

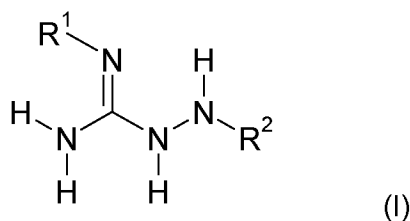
Verwendung des Reaktionsproduktes aus einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure und einer Stickstoffverbindung zur Reduktion des Kraftstoffverbrauches

Beschreibung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft die Verwendung des Reaktionsproduktes aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure, deren Hydrocarbylrest 8 bis 250 Kohlenstoffatome aufweist, oder deren Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I

10



oder einem Salz der Stickstoffverbindung I, wobei R¹ und R² unabhängig voneinander Wasserstoff oder einen C₁- bis C₂₀-Hydrocarbylrest bedeuten,

15

als Additiv in einem Kraftstoff zur Reduktion des Kraftstoffverbrauches beim Betreiben eines fremdgezündeten Verbrennungsmotors mit diesem Kraftstoff oder als Additiv in einem Ottokraftstoff zur Reduktion des Kraftstoffverbrauches beim Betreiben eines selbstzündenden Verbrennungsmotors mit diesem Kraftstoff.

20

Weiterhin betrifft die vorliegende Erfindung eine Kraftstoffzusammensetzung, welche einen Ottokraftstoff, das genannte Reaktionsprodukt sowie mindestens ein Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung enthält.

25 Weiterhin betrifft die vorliegende Erfindung ein Additivkonzentrat, welches das genannte Reaktionsprodukt sowie mindestens ein Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung enthält.

30 Es ist bekannt, dass bestimmte Substanzen im Kraftstoff die innere Reibung in den Verbrennungsmotoren, insbesondere in Ottomotoren, reduzieren und damit helfen, Kraftstoff einzusparen. Solche Substanzen werden auch als Schmierfähigkeitsverbesserer, Friction Reducer oder Friction Modifier bezeichnet. Marktübliche Schmierfähigkeitsverbesserer für Ottokraftstoffe sind meist Kondensationssprodukte natürlich vorkommender Carbonsäuren wie Fettsäuren mit Polyolen wie Glycerin oder mit Alkanolaminen, z. B. Glycerinmonooleat.

35

Nachteilig bei den genannten Schmierfähigkeitsverbesserern des Standes der Technik ist die schlechte Mischbarkeit mit anderen typischerweise verwendeten Kraftstoffadditiven, insbesondere mit Detergensadditiven wie Polyisobutenaminen und/oder Träger-

ölen wie Polyalkylenoxiden. Eine wichtige Anforderung für die Praxis besteht darin, dass die bereitgestellten Komponentenmischungen oder Additivkonzentrate auch bei niedrigeren Temperaturen, insbesondere bei winterlichen Außentemperaturen von beispielsweise bis zu -20°C, leicht pumpbar sind und über einen längeren Zeitraum stabil
5 homogen bleiben, d.h. es dürfen sich keine Phasentrennung und/oder Niederschläge auftreten.

Üblicherweise werden zur Umgehung der geschilderten Mischbarkeitsprobleme den Komponentenmischungen oder Additivkonzentraten größere Mengen an Gemischen
10 aus paraffinischen oder aromatischen Kohlenwasserstoffen mit Alkoholen wie tert.-Butanol oder 2-Ethylhexanol als Lösungsvermittler beigelegt. Teilweise sind aber beträchtliche Mengen dieser teuren Solubilisierungsmittel notwendig, um die gewünschte Homogenität zu erzielen, so dass diese Problemlösung unwirtschaftlich wird.

15 Auch die in der WO 2007/053787 als Lösungsvermittler für derartige Komponentenmischungen oder Additivkonzentraten empfohlenen niedermolekularen Carbonsäuren und Carbonsäurederivate, Glykolether und alkylierten Phenole sind aufgrund ihrer hohen Einsatzstoffkosten unwirtschaftlich und weisen außer ihrer Funktion als Lösungsvermittler keinen weiteren positiven Einwirkungen auf. Im Gegenteil bergen sie das
20 Risiko, negative Effekte mit sich zu bringen, beispielsweise unerwünschte Ölverdünnung und erhöhte Bildung von Brennraumablagerungen.

