

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2006-510581

(P2006-510581A)

(43) 公表日 平成18年3月30日(2006.3.30)

(51) Int.C1.

F 1

テーマコード(参考)

C07C 309/17 (2006.01) C07C 309/17
C07C 309/58 (2006.01) C07C 309/58
C10L 1/24 (2006.01) C10L 1/24

4H006

4H013

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 19 頁)

(21) 出願番号 特願2004-529538 (P2004-529538)
 (86) (22) 出願日 平成15年8月15日 (2003.8.15)
 (85) 翻訳文提出日 平成17年2月8日 (2005.2.8)
 (86) 國際出願番号 PCT/US2003/025815
 (87) 國際公開番号 WO2004/016570
 (87) 國際公開日 平成16年2月26日 (2004.2.26)
 (31) 優先権主張番号 60/404,178
 (32) 優先日 平成14年8月16日 (2002.8.16)
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(71) 出願人 593059980
 サッチャム、インコーポレイテッド
 アメリカ合衆国 テキサス 78735,
 オースチン、エス.モパック エク
 スプレスウェイ 4330, スイート
 230
 (71) 出願人 504373233
 ユニバーシティ オブ サウス アラバマ
 アメリカ合衆国 アラバマ州 36688
 モービル、シーエスエーピー 253
 (74) 代理人 100078282
 弁理士 山本 秀策
 (74) 代理人 100062409
 弁理士 安村 高明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】スルホネートカチオンを含有するイオン液体

(57) 【要約】

本発明は、ドキュセート、ドキュセート改変体または、他のスルホネートアニオンを含む新規イオン液体に関する。本発明のイオン液体は、例えば、複分解により簡便に作製され得る。イオン液体はしばしば、疎水性であり、多くの炭化水素組成物、ポリマー組成物、および、超臨界二酸化炭素適用において有用である。イオン液体は、炭化水素組成物における静電気の集合を回避し得、従って、引火性および/または爆発性を最小限にし得る。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

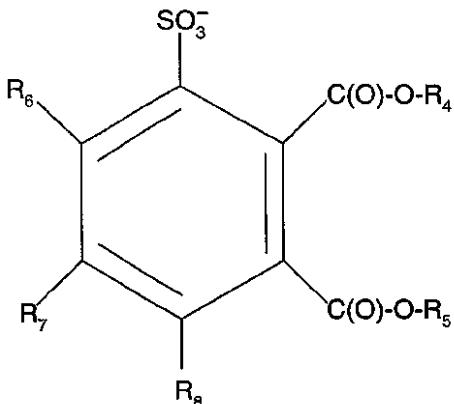
イオン液体組成物であって：

(a) 4 以上の炭素原子を有するカチオン；および

(b) $R_1 - O - C(O) - CH(SO_3^-) - R_3 - C(O) - O - R_2$ I；

および

【化 1】



II

10

20

からなる群から選択されるアニオンであって、ここで

R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 は、独立して、置換もしくは非置換のアルキル基もしくはアルケニル基からなる群から選択され；

R_3 は、置換もしくは非置換のアルケニル基、ヘテロアリーレン基、アリーレン基もしくはシクロアルキレン基であり；

R_6 、 R_7 および R_8 は、独立して、H、アルキル、 NO_2 、ハロ、シアノ、シリルおよび OH から選択されるか；

または、 R_1 および R_2 は、一緒になって環を形成し得るか；

または、 R_4 および R_5 は、一緒になって環を形成し得るか；

または R_6 および R_7 もしくは R_7 および R_8 は、一緒になって環を形成し得る、アニオ 30 ン

を含む、イオン液体組成物。

【請求項 2】

前記アニオンは、前記化学構造 I を有する、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 3】

R_1 および R_2 は、独立して、約 5 以上の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項 2 に記載の組成物。

【請求項 4】

R_1 および R_2 は、独立して、約 6 ~ 約 18 の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項 2 に記載の組成物。 40

【請求項 5】

R_3 が $- (CH_2)_n -$ であり、ここで、 n は、約 1 ~ 約 10 の整数である、請求項 2 に記載の組成物。

【請求項 6】

R_1 および R_2 は、独立して、約 6 ~ 約 18 の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項 5 に記載の組成物。

【請求項 7】

n は 1 であり、 R_1 および R_2 は、 $-CH_2 - CH(CH_2 CH_3) (CH_5 CH_2 - CH_3)$ である、請求項 6 に記載の組成物。

【請求項 8】

40

50

前記アニオンは、前記化学構造ⅠⅠを有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項9】

R₆、R₇およびR₈はHである、請求項8に記載の組成物。

【請求項10】

R₄およびR₅は、独立して、約5以上の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項8に記載の組成物。

【請求項11】

R₄およびR₅は、独立して、約6～約18の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項8に記載の組成物。

【請求項12】

R₄およびR₅は、独立して、約5以上の炭素原子を有するアルキル基から選択される、請求項9に記載の組成物。

【請求項13】

R₄およびR₅は-C H₂-CH(CH₂CH₃)(CH₂-CH₂-CH₃)である、請求項9に記載の組成物。

【請求項14】

さらに触媒を含有する、請求項2に記載の組成物。

【請求項15】

さらに触媒を含有する、請求項7に記載の組成物。

【請求項16】

さらに炭化水素を含有する、請求項2に記載の組成物。

【請求項17】

さらに炭化水素を含有する、請求項7に記載の組成物。

【請求項18】

さらに触媒を含有する、請求項8に記載の組成物。

【請求項19】

さらに触媒を含有する、請求項9に記載の組成物。

【請求項20】

さらに炭化水素を含有する、請求項8に記載の組成物。

【請求項21】

さらに炭化水素を含有する、請求項9に記載の組成物。

【請求項22】

前記カチオンは、第四級アンモニウムまたは第四級ホスホニウムである、請求項1に記載の組成物。

【請求項23】

前記第四級アンモニウムカチオンは、置換または非置換のピリジニウム、ピリダジニウム、ピリミジニウム、ピラジニウム、イミダゾリウム、ピラゾリウム、チアゾリウム、オキサゾリウム、トリアゾリウム、イミダゾリニウム、メチルピロリジニウム、イソチアゾリウム、イソキサゾリウム、オキサゾリウム、ピロリウム、およびチオフェニウムからなる群から独立して選択される、請求項22に記載の組成物。

【請求項24】

前記カチオンが、アルキル基およびアリール基からなる群から選択される1つ以上の基で置換されたアンモニウムカチオンである、請求項1に記載の組成物。

【請求項25】

前記第四級アンモニウムカチオンがB M I Mである、請求項22に記載の組成物。

【請求項26】

前記カチオンが、テトラブチルアンモニウム、トリブチルメチルアンモニウム、テトラブチルホスホニウム、テトラエチルアンモニウム、N,N-ジアルキルピロリジニウム、トリメチル2-ヒドロキシエチルアンモニウム、N,N'-ジアルキルイミダゾリウム、N-アルキルピリジニウムまたはこれらの混合物である、請求項1に記載の組成物。

