸により中和、ろ過した後、溶媒のトルエンを留去し精製することにより油状液体(化合物3)465.5gを得た。

[0107]

合成例4(化合物4の合成)

[0108]

【化24】

[化合物4]

[0109]

ノニルフェノール 1 1 0 . 0 g (0 . 5 モル)及び水酸化カリウム 5 . 6 g (0 . 1 モル)を内容量 2 L のオートクレーブに入れ、系内を窒素ガスで置換後、 9 0 に過熱した。その後、トルエン 2 0 0 m L 及び 1 , 2 - ブチレンオキシド 9 0 0 . 0 g (1 2 . 5 モル)をこれに加え、反応温度 1 2 0 で 5 時間反応させた。反応終了後、反応生成物溶液を塩酸により中和し、次いでトルエン抽出及び溶媒のトルエンを留去することにより、ポリオキシアルキレン化合物 9 2 7 . 5 g を得た。

次いで、このポリオキシアルキレン化合物 4 0 4 . 0 g (0 . 2 モル相当:重量平均分子量より計算)とトルエン 1 0 0 m L の混合溶液に、液体ホスゲン 4 0 . 0 g (0 . 4 1 モル)を 0 の条件下で添加し、ドライアイスで還流管を冷却しながら室温で 1 2 時間反応を行った。反応終了後、余分のホスゲンを除去し、溶媒のトルエンを留去し、塩素含有化合物 3 7 7 . 5 g を得た。

次いで、トルエン100mL、ピリジン100mL及びエチレンジアミン120.0g(2.0 モル)の混合溶液を5 に冷却後、これに上記の塩素含有化合物364.5g(0.18 モル相当:重量平均分子量より計算)を滴下し、5 に系を保ったまま3時間反応させ、その後室温で2時間反応させた。反応終了後、未反応のエチレンジアミン、生成した塩酸塩及び溶媒のトルエンを除去し、精製することにより、ポリエーテルアミン342.5gを得た。

このポリエーテルアミン 3 2 5 g (0 . 1 5 モル相当:重量平均分子量より計算)とメチルイソブチルケトン 1 0 0 g (1 . 0 モル)を還流管及び温度計を付けた内容量 1 L の四つロフラスコに入れ、 1 1 5 で 2 0 時間還流し、生成した水 2 . 7 m L を系外に排出した。その後、過剰のメチルイソブチルケトン、及び系内に残存する水を留去し精製することにより、油状液体(化合物 4) 3 0 0 . 0 g を得た。

[0110]

合成例5(化合物5の合成)

[0111]

【化25】

[化合物5]

CH₃ CH₃ CH₃ CH₃ CH₃ CH₃ CH₃ CH₃ CH₂-CH-CH₂-CH-CH₂ CH₃ CH₃

[0112]

還流管及び温度計を付けた内容量500mLの四つロフラスコに市販のポリブテニルアミン205.0g(0.2 モル)とメチルイソブチルケトン100.0g(1.0 モル)を入れ、115 で20時間還流し、生成した水3.5mLを系外に排出した。その後、過剰のメチルイソブチルケトン及び系内に残存する水を留去し精製することにより、油状液体(化合物5)210.0gを得た。

10

20

30

40

[0113]

【化26】

[化合物 6]

【 0 1 1 4 】 【 化 3 0 】

「化合物6]

CH₃ C=N-CH₂ CH₃ CH

[0115]

還流管及び温度計を付けた内容量500mLの四つロフラスコにシクロヘキシルアミン98.0g(1.0モル)とメチルイソブチルケトン130.2g(1.3モル)を入れ、115 で20時間還流し、生成した水17.0mLを系外に排出した。その後、過剰のメチルイソブチルケトン、未反応のシクロヘキシルアミン及び系内に残存する水を留去し精製することにより、油状液体(化合物6)162.0gを得た。

[0116]

合成例7(化合物7の合成)

[0117]

【化27】

[化合物7]

$$\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \text{C} = \text{N} - \text{CH}_2\text{CH}_2 - \text{N} - \text{CH}_2\text{CH}_2 - \text{N} = \text{C} \\ \text{CH}_3 - \text{CH} - \text{CH}_2 \\ \text{H} \\ \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \\ \text{CH}_3 \\ \end{array}$$

