

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016 年 11 月 17 日(17.11.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/181799 A1

- (51) 国際特許分類:
C10L 1/06 (2006.01) C10L 1/185 (2006.01)
C10L 1/182 (2006.01) C10L 1/188 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/062857
- (22) 国際出願日: 2016 年 4 月 22 日(22.04.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-097582 2015 年 5 月 12 日(12.05.2015) JP
- (71) 出願人: 株式会社ダイセル(DAICEL CORPORATION) [JP/JP]; 〒5300011 大阪府大阪市北区大深町 3 番 1 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 鈴木崇将(SUZUKI, Takamasa); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家 1 2 3 9 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP). 高瀬一郎(TAKASE, Ichiro); 〒6711283 兵庫県姫路市網干区新在家 1 2 3 9 株式会社ダイセル内 Hyogo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人後藤特許事務所(GOTO & CO.); 〒5300038 大阪府大阪市北区紅梅町 2 番 1 8 号 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: HIGH OCTANE GASOLINE COMPOSITION

(54) 発明の名称: 高オクタン価ガソリン組成物

(57) Abstract: A high octane gasoline composition is provided which can be prepared at low cost and which is environmentally friendly. This gasoline composition contains a gasoline base material and at least one item selected from the group consisting of ketones of 3-10 carbon atoms and aldehydes of 3-10 carbon atoms, and is characterized by either the content of the ketones of 3-10 carbon atoms being greater than or equal to 0.1 wt% with respect to the total amount of the composition (100 wt%), or the content of the aldehydes of 3-10 carbon atoms being greater than or equal to 0.5 wt% with respect to the total amount of the composition (100 wt%).

(57) 要約: 低コストで調製でき、且つ環境に優しい高オクタン価ガソリン組成物を提供する。本発明のガソリン組成物は、炭素数 3～10 のケトン、及び炭素数 3～10 のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも 1 つと、ガソリン基材とを含むガソリン組成物であって、炭素数 3～10 のケトンの含有量が、組成物全量 (100 重量%) に対して 0.1 重量%以上であるか、又は、炭素数 3～10 のアルデヒドの含有量が、組成物全量 (100 重量%) に対して 0.5 重量%以上であることを特徴とする。

WO 2016/181799 A1

明 細 書

発明の名称：高オクタン価ガソリン組成物

技術分野

[0001] 本発明は、高オクタン価のガソリン組成物に関する。本願は、2015年5月12日に日本に出願した、特願2015-097582号の優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 近年のエネルギー問題や環境問題の高まりから、良好な燃費特性を有し、さらに排出ガスが少ない燃料の創出が求められている。例えば、レギュラーガソリン等の燃費特性を向上させる目的で、特定の添加物を加えてガソリン組成物とする方法が知られており、その添加物としては芳香族炭化水素類、含酸素化合物類、アミン類、分岐状パラフィン類、オレフィン類が広く知られている。例えば、リサーチオクタン価（以下、RONと称することがある）が100程度であるハイオク燃料は、これらの添加剤をレギュラーガソリンに添加することによって調製することができる。

[0003] 添加物の具体的な例としては、エチルターシャリーブチルエーテル（特許文献1参照）、エタノール（特許文献2参照）、アミン化合物やカルボン酸（特許文献3参照）が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2004-285205号公報
特許文献2：特開2004-238575号公報
特許文献3：特開2005-132973号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、従来の添加物は高コストであり、使用する添加物の種類によっては環境に悪影響を与える排気ガス（例えば、一酸化炭素、SO_x、NO_x等

）を生じさせる可能性もある。また、当該添加物を含むガソリン組成物についても燃費特性が十分であるとは言い難いため、さらなる有用なガソリン組成物の創出が求められている。

[0006] 本発明は上記従来技術を鑑みてなされたものであり、その目的は低コストで調製でき、且つ環境に優しい高オクタン価ガソリン組成物を得ることにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者は、ガソリン基材に特定の成分を配合させることにより、低コストで高オクタン価のガソリン組成物となることを見出した。また、ガソリン基材を特定の条件で酸化することで、低コスト且つ容易に高オクタン価のガソリン組成物を調製することができることを見出した。

[0008] 本発明では、炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つと、ガソリン基材とを含むガソリン組成物であって、

炭素数3～10のケトンの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.1重量％以上であるか、又は、

炭素数3～10のアルデヒドの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.5重量％以上であるガソリン組成物について提供する。

[0009] 前記のガソリン組成物においては、前記の炭素数3～10のケトンとして、アセトン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2,3-ヘプタンジオン、及び2,4,4-トリメチル-3-ペンタノンからなる群より選択される少なくとも1つを含むか、又は、前記の炭素数3～10のアルデヒドとして、ヘプタナール、2,2-ジメチル-1-プロパナール、及びベンズアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましい。

[0010] 前記のガソリン組成物においては、さらに、炭素数3～10のアルコールを含むことが好ましい。

[0011] 前記のガソリン組成物においては、前記の炭素数3～10のアルコールと

して、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、1, 2-ヘプタンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、2, 2-ジメチル-1-プロパノール、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましい。

[0012] 前記のガソリン組成物においては、さらに、炭素数3～10のカルボン酸を含むことが好ましい。

[0013] 前記のガソリン組成物においては、前記の炭素数3～10のカルボン酸として、2, 2-ジメチル-1-プロパン酸、ヘプタン酸、ヘプタン二酸、及び安息香酸からなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましい。

[0014] 前記のガソリン組成物においては、噴霧着火試験におけるリサーチオクタン価が89以上であることが好ましい。

[0015] より具体的には、本発明は、以下に関する。

[1] 炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つと、ガソリン基材とを含むガソリン組成物であって、

炭素数3～10のケトンの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.1重量％以上であるか、又は、

炭素数3～10のアルデヒドの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.5重量％以上であるガソリン組成物。

[2] 炭素数3～10のケトンと、炭素数3～10のアルデヒドと、ガソリン基材とを含む[1]に記載のガソリン組成物。

[3] 炭素数3～10のケトンとして、アセトン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2, 3-ヘプタンジオン、及び2, 4, 4-トリメチル-3-ペンタノンからなる群より選択される少なくとも1つを含む[1]又は[2]に記載のガソリン組成物。

[4] 炭素数3～10のケトンの含有量が、組成物全量（100重量％）に

対して0.1重量%以上である〔1〕～〔3〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔5〕炭素数3～10のアルデヒドとして、ヘプタナール、2,2-ジメチルー1-プロパナール、及びベンズアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含む〔1〕～〔4〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔6〕炭素数3～10のアルデヒドの含有量が、組成物全量（100重量%）に対して0.5重量%以上である〔1〕～〔5〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔7〕さらに、炭素数3～10のアルコールを含む〔1〕～〔6〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔8〕炭素数3～10のケトンと、炭素数3～10のアルデヒドと、炭素数3～10のアルコールと、ガソリン基材とを含む〔1〕～〔7〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔9〕炭素数3～10のアルコールとして、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、1,2-ヘプタンジオール、1,7-ヘプタンジオール、2,2-ジメチルー1-プロパノール、2,4,4-トリメチルー2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含む〔7〕又は〔8〕に記載のガソリン組成物。

〔10〕炭素数3～10のアルコールの含有量が、組成物全量（100重量%）に対して1重量%以上である〔7〕～〔9〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔11〕さらに、炭素数3～10のカルボン酸を含む〔1〕～〔10〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔12〕炭素数3～10のケトンと、炭素数3～10のアルデヒドと、炭素数3～10のアルコールと、炭素数3～10のカルボン酸と、ガソリン基材とを含む〔1〕～〔11〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔13〕炭素数3～10のカルボン酸として、2,2-ジメチルー1-プロ

パン酸、ヘプタン酸、ヘプタン二酸、及び安息香酸からなる群より選択される少なくとも１つを含む〔１１〕又は〔１２〕に記載のガソリン組成物。

〔１４〕炭素数３～１０のカルボン酸の含有量が、組成物全量（１００重量％）に対して０．１重量％以上である〔１１〕～〔１３〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔１５〕ガソリン基材の含有量が、組成物全量（１００重量％）に対して２０～９９重量％である〔１〕～〔１４〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔１６〕炭素数３～１０のアルコール、炭素数３～１０のケトン、及び炭素数３～１０のアルデヒドの含有量（総量）が、組成物全量（１００重量％）に対して１重量％以上である〔１〕～〔１５〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔１７〕さらに、その他の含酸素炭化水素を含む〔１〕～〔１６〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔１８〕その他の含酸素炭化水素として、炭素数１１以上のアルコール、炭素数１１以上のアルデヒド、炭素数１１以上のカルボン酸、及びエーテルからなる群より選択される少なくとも１つを含む〔１７〕に記載のガソリン組成物。

〔１９〕その他の含酸素炭化水素の含有量が、組成物全量（１００重量％）に対して２０重量％以下である〔１７〕又は〔１８〕に記載のガソリン組成物。

〔２０〕噴霧着火試験におけるリサーチオクタン価が８９以上である〔１〕～〔１９〕の何れかに記載のガソリン組成物。

〔２１〕ガソリン基材を酸化して得られる〔１〕～〔２０〕の何れかに記載のガソリン組成物。〔２２〕酸素とオゾンとの存在下でガソリン基材を酸化して得られるか、又は、酸素と環状イミド骨格を有するイミド化合物との存在下でガソリン基材を酸化して得られる〔２１〕に記載のガソリン組成物。

発明の効果

[0016] 本発明のガソリン組成物は低コストで調製でき、さらに燃費特性の高い（

高オクタン価の) ガソリン組成物を得ることができる。また、得られるガソリン組成物を燃料として使用した場合、 SO_x や NO_x を排出すること無く、さらに排ガス中のCO含有量が少ないため環境に優しい。さらに、本発明のガソリン組成物はガソリン基材を特定条件で酸化することで得ることもできる。この場合、ガソリン組成物は簡便且つ低コストで調製が可能である。さらに自動車内に酸化反応用装置を設けることで、車内で本発明のガソリン組成物を調製可能なため、エンジンルームに添加剤を貯蔵するためのタンクが必要とならない。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]実施例1～5における反応液のリサーチオクタン価と原料の転化率の相関図である。

[図2]実施例1～5における反応液のリサーチオクタン価とガソリン組成物におけるアルコール成分の含有率との相関図である。

[図3]実施例1～5における反応液のリサーチオクタン価とガソリン組成物におけるケトン成分の含有率との相関図である。

[図4]実施例1～5における反応液のリサーチオクタン価とガソリン組成物における酸素含有率との相関図である。

発明を実施するための形態

[0018] <ガソリン組成物>

本発明のガソリン組成物は、特定量の炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つと、ガソリン基材とを必須成分として含むことを特徴とする。また、上記以外の成分として、さらに炭素数3～10のアルコールや、炭素数3～10のカルボン酸を含んでいてもよい。

[0019] なお、本発明のガソリン組成物は、ガソリン基材以外の成分として、炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含んでいれば特に制限されないが、得られるガソリン組成物の燃費特性の観点から、炭素数3～10のケトンと炭素数3～10

のアルデヒドとを含むことが好ましい。さらに、炭素数3～10のケトン、炭素数3～10のアルデヒド、及び炭素数3～10のアルコールを含むことがさらに好ましく、炭素数3～10のケトン、炭素数3～10のアルデヒド、炭素数3～10のアルコール、及び炭素数3～10のカルボン酸を含むことが最も好ましい。

[0020] [ガソリン基材]