Weiterhin weisen die genannten Schmierfähigkeitsverbesserer des Standes der Technik oftmals die Tendenz zur Emulsionsbildung mit Wasser in den Komponentenmischungen oder Additivkonzentraten oder im Kraftstoff selbst auf, so dass eingedrungenes Wasser nur schwer oder zumindest nur sehr langsam über eine Phasenabscheidung wieder abgetrennt werden kann.
25

So zeigen zwar die in der EP-A 1 424 322 und der WO 03/070860 beschriebenen
30 Schmierfähigkeitsverbesserer auf Basis von Polyisobutenylsuccinimiden mit Mono- oder Polyaminen oder Alkanolaminen wie Butylamin, Diethylentriamin, Tetraethylenpentinamin oder Aminoethylenethanolamin eine gute Mischbarkeit mit weiteren Additivkomponenten in entsprechenden Mischungen oder Konzentraten, weisen jedoch eine ausgeprägte Tendenz auf, mit Wasser stabile Emulsionen zu bilden, was dazu führen
35 kann, dass Wasser und Schmutzpartikel in der Kraftstofflieferkette verschleppt und schließlich auch in den Motor gelangen können. Wasser kann Korrosion verursachen, Schmutzpartikel können zu Schäden in Kraftstoffpumpen, Kraftstofffiltern und Injektoren führen.

40 Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, Kraftstoffadditive bereitzustellen, welche einerseits eine wirksame Kraftstoffeinsparung beim Betreiben eines fremdgezündeten Verbrennungsmotors bewirken und andererseits die geschilderten Mängel des Standes der Technik, also insbesondere die schlechte Mischbarkeit mit anderen Kraftstoff-

additive und die Tendenz zur Emulsionsbildung mit Wasser, nicht mehr aufweisen. Zudem sollen sie das durch die modernen Kraftstoffadditive erreichte hohe Niveau der Einlassventilsauberkeit nicht verschlechtern.

- 5 Demgemäß wurde die eingangs definierte Verwendung des Reaktionsproduktes aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder derem Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I gefunden. Es ist anzunehmen, dass die Kraftstoffeinsparung durch das genannte Reaktionsprodukt ursächlich weitgehend auf dessen Wirkung als ein Additiv beruht, welches die innere Reibung in den Verbren-
- 10 nungsmotoren, insbesondere in Ottomotoren, reduziert. Das genannte Reaktionsprodukt fungiert somit im Rahmen der vorliegenden Erfindung im Wesentlichen als ein Schmierfähigkeitsverbesserer.

- Reaktionsprodukte aus einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder derem An-
- 15 hydrid und einem Aminoguanidin oder einem Salz hiervon werden in den US-Offenlegungsschriften US 2009/0282731 A1 und US 2010/0037514 A1 als Additive zur Verbesserung der Leistung von Dieselmotoren und zur Reinigung von Injektoren in den Dieselmotoren beschrieben.

- 20 Aus den britischen Patentschriften GB 998 869 und GB 1 020 059 ist bekannt, dass sich das Reaktionsprodukt aus Polyisobutenylsuccinanhydrid und Aminoguanidin-Bicarbonat auch als Detergensadditiv in Ottokraftstoffen eignet.

- In der europäischen Offenlegungsschrift EP 0 310 367 A1 wird beschrieben, dass das
- 25 Reaktionsprodukt aus Polyisobutenylsuccinanhydrid und Aminoguanidin-Bicarbonat Kupfer- und Kupferlegierungen in Dieselmotoren schützt, wenn dieses im Motorenöl enthalten ist.

- Unter fremdgezündeten Verbrennungsmotoren sind vorzugsweise Ottomotoren, die
- 30 üblicherweise mit Zündkerzen gezündet werden, zu verstehen. Neben den üblichen vier- und zweitaktigen Ottomotoren schließen fremdgezündete Verbrennungsmotoren aber auch andere Motorentypen ein, beispielsweise den Wankelmotor. Es handelt sich hier in der Regel um Motoren, die mit handelsüblichen Benzinsorten, insbesondere Benzinsorten gemäß EN 228, Benzin-Alkohol-Gemischen wie Flex fuel mit 75 bis 85
- 35 Vol.-% Ethanol, Liquid pressure gas ("LPG") oder Compressed natural gas ("CNG", "Erdgas") als Kraftstoff betrieben werden.

- Die erfindungsgemäße Verwendung des Reaktionsproduktes aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder derem Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I betrifft aber auch neuentwickelte Verbrennungsmotoren wie den "HCCI"-Motor, der selbstzündend ist und mit Ottokraftstoff betrieben wird.
- 40

Die Stickstoffverbindungen der allgemeinen Formel I für die Reaktionskomponente (a) sind Guanidin, substituierte Guanidine oder Salze hiervon. Mögliche Hydrocarbylreste in diesen Verbindungen enthalten 1 bis 20, insbesondere 1 bis 12, vor allem 1 bis 8 Kohlenstoffatome. Unter einem Hydrocarbylrest soll hier ein Kohlenwasserstoffrest jeglicher Struktur verstanden werden, der jedoch in untergeordneter Menge noch Heteroatome wie Sauerstoff- und/oder Stickstoffatome und/oder Halogenatome enthalten und/oder funktionelle Gruppen wie Hydroxylgruppen, Carboxylgruppen, Carbonsäureestergruppen, Cyanogruppen, Nitrogruppen und/oder Sulfogruppen tragen kann, solange der dominierende Kohlenwasserstoff-Charakter des Restes hierdurch nicht verfälscht wird. Der besagte Hydrocarbylrest kann gesättigter oder ungesättigter Natur sein; er kann linear oder verzweigt aufgebaut sein; er kann aromatische und/oder heterocyclische Substrukturen enthalten.