10

20

30

40

50

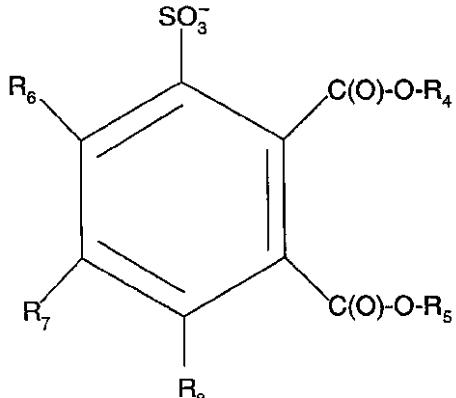
【請求項 27】

少なくとも約 55重量%のイオン液体を含有するイオン液体組成物であって：

(a) カチオン；および

(b) $R_1 - O - C(O) - CH(SO_3^-) - R_3 - C(O) - O - R_2$ I；お
よび

【化2】



II

10

20

30

40

50

からなる群から選択されるアニオンであって、ここで、

R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 は、独立して、置換もしくは非置換のアルキル基もしくはアルケニル基からなる群から選択され；

R_3 は、置換もしくは非置換のアルケニル基、ヘテロアリーレン基、アリーレン基もしくはシクロアルキレン基であり；

R_6 、 R_7 および R_8 は、独立して、H、アルキル、アルコキシ、アルキルチオ、 SO_3^- 、 HNO_2 、ハロ、シアノ、シリルおよびOHから選択されるか；

または、 R_1 および R_2 は、一緒になって環を形成し得るか；

または、 R_4 および R_5 は、一緒になって環を形成し得るか；

または R_6 および R_7 もしくは R_7 および R_8 は、一緒になって環を形成し得る、アニオン

を含む、イオン液体組成物。

【請求項 28】

前記イオン液体は疎水性である、請求項 27 に記載の組成物。

【請求項 29】

前記カチオンは、第四級アンモニウムまたは第四級ホスホニウムである、請求項 28 に記載の組成物。

【請求項 30】

前記第四級アンモニウムカチオンが、独立して、置換または非置換のピリジニウム、ピリダジニウム、ピリミジニウム、ピラジニウム、イミダゾリウム、ピラゾリウム、チアゾリウム、オキサゾリウム、トリアゾリウム、イミダゾリニウム、メチルピロリジニウム、イソチアゾリウム、イソキサゾリウム、オキサゾリウム、ピロリウム、およびチオフェニウムからなる群から選択される、請求項 29 に記載の組成物。

【請求項 31】

前記カチオンが、アルキル基およびアリール基からなる群から選択される 1 つ以上の基で置換されたアンモニウムカチオンである、請求項 30 に記載の組成物。

【請求項 32】

前記第四級アンモニウムカチオンが BMIM である、請求項 30 に記載の組成物。

【請求項 33】

前記カチオンは、テトラブチルアンモニウム、トリブチルメチルアンモニウム、テトラブチルホスホニウム、テトラエチルアンモニウム、N,N-ジアルキルピロリジニウム、ト

リメチル 2 - ヒドロキシエチルアンモニウム、N , N' - ジアルキルイミダゾリウム、N - アルキルピリジニウムまたはこれらの混合物である、請求項 2 7 に記載の組成物。

【請求項 3 4】

前記アニオンがドキュセートである、請求項 2 7 に記載の組成物。

【請求項 3 5】

前記アニオンが、前記化学構造 I を有し、かつ、疎水性である、請求項 2 7 に記載の組成物。

【請求項 3 6】

前記アニオンが、前記化学構造 II を有し、かつ、疎水性である、請求項 2 7 に記載の組成物。

10

【請求項 3 7】

前記アニオンが、前記化学構造 I I を有し、かつ、親水性である、請求項 2 7 に記載の組成物。

【請求項 3 8】

前記アニオンが、前記化学構造式 I I I を有し、かつ、親水性である、請求項 2 7 に記載の組成物。

【請求項 3 9】

前記イオン液体が疎水性である、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 4 0】

前記イオン液体が親水性である、請求項 1 に記載の組成物。

20

【請求項 4 1】

前記アニオンが、(i) スルホコハク酸のジ - n - シクロヘキシリエステル；(i i) スルホコハク酸のジ - n - オクチルエステル；(i i i) スルホコハク酸のジ - n - ブチルエステル；(i v) スルホコハク酸のジ - イソブチルエステル；(v) スルホコハク酸のジ - ネオペンチルエステル；(v i) スルホコハク酸のジ - n - ヘプチルエステル；および(v i i) スルホコハク酸のジ - n - ヘプチルエステル、のアニオンからなる群から選択される、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 4 2】

前記カチオンがテトラブチルアンモニウムである、請求項 4 1 に記載の組成物。

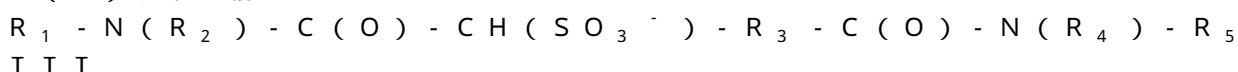
30

【請求項 4 3】

イオン液体組成物であって：

(a) オニウムカチオン；および

(b) 以下の構造：



を有するアニオンであって、ここで、R₁、R₂、R₃、R₄ および R₅ は、独立して、水素原子および炭素含有基からなる群から選択される、アニオンを含み、該イオン液体は、約 100 未満の融点を有する、イオン液体組成物。

【請求項 4 4】

R₁ が 2 - エチルヘキシリルであり、R₂ がエチルであり、R₃ がメチレン基であり、R₄ がエチルであり、かつ、R₅ が 2 - エチルヘキシリルである、請求項 4 3 に記載の組成物。

40

【請求項 4 5】

前記カチオンがテトラブチルアンモニウムである、請求項 4 4 に記載の組成物。

【請求項 4 6】

前記カチオンが 1 - メチル - 3 - ヘキシリルイミダゾリウムである、請求項 4 4 に記載の組成物。

【請求項 4 7】

R₁ が 2 - エチルヘキシリルであり、R₂ が水素原子であり、R₃ がメチレン基であり、R₄ が水素原子であり、かつ、R₅ が 2 - エチルヘキシリルである、請求項 4 3 に記載の組成物。