本発明に用いるガソリン基材としては、通常、原油を各種の精製処理を行って得られる石油留分であり、例えば、原油を常圧蒸留して得られる軽質ナフサや重質ナフサ、前記軽質ナフサや重質ナフサを脱硫処理して得られる脱硫軽質ナフサや脱硫重質ナフサ、接触分解法や水素化分解法で得られる分解ガソリン、前記分解ガソリンを蒸留分離して得られる軽質分解ガソリンや重質分解ガソリン、接触改質法で得られる改質ガソリン中のベンゼンを取り除いた留分（脱ベンゼン改質ガソリン）、オレフィンの重合により得られる重合ガソリン、イソブタンなどの炭化水素に低級オレフィンが付加して得られるアルキレート、直鎖の低級パラフィン系炭化水素の異性化によって得られるアイソメレート（異性化ガソリン）、脱N-パラフィン油、及びこれらの特定範囲の留分や芳香族炭化水素などが挙げられる。本発明のガソリン組成物におけるガソリン基材は、これらの各種ガソリン基材を単独で用いてもよいが、各種性能を満たすため、通常、複数のガソリン基材を組み合わせたガソリン基材を用いる。

[0021] ガソリン基材の成分は特に限定されないが、例えば炭素数3～10の炭化水素が挙げられる。より具体的には、ガソリン基材に含まれる成分として、例えば、炭素数3～10の直鎖状又は分岐鎖状脂肪族炭化水素、炭素数3～10の脂環式炭化水素、及び炭素数6～10の芳香族炭化水素等が挙げられる。

[0022] 炭素数3～10の直鎖状又は分岐鎖状脂肪族炭化水素としては、例えば、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、ノナン、デカン等の炭素数3～10の直鎖状アルカン；2-メチルプロパン、2-メチ

ルブタン、2, 2-ジメチルプロパン、2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、2, 3-ジメチルブタン、2-メチルヘキサン、3-メチルヘキサン、3, 4-ジメチルヘキサン、3-メチルオクタン、2, 4, 4-トリメチルペンタン等の炭素数3～10の分岐鎖状アルカン；プロピレン、イソブチレン、1-ペンテン、1-ヘキセン、2-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1, 4-ヘキサジエン等の炭素数3～10の直鎖状又は分岐鎖状のアルケン若しくはアルカジエンなどが挙げられる。

[0023] 炭素数3～10の脂環式炭化水素としては、例えば、シクロプロパン、シクロブタン、シクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、シクロオクタン、シクロノナン、シクロデカン等の炭素数3～10のシクロアルカン；シクロプロペン、シクロブテン、シクロペンテン、シクロオクテン、シクロヘキセン、シクロヘプテン、シクロドデカエン等の炭素数3～10のシクロアルケン；シクロペンタジエン、1, 3-シクロヘキサジエン、1, 5-シクロオクタジエン等の炭素数3～10のシクロアルカジエンなどが挙げられる。

[0024] 炭素数6～10の芳香族炭化水素としては、例えば、ベンゼン、トルエン、o-キシレン、m-キシレン、p-キシレン、ナフタレン等が挙げられる。

[0025] [炭素数3～10のケトン]

本発明のガソリン組成物におけるケトンは、炭素数3～10のケトンであれば特に限定されないが、そのケトン分子中のカルボニル基数が1～6個であることが好ましく、さらに好ましくは1～3個である。

[0026] 前記ケトンとしては、例えば炭素数3～10の直鎖状ケトン、炭素数3～10の分岐鎖状ケトン、炭素数3～10の脂環式ケトン、炭素数7～10の芳香族ケトンが挙げられる。本発明のガソリン組成物はこれらのケトンの1種を単独で含んでも良いし2種以上を含んでも良い。

[0027] 炭素数3～10の直鎖状ケトンとしては、直鎖状炭化水素の少なくとも1

つの炭素原子がカルボニル基に置換されたケトンであれば特に限定されないが、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、2-ペンタノン、2-ヘキサノン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2-オクタノン、ノナン-2-オンやそのカルボニル基の位置異性体等のカルボニル基を1つ有する炭素数3~10の直鎖状ケトン；2, 5-ヘキサンジオン、2, 3-ヘプタンジオン、アセチルアセトン等のカルボニル基を2つ有する炭素数3~10の直鎖状ケトン等が挙げられる。炭素数3~10の分岐鎖状ケトンとしては、分岐鎖状炭化水素の少なくとも1つの炭素原子がカルボニル基に置換されたケトンであれば特に限定されないが、2, 2-ジメチル-1-プロパノン、2, 4, 4-トリメチル-3-ペンタノンやそのカルボニル基の位置異性体等が挙げられる。炭素数3~10の脂環式ケトンとしては、脂環式炭化水素の少なくとも1つの炭素原子がカルボニル基に置換されたケトンであれば特に限定されないが、例えば、シクロブタノン、シクロペンタノン、シクロヘキサノン、シクロヘプタノン、シクロオクタノンやそのカルボニル基の位置異性体等が挙げられる。

[0028] なお、燃費の向上の観点から、本発明のガソリン組成物は、炭素数3~10のケトンとして、アセトン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2, 3-ヘプタンジオン、及び2, 4, 4-トリメチル-3-ペンタノンからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、アセトン、2-ヘプタノン、及び2, 4, 4-トリメチル-3-ペンタノンからなる群より選択される少なくとも1つを含むことがより好ましく、2-ヘプタノンを少なくとも含むことがさらに好ましい。つまり、燃費の向上の観点から、炭素数3~10のケトンとして、炭素数3~10の直鎖状ケトン、及び炭素数3~10の分岐鎖状ケトンからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、炭素数3~10の直鎖状ケトンを少なくとも含むことがより好ましい。

[0029] [炭素数3~10のアルデヒド]

本発明のガソリン組成物におけるアルデヒドは、炭素数3~10のアルデ

ヒドであれば特に限定されないが、例えば炭素数3～10の直鎖状アルデヒド、炭素数3～10の分岐鎖状アルデヒド、炭素数7～10の芳香族アルデヒドが挙げられる。本発明のガソリン組成物はこれらのアルデヒドの1種を単独で含んでいても良いし2種以上を含んでいても良い。

[0030] 炭素数3～10の直鎖状アルデヒドとしては、直鎖状炭化水素の末端の炭素原子がカルボニル基に置換されたアルデヒドであれば特に限定されないが、例えば、ブタナール、ペンタナール、ヘキサナール、ヘプタナール、オクタナール、ノナナール等が挙げられる。炭素数3～10の分岐鎖状アルデヒドとしては、分岐状炭化水素の末端の炭素原子がカルボニル基に置換されたアルデヒドであれば特に限定されないが、例えば、2, 2-ジメチル-1-プロパナール（ピバルアルデヒド）、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタナール等が挙げられる。芳香族アルデヒドとしては、芳香族炭化水素基を有する炭化水素の末端の炭素原子がカルボニル基に置換されたアルデヒドであれば特に限定されないが、例えば、ベンズアルデヒド等が挙げられる。

[0031] なお、燃費の向上の観点から、本発明のガソリン組成物は、炭素数3～10のアルデヒドとして、ヘプタナール、2, 2-ジメチル-1-プロパナール、及びベンズアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、ベンズアルデヒドを少なくとも含むことがより好ましい。つまり、燃費の向上の観点から、炭素数3～10のアルデヒドとして、炭素数3～10の直鎖状アルデヒド、炭素数3～10の分岐鎖状アルデヒド、及び炭素数7～10の芳香族アルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、炭素数7～10の芳香族アルデヒドを少なくとも含むことがより好ましい。

[0032] [炭素数3～10のアルコール]

本発明のガソリン組成物におけるアルコールは、炭素数3～10のアルコールであれば特に限定されないが、そのアルコール分子中の水酸基の数が1～6個であることが好ましく、さらに好ましくは1～3個である。

[0033] 炭素数3～10のアルコールとしては、例えば、炭素数3～10の直鎖状

又は分岐鎖状アルコール、炭素数3～10の脂環式アルコール、炭素数6～10の芳香族アルコールが挙げられる。本発明のガソリン組成物はこれらのアルコールの1種を単独で含んでも良いし2種以上を含んでも良い。

[0034] 炭素数3～10の直鎖状アルコールとしては、直鎖状炭化水素の少なくとも1つの水素原子が水酸基に置換されたアルコールであれば特に限定されないが、例えば、1-プロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ヘプタノール、1-オクタノールやその水酸基の位置異性体（例えば、2-プロパノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、3-ペンタノール、2-ヘキサノール、3-ヘキサノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、2-オクタノール、3-オクタノール）等の水酸基を1つ有する炭素数3～10の直鎖状アルコール；1, 2-プロパンジオール、1, 3-プロパンジオール、1, 3-ブタンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 2-ペンタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 2-ヘキサジオール、1, 6-ヘキサジオール、1, 2-ヘプタンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、1, 2-オクタンジオール、1, 8-オクタンジオールやその水酸基の位置異性体等の水酸基を2つ有する炭素数3～10の直鎖状アルコール等が挙げられる。炭素数3～10の分岐鎖状アルコールとしては、分岐鎖状炭化水素の少なくとも1つの水素原子が水酸基に置換したアルコールであれば特に限定されないが、例えば、イソブチルアルコール、2, 2-ジメチル-1-プロパノール、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノールやその水酸基の位置異性体（例えばターシャリーブチルアルコール、2-エチルヘキサノール）等が挙げられる。炭素数3～10の脂環式アルコールとしては、脂環式炭化水素の少なくとも1つの水素原子が水酸基に置換されたアルコールであれば特に限定されないが、例えば、シクロプロパノール、シクロブタノール、シクロペンタノール、シクロヘキサノール、シクロヘプタノール、シクロオクタノールやその水酸基の位置異性体等が挙げられる。炭素数6～10の芳香族アルコールとして

は、芳香族炭化水素の少なくとも1つの水素原子が水酸基に置換されたアルコールであれば特に限定されないが、例えば、フェノール、ベンジルアルコール、サリチルアルコールやその水酸基に関する位置異性体等が挙げられる。

[0035] なお、燃費の向上の観点から、本発明のガソリン組成物は、炭素数3～10のアルコールとして、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、1, 2-ヘプタンジオール、1, 7-ヘプタンジオール、2, 2-ジメチル-1-プロパノール、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、2, 2-ジメチル-1-プロパノール、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことがより好ましく、2, 2-ジメチル-1-プロパノール、2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことがさらに好ましく、ベンジルアルコールを少なくとも含むことが最も好ましい。つまり、燃費の向上の観点から、炭素数3～10のアルコールとして、炭素数3～10の直鎖状アルコール、炭素数3～10の分岐鎖状アルコール、及び炭素数6～10の芳香族アルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、炭素数3～10の分岐鎖状アルコール、及び炭素数6～10の芳香族アルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含むことがより好ましく、炭素数6～10の芳香族アルコールを少なくとも含むことがより好ましい。

[0036] [炭素数3～10のカルボン酸]

本発明のガソリン組成物におけるカルボン酸は、炭素数3～10のカルボン酸であれば特に限定されず、例えば炭素数3～10の直鎖状カルボン酸、炭素数3～10の分岐鎖状カルボン酸、炭素数7～10の芳香族カルボン酸が挙げられる。本発明のガソリン組成物はこれらのカルボン酸の1種を単独

で含んでいても良いし2種以上を含んでいても良い。

[0037] 炭素数3～10の直鎖状カルボン酸としては、直鎖状炭化水素の末端の炭素原子がカルボキシル基に置換されたカルボン酸であれば特に限定されないが、例えば、ブタン酸、ペンタン酸、ヘキサン酸、ヘプタン酸、オクタン酸等の炭素数3～10の直鎖状モノカルボン酸、ヘプタン二酸等の炭素数3～10の直鎖状ジカルボン酸等が挙げられる。炭素数3～10の分岐鎖状カルボン酸としては、分岐状炭化水素の末端の炭素原子がカルボキシル基に置換されたカルボン酸であれば特に限定されないが、例えば、2, 2-ジメチルー1-プロパン酸（ピバル酸）、イソオクタン酸が挙げられる。芳香族カルボン酸としては、芳香族炭化水素基を有する炭化水素の末端の炭素原子がカルボキシル基に置換されたカルボン酸であれば特に限定されないが、例えば、安息香酸、フタル酸等が挙げられる。