[0118]

還流管及び温度計を付けた内容量500mLの四つロフラスコにジエチレントリアミン103.0g(1.0モル)とメチルイソブチルケトン260.4g(2.6モル)を入れ、115 で20時間還流し、生成した水35.0mLを系外に排出した。その後、過剰のメチルイソブチルケトン、未反応のジエチレントリアミン及び系内に残存する水を留去し精製することにより、油状液体(化合物7)240.0gを得た。

[0119]

実施例1~7および比較例1~3

接触改質ガソリン60容量部、接触分解ガソリン30容量部及びアルキレート10容量部を混合して以下の性状を有する基材ガソリン(内燃機関用ガソリン)を調製した。

基材ガソリン性状

リード蒸気圧: 0 . 6 4 kgf/cm²

比 重:0.729

沸点範囲 : 30~190

オクタン価 : 98.1

この基材ガソリンに対して添加剤(本発明に係る一般式(1)で表される基を有する化合物)を0.04質量%添加して表1に示す本発明に係る燃料油組成物(実施例1~7)を調製した。

10

20

30

40

これらの各燃料油組成物に対して以下に示すエンジン評価試験を行った。その結果を表 1 に示す。なお、比較のため、添加剤を添加しない基材ガソリンのみ(100質量%)の場合(比較例 1)、一般式(1)で表される基を有する化合物の代わりにポリブテニルアミン系清浄剤を用いた場合(比較例 2 および比較例 3)についても同様のエンジン評価試験を行った。その結果を表 1 に併記する。

[0120]

[エンジン評価試験]

1 吸気系デポジット清浄性評価試験

総排気量2000mLの燃料インジェクター式エンジンを装備した乗用車を使用し、以下に示す1サイクル1時間の走行モードを200時間繰り返した後、エンジンを分解して吸気弁に付着したデポジット量を測定し、基材ガソリンのみを用いた場合(比較例1)のデポジット量との差を吸気系デポジット清浄性の評価とした。

(評価に使用したエンジンは、各試験前に分解し、燃焼室内、吸気系内のデポジットを完全に除去した後、重量を測定した新品の吸気バルブ、排気バルブ及び点火プラグを装着、組み付けを行い、そして新品のエンジンオイルを充填してから試験を行った。)

走行モード

アイドリング : 1分

エンジン回転数 1 5 0 0 rpm 、吸気負圧 - 2 0 0 mmHg: 3 0 分 エンジン回転数 2 7 0 0 rpm 、吸気負圧 - 3 0 0 mmHg: 2 0 分

エンジン停止 : 9分

[0 1 2 1]

2 燃焼室デポジット清浄性評価試験

総排気量2000mLの燃料噴射式エンジンを装備した乗用車を使用し、燃料として実施例の燃料油組成物を用いて、エンジン回転数1500rpm、吸気負圧-150mmHg、冷却水温50 の運転条件で96時間運転した。試験終了後エンジンを分解して燃焼室内デポジットの量を測定し、基材ガソリンのみを用いた場合(比較例1)の燃焼室内デポジットの量との差を求めた。

(評価に使用したエンジンは、各試験前に分解し、燃焼室内、吸気系内のデポジットを完全に除去した後、重量を測定した新品の吸気バルブ、排気バルブ及びプラグを装着、組み付けを行い、そして新品のエンジンオイルを充填してから試験を行った。)

[0122]

【表1】

表 1

20

10

		エンジン試験結果			
	添加剤	吸気系デポジ 変化量 3)(mg)	燃焼系デポジ 変化量 4)(mg)		
実施例1	化合物 1	-105.2	-182.8		
実施例2	化合物 2	-85.6	-132.0		
実施例3	化合物3	-89.1	-103.2		
実施例4	化合物4	-89.7	-75.6		
実施例 5	化合物 5	-90.3	-95.3		
実施例6	化合物 6	-62.4	-59.2		
実施例7	化合物7	-49.6	-48.8		
比較例1	添加せず				
比較例2	ポリブテニルア ミン系 1)	-52.5	-419.7		
比較例3	ポリブテニルア ミン系 2)	-61.3	-772.1		