Die Stickstoffverbindung I kann zwei derartige Hydrocarbylreste für R^1 und R^2 oder nur einen derartigen Hydrocarbylrest für R^1 oder R^2 aufweisen, wobei im letzteren Fall der andere Substituent dann Wasserstoff bedeutet. Vorzugsweise bedeuten jedoch beide Substituenten R^1 und R^2 Wasserstoff, d.h. es liegt unsubstituiertes Aminoguanidin vor.

Mögliche Hydrocarbylreste für R^1 und/oder R^2 sind vorzugsweise lineare oder verzweigte Alkyl- oder Alkenylrest, insbesondere solche mit 1 bis 8, vorzugsweise 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie Methyl, Ethyl, Vinyl, n-Propyl, Isopropyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, n-Butyl, sec.-Butyl, Isobutyl, tert.-Butyl, Pentyl, Neopentyl, Hexyl, Heptyl, Octyl, 2-Ethylhexyl, Neooctyl, Nonyl, Neononyl, Isononyl, Decyl, Neodecyl, 2-Propylheptyl, Undecyl, Neoundecyl, Dodecyl, Tridecyl, Isotridecyl, Tetradecyl, Pentadecyl, Hexadecyl, Heptadecyl, Octadecyl (Stearyl), Oleyl, Linolyl, Linolenyl, Nonadecyl, Eicosyl oder deren Konstitutionsisomere.

Weiterhin können mögliche Hydrocarbylreste für R^1 und/oder R^2 auch Cycloalkylreste bezeichnen, beispielsweise Cyclopentyl, Cyclohexyl, 2-, 3- oder 4-Methylcyclohexyl oder Cycloheptyl.

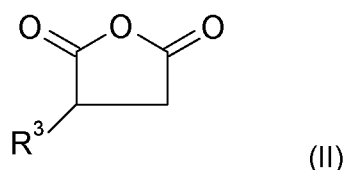
Weiterhin können mögliche Hydrocarbylreste für R^1 und/oder R^2 auch Aryl-, Alkaryl- oder Arylalkylreste bezeichnen, beispielsweise Phenyl, Naphthyl, Benzyl, 2-Phenylethyl, 3-Phenylpropyl, 4-Phenylbutyl, TolyI oder o-, m- oder p-Xylyl.

Wird die Stickstoffverbindungen I in Form eines ihrer Salze eingesetzt, ist dies insbesondere ein Halid wie Chlorid oder Bromid, Carbonat, Hydrogencarbonat (Bicarbonat), Nitrat oder Orthophosphat. Vorzugsweise setzt man ein Hydrogencarbonat (Bicarbonat) ein.

In einer bevorzugten Ausführungsform ist die Stickstoffverbindung der Komponente (b) unsubstituiertes Aminoguanidin-Hydrogencarbonat.

Die hydrocarbylsubstituierte Dicarbonsäure oder deren Anhydrid der Komponente (a) hat typischerweise eine gesättigte C₂- bis C₁₀-Dicarbonsäure oder deren Anhydrid als Grundgerüst. Die Dicarbonsäure bzw. deren Anhydrid kann mehrere, beispielsweise zwei oder drei, Hydrocarbylsubstituenten tragen, bevorzugt wird jedoch nur ein Hydrocarbylsubstituent. Das Anhydrid liegt üblicherweise in cyclischer Form vor, wenn die Anhydridbildung intramolekular erfolgt. Jedoch sind auch offenkettige Anhydride, die durch intermolekulare Anhydridbildung entstanden sind, geeignet. Beispiele für derartige Dicarbonsäuren sind Oxalsäure, Malonsäure, Bernsteinsäure, Glutarsäure, Adipinsäure, Pimelinsäure, Korksäure, Azelainsäure und Sebacinsäure. Aromatische Dicarbonsäuren wie Phthalsäure oder Terephthalsäure sind ebenfalls geeignet.