[0038] なお、燃費の向上の観点から、本発明のガソリン組成物は、炭素数3～10のカルボン酸として、2, 2-ジメチルー1-プロパン酸、ヘプタン酸、ヘプタン二酸、及び安息香酸からなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、安息香酸を少なくとも含むことがより好ましい。つまり、炭素数3～10のカルボン酸は、燃費の向上の観点から、炭素数3～10の分岐鎖状カルボン酸、及び炭素数7～10の芳香族カルボン酸からなる群より選択される少なくとも1つを含むことが好ましく、炭素数7～10の芳香族カルボン酸を少なくとも含むことがより好ましい。

[0039] [その他の含酸素炭化水素]

本発明のガソリン組成物では、炭素数3～10のアルコール、炭素数3～10のケトン、炭素数3～10のアルデヒド、及び炭素数3～10のカルボン酸以外の含酸素炭化水素（以下、「その他の含酸素炭化水素」と称する）を含んでいても良い。なお、本発明において、「含酸素炭化水素」は、炭化水素を酸化して得られる化合物（例えば、アルコール、ケトン、アルデヒド、及びカルボン酸類等が挙げられる）を指す。その他の含酸素炭化水素としては、例えば炭素数11以上のアルコール、炭素数11以上のアルデヒド、

炭素数 11 以上のカルボン酸、エーテル等が挙げられる。

[0040] 本発明のガソリン組成物において、炭素数 3～10 のアルコール、炭素数 3～10 のケトン、炭素数 3～10 のアルデヒド、炭素数 3～10 のカルボン酸、及びその他の含酸素炭化水素（以下、「炭素数 3～10 のアルコール等」と称する）は、前記のガソリン基材（又はガソリン基材中の炭化水素）を酸化して得られるものであってもよい。この場合、ガソリン基材（又はガソリン基材中の炭化水素）を後述する特定の酸化条件で反応させて得られるものであることが好ましい。前記の炭素数 3～10 のアルコール等がガソリン基材を酸化して得られるものであることで、ガソリン組成物を燃料として用いた場合、 SO_x や NO_x を排出しない上に、排ガス中の CO 含有量が少ないため環境に悪影響を及ぼすことが無く、さらにガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。さらに、前記の炭素数 3～10 のアルコール等がガソリン基材中の炭化水素を特定の酸化条件で反応させて得られるものである場合、ガソリン組成物の燃費特性がさらに向上する傾向がある。

[0041] また、前記のその他の含酸素炭化水素も前記のガソリン基材中の炭化水素を酸化して得られるものであってもよい。この場合、ガソリン基材中の炭化水素を後述する特定の酸化条件で反応させて得られるものであることが好ましい。

[0042] [添加剤]

本発明のガソリン組成物には、さらに必要に応じて各種の添加剤を含んでも良い。このような添加剤としては、シッフ型化合物やチオアミド型化合物などの金属不活性剤、脂肪酸、脂肪酸エステルなどの潤滑性向上剤、有機リン化合物などの表面着火防止剤、コハク酸イミド、ポリアルキルアミン、ポリエーテルアミンなどの清浄剤、氷結防止剤、有機酸のアルカリ金属やアルカリ土類金属塩、高級アルコールの硫酸エステルなどの助燃剤、アニオン界面活性剤、カチオン界面活性剤、両面界面活性剤などの帯電防止剤、アルケニルコハク酸エステルなどのさび止め剤、キリザニン、クマリンなどの識別剤、天然精油、合成香料などの着臭剤、アゾ染料などの着色剤など、公

知のガソリン添加剤が挙げられ、本発明のガソリン組成物はこれらの添加剤の1種を単独で含んでも良いし2種以上を含んでも良い。

[0043] [ガソリン組成物における成分の含有量]

本発明のガソリン組成物において、炭素数3～10のアルコール、炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドの含有量（総量）は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して1重量%以上（例えば1～80重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは5～60重量%、最も好ましくは10～50重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物のリサーチオクタン価が向上する傾向がある。

[0044] 本発明のガソリン組成物が炭素数3～10のケトンを含む場合、その含有量は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して0.1重量%以上（例えば0.1～50重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは0.1～20重量%、最も好ましくは0.5～15重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0045] 本発明のガソリン組成物が炭素数3～10のアルデヒドを含む場合、その含有量は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して0.5重量%以上（例えば0.5～30重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは1～20重量%、最も好ましくは1～10重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0046] 本発明のガソリン組成物が炭素数3～10のアルコールを含む場合、その含有量は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して1重量%以上（例えば1～80重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは1～50重量%、最も好ましくは1～30重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0047] 本発明のガソリン組成物が炭素数3～10のカルボン酸を含む場合、その含有量は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して0.1重量%以上（例えば0.1～30重量%）であることが好ましく、

さらに好ましくは1～25重量%、最も好ましくは2～20重量%である。
前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0048] 本発明のガソリン組成物において、ガソリン基材の含有量は、組成物全量（100重量%）に対して20～99重量%であることが好ましく、さらに好ましくは40～95重量%、最も好ましくは50～90重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0049] 本発明のガソリン組成物において、「その他の含酸素炭化水素」を含む場合、その含有量は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して20重量%以下（例えば0.01～20重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは10重量%以下（0.1～10重量%）、最も好ましくは5重量%以下（1～5重量%）である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。

[0050] 本発明のガソリン組成物のリサーチオクタン価は、89以上であることが好ましく、より好ましくは94以上、さらに好ましくは98以上、最も好ましくは104以上である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。なお、本発明において、リサーチオクタン価は噴霧着火試験により算出するものとする。

[0051] 本発明のガソリン組成物の含酸素炭化水素の含有率（含有量）は特に限定されないが、例えば組成物全量（100重量%）に対して1重量%以上（例えば1～80重量%）であることが好ましく、さらに好ましくは5～60重量%、最も好ましくは10～50重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物のRONが向上する傾向がある。

[0052] 本発明のガソリン組成物の酸素含有率は特に限定されないが、例えば、組成物全量（100重量%）に対して0.1重量%以上（0.1～20重量%）であることが好ましく、より好ましくは0.5～10重量%、さらに好ましくは1～10重量%である。前記構成とすることで、ガソリン組成物の燃費特性が向上する傾向がある。なお、ガソリン組成物の「酸素含有率」とは、ガソリン組成物（全量）に対する、ガソリン組成物に含まれる成分（例え

ば、含酸素炭化水素）の酸素原子（総量）の重量比率を意味する。

[0053] <ガソリン組成物の製造方法>

本発明のガソリン組成物は、ガソリン基材と、特定量の炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つと、必要に応じて炭素数3～10のアルコール、炭素数3～10のカルボン酸、その他の含酸素炭化水素等を混合することで調製することができる。また、ガソリン基材（又はガソリン基材中の炭化水素）を酸化することによってガソリン組成物としてもよい。なお、ガソリン基材を酸化することにより本発明のガソリン組成物を調製する場合、酸素の存在下でガソリン基材を酸化させて本願発明のガソリン組成物としてもよい。さらに、ガソリン基材と、酸化したガソリン基材とを混合して本願発明のガソリン組成物としてもよい。

[0054] 以下に、ガソリン基材（又はガソリン基材中の炭化水素）を酸化することによりガソリン組成物を調製（製造）する方法について説明する。なお、ガソリン組成物を調製（製造）する方法として、酸素の存在下でガソリン基材を酸化させる方法が挙げられる。より具体的には、酸素とオゾンとの存在下でガソリン基材を酸化させる方法や、酸素と環状イミド骨格を有するイミド化合物との存在下でガソリン基材を酸化させる方法が挙げられる。

[0055] 本発明では、酸素とオゾンの存在下、又は酸素ガスとオゾンガスの流通下でガソリン基材中の炭化水素を酸化させて、本発明のガソリン組成物としてもよい。酸化剤としての酸素をオゾンと共に使用することにより、ガソリン基材中の炭化水素から水素の引き抜きを促進することができ、ラジカル反応を活性化することができる。そのため、温和な条件下（反応圧力：常圧、反応温度：例えば室温～200℃程度、好ましくは50～150℃、特に好ましくは60～120℃）においても、酸化反応を促進することができる。酸素ガスとオゾンガスの流通下で反応を行う場合、オゾンガス含有酸素ガスに占めるオゾンガス量としては、反応性及び経済性の観点から、例えば酸素ガスの0.1～10体積％程度である。

[0056] 酸素としては分子状酸素を使用することが好ましい。分子状酸素としては、純粋な酸素を用いてもよく、窒素、ヘリウム、アルゴン、二酸化炭素等の不活性ガスで希釈した酸素や、常圧又は加圧（１～１００気圧）の空気を使用してもよい。

[0057] 前記のオゾンはラジカル発生剤としての作用を有する。オゾンとしてはオゾンガスを使用することが好ましい。また、オゾンガスの供給は、反応が円滑に進行する限り、断続的に行っても連続的に行ってもよい。

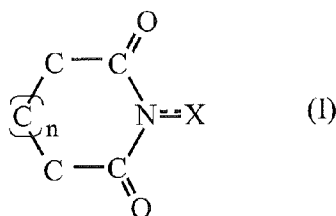
[0058] なお、ラジカル発生剤とは温和な反応条件（例えば、加熱、光照射等）でラジカルを発生させる化合物である。本発明においては、オゾン以外のラジカル発生剤として、後述の環状イミド骨格を有するイミド化合物やその他のラジカル発生剤を用いても良い。

[0059] 本発明では、酸素（酸素ガス）と環状イミド骨格を有するイミド化合物との共存下でガソリン基材を酸化させて本発明のガソリン組成物としてもよい。なお、酸素（酸素ガス）としては分子状酸素を使用することが好ましい。分子状酸素としては、純粋な酸素を用いてもよく、窒素、ヘリウム、アルゴン、二酸化炭素等の不活性ガスで希釈した酸素や、常圧又は加圧（１～１００気圧）の空気を使用してもよい。なお、本反応は温和な条件下（反応圧力：常圧、反応温度：例えば室温～２００℃程度、好ましくは５０～１５０℃、特に好ましくは６０～１２０℃）においても進行する。

[0060] [環状イミド骨格を有するイミド化合物]

環状イミド骨格を有するイミド化合物としては、酸化触媒として公知の種々の環状イミド骨格を有するイミド化合物を使用できる。環状イミド骨格を有するイミド化合物として、例えば下記式（１）で表される環状イミド骨格が挙げられる。

[0061] [化１]



[0062] 式(1)において、窒素原子とXとの結合は単結合又は二重結合である。

前記イミド化合物は、分子中に、式(1)で表される環状イミド骨格を複数個有していてもよい。また、前記イミド化合物は、前記Xが $-OR$ 基であり且つRがヒドロキシル基の保護基である場合、環状イミド骨格のうちRを除く部分(N-オキシ環状イミド骨格)が複数個、Rを介して結合していてもよい。