50

【請求項 4 8】

前記カチオンがテトラブチルアンモニウムである、請求項47に記載の組成物。

【請求項 4 9】

前記カチオンが1-メチル-3-ヘキシリミダゾリウムである、請求項47に記載の組成物。

【請求項 5 0】

さらに炭化水素を含有する、請求項43に記載の組成物。

【請求項 5 1】

前記カチオンおよび前記アニオンが、約100未満の融点を有する融解塩を形成し、該融解塩が、テトラブチルアンモニウムドキュセート、MeBu₃Nドキュセート、Me₃N(CH₂)₆NMe₃ドキュセート、Bu₄Pドキュセート、Et₄Nドキュセート、1-ヘキシリ-3-メチルイミダゾリウムドキュセート、臭化1-オクチル-3-メチルイミダゾリウムドキュセート、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムドキュセートおよび1-メチル-2-エチルイミダゾリウムドキュセートからなる群から選択される、請求項1に記載の組成物。10

【請求項 5 2】

組成物であって：

(a) (i) ドキュセート、(ii) スルホスクシン酸のビス(オルガノ)エステル誘導体のアニオン、および(iii) スルホスクシン酸のビス(オルガノアミド)誘導体のアニオンからなる群から選択されるアニオンを含有するイオン液体；ならびに20

(b) 超臨界条件のCO₂

を含み、ここで、該イオン液体は、該CO₂中に溶解されている、組成物。

【請求項 5 3】

組成物であって：

(a) 炭化水素燃料；ならびに

(b) (i) ドキュセート、(ii) スルホスクシン酸のビス(オルガノ)エステル誘導体のアニオン、および(iii) スルホスクシン酸のビス(オルガノアミド)誘導体のアニオンからなる群から選択されるアニオンを含有するイオン液体を含む、組成物。30

【請求項 5 4】

組成物であって：

(a) ポリマー；ならびに

(b) (i) ドキュセート、(ii) スルホスクシン酸のビス(オルガノ)エステル誘導体のアニオン、および(iii) スルホスクシン酸のビス(オルガノアミド)誘導体のアニオンからなる群から選択されるアニオンを含有するイオン液体を含む、帯電防止添加剤

を含む、組成物。

【請求項 5 5】

前記ポリマーが酢酸ポリビニルである、請求項54に記載の組成物。

【請求項 5 6】

イオン液体組成物であって：

(a) 4以上の炭素原子を有するオニウムカチオン；および

(b) ドキュセートおよびドキュセート変形体からなる群から選択されるアニオンを含む、組成物。40

【請求項 5 7】

前記イオン液体が、約40以上であるが、約80未満である温度範囲にて融解する、請求項56に記載のイオン液体組成物。

【請求項 5 8】

組成物であって、以下の第2のイオン液体と合わせられる第1のイオン液体：

(a) 該第1のイオン液体であって、(i) アンモニウムカチオン、スルホニウムカチ50

オンおよびホスホニウムカチオンからなる群から選択されるカチオンであって、該カチオンが、四面体対称でない、カチオン、(i i)式 $A_{1_y}R_{3y+1}$ を有し、ここで、yが0以上であり、Rは、アルキル基およびハロゲン基からなる群から独立して選択される、アニオン、を含む、第1のイオン液体；

(b) 第2のイオン液体であって、(i)ドキュセート、(i i)スルホスクシン酸のビス(オルガノ)エステル誘導体のアニオン、および(i i i)スルホスクシン酸のビス(オルガノアミド)誘導体のアニオンからなる群から選択されるアニオンを含む、第2のイオン液体を含む、組成物。

【請求項 5 9】

さらに反応物を含み、前記第1のイオン液体および前記第2のイオン液体が、該反応物に対する効果的な反応溶媒である、請求項5 8に記載の組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

(関連出願のデータ)

本出願は、米国仮特許番号 60 / 404,178 (2002年8月16日出願) および米国仮特許番号 60 / 404,202 (2002年8月16日出願) に対する優先権を主張する。

【0 0 0 2】

(発明の分野)

本発明は、ドキュセートアニオン、ドキュセート改変体アニオンまたは、他のスルホネートアニオンを含むイオン液体を含む組成物、ならびに、上記組成物を作製するためのプロセスに関する。

【背景技術】

【0 0 0 3】

(発明の背景および要旨)

イオン液体は、大気温度または大気に近い温度にて液体である塩である。イオン液体は、多数の用途を有し、これらとしては、化学プロセスおよび反応における有機溶媒の置換、水溶性廃棄物の流れからの有機化合物の抽出、および、キャパシターおよびバッテリーのようなデバイスにおける電解質としての用途が挙げられる。これは、従来の有機溶媒とは異なり、イオン液体は、不揮発性かつ不引火性であるためである。これらの特性は、蒸発に対する損失を減少し、揮発性有機物の放出を排除し、安全性を高めるのに役立つ点で好都合である。

【0 0 0 4】

イオン液体の他の特性はまた、好都合であることが分かっている。例えば、多くのイオン液体は、液体のままでいる、広範な温度範囲を有し、そしてまた、広範なpH範囲にわたって安定である。これは、厳しいpHでの高温プロセスのために有利である。さらに、いくつかのイオン液体システムは、溶媒および触媒の両方として使用され得る。例えば、[b m i m] - A_{1,2}C_{1,7} および [e m i m] - A_{1,2}C_{1,7} は、Friedel-Crafts反応において溶媒および触媒として使用され得、ここで、b m i mは、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムであり、e m i mは1-エチル-3-メチルイミダゾリウムである。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 5】

上記の理由のために、好都合な特性を有する新しいイオン液体化合物を発見することが望ましい。このような化合物が、少量の廃棄物および不純物を伴う単純なプロセスにより作製され得る場合、このイオン液体はさらに望ましい。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

【0006】

有利なことには、新しいイオン液体化合物が発見された。この化合物は、ドキュセートまたは他のスルホネートアニオンのいずれかを含み、高純度のイオン液体を生成し得る単純なプロセスにより作製される。

【0007】

(発明の詳細な説明)

本明細書中で使用される場合、「イオン液体」は、カチオンおよびアニオンを含む塩を意味する。塩（または、塩の水和物もしくは溶媒和物）は、大気温度または大気に近い温度にて液体である（すなわち、約100℃未満の融点または溶解範囲を有する）。イオン液体は、2つ以上の異なる塩（例えば、2つ以上の異なるカチオン、アニオン、またはその両方を含む塩の混合物）を含み得る。本発明のイオン液体は、しばしば、水和物および溶媒和物である。従って、水和物および溶媒和物の両方が、「イオン液体」の定義の範囲内であるとみなされる。

10

【0008】

本明細書中で使用される場合、「イオン液体」は、水と部分的または完全に混和できるイオン液体を意味する。

【0009】

本明細書中で使用される場合、「疎水性イオン液体」は、水と比較的混和できない（すなわち、大気条件にて2相を形成する）イオン液体を意味する。

20

【0010】

本明細書中で使用される場合、「組成物」は、組成物を構成する物質の混合物、ならびに、組成物を含む物質の反応または分解により形成される生成物を含む。

【0011】

本明細書中で使用される場合、「由来する」は、特定の物質から作製または混合されることを意味するが、これらの物質の単純な混合からなる必要はない。特定の物質（material）「由来の」物質（substance）は、元々の物質の単純な混合物であり得、そしてまた、これらの物質の反応生成物を含み得るか、または、元々の物質の反応生成物もしくは分解生成物から完全に構成され得る。