In einer bevorzugten Ausführungsform basiert die als Reaktionskomponente (a) verwendete hydrocarbylsubstituierte Dicarbonsäure auf Bernsteinsäure oder deren Anhydrid. Insbesondere ist hier das entsprechende Succinanhydrid der Formel II



in der R³ einen Hydrocarbylrest mit 8 bis 250 Kohlenstoffatomen bezeichnet, geeignet. Unter einem Hydrocarbylrest soll auch hier ein Kohlenwasserstoffrest jeglicher Struktur verstanden werden, der jedoch in untergeordneter Menge noch Heteroatome wie Sauerstoff- und/oder Stickstoffatome und/oder Halogenatome enthalten und/oder funktionelle Gruppen wie Hydroxylgruppen, Carboxylgruppen, Carbonsäureestergruppen, Cyanogruppen, Nitrogruppen und/oder Sulfogruppen tragen kann, solange der dominierende Kohlenwasserstoff-Charakter des Restes hierdurch nicht verfälscht wird. Dieser Hydrocarbylrest ist typischerweise ein Alkyl-, Alkenyl-, Cycloalkyl-, Aryl-, Heteroaryl-, Aralkyl- oder Alkylarylrest. Bei länger-kettigen Hydrocarbylresten kann er auf einem Olefinpolymerisat basieren, beispielsweise auf einem Polyethylen, Polypropylen oder Polyisobutylen.

Der Hydrocarbylrest in der Komponente (a) bzw. der Rest R³ ist in einer bevorzugten Ausführungsform ein linearer oder verzweigter C₈- bis C₄₀-Alkyl- oder -Alkenylrest oder ein Polyisobutenylrest mit 24 bis 250 Kohlenstoffatomen.

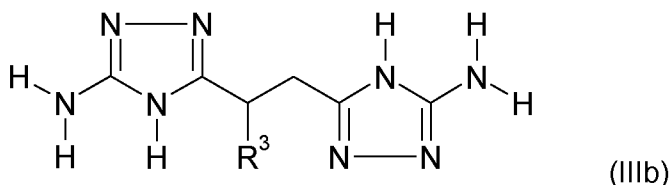
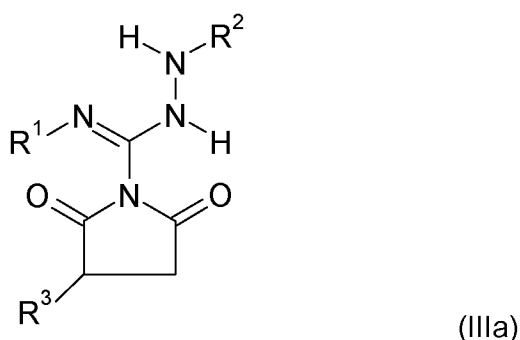
Lineare oder verzweigte C₈- bis C₄₀-Alkenylrest und Polyisobutenylreste werden üblicherweise durch eine thermische En-Reaktion zwischen der unsubstituierten Dicarbonsäure oder deren Anhydrid und einem langkettigen α -Olefin unter Erhalt einer olefinischen Doppelbindung in α,β -Position der Hydrocarbyl-Seitenkette erzeugt. Dazu werden die Reaktanten üblicherweise auf Temperaturen von 150 bis 250°C erhitzt. Alkenylreste können anschließend zu den entsprechenden gesättigten Alkylresten hydriert werden.

Als C₈- bis C₄₀-Alkenylreste, insbesondere C₁₀- bis C₂₄-Alkenylreste, kommen beispielsweise 1-Nonenyl, 1-Decenyl, 1-Undecenyl, 1-Dodecenyl, 1-Tridecenyl, 1-Tetradecenyl, 1-Pentadecenyl, 1-Hexadecenyl, 1-Octadecenyl, 1-Eicosenyl sowie die entsprechenden Alkenylreste aus Oligoisobutenen wie Di-, Tri-, Tetra- oder Penta-isobuten
 5 oder aus technischen α -Olefin-Mischungen wie C₂₀-C₂₄- α -Olefin in Betracht.

Bei Vorliegen eines Polyisobutenylrestes umfasst dieser vorzugsweise 24 bis 250, insbesondere 28 bis 180, vor allem 36 bis 80 Kohlenstoffatome oder weist damit ein zahlenmittleres Molekulargewicht M_n von vorzugsweise 330 bis 3500, insbesondere 390
 10 bis 2500, vor allem 500 bis 1100 auf. Derartige Polyisobutenylreste sind normalerweise aus hochreaktiven Polyisobutenen, d.h. aus Polyisobutenen mit einem hohen Anteil, üblicherweise mindestens 60%, insbesondere mindestens 70%, vor allem mindestens 80%, an terminalen Vinyliden-Doppelbindungen, hergestellt worden.

15 So erhaltene Polyisobutenylsuccinimide ("PIBSA") haben in der Regel einen Succinylierungsgrad, d.h. ein molares Verhältnis von Succinanhydrid-Einheit zu Polyisobuten-Einheiten, von 0,8 bis 2,0, insbesondere von 1,0 bis 1,3. Es können also auch zwei Succinanhydrid-Einheiten an eine Polyisobuten-Kette gebunden werden.