[0063] 前記Rで示されるヒドロキシル基の保護基としては、例えば、アルキル基(例えば、メチル、*t*-ブチル基等の C_{1-4} アルキル基等)、アルケニル基(例えば、アリル基等)、シクロアルキル基(例えば、シクロヘキシル基等)、アリール基(例えば、2,4-ジニトロフェニル基等)、アラルキル基(例えば、ベンジル、2,6-ジクロロベンジル、3-ブロモベンジル、2-ニトロベンジル、トリフェニルメチル基等)；置換メチル基(例えば、メトキシメチル、メチルチオメチル、ベンジルオキシメチル、*t*-ブトキシメチル、2-メトキシエトキシメチル、2,2,2-トリクロロエトキシメチル、ビス(2-クロロエトキシ)メチル、2-(トリメチルシリル)エトキシメチル基等)、置換エチル基(例えば、1-エトキシエチル、1-メチル-1-メトキシエチル、1-イソプロポキシエチル、2,2,2-トリクロロエチル、2-メトキシエチル基等)、テトラヒドロピラニル基、テトラヒドロフラニル基、1-ヒドロキシアルキル基等(例えば、1-ヒドロキシエチル、1-ヒドロキシヘキシル、1-ヒドロキシデシル、1-ヒドロキシヘキサデシル、1-ヒドロキシー-1-フェニルメチル基等)のヒドロキシル基とアセタール又はヘミアセタールを形成可能な基；アシル基(例えば、ホルミル、アセチル、プロピオニル、ブチリル、イソブチリル、バレリル、ピバロイル、ヘキサノイル、ヘプタノイル、オクタノイル、ノナノイル、デカノイル、ラウロイル、ミリストイル、パルミトイル、ステアロイル基等の C_{1-20} 脂肪族アシル基等の脂肪族飽和又は不飽和アシル基；アセトアセチル基；シクロペンタンカルボニル、シクロヘキサンカルボニル基等のシクロアルカンカルボニル基等の脂環式アシル基；ベンゾイル、ナフトイル基等の芳香族アシル

基等) ; スルホニル基 (メタンスルホニル、エタンスルホニル、トリフルオロメタンスルホニル、ベンゼンスルホニル、*p*-トルエンスルホニル、ナフトレンスルホニル基等)、アルコキシカルボニル基 (例えば、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、*t*-ブトキシカルボニル基等のC₁₋₄アルコキシカルボニル基等)、アラルキルオキシカルボニル基 (例えば、ベンジルオキシカルボニル基、*p*-メトキシベンジルオキシカルボニル基等)、置換又は無置換カルバモイル基 (例えば、カルバモイル、メチルカルバモイル、フェニルカルバモイル基等)、無機酸 (例えば、硫酸、硝酸、リン酸、ホウ酸等) からOH基を除いた基、ジアルキルホスフィノチオイル基 (例えば、ジメチルホスフィノチオイル基等)、ジアリールホスフィノチオイル基 (例えば、ジフェニルホスフィノチオイル基等)、置換シリル基 (例えば、トリメチルシリル、*t*-ブチルジメチルシリル、トリベンジルシリル、トリフェニルシリル基等) が挙げられる。

[0064] また、XがーOR基である場合において、環状イミド骨格のうちRを除く部分 (N-オキシ環状イミド骨格) が複数個、Rを介して結合する場合のRとしては、例えば、オキサリル、マロニル、スクシニル、グルタリル、アジポイル、フタロイル、イソフタロイル、テレフタロイル基等のポリカルボン酸アシル基 ; カルボニル基 ; メチレン、エチリデン、イソプロピリデン、シクロペンチリデン、シクロヘキシリデン、ベンジリデン基等の多価の炭化水素基 (特に、2つのヒドロキシル基とアセタールを形成する基) 等が挙げられる。

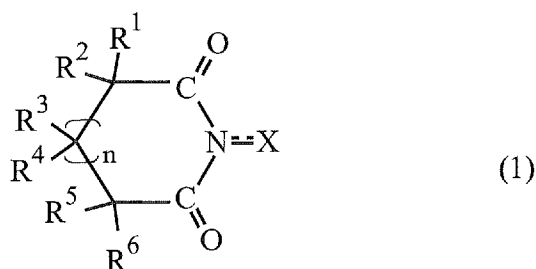
[0065] 好ましいRには、例えば、水素原子 ; ヒドロキシル基とアセタール又はヘミアセタールを形成可能な基 ; カルボン酸、スルホン酸、炭酸、カルバミン酸、硫酸、リン酸、ホウ酸等の酸からOH基を除いた基 (アシル基、スルホニル基、アルコキシカルボニル基、カルバモイル基等) 等の加水分解により脱離可能な加水分解性保護基等が含まれる。

[0066] 式 (1) において、*n*は0又は1を示す。すなわち、式 (1) は、*n*が0の場合は5員の環状イミド骨格を表し、*n*が1の場合は6員の環状イミド骨

格を表す。

[0067] 前記イミド化合物の代表的な例として、下記式（１）で表されるイミド化合物が挙げられる。式（１）中、 n は0又は1を示す。 X は酸素原子又は $-OR$ 基（ R は水素原子又はヒドロキシル基の保護基を示す）を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 は、同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アリール基、シクロアルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、アシル基又はアシルオキシ基を示す。 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して二重結合を形成してもよく、環状イミド骨格を構成する炭素原子と共に環を形成してもよい。前記 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、若しくは R^6 、又は R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して形成された二重結合、又は環状イミド骨格を構成する炭素原子と共に形成した環には、下記式（１）中に示される環状イミド基が1又は2個以上結合していてもよい。

[0068] [化2]



[0069] 式（１）で表されるイミド化合物の置換基 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 におけるハロゲン原子には、ヨウ素、臭素、塩素、及びフッ素原子が含まれる。アルキル基には、例えば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、 s -ブチル、 t -ブチル、ヘキシル、デシル、ドデシル、テトラデシル、ヘキサデシル基等の炭素数1～30程度（特に、炭素数1～20）の直鎖状又は分岐鎖状アルキル基が含まれる。

[0070] アリール基には、例えば、フェニル、ナフチル基等が含まれ、シクロアルキル基には、例えば、シクロペンチル、シクロヘキシル基等が含まれる。ア

ルコキシ基には、例えば、メトキシ、エトキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、*t*-ブトキシ、ヘキシルオキシ、オクチルオキシ、デシルオキシ、ドデシルオキシ、テトラデシルオキシ、オクタデシルオキシ基等の炭素数1～30程度（特に、炭素数1～20）のアルコキシ基が含まれる。

[0071] 置換オキシカルボニル基には、例えば、メトキシカルボニル、エトキシカルボニル、イソプロポキシカルボニル、ブトキシカルボニル、*t*-ブトキシカルボニル、ヘキシルオキシカルボニル、デシルオキシカルボニル、ヘキサデシルオキシカルボニル基等のC₁₋₃₀アルコキシカルボニル基（特に、C₁₋₂₀アルコキシカルボニル基）；シクロペンチルオキシカルボニル、シクロヘキシルオキシカルボニル基等のシクロアルキルオキシカルボニル基（特に、3～20員シクロアルキルオキシカルボニル基）；フェニルオキシカルボニル、ナフチルオキシカルボニル基等のアリールオキシカルボニル基（特に、C₆₋₂₀アリールオキシカルボニル基）；ベンジルオキシカルボニル基等のアラルキルオキシカルボニル基（特に、C₇₋₂₁アラルキルオキシカルボニル基）等が挙げられる。

[0072] アシル基には、例えば、ホルミル、アセチル、プロピオニル、ブチリル、イソブチリル、バレリル、ピバロイル、ヘキサノイル、オクタノイル、デカノイル、ラウロイル、ミリストイル、パルミトイル、ステアロイル基等のC₁₋₃₀脂肪族アシル基（特に、C₁₋₂₀脂肪族アシル基）等の脂肪族飽和又は不飽和アシル基；アセトアセチル基；シクロペンタンカルボニル、シクロヘキサンカルボニル基等のシクロアルカンカルボニル基等の脂環式アシル基；ベンゾイル、ナフトイル基等の芳香族アシル基等が含まれる。

[0073] アシルオキシ基には、例えば、ホルミルオキシ、アセチルオキシ、プロピオニルオキシ、ブチリルオキシ、イソブチリルオキシ、バレリルオキシ、ピバロイルオキシ、ヘキサノイルオキシ、オクタノイルオキシ、デカノイルオキシ、ラウロイルオキシ、ミリストイルオキシ、パルミトイルオキシ、ステアロイルオキシ基等のC₁₋₃₀脂肪族アシルオキシ基（特に、C₁₋₂₀脂肪族アシルオキシ基）等の脂肪族飽和又は不飽和アシルオキシ基；アセトアセチルオキ

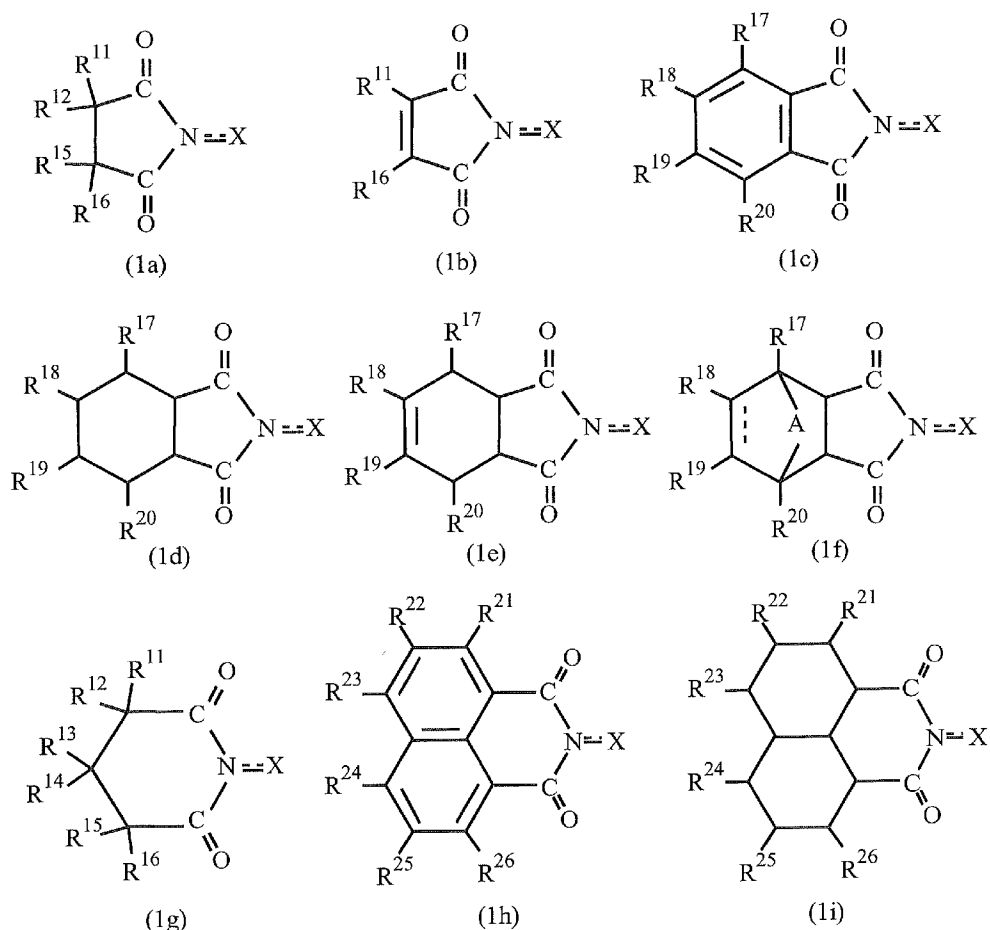
シ基；シクロペンタンカルボニルオキシ、シクロヘキサンカルボニルオキシ基等のシクロアルカンカルボニルオキシ基等の脂環式アシルオキシ基；ベンゾイルオキシ、ナフトイルオキシ基等の芳香族アシルオキシ基等が含まれる。