【0012】

本明細書中で使用される場合、「ハロ」は、クロロ、ブロモ、フルオロまたはヨードを意味し、アリーレンは、フェニレン、ナフチレン、ビフェニレン、アントラセニレン、フェナントレンなどのような二価の芳香族基を意味し、ヘテロアリーレンは、ピローレン、フラニレン、チオフェニレン、ピリジニレンなどのような二価のヘテロ芳香族基を意味し、アルキレンは、1つ以上のヘテロ原子（例えば、窒素または酸素）で置換され得る、二価のアルカン基を意味し、シクロアルキレンは、1つ以上のヘテロ原子（例えば、窒素または酸素）で置換され得る、二価のシクロアルケン基を意味し、アルケニレンは、1つ以上のヘテロ原子（例えば、窒素または酸素）で置換され得る二価のアルケン基を意味する。

30

【0013】

本明細書中で使用される場合、「ドキュセート」は、スルホンコハク酸のビス（2-エチルヘキシル）エステルのアニオンである。ドキュセート（アニオン）の化学式は、 $C_2H_{37}O_7S^-$ である。本明細書中で使用される場合、「ドキュセート改変体」は、以下に記載される化学構造IおよびIIにより説明される化合物を含み、そして、スルホンコハク酸のビス（オルガノ）エステル誘導体のアニオンおよびスルホコハク酸のビス（オルガノアミノ）誘導体のアニオンを含むと考えられる。

40

【0014】

本明細書中で復唱される任意の数値は、任意の最低値と任意の最高値との間に、少なくとも2単位の分離が存在すると仮定すると、1単位の増分の最低値から最高値の全ての値を含む。一例として、成分の量または、プロセス変数の値（例えば、温度、圧力、時間など）は、例えば、1~90、好ましくは、20~80、より好ましくは30~70である

50

ことが提示される場合、15～85、22～68、43～51、30～32などのような値が、本明細書において明白に列挙されることが意図される。1未満の値について、適宜1単位は、0.0001、0.001、0.01または0.1であるとみなされる。これらは、具体的に意図されるほんの例であり、列挙された最低値と最高値との間の数値の全ての可能な組み合わせが、同様の様式で、本願において明白に提示されるとみなされるべきである。

【0015】

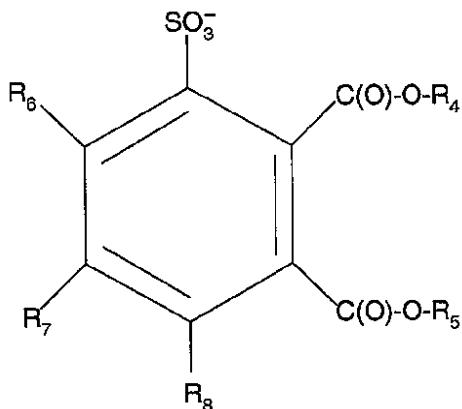
本発明のイオン液体は、1つ以上の化合物から構成される。従って、イオン液体は、純粹な化合物であり得るか、または、化合物の混合物であり得る。各化合物は、以下に記載する、アニオンまたはアニオンの混合物、および、カチオンまたはカチオンの混合物を含む。

【0016】

$R_1 - O - C(O) - CH(SO_3^-) - R_3 - C(O) - O - R_2$ I ; および

【0017】

【化3】



II

【0018】

。

【0019】

(アニオン)

本発明の化合物の例示的なアニオンとしては、上記の構造IおよびIIにおいて R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 から選択される化学構造を有し、独立して、置換もしくは非置換のアルキル基もしくはアルケニル基からなる群から選択されるものが挙げられる。 R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 のアルキル基またはアルケニル基は、イオン液体が、所望の特性を有するように、十分な数の炭素原子を有すべきである。例えば、疎水性のイオン液体が所望される場合、イオン液体における炭素原子の総数は、代表的には、親水性のイオン液体が所望される場合よりも多い。しかし、アニオン中に多すぎる炭素原子が存在する場合、このイオン液体は、蒸気圧、双極子モーメント、極性などの特性の減少に起因して、イオン液体としてあまり有用でなくなり得る。

【0020】

疎水性イオン液体について、 R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 は、好ましくは、独立して、約5以上の炭素原子、好ましくは、約6～約18の炭素原子を有するアルキル基から選択される。 R_1 、 R_2 、 R_4 および R_5 についての1つの好ましい基は、 $-CH_2-CH(CH_2CH_3)(CH_5CH_2-CH_3)$ である。この基は、イオン液体に特性を与え、費用の面でも有用であり、製造するのに便利である。

【0021】

上記構造Iにおける R_3 は、置換または非置換のアルキレン基、ヘテロアリーレン基、アリーレン基、またはシクロアルキレン基である。好ましくは、 R_3 は、置換または非置

10

20

30

40

50

換のアルキレン基であり、なおより好ましくは、R₃は、-(CH₂)_n-であり、ここで、nは、約1~約10の整数である。

【0022】

R₆、R₇およびR₈は、独立して、水素(H)であるか、または、例えば、アルキル、NO₂、ハロ、シアノ、シリルおよびOHのような別の置換基から選択される。好ましくは、R₆、R₇およびR₈はHである。

【0023】

いくつかの例において、2つ以上の隣接する置換基(例えば、R₁とR₂、R₄とR₅、R₆とR₇、および/または、R₇とR₈)は、一緒になって、5~7員の炭素環式環のような環を形成し得る。このような炭素環式環の例としては、シクロペンチル環およびシクロヘキシル環が挙げられる。

【0024】

R₁、R₂、R₃、R₄、R₅、R₆、R₇およびR₈は、必要に応じて、1つ以上の置換基で置換され得る。化合物または化合物の混合物が所望のイオン液体特性を有する限り、置換基の型は、特に重要でない。従って、置換基としては、通常、アルキル、NO₂、ハロ、シアノ、シリル、OHおよび他の適切な置換基からなる群から選択されるもののような、代表的および非代表的な有機置換基が挙げられる。置換基自体は、しばしば、さらに分枝し得る。

【0025】

イオン液体を作製するために使用され得る別の例示的なアニオンは、以下の化学構造：

$$\begin{array}{ccccccc} R_1 & - N(R_2) & - C(O) & - CH(SO_3^-) & - R_3 & - C(O) & - N(R_4) - R_5 \\ | & | & | & | & | & | & | \\ I & I & I & I & I & I & I \end{array}$$