10

1) ポリブテニルアミン系清浄剤1

活性成分:ポリブテニルコハク酸とテトラエチレンペンタミンとのイミド(数平均分子量約3000)

- 2) ポリブテニルアミン系清浄剤 2 活性成分:ポリブテニルテトラエチレンペンタミン(数平均分子量 約3500)
- 3) 基材ガソリンを使用した場合の吸気系デポジット量との差
- 4) 基材ガソリンを使用した場合の燃焼室デポジット量との差

[0123]

表1のエンジン評価試験結果からも明らかなとおり、本発明に係る実施例1~7の燃料油組成物は、吸気系デポジット清浄性および燃焼室デポジット清浄性に極めて優れた効果を発揮するものである。これに対して、添加剤を含まない比較例1の場合は吸気系デポジット清浄性が悪く、また、市販のポリブテニルアミン系清浄剤を含む比較例2及び3の燃料油組成物の場合は、吸気系デポジット清浄性にはある程度優れるものの、燃焼室デポジットの量は未添加の場合と比較して大きく増加してしまう。

[0124]

実施例8~14および比較例4

下記に示すような性状の軽油に、実施例1~7で使用した化合物1~7を0.01質量% 40添加し、本発明に係る軽油組成物(実施例8~14)を調製した。

これらの各軽油組成物に対して以下に示すエンジンのノズル清浄性試験を行った。その結果を表 2 に示す。なお、比較のため、添加剤を添加しない基材軽油のみの場合(比較例 4)についても同様のノズル清浄性試験を行った。その結果を表 2 に併記する。

[0125]

[ノズル清浄性試験]

排気量2Lの4気筒エンジンを使用し、回転1840rpm、トルク36.4Nmの条件において48時間連続運転を行い、試験後のノズルの残存流量割合を測定した。ノズルの残存流量割合とは試験前の新品ノズルの流量に対して試験後のノズル流量の割合を示したものである。

30

20

40

なお、ノズル流量は針弁リフト 0 . 1 mm時で測定した。本試験において、ノズル残存流量割合の値が大きい程、清浄性に優れていることを表す。

[0126]

軽油の性状

セタン価:54、セタン指数:54

蒸留性状:初留点:164、T10:205、T30:254、

T50:282, T70:305, T90:335,

T95:348、蒸留終点:361

硫黄分 質量ppm:380

動粘度@30℃mm²/秒:3.659

密度15℃kg/m³:834.0

組成分析(容量%)

飽和分含有量:73.6

オレフィン含有量:0.1

芳香族分含有量:26.3

流動点℃:-17

目詰まり点℃:-9

[0127]

【表2】

表 2

	実施例	比較例						
	8	9	1 0	1 1	12	13	1 4	4
添加剤	化合物	添加						
	1	2	3	4	5	6	7	せず
ノズル 残存流量 割合%	5 7	5 4	5 3	4 8	5 5	4 7	4 2	3 5

[0128]

表 2 のノズル清浄性試験結果からも明らかなとおり、本発明に係る実施例 8 ~ 1 4 の軽油 組成物は、噴射ノズル内に堆積したデポジットの清浄性に極めて優れた効果を発揮するも のである。これに対して、添加剤を含まない比較例 4 は噴射ノズル内に堆積したデポジッ トの清浄性が悪く、燃料の流量低下を起こしてしまう。

[0129]

【発明の効果】

一般式(1)で表される基を有する化合物からなる本発明の添加剤の使用により、特にエンジンの冷機時などの過酷な条件下においても、優れた清浄効果を発揮する燃料油組成物が得られる。

フロントページの続き

(72)発明者 曽根 忠豪

神奈川県横浜市中区千鳥町8番地 日石三菱株式会社中央技術研究所内

審査官 大熊 幸治

(56)参考文献 特開平06-322021(JP,A)

特表平11-509216(JP,A)

特表平10-503223(JP,A)

特開平05-279675(JP,A)

特開平07-278115(JP,A)

(58)調査した分野(Int.CI., DB名)

C10L 1/00- 1/32

CAplus(STN)