20 Das erhaltene Reaktionsprodukt aus (a) der hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder deren Anhydrid und (b) der Stickstoffverbindung I ist oftmals eine Mischung aus mehreren Verbindungen unterschiedlicher Struktur. Bestandteile dieser Mischung können insbesondere Imide, gebildet aus einer primären Aminogruppe von I, beispielsweise die Verbindung IIIa, und/oder Verbindungen, die ein oder zwei Aminotriazol-Gruppierungen enthalten, beispielsweise die Verbindung IIIb für den Fall R¹ = R² = H, sein:
 25



30

Das erfindungsgemäße Reaktionsprodukt aus (a) der hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder deren Anhydrid und (b) der Stickstoffverbindung I eignen sich in hervorragender Weise als Kraftstoffadditiv, welches eine wirksame Kraftstoffeinsparung beim

Betreiben eines fremdgezündeten Verbrennungsmotors, insbesondere eines Ottomotors, bewirkt sowie mit anderen Kraftstoffadditiven gut mischbar ist und keine nennenswerte Tendenz zur Emulsionsbildung mit Wasser aufweist. Die genannten vorteilhaften Eigenschaften treten bei der Anwendung in Ottokraftstoffen bei der Mitverwendung von Kraftstoffadditiven mit Detergenswirkung in besonderem Maße in Erscheinung.

Demgemäß ist auch Gegenstand der vorliegenden Erfindung eine Kraftstoffzusammensetzung, welche in einer größeren Menge einen Ottokraftstoff und in einer kleineren Menge mindestens ein erfindungsgemäßes Reaktionsprodukt aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I sowie mindestens ein von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenes Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung enthält.

Üblicherweise beträgt die Menge an diesem mindestens einen erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt im Ottokraftstoff 10 bis 5000 Gew.-ppm, besonders bevorzugt von 20 bis 2000 Gew.-ppm, stärker bevorzugt von 30 bis 1000 Gew.-ppm und insbesondere von 40 bis 500 Gew.-ppm, z.B. von 50 bis 300 Gew.-ppm.

Als Ottokraftstoffe kommen alle handelsüblichen Ottokraftstoffzusammensetzungen in Betracht. Als typischer Vertreter soll hier der marktübliche Eurosuper Grundkraftstoff gemäß EN 228 genannt werden. Weiterhin sind auch Ottokraftstoffzusammensetzungen der Spezifikation gemäß WO 00/47698 mögliche Einsatzgebiete für die vorliegende Erfindung. Weiter sind im Rahmen der vorliegenden Erfindung unter Ottokraftstoffen auch alkoholhaltige Ottokraftstoffe, insbesondere ethanolhaltige Ottokraftstoffe, wie sie beispielsweise in der WO 2004/090079 beschrieben sind, z. B. Flex fuel mit einem Ethanolgehalt von 75 bis 85 Vol.-% oder 85 Vol.-% Ethanol enthaltender Ottokraftstoff ("E85"), aber auch die Kraftstoffsorte "E100", welche typischerweise azeotrop destilliertes Ethanol darstellt und somit aus ca. 96 Vol.-% C_2H_5OH und ca. 4 Vol.-% H_2O besteht, zu verstehen.

Das erfindungsgemäße Reaktionsprodukt aus (a) der hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder deren Anhydrid und (b) der Stickstoffverbindung I kann dabei entweder dem jeweiligen Grundkraftstoff allein oder in Form von Kraftstoffadditiv-Paketen zugesetzt werden. Derartige Pakete stellen Kraftstoffadditiv-Konzentrate dar und enthalten in der Regel neben Lösungsmitteln neben dem mindestens einen von dem erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt verschiedenen Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung noch eine Reihe weiterer Komponenten als Coadditive, insbesondere sind dies Trägeröle, Korrosionsinhibitoren, Demulgatoren, Dehazer, Antischaummittel, Verbrennungsverbesserer, Antioxidantien oder Stabilisatoren, Antistatika, Metallocene, Metalldeaktivatoren, Lösungsvermittler, Marker und/oder Farbstoffe.

Als Detergentien oder Detergensadditive, nachfolgend als Komponente (D) bezeichnet, werden üblicherweise Ablagerungsinhibitoren für Kraftstoffe bezeichnet. Vorzugsweise

handelt es sich bei den Detergensadditiven um amphiphile Substanzen, die mindestens einen hydrophoben Kohlenwasserstoffrest mit einem zahlengemittelten Molekulargewicht (M_n) von 85 bis 20.000, insbesondere von 300 bis 5000, vor allem von 500 bis 2500, und mindestens eine polare Gruppierung besitzen.