を有するドキュセート改変体である。

【0026】

化学構造IIIにおけるR₁、R₂、R₃、R₄およびR₅は、独立して、水素原子(H)または、炭素含有基(例えば、アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ベンジル、アルキル-エーテルなど)から選択され得る。

【0027】

ある実施形態において、アニオンの供給源は、2-エチルヘキシルアミドスルホネート塩のナトリウム塩であり、これは、本明細書の利点を有する公知の技術を用いて合成され得る。例えば、R₁およびR₅が各々2-エチルヘキシル基であり、R₂およびR₄が各々水素原子であり、かつR₃がメチレン基である上記化学構造IIIを有するアニオンが調製された。2つの異なるイオン液体を、まず、ナトリウム塩として単離し、次いで、2つの異なるカチオンの供給源と反応させることによって、このアニオンを用いて調製した。一方のイオン液体におけるカチオンは、テトラブチルアンモニウムカチオンであった。他方のイオン液体におけるカチオンは、1-メチル-3-ヘキシルイミダゾリウムであった。

【0028】

他の実験において、R₁およびR₅が各々2-エチルヘキシル基であり、R₂およびR₄が各々エチル基であり、かつ、R₃がメチレン基である上記化学構造IIIを有する第2のアニオンが調製された。2つ以上のイオン液体を、まず、ナトリウム塩として単離し、次いで(別々の実験において)、上記と同じ2つのカチオン(すなわち、テトラブチルアンモニウムおよび1-メチル-3-ヘキシルイミダゾリウム)の供給源と反応させることによって、このアニオンを用いて調製した。

【0029】

化学構造IIIを有するアニオンから、イオン液体が作製された実験に基づいて、ドキュセート塩ならびにその誘導体および改変体の場合と同様に、化学構造IIIにおけるR基の各々は、長さまたは組成物において変化し得、適切なカチオン(例えば、オニウムカチオン)と合わせた場合、なおイオン液体を生じると考えられる。

【0030】

10

20

30

30

40

50

(カチオン)

イオン液体がその意図される用途に適するような特性を有する限り、產生されるイオン液体のカチオンは、特に重要でない。代表的な有用なカチオンとしては、例えば、「オニウム」カチオンが挙げられる。オニウムカチオンとしては、置換または非置換の、アンモニウムカチオン、ホスホニウムカチオンおよびスルホニウムカチオンのようなカチオンが挙げられる。好ましいオニウムカチオンとしては、例えば、置換または非置換の、N-アルキルまたはN-アリールピリジニウム、ピリダジニウム、ピリミジニウム、ピラジニウム、イミダゾリウム、ピラゾリウム、チアゾリウム、オキサゾリウム、トリアゾリウム、イミダゾリニウム、メチルピロリジニウム、イソチアゾリウム、イソキサゾリウム、オキサゾリウム、ピロリウムおよびチオフェニウムが挙げられる。置換基は、1つ以上の以下の基が挙げられる：ハロ、アルキル基および、フェニルのようなアリール基。さらに、2つの隣接する置換基は、一緒にになって、アルキレンラジカルを形成し得、それによって、N上に集中する環構造を形成する。アルキルラジカル、フェニルラジカルおよびアルキレンラジカルは、さらに置換され得る。別の特に好ましいカチオンは、1つ以上の基（例えば、アルキル基およびフェニルのようなアリール基）で置換されたアンモニウムカチオンである。多くのこののようなカチオンおよび置換されたカチオンは、米国特許第5,827,602号および同第5,965,054号（その全体が、参考として援用される）に記載されている。

10

20

【0031】

他の適切なカチオンとしては、BIM、テトラブチルアンモニウム、トリブチルメチルアンモニウム、テトラブチルホスホニウム、テトラエチルアンモニウム、N,N-ジアルキルピロリジニウム、トリメチル2-ヒドロキシエチルアンモニウム、N,N'-ジアルキルイミダゾリウム、N-アルキルピリジニウム、または、これらの混合物が挙げられる。カチオンは、オニウムカチオンであり得、必要に応じて、4以上の炭素原子を含む。

30

40

【0032】

（構造I～IIIを有する化合物、およびこれらの混合物を作製するためのプロセス）構造I～IIIのイオン液体化合物は、多数の異なるプロセスにより簡便に作製され得る。本発明の疎水性もしくは親水性のイオン液体または混合物を作製するために適切な1つのプロセスは、複分解（すなわち、二重分解反応）を用いて、それにより、2つ以上の化合物の反応が2つ以上の新しい化合物（このうち1つはイオン液体である）を形成する工程を包含する。例えば、[bim]Clとナトリウムドキュセートを反応させることにより、[bim]ドキュセートおよびNaClを生じる。複分解反応により產生される2つ以上の化合物は、次いで、任意の手段により分離され得る。

30

50

【0033】

2つ以上の化合物を接触させて、イオン液体を形成する様式は、所望の反応が生じる限りは、特に重要でない。一般に、化合物は、任意の順序で混合され得、インサイチュで形成され得るか、または、少なくとも部分的に混和でき、任意の化合物と有意に反応しない水のような溶媒と一緒に混合され得る。

50

【0034】

出発化合物はしばしば、容易に入手可能であり、さらに、所望の出発化合物を作製するために多くの合成が、当業者に利用可能である。混合条件は、用いられる特定の化合物および所望の生成物に依存して変化し得る。大抵の例において、化合物と、任意の溶媒（例えば、水またはジクロロメタン）とを、大気圧にて、かつ、反応を起こすのに十分高いが、任意の出発化合物を分解または煮沸するほど高くない温度にて、接触させることが受容可能である。一般に、接触温度は、約75～約110の範囲であり得、好ましくは、約85～約100の範囲であり得る。水が溶媒として用いられる場合、約75～約110の温度がときどき好ましい。なぜならば、これは、代表的にイオン液体と水との間に形成するエマルジョンを壊す傾向があるためである。一方で、溶媒が有機（例えば、ジクロロメタン）である場合、好ましい温度は、代表的には、低く、実質的に、通常の室温付近（例えば、25）または、室温よりわずかに高い。

【0035】

上昇した温度が達成および維持される様式は、特に重要でない。しばしば、化合物が混合されるか、または、出発化合物が別々に加熱され、次いで混合され得るように、任意の加熱要素が用いられ得る。同様に、適切な大きさおよび素材である限り、任意の容器または反応器が用いられ得る。しばしば、反応を促進するために、攪拌手段を使用することが有利である。

【0036】

一般に、上昇した温度は、所望の反応が所望の程度まで起こるまで、少なくとも十分な時間維持される。いくつかの例において、上昇した温度は、反応が完了するのに要する時間よりも長い時間維持されることが望ましくあり得る。この様式において、水、または、副産物として形成されるか、もしくは、溶媒として存在する、任意の低沸点化合物が、煮沸により除去され得る。