[0074] 前記置換基 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して、環状イミド骨格を構成する炭素原子と共に形成してもよい環としては、例えば5～12員環（特に好ましくは6～10員環）である。前記環には、炭化水素環、複素環、及び縮合複素環が含まれる。このような環の具体例としては、非芳香族性脂環式環（シクロヘキサン環等の置換基を有していてもよいシクロアルカン環、シクロヘキセン環等の置換基を有していてもよいシクロアルケン環等）、非芳香族性橋かけ環（5-ノルボルネン環等の置換基を有していてもよい橋かけ式炭化水素環等）、置換基を有していてもよい芳香族環（縮合環を含む）（ベンゼン環、ナフタレン環等）を挙げることができる。前記環が有していてもよい置換基としては、例えば、アルキル基、ハロアルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、アシル基、アシルオキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

[0075] 前記 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、若しくは R^6 、又は R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して形成された二重結合、又は環状イミド骨格を構成する炭素原子と共に形成した環には、上記式（1）中に示される環状イミド基が1又は2個以上結合していてもよく、例えば、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、若しくは R^6 が炭素数2以上のアルキル基である場合、このアルキル基を構成する隣接する2つの炭素原子を含んで前記環状イミド基を形成していてもよい。また、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して二重結合を形成する場合、該二重結合を含んで前記環状イミド基を形成していてもよい。さらに、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、及び R^6 のうち少なくとも2つが互いに結合して、環状イミド骨格を構成する炭素原子と共に前記環状イミド基を形成していてもよい。

[0076] 好ましいイミド化合物には、下記式で表される化合物が含まれる。式中、 $R^{11} \sim R^{16}$ は、同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アリール基、シクロアルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、アシル基、又はアシルオキシ基を示す。 $R^{17} \sim R^{26}$ は、同一又は異なって、水素原子、アルキル基、ハロアルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、アシル基、アシルオキシ基、ニトロ基、シアノ基、アミノ基、又はハロゲン原子を示す。 $R^{17} \sim R^{26}$ は、隣接する基同士が結合して、式(1c)、(1d)、(1e)、(1f)、(1h)、又は(1i)中に示される5員又は6員の環状イミド骨格を形成していてもよい。Aはメチレン基又は酸素原子を示す。Xは前記に同じ。

[0077] [化3]



[0078] 置換基 $R^{11} \sim R^{16}$ におけるハロゲン原子、アルキル基、アリール基、シクロ

アルキル基、ヒドロキシル基、アルコキシ基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、アシル基、アシルオキシ基としては、前記 $R^1 \sim R^6$ における対応する基と同様のものが例示される。

[0079] 置換基 $R^{17} \sim R^{26}$ におけるアルキル基としては、前記例示のアルキル基と同様のアルキル基（好ましくは炭素数 1 ～ 6 程度のアルキル基、特に好ましくは炭素数 1 ～ 4 の低級アルキル基）が例示され、ハロアルキル基としては、トリフルオロメチル基等の炭素数 1 ～ 4 程度のハロアルキル基、アルコキシ基としては、前記と同様のアルコキシ基（特に炭素数 1 ～ 4 程度の低級アルコキシ基）、置換オキシカルボニル基としては、前記と同様の置換オキシカルボニル基（アルコキシカルボニル基、シクロアルキルオキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラルキルオキシカルボニル基等）が例示される。また、アシル基としては前記と同様のアシル基（脂肪族飽和又は不飽和アシル基、アセトアセチル基、脂環式アシル基、芳香族アシル基等）が例示され、アシルオキシ基としては前記と同様のアシルオキシ基（脂肪族飽和又は不飽和アシルオキシ基、アセトアセチルオキシ基、脂環式アシルオキシ基、芳香族アシルオキシ基等）が例示される。ハロゲン原子としては、フッ素、塩素、臭素原子が例示される。置換基 $R^{17} \sim R^{26}$ としては、特に、水素原子、炭素数 1 ～ 4 程度の低級アルキル基、カルボキシル基、置換オキシカルボニル基、ニトロ基、ハロゲン原子が好ましい。

[0080] また、酸化剤としての酸素をオゾン又は環状イミド骨格を有するイミド化合物存在下で使用するため、非常に優れた酸化力で反応基質としてのガソリン基材を酸化することができる。そのため、イミド化合物の Fedors の方法による溶解度パラメーター [SP 値；エステル結合を構成する酸素原子 (—O—) の蒸発エネルギーが 3350 J/mol 、モル体積が $3.8 \text{ cm}^3/\text{mol}$ となる温度 (25°C) での値] が、例えば $26 [(\text{MPa})^{1/2}]$ を超える場合（好ましくは、 $26 [(\text{MPa})^{1/2}]$ を超え、 $40 [(\text{MPa})^{1/2}]$ 以下の場合）であっても、無溶媒下において反応を速やかに進行させることができ、酸化物を効率よく得ることができる。尚、SP 値は文献記載の方法[

R.F.Fedors, Polym. Eng. Sci., 14(2), 147(1974); E.A.Grulke, Polymer Handbook, VII/675; 原崎勇次、塗装技術、3、129(1987)参照]により求めることができる。

[0081] 好ましいイミド化合物のうち5員の環状イミド骨格を有する化合物の代表的な例として、N-ヒドロキシコハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α -メチルコハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , α -ジメチルコハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , β -ジメチルコハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , α , β , β -テトラメチルコハク酸イミド、N-ヒドロキシマレイン酸イミド、N-ヒドロキシヘキサヒドロフタルイミド、N, N'-ジヒドロキシシクロヘキサンテトラカルボン酸ジイミド、N-ヒドロキシフタルイミド、N-ヒドロキシテトラブromoフタルイミド、N-ヒドロキシテトラクロロフタルイミド、N-ヒドロキシヘット酸イミド、N-ヒドロキシハイミック酸イミド、N-ヒドロキシトリメリット酸イミド、N, N'-ジヒドロキシピロメリット酸ジイミド、N, N'-ジヒドロキシナフタレンテトラカルボン酸ジイミド、 α , β -ジアセトキシーN-ヒドロキシコハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , β -ビス(プロピオニルオキシ)コハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , β -ビス(バレリルオキシ)コハク酸イミド、N-ヒドロキシ- α , β -ビス(ラウロイルオキシ)コハク酸イミド、 α , β -ビス(ベンゾイルオキシ)-N-ヒドロキシコハク酸イミド、N-ヒドロキシ-4-メトキシカルボニルフタルイミド、4-エトキシカルボニル-N-ヒドロキシフタルイミド、N-ヒドロキシ-4-ペンチルオキシカルボニルフタルイミド、4-ドデシルオキシ-N-ヒドロキシカルボニルフタルイミド、N-ヒドロキシ-4-フェノキシカルボニルフタルイミド、N-ヒドロキシ-4, 5-ビス(メトキシカルボニル)フタルイミド、4, 5-ビス(エトキシカルボニル)-N-ヒドロキシフタルイミド、N-ヒドロキシ-4, 5-ビス(ペンチルオキシカルボニル)フタルイミド、4, 5-ビス(ドデシルオキシカルボニル)-N-ヒドロキシフタルイミド、N-ヒドロキシ-4, 5-ビス(フェノキシカルボニル)フタルイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且

つRが水素原子である化合物；これらの化合物に対応する、Rがアセチル基、プロピオニル基、ベンゾイル基等のアシル基である化合物；N-メトキシメチルオキシフタルイミド、N-(2-メトキシエトキシメチルオキシ)フタルイミド、N-テトラヒドロピラニルオキシフタルイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且つRがヒドロキシル基とアセタール又はヘミアセタールを形成可能な基である化合物；N-メタンスルホニルオキシフタルイミド、N-(p-トルエンスルホニルオキシ)フタルイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且つRがスルホニル基である化合物；N-ヒドロキシフタルイミドの硫酸エステル、硝酸エステル、リン酸エステル又はホウ酸エステル等の式(1)におけるXが-O R基で且つRが無機酸からOH基を除いた基である化合物等が挙げられる。

[0082] 好ましいイミド化合物のうち6員の環状イミド骨格を有する化合物の代表的な例として、N-ヒドロキシグルタルイミド、N-ヒドロキシ- α , α -ジメチルグルタルイミド、N-ヒドロキシ- β , β -ジメチルグルタルイミド、N-ヒドロキシ-1, 8-デカリンジカルボン酸イミド、N, N'-ジヒドロキシ-1, 8; 4, 5-デカリントトラカルボン酸ジイミド、N-ヒドロキシ-1, 8-ナフタレンジカルボン酸イミド(N-ヒドロキシナフタルイミド)、N, N'-ジヒドロキシ-1, 8; 4, 5-ナフタレントトラカルボン酸ジイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且つRが水素原子である化合物；これらの化合物に対応する、Rがアセチル基、プロピオニル基、ベンゾイル基等のアシル基である化合物；N-メトキシメチルオキシ-1, 8-ナフタレンジカルボン酸イミド、N, N'-ビス(メトキシメチルオキシ)-1, 8; 4, 5-ナフタレントトラカルボン酸ジイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且つRがヒドロキシル基とアセタール又はヘミアセタールを形成可能な基である化合物；N-メタンスルホニルオキシ-1, 8-ナフタレンジカルボン酸イミド、N, N'-ビス(メタンスルホニルオキシ)-1, 8; 4, 5-ナフタレントトラカルボン酸ジイミド等の式(1)におけるXが-O R基で且つRがスルホニル基である化合物；N-ヒドロキシ-

1, 8-ナフタレンジカルボン酸イミド又はN, N'-ジヒドロキシー1, 8; 4, 5-ナフタレンテトラカルボン酸ジイミドの硫酸エステル、硝酸エステル、リン酸エステル又はホウ酸エステル等の式(1)におけるXが-O R基で且つRが無機酸からOH基を除いた基である化合物等が挙げられる。

[0083] 前記イミド化合物のうち、Xが-O R基で且つRが水素原子である化合物(N-ヒドロキシイミド化合物)は、慣用のイミド化反応、例えば、対応する酸無水物とヒドロキシルアミンとを反応させ、酸無水物基の開環及び閉環を経てイミド化する方法により製造することができる。また、前記イミド化合物のうち、Xが-O R基で且つRがヒドロキシル基の保護基である化合物は、対応するRが水素原子である化合物(N-ヒドロキシイミド化合物)に、慣用の保護基導入反応を利用して、所望の保護基を導入することにより製造することができる。例えば、N-アセトキシフタルイミドは、N-ヒドロキシフタルイミドに無水酢酸を反応させたり、塩基の存在下でアセチルハライドを反応させることにより製造することができる。

[0084] 特に好ましいイミド化合物は、脂肪族多価カルボン酸無水物又は芳香族多価カルボン酸無水物から誘導されるN-ヒドロキシイミド化合物(例えば、N-ヒドロキシコハク酸イミド(S P値: 33.5 [(MP a)^{1/2}])、N-ヒドロキシフタルイミド(S P値: 33.4 [(MP a)^{1/2}])、N, N'-ジヒドロキシピロメリット酸ジイミド、N-ヒドロキシグルタルイミド、N-ヒドロキシー1, 8-ナフタレンジカルボン酸イミド、N, N'-ジヒドロキシー1, 8; 4, 5-ナフタレンテトラカルボン酸ジイミド等)、及び前記N-ヒドロキシイミド化合物のヒドロキシル基に保護基を導入することにより得られる化合物等が含まれる。

[0085] 環状イミド骨格を有するイミド化合物は、1種を単独で又は2種以上組み合わせ使用できる。前記イミド化合物は反応系内で生成させてもよいが、本発明においては、例えば、商品名「N-ヒドロキシフタルイミド」(和光純薬工業(株)製)、商品名「N-ヒドロキシコハク酸イミド」(和光純薬工業(株)製)等の市販品を好適に使用することができる。

[0086] 環状イミド骨格を有するイミド化合物の使用量は、反応基質としてのガソリン基材100重量部に対して、例えば0.0001～20重量部、好ましくは0.001～10重量部、特に好ましくは0.01～5重量部である。環状イミド骨格を有するイミド化合物を前記範囲で使用するにより、優れた反応速度で酸化反応を進行させることができる。