5

In einer bevorzugten Ausführungsform umfasst die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung als das mindestens eine von dem erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt verschiedene Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung (D) mindestens einen Vertreter, welcher ausgewählt ist unter:

10

(Da) Mono- oder Polyaminogruppen mit bis zu 6 Stickstoffatomen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat;

(Db) Nitrogruppen, gegebenenfalls in Kombination mit Hydroxylgruppen;

15

(Dc) Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat;

(Dd) Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen;

20

(De) Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen;

(Df) Polyoxy-C₂-C₄-alkylengruppierungen, die durch Hydroxylgruppen, Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat, oder durch Carbamatgruppen terminiert sind;

25

(Dg) Carbonsäureestergruppen;

(Dh) aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleiteten Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen; und/oder

30

(Di) durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugten Gruppierungen.

35 Der hydrophobe Kohlenwasserstoffrest in den obigen Detergensadditiven, welcher für die ausreichende Löslichkeit in der Kraftstoffzusammensetzung sorgt, hat ein zahlengemittelttes Molekulargewicht (M_n) von 85 bis 20.000, insbesondere von 300 bis 5000, vor allem von 500 bis 2500. Als typischer hydrophober Kohlenwasserstoffrest, insbesondere in Verbindung mit den polaren Gruppierungen (Da), (Dc), (Dh) und (Di), kommen länger-kettige Alkyl- oder Alkenylgruppen, insbesondere der Polypropenyl-, Polybutenyl- und Polyisobutenylrest mit jeweils $M_n = 300$ bis 5000, insbesondere 500 bis 40 2500, vor allem 700 bis 2300, in Betracht.

Als Beispiele für obige Gruppen von Detergens-Additiven seien die folgenden genannt:

Mono- oder Polyaminogruppen (Da) enthaltende Additive sind vorzugsweise Polyalkenmono- oder Polyalkenpolyamine auf Basis von Polypropen oder konventionellem
5 (d.h. mit überwiegend mittenständigen Doppelbindungen) Polybuten oder Polyisobuten mit $M_n = 300$ bis 5000. Geht man bei der Herstellung der Additive von Polybuten oder Polyisobuten mit überwiegend mittenständigen Doppelbindungen (meist in der β - und γ -Position) aus, bietet sich der Herstellweg durch Chlorierung und anschließende Aminierung oder durch Oxidation der Doppelbindung mit Luft oder Ozon zur Carbonyl-
10 oder Carboxylverbindung und anschließende Aminierung unter reduktiven (hydrierenden) Bedingungen an. Zur Aminierung können hier Amine, wie z. B. Ammoniak, Monoamine oder Polyamine, wie Dimethylaminopropylamin, Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin oder Tetraethylenpentamin, eingesetzt werden. Entsprechende Additive auf Basis von Polypropen sind insbesondere in der WO-A-94/24231 beschrieben.

15 Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (Da) enthaltende Additive sind die Hydrierungsprodukte der Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen mit einem mittleren Polymerisationsgrad $P = 5$ bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A-97/03946 beschrieben sind.

20 Weitere bevorzugte Monoaminogruppen (Da) enthaltende Additive sind die aus Polyisobutenepoxiden durch Umsetzung mit Aminen und nachfolgender Dehydratisierung und Reduktion der Aminoalkohole erhältlichen Verbindungen, wie sie insbesondere in DE-A-196 20 262 beschrieben sind.

25 Nitrogruppen (Db), gegebenenfalls in Kombination mit Hydroxylgruppen, enthaltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte aus Polyisobutenen des mittleren Polymerisationsgrades $P = 5$ bis 100 oder 10 bis 100 mit Stickoxiden oder Gemischen aus Stickoxiden und Sauerstoff, wie sie insbesondere in WO-A-96/03367 und
30 WO-A-96/03479 beschrieben sind. Diese Umsetzungsprodukte stellen in der Regel Mischungen aus reinen Nitropolyisobutenen (z. B. α,β -Dinitropolyisobuten) und gemischten Hydroxynitropolyisobutenen (z. B. α -Nitro- β -hydroxypolyisobuten) dar.

Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen (Dc) enthaltende
35 Additive sind insbesondere Umsetzungsprodukte von Polyisobutenepoxiden, erhältlich aus vorzugsweise überwiegend endständige Doppelbindungen aufweisendem Polyisobuten mit $M_n = 300$ bis 5000, mit Ammoniak, Mono- oder Polyaminen, wie sie insbesondere in EP-A-476 485 beschrieben sind.