【0037】

出発物質の各々の量は、所望の収量に依存して変化し得る。一般に、およそ化学量論の量の反応物（すなわち、約1:1の比）を用いることによって、しばしば高い収量が得られる。しかし、当業者が理解するように、異なる反応条件は、最適な収量が生じる反応物の比を変更し得る。

【0038】

2つ以上の異なる塩を含有するイオン液体の混合物を作製することが所望される場合、3つ以上の異なる化合物の混合物を用いて、種々の塩を形成させることによって達成され得る。次いで、所望される場合、得られたイオン液体塩混合物を、混合物として用いて、個々の塩が慣用的な手段により分離され得る。

【0039】

必要な場合、イオン液体またはイオン液体混合物が、任意の適切な手段により溶媒および/または反応混合物から除去され得、その最大効率は、イオン液体または混合物の型および所望の純度に依存して変化し得る。適切な回収手段としては、ロータリーエバボレーションまたは蒸留、共沸点蒸留、イオンクロマトグラフィー、液体-液体抽出、結晶化、浸透気化法、乾燥剤および逆浸透が挙げられる。

【0040】

上記の手順を用いて、疎水性イオン液体または親水性イオン液体を作製し得るが、いくつかの適用において、疎水性イオン液体を作製することが好ましい。これは、疎水性イオン液体が、しばしば、しばしば、反応媒体として使用される水にあまり溶解性でないからである。従って、単純な液体-液体抽出を用いて、可溶性副産物から疎水性イオン液体を分離し得る。対照的に、親水性イオン液体は、しばしば、副産物と混和できる。結果として、異なる分離方法（例えば、溶媒抽出）が用いられ得る。例えば、アルキルクロライド（例えば、メチレンクロライド）のような疎水性溶媒を用いてイオン液体を抽出することが望ましくあり得るか、または、必要であり得る。

【0041】

(本発明のイオン液体の特徴および使用)

本発明のプロセスにより生じるイオン液体の純度は、しばしば、55%以上、好ましくは60%以上、より好ましくは、70%以上、最も好ましくは80%以上であり得る。このことは、電気工学のような高い純度の材料を必要とするプロセスに有利である。イオン液体はまた、好ましくは疎水性であり、従って、有機溶媒に対する代用品として多くのプロセスにおいて、そして、 $ZnCl_2$ 、 $CuCl_2$ 、 $AlCl_3$ および有機触媒のような触媒との混合物において有用である。

【0042】

本発明のイオン液体はまた、しばしば、アルカン（例えば、ヘキサン）のような炭化水素との混合物において有用である。この混合物はしばしば、静電気の電荷を保持せず、従って、容易には点火または爆発しない。

【0043】

10

20

30

40

50

(超臨界CO₂適用におけるドキュセートおよびドキュセート改変体)

テトラブチルアンモニウムドキュセートが、超臨界二酸化炭素(CO₂)に溶解性であることが見出されている。CO₂を用いる超臨界適用は、代表的に、約32より上の温度および、約1,070psiより上の圧力にて操作する。ドキュセートおよびドキュセート改変物がベースのイオン液体は、洗浄、合成および分離の適用のための超臨界CO₂へと添加するための、有用なアジュバント、添加物および界面活性剤であると考えられる。

【0044】

(帯電防止剤としてのドキュセートおよびドキュセート改変体)

ドキュセートおよびドキュセート改変体ベースのイオン液体は、燃料適用およびポリマー適用のための有用な帯電防止添加剤であると考えられる。ドキュセートおよびドキュセート改変体ベースのイオン液体は部分的にかまたは完全に炭化水素(例えば、ヘキサンのようなアルカン)と混和できる傾向があり、そして、帯電防止添加剤として燃料に添加され得る。これらのイオン液体はまた、帯電防止添加剤として、ポリマー(例えば、ポリビニルアセテート)に添加され得る。

【0045】

(イオン液体ブレンドにおけるドキュセートおよびドキュセート改変体)

1つの実施形態において、2つ以上のイオン液体が一緒にブレンドされて、改善された反応溶媒を形成する。ルイス酸のイオン液体が、ドキュセートまたはドキュセート改変体に基づくイオン液体と有利にブレンドされて、反応物間の良好な混合を提供して、反応動力学を改善する、改善された反応溶媒を形成し得る。ドキュセートおよびドキュセート改変体のイオン液体は、炭化水素の流れと少なくとも比較的混和できる傾向があるため、これらは、2相の形成を阻害し、反応物間の混合および接触を改善する傾向がある。本発明のスルホネートアニオン(例えば、ドキュセートおよびドキュセート改変体)イオン液体とのブレンドを作製するのに有用であると考えられているルイス酸のイオン液体の例は、2003年8月に出願された、Roger Moultonにより発明された発明の名称「Lewis Acid Ionic Liquids」の係属米国特許(通し番号は現在知られていない)に開示されており、これは、本明細書中に完全に示されているかのように参考として援用される。

【0046】

これらのブレンドにおいて有用な例示的なルイス酸のイオン液体としては、(i)アンモニウムカチオン、スルホニウムカチオンおよびホスホニウムカチオンから選択され、14未満の総炭素原子を有するカチオン；ならびに(ii)式Al_yR_{3y+1}を有し、ここで、yが0以上であり、Rは、アルキル基およびハロゲン基からなる群から独立して選択される、アニオンを有するイオン液体が挙げられる。ブレンドにおいてルイス酸のイオン液体に適したアニオンは、塩化アルミニウムアニオンである。

【0047】

ルイス酸のイオン液体に適したカチオンは、テトラアルキルアンモニウムである。所望のイオン液体特性に依存して、1つ以上のアルキル基が、必要に応じて1つ以上の適切な置換基で置換されるのが有利であり得る。適切な置換基としては、例えば、ハロゲン(例えば、塩化物、臭化物またはヨウ化物)が挙げられる。特に好ましいテトラアルキルアンモニウムカチオンとしては、トリメチルエチルアンモニウム、トリメチルクロロメチルアンモニウム、トリメチルブチルアンモニウムおよびトリブチルメチルアンモニウムが挙げられる。

【0048】

ルイス酸のイオン液体のための別の適切なカチオンは、N-アルキル置換、飽和複素環(例えば、ピペリジニウムおよびモルホリウム)である。特に、窒素上にて、アルコキシ基またはアルキル基(例えば、-(CH₂)₂OME、ブチルまたはプロピル)で置換されたピペリジニウムが好ましくは有利である。ピロリジンベースのカチオンがまた使用され得る。カチオンは、エーテル官能性(例えば、NC₂CH₂OCH₃⁺)を含み得る。