[0087] [その他のラジカル発生剤]

本発明において、ガソリン基材を酸化することによってガソリン組成物を調製する場合、オゾンと環状イミド骨格を有するイミド化合物以外のラジカル発生剤（その他のラジカル発生剤と称する）として、公知慣用のラジカル発生剤を用いてもよく、例えばニトロキシ系ラジカル発生剤やアゾ系ラジカル発生剤を用いてもよい。

[0088] 前記ニトロキシ系ラジカル発生剤としては、例えば、2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジーン-1-オキシル、9-アザビシクロ[3.3.1]ノナン-N-オキシル、2-アザアダマンタン-N-オキシル、1-メチル-2-アザアダマンタン-N-オキシル、1, 3-ジメチル-2-アザアダマンタン-N-オキシル等のニトロキシ化合物を挙げることができる。

[0089] 前記アゾ系ラジカル発生剤としては、例えば、ジメチル2, 2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)、2, 2'-アゾビス(4-メトキシ-2, 4-ジメチルバレロニトリル)、2, 2'-アゾビス(イソブチロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、4, 4'-アゾビス(4-シアノ吉草酸)、2, 2'-アゾビス(2-アミジノプロパン)二塩酸塩、2, 2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]二塩酸塩、1, 1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、4, 4'-アゾビス(4-シアノペンタノイックアシッド)、2, 2'-アゾビス(イソ酪酸メチル)、2, 2'-アゾビス(イソ酪酸エチル)等のアゾ化合物を挙げることができる。

[0090] [助触媒]

本発明において、ガソリン基材を酸化することによってガソリン組成物を

調製する場合、助触媒として金属化合物を使用してもよい。

- [0091] 前記金属化合物としては、コバルト、マンガン、ジルコニウム、及びモリブデンから選択される少なくとも1種の金属元素を含む金属化合物、すなわちコバルト化合物、マンガン化合物、ジルコニウム化合物、及びモリブデン化合物から選択される少なくとも1種を使用することが好ましい。
- [0092] 前記金属化合物には、前記金属元素単体、前記金属元素の水酸化物、酸化物（複合酸化物を含む）、ハロゲン化物（フッ化物、塩化物、臭化物、ヨウ化物）、オキソ酸塩（例えば、硝酸塩、硫酸塩、リン酸塩、ホウ酸塩、炭酸塩等）、イソポリ酸の塩、ヘテロポリ酸の塩等の無機化合物；有機酸塩（例えば、酢酸塩、プロピオン酸塩、青酸塩、ナフテン酸塩、ステアリン酸塩等）、錯体等が含まれる。
- [0093] 前記錯体を構成する配位子としては、OH（ヒドロキシ）、アルコキシ（メトキシ、エトキシ、プロポキシ、ブトキシ等）、アシル（アセチル、プロピオニル等）、アルコキシカルボニル（メトキシカルボニル、エトキシカルボニル等）、アセチルアセトナト、シクロペンタジエニル、ハロゲン原子（塩素、臭素等）、CO、CN、酸素原子、H₂O（アコ）、ホスフィン（トリフェニルホスフィン等のトリアリールホスフィン等）のリン化合物、NH₃（アンミン）、NO、NO₂（ニトロ）、NO₃（ニトラト）、エチレンジアミン、ジエチレントリアミン、ピリジン、フェナントロリン等の窒素含有化合物等が挙げられる。
- [0094] 金属化合物としてコバルト化合物を例にとると、水酸化コバルト、酸化コバルト、塩化コバルト、臭化コバルト、硝酸コバルト、硫酸コバルト、リン酸コバルト等の無機化合物；酢酸コバルト、ナフテン酸コバルト、ステアリン酸コバルト等の有機酸塩；コバルトアセチルアセトナト等の錯体等の2価又は3価のコバルト化合物等が挙げられる。他の金属元素の化合物としては、前記コバルト化合物に対応する化合物が例示できる。なお、反応促進効果に特に優れる点で、少なくともコバルト化合物を使用することが好ましく、特にコバルト化合物とマンガン化合物を組み合わせ使用することが好まし

い。また、金属化合物は仕込み時に一括添加しても良く、反応系内に連続添加又は間欠添加してもよい。

[0095] 本発明において、ガソリン基材を酸化することによってガソリン組成物を調製する場合、酸化反応は、回分式、半回分式、連続式等の慣用の方法により行うことができるが、ガソリン基材の転化率の向上の観点からは連続式であることが好ましい。

実施例

[0096] 以下、本発明について実施例及び比較例を挙げてさらに具体例を説明する。ただし、本発明はこれらにより限定されるものではない。

[0097] (噴霧着火試験)

レギュラーガソリンに含まれる炭化水素成分が酸化され、アルコールやケトン等のような含酸素炭化水素が生成すると、酸化反応液の沸点は、レギュラーガソリンの沸点に比べ著しく高くなる。このため、高沸点燃料の測定が可能な噴霧着火試験により、酸化反応液のリサーチオクタン価を推定した。

燃焼室内を、外壁に取り付けられたヒーターによって500℃に加熱した後、測定サンプル20gを燃料溜めに仕込み、エアシリンダーにて400倍に圧縮する。燃焼溜めから燃焼室内に挿入されたノズルを通じ、燃焼室内に測定サンプルを10ミリ秒間高圧で噴射する。この際の着火遅れ時間と熱発生挙動とを評価することで、リサーチオクタン価を研鑽した。

[0098] (実施例1)

ガス通気ラインおよび挿入管を備えた100mLのSUS316製耐圧反応器(耐圧硝子工業(株)製、TVS-1型)に、リサーチオクタン価90のレギュラーガソリンに相当するガソリンサロゲート燃料として、20重量%のトルエン、63重量%の2,4,4-トリメチルペンタン、及び17重量%のn-ヘプタンの混合液(以下、原料と称する)を70ml入れた。反応器をオイルバスに浸けて液温を95℃とした後、オゾン発生装置(ウィンテック(株)製)を使用して発生させたオゾンガスを含む空気(酸素濃度:20.7体積%、オゾンガス含有量:0.3体積%)をバブリング供給する

ことで原料を酸化させた。この反応液をガスクロマトグラフィー（カラム：O O 7 - F F A P）で成分分析し、原料の転化率が10%に到達した時点でオゾンガスの供給を停止し、反応器を室温まで冷却した。成分分析の結果を表1に記載する。その後、得られた反応液（ガソリン組成物）を噴霧着火試験に付すことによりリサーチオクタン価を測定した。この結果を表1に示す。なお、「原料の転化率」は $\left[\text{反応液における原料の消失量（モル）} \right] / \left[\text{反応前の原料（モル）} \right]$ にて計算した。

[0099] さらに、成分分析の結果から、ガソリン組成物（反応液）に対する含酸素炭化水素の含有率、アルコール成分の含有率、ケトン成分の含有率、アルデヒド成分の含有率、カルボン酸成分の含有率、及び酸素含有率を算出し、表1に記載した。ここで、「含酸素炭化水素」とは、原料に由来する酸化物（化合物）を指す。なお、成分分析による各成分の含有比率、及び酸素含有率は、小数点以下1桁を四捨五入した値を記載した。

[0100] （実施例2～5）

実施例1と同様の操作を行い、原料の転化率が20%、30%、40%、50%のガソリン組成物を調製した。それぞれガソリン組成物に含まれる成分の含有比率、酸素含有率、及びリサーチオクタン価の測定値を表1に示す。

[0101] （比較例1）

原料を噴霧着火試験に付すことによりリサーチオクタン価を測定した。この結果と共に、原料に含まれる成分の含有比率、及び酸素含有率を表1に示す。

[0102] 原料の転化率とガソリン組成物のリサーチオクタン価との相関図を図1に示す。さらに、ガソリン組成物のアルコール成分の含有率、ケトン成分の含有率、及び酸素含有率と、ガソリン組成物のリサーチオクタン価との相関図を図2～4に示す。

[0103]

[表1]

組成物(重量%)	比較例1	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
トルエン	20.0	12.6	5.0	0.0	0.0	0.0
2, 4, 4-トリメチルペンタン	63.0	61.5	60.0	55.7	49.9	45.0
n-ヘプタン	17.0	15.9	15.0	11.4	6.9	2.0
ベンジルアルコール	0.0	1.9	4.0	5.0	5.0	5.0
ベンズアルデヒド	0.0	1.9	4.0	5.0	5.0	5.0
安息香酸	0.0	3.7	7.0	10.0	10.0	10.0
2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール	0.0	1.0	2.0	4.9	8.8	13.0
2, 2-ジメチル-1-プロパノール+アセトン	0.0	0.5	1.0	2.4	4.4	6.0
2-ヘプタノール	0.0	0.6	1.0	2.8	5.1	7.0
2-ヘプタノン	0.0	0.6	1.0	2.8	5.1	7.0
含酸素炭化水素の含有率(重量%)	0.0	10.0	20.0	32.9	43.3	53.0
アルコール成分の含有率(重量%)	0.0	3.7	7.6	14.1	21.4	28.6
ケトン成分の含有率(重量%)	0.0	0.8	1.4	3.8	6.8	9.4
アルデヒド成分の含有率(重量%)	0.0	1.9	4.0	5.0	5.0	5.0
カルボン酸成分の含有率(重量%)	0.0	3.7	7.0	10.0	10.0	10.0
酸素含有率(重量%)	0.0	1.9	3.8	6.0	7.6	9.0
リサチオクタン価	90	94	98	104	109	115

[0104] 表 1 から含酸素炭化水素の含有率が上昇することに伴って、ガソリン組成物のリサーチオクタン価が向上することが明らかとなった。また、図 1 から、含酸素炭化水素の含有率が 27% に達するとハイオクタン燃料（RON = 100）相当のガソリン組成物となることが分かった。さらに、図 2～4 からは、ガソリン組成物の含酸素含有量が増加することに伴ってリサーチオクタン価が上昇することが理解できる。また、ケトン成分の含有量が 0～1.5 重量% 程度の範囲で増加した場合、ガソリン組成物のリサーチオクタン価が効率よく上昇することが分かった。

[0105] （比較例 2、実施例 6～11）

ガソリンサロゲート燃料として、表 2 に示す成分を含むガソリン組成物 1～7（比較例 2、実施例 6～11 に対応）を調製した。さらに、噴霧着火試験方法に基づき、ガソリン組成物 1～7 のリサーチオクタン価を測定した。

[0106]

[表2]

	比較例2	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11
成分名							
トルエン	20%	10%	20%	—	20%	20%	20%
ベンズアルデヒド	—	10%	—	—	—	—	—
安息香酸	—	—	—	20%	—	—	—
2, 4, 4-トリメチルペンタン	63%	63%	63%	—	—	63%	32%
2, 2-ジメチル-1-プロパノール	—	—	—	40%	40%	—	19%
アセトン	—	—	—	23%	23%	—	13%
n-ヘプタン	17%	17%	—	17%	17%	—	—
1-ヘプタノール	—	—	—	—	—	5.7%	5.7%
2-ヘプタノール	—	—	—	—	—	5.7%	5.7%
2-ヘプタノン	—	—	17%	—	—	5.7%	5.7%
ガソリン組成物のリサーチオクタン価	90	95	100	101	102	100	104

[0107] 比較例2、及び実施例6～11（ガソリン組成物1～7のリサーチオクタン価）からも明らかな様に、ヘプタノール、2-ヘプタノール、2, 2-ジメチル-1-プロパノール等の炭素数3～10のアルコール、アセトン、2-ヘプタノン等の炭素数3～10のケトン、ベンズアルデヒド等の炭素数3

～10のアルデヒド、安息香酸等の炭素数3～10のカルボン酸を添加することによって、ガソリン組成物のリサーチオクタン価が向上することが明らかとなった。

[0108] (実施例12)