40 Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze (Dd) enthaltende Additive sind vorzugsweise Copolymere von C_2 - C_{40} -Olefinen mit Maleinsäureanhydrid mit einer Gesamt-Molmasse von 500 bis 20000, deren Carboxylgruppen ganz oder teilweise zu den Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen und ein verbleibender Rest

der Carboxylgruppen mit Alkoholen oder Aminen umgesetzt sind. Solche Additive sind insbesondere aus der EP-A-307 815 bekannt. Derartige Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können, wie in der WO-A-87/01126 beschrieben, mit Vorteil in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)-
5 butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt werden.

Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze (De) enthaltende Additive sind vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalze eines Sulfobernsteinsäurealkylesters, wie er insbesondere in der EP-A-639 632 beschrieben ist. Derartige
10 Additive dienen hauptsächlich zur Verhinderung von Ventilsitzverschleiß und können mit Vorteil in Kombination mit üblichen Kraftstoffdetergenzien wie Poly(iso)butenaminen oder Polyetheraminen eingesetzt werden.

Polyoxy-C₂-C₄-alkylengruppierungen (Df) enthaltende Additive sind vorzugsweise Polyether oder Polyetheramine, welche durch Umsetzung von C₂-C₆₀-Alkanolen, C₆-C₃₀-Alkandiolen, Mono- oder Di-C₂-C₃₀-alkylaminen, C₁-C₃₀-Alkylcyclohexanolen oder C₁-C₃₀-Alkylphenolen mit 1 bis 30 mol Ethylenoxid und/oder Propylenoxid und/oder Butylenoxid pro Hydroxylgruppe oder Aminogruppe und, im Falle der Polyetheramine, durch anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen erhältlich sind. Derartige Produkte werden insbesondere in EP-A-310 875, EP-A-356 725, EP-A-700 985 und US-A-4 877 416 beschrieben. Im Falle von Polyethern erfüllen solche Produkte auch Trägeröleigenschaften. Typische Beispiele hierfür sind Tridecanol- oder Isotridecanolbutoxylate, Isononylphenolbutoxylate sowie Polyisobutanolbutoxylate und -propoxylate sowie die entsprechenden Umsetzungsprodukte mit
20 Ammoniak.
25

Carbonsäureestergruppen (Dg) enthaltende Additive sind vorzugsweise Ester aus Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren mit langkettigen Alkanolen oder Polyolen, insbesondere solche mit einer Mindestviskosität von 2 mm²/s bei 100°C, wie sie insbesondere in
30 DE-A-38 38 918 beschrieben sind. Als Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren können aliphatische oder aromatische Säuren eingesetzt werden, als Esteralkohole bzw. -polyole eignen sich vor allem langkettige Vertreter mit beispielsweise 6 bis 24 C-Atomen. Typische Vertreter der Ester sind Adipate, Phthalate, iso-Phthalate, Terephthalate und Trimellitate des iso-Octanols, iso-Nonanols, iso-Decanols und des iso-Tridecanols. Derartige
35 Produkte erfüllen auch Trägeröleigenschaften.

Aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen (Dh) enthaltende Additive sind vorzugsweise entsprechende Derivate von Alkyl- oder Alkenyl-substituiertem Bernsteinsäureanhydrid
40 und insbesondere die entsprechenden Derivate von Polyisobutenylbernsteinsäureanhydrid, welche durch Umsetzung von konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit M_n = 300 bis 5000 mit Maleinsäureanhydrid auf thermischem Weg oder über das chlorierte Polyisobuten erhältlich sind. Von besonderem Interesse sind hierbei De-

ivate mit aliphatischen Polyaminen wie Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin oder Tetraethylenpentamin. Bei den Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen handelt es sich beispielsweise um Carbonsäuregruppen, Säureamide von Monoaminen, Säureamide von Di- oder Polyaminen, die neben der Amidfunktion noch freie Amingruppen aufweisen, Bernsteinsäurederivate mit einer Säure- und einer Amidfunktion, Carbonsäureimide mit Monoaminen, Carbonsäureimide mit Di- oder Polyaminen, die neben der Imidfunktion noch freie Amingruppen aufweisen, oder Diimide, die durch die Umsetzung von Di- oder Polyaminen mit zwei Bernsteinsäurederivaten gebildet werden. Derartige Kraftstoffadditive sind insbesondere in US-A-4 849 572 beschrieben.

Bei den Detergensadditiven aus der Gruppe (Dh) handelt es sich vorzugsweise um die Umsetzungsprodukte von Alkyl- oder Alkenyl-substituierten Bernsteinsäureanhydriden, insbesondere von Polyisobutenylbernsteinsäureanhydriden ("PIBSA"), mit Aminen und/oder Alkoholen. Es handelt sich hierbei somit um von Alkyl-, Alkenyl- oder Polyisobutenyl-Bernsteinsäureanhydrid abgeleitete Derivate mit Amino- und/oder Amido- und/oder Imido- und/oder Hydroxylgruppen. Es versteht sich von selbst, dass diese Umsetzungsprodukte nicht nur bei Einsatz von substituiertem Bernsteinsäureanhydrid, sondern auch bei Verwendung von substituierter Bernsteinsäure oder geeigneten Säurederivaten, wie Bernsteinsäurehalogenide oder -ester, erhältlich sind.