10

20

30

40

50

。カチオンは、ハロゲン化アルキル基を含み得る。

【0049】

ブレンドのための例示的なルイス酸のイオン液体としては、アンモニウム塩（例えば、 $\text{Me}_3\text{Bu}_3\text{NCl}$ 、 $\text{Me}_3\text{Pen}\text{C}_1\text{l}$ 、 $\text{Me}_3\text{P}\text{t}\text{C}_1\text{l}$ 、 MeEt_3NCl 、 $\text{Me}_2\text{Et}_2\text{NCl}$ 、 $\text{C}_1\text{-CH}_2\text{-NMe}_3\text{Cl}$ または $\text{N-} \text{Me}_3\text{N-} \text{P}\text{t}\text{C}_1\text{l}$ ）が供給源である、塩化アンモニウムのアニオンおよびカチオンを有するイオン液体が挙げられる。他の例示的なルイス酸のイオン液体としては、 $\text{N-} \text{Alkyl}$ 置換ピペリジニウムヘプタクロロジアルミニート、トリメチルクロロメチルアンモニウムヘプタクロロジアルミニート、トリメチルブチルアンモニウムヘプタクロロジアルミニート、および、トリブチルメチルアンモニウムヘプタクロロジアルミニートが挙げられる。

10

【0050】

以下の実施例は、本発明を制限することは企図されず、むしろ、本発明が用いられ得る少数の具体的な方法を例示することのみが意図される。

【実施例】

【0051】

（実施例1 - テトラブチルアンモニウムドキュセートの合成）

1モルのナトリウムドキュセート（444グラム）を、2リットルの水に溶解し、次いで、1モルの臭化テトラブチルアンモニウム（321グラム）を固体として添加した。数分間攪拌した後、攪拌をやめ、溶液を2層に分離した。上の層を分液漏斗で回収した。これを1リットルの水で2回洗浄し、100まで加熱して、層の解離を促進した。得られたテトラブチルアンモニウムドキュセートを110まで加熱し、その中に溶解しているいかなる水も取り除いた。収量は、ほぼ定量化されていた（624グラム、94%収率）。

20

【0052】

（実施例2～5）

以下の表1における実施例2～5のイオン液体を、約1モルの表1の出発物質で、実施例1の1モルの臭化テトラブチルアンモニウムを置換した以外は、実施例1と実質的に同じ様式で作製した。

【0053】

（表1）

30

【0054】

【表1】

実施例	出発物質	イオン液体	水中の溶解性
2	$\text{Me}(\text{n-Bu})_3\text{NBr}$	$\text{Me}(\text{n-Bu})_3\text{N}$ ドキュセート	疎水性
3	$\text{Me}_3\text{N}(\text{CH}_2)_6\text{NMe}_3\text{Br}$	$\text{Me}_3\text{N}(\text{CH}_2)_6\text{NMe}_3$ ドキュセート	疎水性
4	$\text{n-Bu}_4\text{PBr}$	$\text{n-Bu}_4\text{P}$ ドキュセート	疎水性
5	Et_4NBr	Et_4N ドキュセート	混和性

【0055】

（実施例6～10）

以下の表2における実施例6～10のイオン液体を、ナトリウムドキュセートを、ジクロロメタン中に溶解し、そして、ジクロロメタン中、別のフラスコにて、表2の出発物質を溶解することによって作製した。2つの溶液を混合し、約12時間攪拌した。次いで、この溶液を濾過して沈殿した固体塩を除去し、次いで、濁ったシロップまでエバボレートした。この濁ったシロップを、次いで、ジエチルエーテル、ヘキサンまたはこれらの混合物で抽出し、再度濾過して、固体塩を除去した。ロータリーエバボレーション後、残渣をヘキサン／エーテルの再溶解させ、さらなる固体が形成されなくなるまで、濾過のプロセスを繰り返した（混合物中のエーテルの小さな分画を漸次的に用いて）。得られた塩を、次いで、水で洗浄し、真空下で乾燥させた後、無機塩の最終除去に影響を与えた。

40

【0056】

50

(表2)

【0057】

【表2】

実施例	出発物質	イオン液体
6	臭化1-n-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウム	1-n-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウム ドキュセート
7	臭化1-n-オクチル-3-メチルイミダゾリウム	臭化1-n-オクチル-3-メチルイミダゾリウム ドキュセート
8	臭化1-n-ブチル-3-メチルイミダゾリウム	1-n-ブチル-3-メチルイミダゾリウム ドキュセート
9	臭化1-メチル-2-エチルイミダゾリウム	1-メチル-2-エチルイミダゾリウム ドキュセート
10	臭化テトラ-n-ブチルアンモニウム	テトラ-n-ブチルアンモニウムドキュセート

10

20

30

40

50

【0058】

実施例6～10のイオン液体は、一般に、疎水性のイオン液体であった。実施例6、すなわち、1-ヘキシルメチルイミダゾリウムドキュセートの場合、これを40容量%未満の水と接触させると、攪拌の後であっても、2相が形成した。しかし、1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムドキュセートを50容量%の水と接触させる場合、攪拌により、堅固な目に見える単相性のゲルを生じた。このゲルにさらなる水を添加し、その後攪拌すると、再度、2相が形成した。任意の特定の論理に束縛されることは望まないが、本発明のいくつかのイオン液体は、ある割合の水と混合された場合、水和または溶媒和され得ると考えられる。このことは、不溶性で、ある割合の水と混合された場合に2相を形成し、かつ、他の割合の水と混合された場合は、単相を形成する、イオン液体を生じる。この固有の挙動は、水との溶解性または不溶性が重要であるいくつかの適用について、非常に有利であり得る。

【0059】

(実施例11)

この実施例は、上記化学式IIIを有するアミドのテトラブチルアンモニウム融解塩の合成を詳述する。1/10モル(50g)の上記化学構造IIIを有するアミド-スルホネート塩のナトリウム塩(R₂およびR₄は、CH₂CH₃であり、R₁およびR₅が各々、2-エチルヘキシル基であり、そしてR₃がCH₂である)を、250mLのジクロロメタンに溶解し、1/10モル(32g)の臭化テトラブチルアンモニウムを固体として添加した。混合物を1日攪拌し、その後、まず、濾紙を通して、次いで、シリカゲルの短いプラグを通して濾過した。溶出したジクロロメタン溶液を、水で迅速に洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥し、真空中にて溶媒を除去し、高い収率(64g、89%)で所望の生成物を得た。生成物の塩は、水およびいくつかの一般的な有機溶媒(例えば、ジクロロメタンおよびアセトン)の両方に溶解性である。得られた塩の溶解範囲は、約30未満であった。これは、生成物が室温で粘性油であったためである。この生成物の塩としては、テトラブチルアンモニウムカチオンと対をなす、ビス(スルホコハク酸N-エチル-N-(2-エチルヘキシル)ジアミド)アニオンが含まれた。

【0060】

(実施例12～19)

これらの実施例は、ドキュセート改変体である、スルホコハク酸塩のナトリウム塩からのイオン液体の調製を詳述する。このエステルを次いで、オニウムカチオンと合わせて、オニウム融解塩を作製した。