ガス通気ラインおよび挿入管を備えた100mLのSUS316製耐圧反応器(耐圧硝子工業(株)製、TVS-1型)に、N-ヒドロキシフタルイミド1.9g(12mmol)、ステアリン酸コバルト(II)1.5g(2mmol)、および、原料70mlを加えた。反応器をオイルバスにつけて液温を95℃とした後、空気をバブリング供給することで原料を酸化させた。この反応液を実施例1と同様に分析し、原料の転化率が10%に達した時点で空気の供給を停止し、反応器を室温まで冷却した。実施例1と同様にリサーチオクタン価の測定を行い、得られたガソリン組成物に含まれる成分の含有比率(含酸素炭化水素の含有率、アルコール成分の含有率、ケトン成分の含有率、アルデヒド成分の含有率、カルボン酸成分の含有率)、酸素含有率、及びリサーチオクタン価の測定値を表3に示した。

[0109] (実施例13)

実施例12と同様の操作を行うことで、原料の転化率が20%のガソリン組成物を調製し、ガソリン組成物に含まれる成分の含有比率(含酸素炭化水素の含有率、アルコール成分の含有率、ケトン成分の含有率、アルデヒド成分の含有率、カルボン酸成分の含有率)、酸素含有率、及びリサーチオクタン価の測定値を表3に示した。

[0110]

[表3]

	実施例12	実施例13
トルエン	13.3	6.9
2, 4, 4-トリメチルペンタン	60.3	57.8
n-ヘプタン	15.3	13.7
ベンジルアルコール	0.1	0.2
ベンズアルデヒド	0.8	1.7
安息香酸	7.2	14.1
2, 4, 4-トリメチル-2-ペンタノール	1.0	2.0
2, 4, 4-トリメチル-3-ペンタノン	0.4	0.8
2-ヘプタノール	0.0	0.1
3-ヘプタノール	0.0	0.1
4-ヘプタノール	0.1	0.2
2-ヘプタノン	0.7	1.4
3-ヘプタノン	0.6	1.2
含酸素炭化水素の含有率(重量%)	11.0	21.8
アルコール成分の含有率(重量%)	1.3	2.6
ケトン成分の含有率(重量%)	1.7	3.4
アルデヒド成分の含有率(重量%)	0.8	1.7
カルボン酸成分の含有率(重量%)	7.2	14.1
酸素含有率(重量%)	2.4	4.8
リサーチオクタン価	95	100

産業上の利用可能性

[0111] 本発明のガソリン組成物は低コストで調製でき、さらに燃費特性の高い（高オクタン価の）ガソリン組成物を得ることができる。また、得られるガソリン組成物を燃料として使用した場合、SO_xやNO_xを排出すること無く

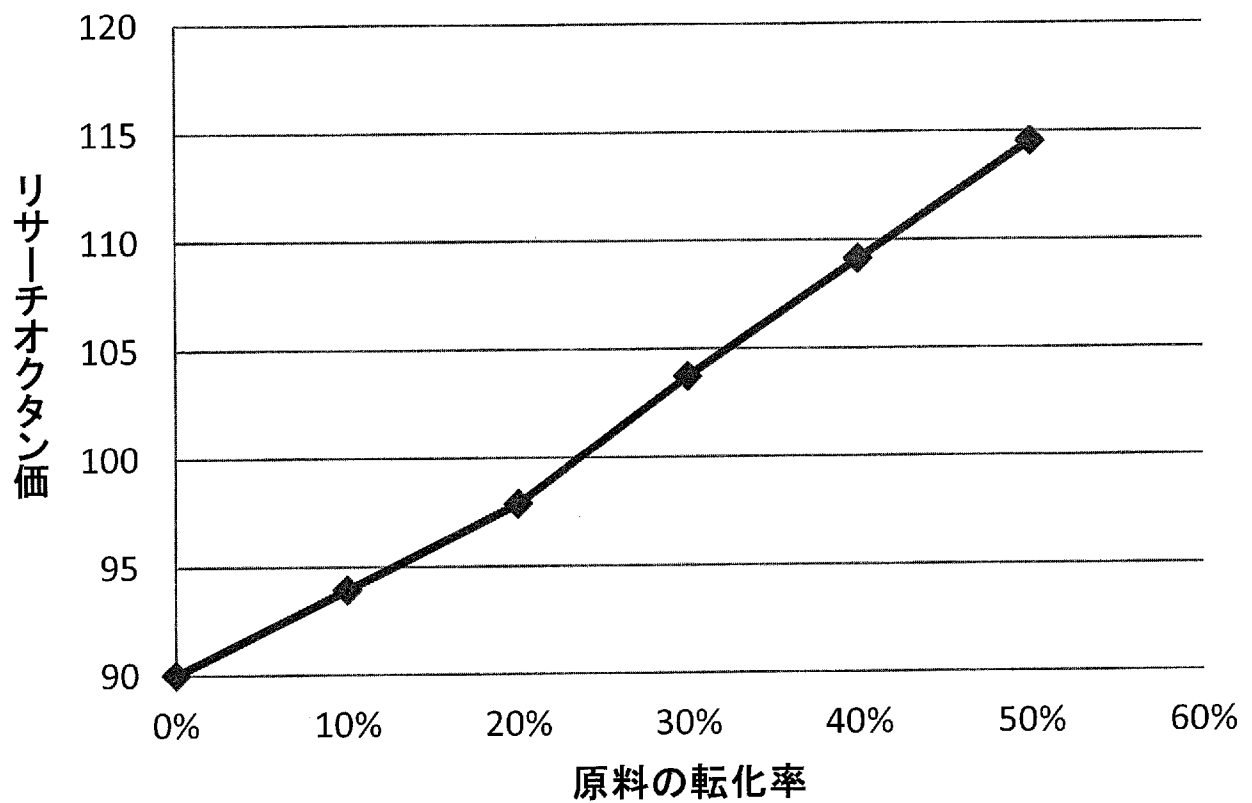
、さらに排ガス中のCO含有量が少ないため環境に優しい。さらに、本発明のガソリン組成物はガソリン基材を特定条件で酸化することで得ることもできる。この場合、ガソリン組成物は簡便且つ低コストで調製が可能である。さらに自動車内に酸化反応用装置を設けることで、車内で本発明のガソリン組成物を調製可能なため、エンジンルームに添加剤を貯蔵するためのタンクが必要とならない。

請求の範囲

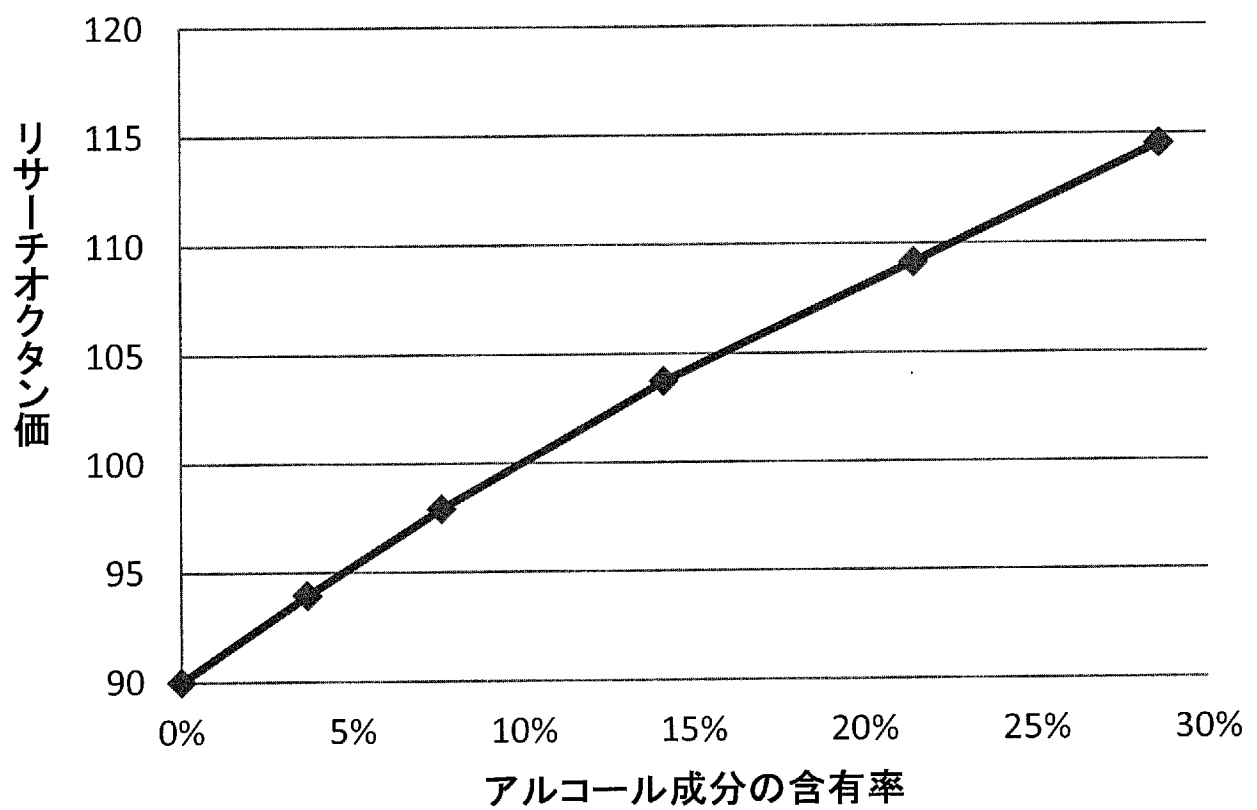
- [請求項1] 炭素数3～10のケトン、及び炭素数3～10のアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つと、ガソリン基材とを含むガソリン組成物であって、
- 炭素数3～10のケトンの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.1重量％以上であるか、又は、
- 炭素数3～10のアルデヒドの含有量が、組成物全量（100重量％）に対して0.5重量％以上であるガソリン組成物。
- [請求項2] 炭素数3～10のケトンとして、アセトン、2-ヘプタノン、3-ヘプタノン、4-ヘプタノン、2,3-ヘプタンジオン、及び2,4,4-トリメチル-3-ペンタノンからなる群より選択される少なくとも1つを含むか、又は、
- 炭素数3～10のアルデヒドとして、ヘプタナール、2,2-ジメチル-1-プロパナール、及びベンズアルデヒドからなる群より選択される少なくとも1つを含む請求項1に記載のガソリン組成物。
- [請求項3] さらに、炭素数3～10のアルコールを含む請求項1又は2に記載のガソリン組成物。
- [請求項4] 炭素数3～10のアルコールとして、1-ヘプタノール、2-ヘプタノール、3-ヘプタノール、4-ヘプタノール、1,2-ヘプタンジオール、1,7-ヘプタンジオール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2,4,4-トリメチル-2-ペンタノール、及びベンジルアルコールからなる群より選択される少なくとも1つを含む請求項3に記載のガソリン組成物。
- [請求項5] さらに、炭素数3～10のカルボン酸を含む請求項1～4の何れか1項に記載のガソリン組成物。
- [請求項6] 炭素数3～10のカルボン酸として、2,2-ジメチル-1-プロパン酸、ヘプタン酸、ヘプタン二酸、及び安息香酸からなる群より選択される少なくとも1つを含む請求項5に記載のガソリン組成物。