【0061】

10グラム(0.03モル)の臭化テトラブチルアンモニウムを、50mLの水に溶解し、この攪拌した溶液に、固体として、12グラム(0.03モル)のスルホコハク酸のジ-n-ヘキシルエステルのナトリウム塩を添加した(「スルホコハク酸のジ-n-ヘキ

「シリエステル」とは、スルホコハク酸分子が、スルホン酸基ではなく、スルホコハク酸分子の2つのカルボニル基でエステル化していることを意味する）。数分間攪拌した後、水層を3回の連續の50mL部分のジクロロメタンで抽出し、これらを合わせ、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、そして、エバポレートして、所望の生成物を得た(13g、73%収率)。得られた塩の溶解範囲は、約30℃未満であった。これは、生成物が室温で粘性油であったためである。

【0062】

同じ実験手順を用いて、テトラブチルアンモニウムカチオンと、以下のドキュセート改変体のナトリウム塩とのイオン液体を調製した：(i)スルホコハク酸のジ-n-シクロヘキシリエステル；(ii)スルホコハク酸のジ-n-オクチルエステル；(iii)スルホコハク酸のジ-n-ブチルエステル；(iv)スルホコハク酸のジ-イソブチルエステル；(v)スルホコハク酸のジ-ネオペンチルエステル；(vi)スルホコハク酸のジ-n-ヘプチルエステル；および(vii)スルホコハク酸のジ-n-ヘプチルエステル。得られた塩の溶解範囲は、約80℃未満、そして、代表的には、約40℃と80℃との間であった。オクチルドキュセート改変体およびヘプチルドキュセート改変体は、室温で粘性液体であったという事実により同定されるような、より低い溶解範囲を有した。

【0063】

(代表的なNMRデータ)

イオン液体の構造および組成は、¹H-NMR分光法により決定した。全てのドキュセート塩(スルホコハク酸2-エチルヘキシリジエステル)について、スペクトルは、単に、カチオンのスペクトルに重なったアニオンから生じた共鳴からなる。全てのドキュセート塩について、アニオンに由来する共鳴は、(わずかな改変を伴って、)以下の範囲内であった：(300MHz, CDCl₃, d)：0.73-0.83(三重項), 1.24-1.70(重なり多重項), 3.05-3.31(複雑なm), 3.90-4.25(重なったm)

カチオン共鳴(300MHz, CDCl₃, d)：(1-メチル-3-ヘキシリミダゾリウム)：0.79(t), 1.21-1.27(重なったm), 1.80(m), 4.03(s), 4.22(t), 7.35(s), 7.49(s), 9.50(s)

(テトラエチルアンモニウム)：1.32(t), 3.34(q)

(テトラブチルアンモニウム)：1.03(t), 1.20-1.40(重なったm), 3.23(q)

(テトラオクチルアンモニウム)：0.86(t), 1.18-1.50(重なったm), 3.25(q)

(N-メチル-N-(CH₂CH₂OCH₂CH₃)ピロリジニウム)：0.86(t), 1.31(m), 2.11(m), 3.0-4.2(複雑な重なったm)

(トリメチルヘキサデシルアンモニウム)：0.87(t), 1.20-1.60(重なったm), 2.13(s), 3.15(q)

(メチルトリブチルアンモニウム)：0.84(t), 1.23-1.70(重なったm), 2.20(s), 3.24(m)

(1,2-ビス(トリブチルアンモニウム)エタン)：0.83(t), 1.22-1.58(重なったm), 2.20(s), 3.22(m)。

【0064】

いくつかのドキュセート改変体のイオン液体もまた作製した。これらの塩のNMRスペクトルは、ドキュセート改変体のイオン液体と同様に、特定のカチオンのスペクトル上に重なる特定のアニオンのスペクトルからなる。以下は、3つのドキュセート改変体塩のテトラブチルアンモニウム誘導体についてのNMRデータである。各塩について、カチオンから生じる共鳴は、ドキュセートのテトラブチルアンモニウムカチオンの共鳴と一致し、これらについての値は、上記に列挙する。以下は、これらの実施例の塩のアニオン由来の共鳴である(300MHz, CDCl₃, d)：

ビス(スルホコハク酸n-ヘキシリジエステル)：0.84(t), 1.2-1.4(50)

重なったm) , 1 . 6 (m) , 3 . 0 7 (m) , 4 . 0 5 - 4 . 2 2 (重なったm)

ビス(スルホコハク酸シクロヘキシリジエステル) : 1 . 2 - 1 . 8 (複雑な重なったm) , 3 . 1 0 (M) , 4 . 2 - 4 . 8 (重なったm)

ビス(スルホコハク酸ネオペンチルジエステル) : 0 . 8 7 (s) , 0 . 9 0 (s) , 3 . 0 5 - 3 . 2 5 (重なったm) , 3 . 7 8 (s) , 3 . 8 0 - 3 . 9 3 (m) , 4 . 2 3 - 4 . 2 9 (m)

ビス(スルホコハク酸N-エチル-N-(2-エチルヘキシリ)ジアミド) : 0 . 7 5 - 0 . 8 8 (三重項) , 1 . 2 1 - 1 . 7 8 (重なり多重項) , 2 . 2 4 (m) 3 . 1 1 - 3 - 4 1 (複雑なm) , 3 . 8 6 - 4 . 4 5 (重なったm)。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US03/2581S
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC(7) : C07C 303/00 US CL : 560/014		
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) U.S. : 560/014		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) STN; CAS; File Registry; STRUCTURE		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	Database CAPLUS on STN, AN:130:274069, TSURUHARA et al., 'Charge-controlling agent, and electrostaticographic developer toner, powder coating for electrostatic coating, and charging material using it', Jpn. Kokai Toffyo Koho, 22 pp, see abstract.	1-59
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/>		See patent family annex.
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"B" earlier application or patent published on or after the international filing date</p> <p>"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)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>		
<p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&" document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 07 July 2004 (07.07.2004)	Date of mailing of the international search report 12 AUG 2004	
Name and mailing address of the ISA/US Mail Stop PCT, Attn: ISA/US Commissioner for Patents P.O. Box 1450 Alexandria, Virginia 22313-1450 Facsimile No. (703) 872-9306	Authorized officer Paul J. Kilos <i>J. Roberts for</i> Telephone No. 571-272-1600	

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1998)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100113413

弁理士 森下 夏樹

(72)発明者 デイヴィス , ジェイムス エイチ . ジュニア

アメリカ合衆国 アラバマ 36608 , モービル , ヴァンダービルト ドライブ 324

(72)発明者 モウルトン , ロジャー

アメリカ合衆国 テキサス 78746 , オースティン , ウェザーウッド コーブ 6407

F ターム(参考) 4H006 AA03 AB80

4H013 CG03