[請求項7] 噴霧着火試験におけるリサーチオクタン価が89以上である請求項1～6の何れか1項に記載のガソリン組成物。

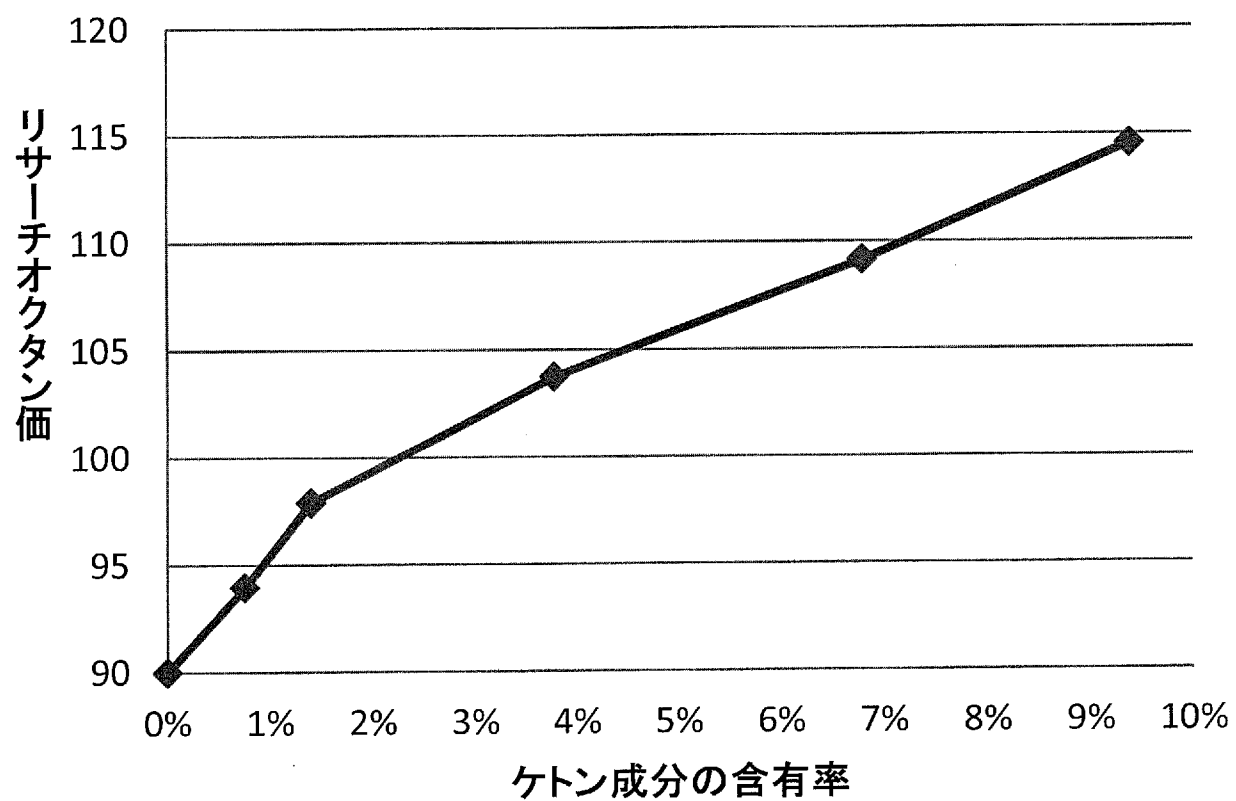
[図1]



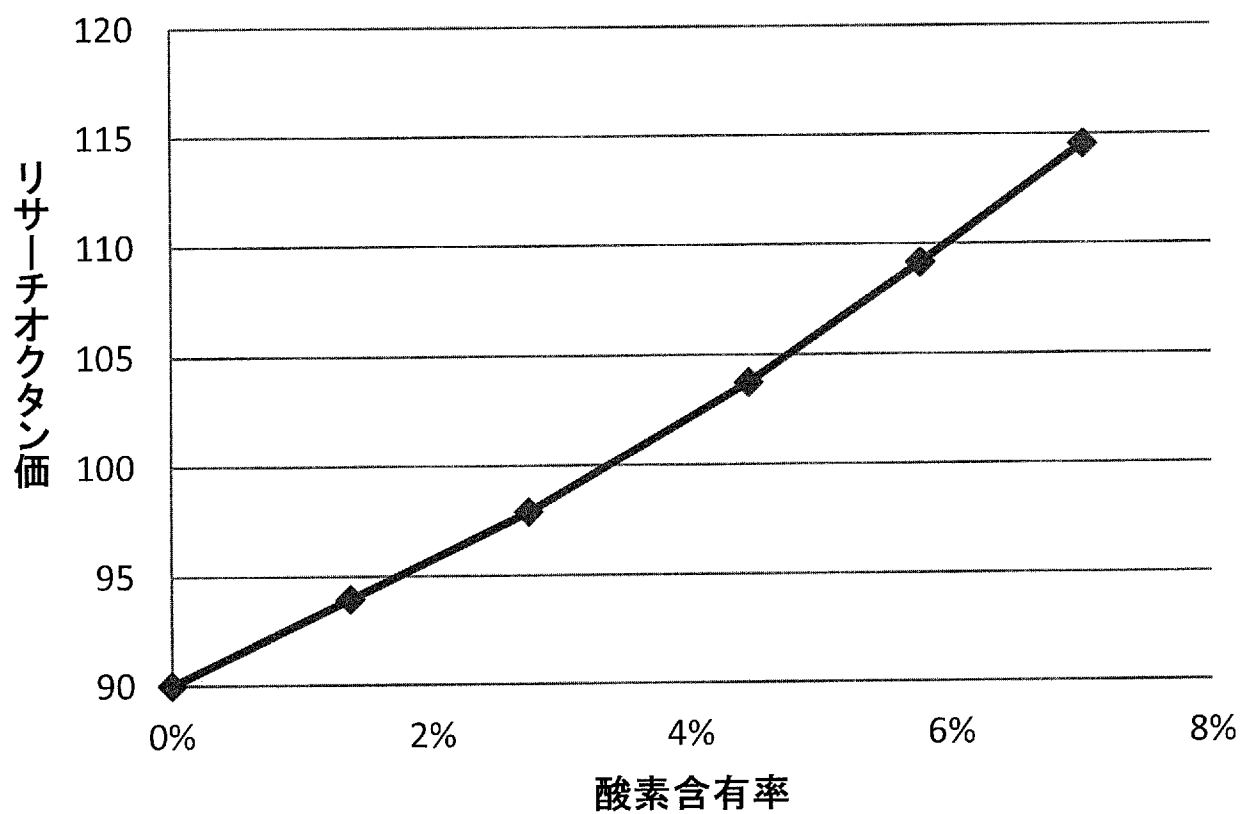
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/062857

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C10L1/06(2006.01)i, C10L1/182(2006.01)i, C10L1/185(2006.01)i, C10L1/188(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C10L1/06, C10L1/182, C10L1/185, C10L1/188

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2132968 A (PENNYMAN, William B.D.), 11 October 1938 (11.10.1938), page 1, left column, lines 1 to 11, 17 to 21; left column, line 36 to right column, line 5; page 2, left column, line 38 to right column, line 17; page 3, right column, lines 50 to 63 (Family: none)	1-7

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
12 July 2016 (12.07.16)

Date of mailing of the international search report
26 July 2016 (26.07.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/062857

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 56-136892 A (Sun Tech, Inc.), 26 October 1981 (26.10.1981), page 2, lower right column, lines 2 to 8; page 3, upper right column, lines 1 to 3; page 3, lower left column, line 17 to page 4, lower left column, line 16; fig. 1; page 5, upper right column, lines 9 to 19; page 5, lower left column, line 6 to page 6, lower left column; tables I to III & US 4375361 A column 1, lines 40 to 42; column 1, line 61 to column 2, line 3; column 2, line 4 to column 3, line 21; fig. 1; column 4, lines 9 to 22; column 4, line 29 to column 5; tables I to III & GB 2072186 A & DE 3111600 A & FR 2478668 A & BE 888078 A & NL 8101341 A & CA 1155868 A & IT 8120078 D0	1-7
X	JP 2001-89774 A (Kuniaki HAMACHI), 03 April 2001 (03.04.2001), paragraph [0001]; paragraph [0011], examples (Family: none)	1-3
X	WO 2004/058926 A1 (Sangi Co., Ltd.), 15 July 2004 (15.07.2004), page 1, lines 6 to 8; fig.7 & US 2006/0137243 A1 paragraph [0001]; fig. 7 & WO 2004/058925 A1 & AU 2003254796 A & CN 1717469 A & AU 2002357511 A & TW 200411041 A	1-3
X	JP 63-57689 A (Jun'ichi IWAMURA), 12 March 1988 (12.03.1988), claim 1; example 2; table 2; T7 to T9 (Family: none)	1-2
X	JP 2015-503656 A (Butamax Advanced Biofuels LLC), 02 February 2015 (02.02.2015), claim 1; paragraph [0211], table 4, examples 2 to 4 & US 2013/0227878 A1 claim 1; table 3; examples 1, 2 to 4 & WO 2013/101256 A2 & EP 2798048 A2 & AU 2012363070 A & CA 2860488 A & KR 10-2014-0116175 A & CN 104302744 A & MX 2014008070 A	1,3-4
A	JP 6-313178 A (Tonen Corp.), 08 November 1994 (08.11.1994), claim 1; paragraphs [0001], [0012] (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C10L1/06(2006.01)i, C10L1/182(2006.01)i, C10L1/185(2006.01)i, C10L1/188(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C10L1/06, C10L1/182, C10L1/185, C10L1/188

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	US 2132968 A (PENNIMAN, William B. D.) 1938.10.11, 第1頁左欄第1～11行, 第17～21行, 左欄第36行～右欄第5行, 第2頁左欄第38行～右欄第17行, 第3頁右欄第50～63行 (ファミリーなし)	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 2 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

2 6 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

柴田 啓二

4 V

5 8 1 0

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 56-136892 A (サンテック・インコーポレイテッド) 1981. 10. 26, 第 2 頁右下欄第 2～8 行, 第 3 頁右上欄第 1～3 行, 第 3 頁左下欄第 17 行～第 4 頁左下欄第 16 行, 第 1 図, 第 5 頁右上欄第 9～19 行, 第 5 頁左下欄第 6 行～第 6 頁左下欄, 表 I～III & US 4375361 A, 第 1 欄第 40～42 行, 第 1 欄第 61 行～2 欄 3 行, 第 2 欄第 4 行～第 3 欄第 21 行, FIG. 1, 第 4 欄第 9～22 行, 第 4 欄第 29 行～第 5 欄, TABLE I～III & GB 2072186 A & DE 3111600 A & FR 2478668 A & BE 888078 A & NL 8101341 A & CA 1155868 A & IT 8120078 D0	1-7
X	JP 2001-89774 A (濱地 邦昭) 2001. 04. 03, 段落【0001】, 段落【0011】実施例 (ファミリーなし)	1-3
X	WO 2004/058926 A1 (株式会社サンギ) 2004. 07. 15, 第 1 頁第 6～8 行, fig. 7 & US 2006/0137243 A1, 段落[0001], Fig. 7 & WO 2004/058925 A1 & AU 2003254796 A & CN 1717469 A & AU 2002357511 A & TW 200411041 A	1-3
X	JP 63-57689 A (岩村 淳一) 1988. 03. 12, 請求項 1, 実施例 2, 表 2, T7～T9 (ファミリーなし)	1-2
X	JP 2015-503656 A (ビュータマックス・アドバンスド・バイオフィ ーエルズ・エルエルシー) 2015. 02. 02, 請求項 1, 段落【0211】【表 4】実施例 2～4 & US 2013/0227878 A1, 請求項 1, TABLE 3, Example 1 2～4 & WO 2013/101256 A2 & EP 2798048 A2 & AU 2012363070 A & CA 2860488 A & KR 10-2014-0116175 A & CN 104302744 A & MX 2014008070 A	1, 3-4
A	JP 6-313178 A (東燃株式会社) 1994. 11. 08, 請求項 1, 段落【0001】, 【0012】 (ファミリーなし)	1-7