Vorzugsweise umfasst der additivierte Kraftstoff mindestens ein Detergens auf Basis eines Polyisobutenyl-substituierten Bernsteinsäureimids. Speziell von Interesse sind die Imide mit aliphatischen Polyaminen. Besonders bevorzugte Polyamine sind dabei Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin, Pentaethylenhexamin und vor allem Tetraethylenpentamin. Der Polyisobutenylrest besitzt ein zahlenmittleres Molekulargewicht M_n von vorzugsweise 500 bis 5000, besonders bevorzugt von 500 bis 2000 und insbesondere von etwa 1000.

Durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und Mono- oder Polyaminen erzeugte Gruppierungen (Di) enthaltende Additive sind vorzugsweise Umsetzungsprodukte von Polyisobuten-substituierten Phenolen mit Formaldehyd und Mono- oder Polyaminen wie Ethylendiamin, Diethylentriamin, Triethylentetramin, Tetraethylenpentamin oder Dimethylaminopropylamin. Die Polyisobutenyl-substituierten Phenole können aus konventionellem oder hochreaktivem Polyisobuten mit $M_n = 300$ bis 5000 stammen. Derartige "Polyisobuten-Mannichbasen" sind insbesondere in der EP-A-831 141 beschrieben.

Die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung enthält das mindestens eine von dem erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt verschiedene Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung, welches normalerweise aus den obigen Gruppen (Da) bis (Di) ausgewählt ist, in einer Menge von üblicherweise 10 bis 5000 Gew.-ppm, besonders bevor-

zugt von 20 bis 2000 Gew.-ppm, stärker bevorzugt von 30 bis 1000 Gew.-ppm und insbesondere von 40 bis 500 Gew.-ppm, z. B. von 50 bis 250 Gew.-ppm.

- Vorzugsweise werden die genannten Detergensadditive (D) in Kombination mit wenigstens einem Trägeröl verwendet. In einer bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung zusätzlich zu dem mindestens einen erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt und dem mindestens einen von dem erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt verschiedenen Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung in einer kleineren Menge als weiteres Kraftstoffadditiv mindestens ein Trägeröl.
- Geeignete mineralische Trägeröle sind bei der Erdölverarbeitung anfallende Fraktionen, wie Brightstock oder Grundöle mit Viskositäten wie beispielsweise aus der Klasse SN 500 - 2000; aber auch aromatische Kohlenwasserstoffe, paraffinische Kohlenwasserstoffe und Alkoxyalkanole. Brauchbar ist ebenfalls eine als "hydrocrack oil" bekannte und bei der Raffination von Mineralöl anfallende Fraktion (Vakuumdestillatschnitt mit einem Siedebereich von etwa 360 bis 500°C, erhältlich aus unter Hochdruck katalytisch hydriertem und isomerisiertem sowie entparaffiniertem natürlichen Mineralöl). Ebenfalls geeignet sind Mischungen oben genannter mineralischer Trägeröle.
- Beispiele für geeignete synthetische Trägeröle sind ausgewählt unter: Polyolefinen (Polyalphaolefinen oder Polyinternalolefinen), (Poly)estern, (Poly)alkoxylaten, Polyethern, aliphatischen Polyetheraminen, alkylphenolgestarteten Polyethern, alkylphenolgestarteten Polyetheraminen und Carbonsäureestern langkettiger Alkanole.
- Beispiele für geeignete Polyolefine sind Olefinpolymerisate mit $M_n = 400$ bis 1800, vor allem auf Polybuten- oder Polyisobuten-Basis (hydriert oder nicht hydriert).
- Beispiele für geeignete Polyether oder Polyetheramine sind vorzugsweise Polyoxy- C_2 - C_4 -alkylengruppierungen enthaltende Verbindungen, welche durch Umsetzung von C_2 - C_{60} -Alkanolen, C_6 - C_{30} -Alkandiolen, Mono- oder Di- C_2 - C_{30} -alkylaminen, C_1 - C_{30} -Alkylcyclohexanolen oder C_1 - C_{30} -Alkylphenolen mit 1 bis 30 mol Ethylenoxid und/ oder Propylenoxid und/oder Butylenoxid pro Hydroxylgruppe oder Aminogruppe und, im Falle der Polyetheramine, durch anschließende reduktive Aminierung mit Ammoniak, Monoaminen oder Polyaminen erhältlich sind. Derartige Produkte werden insbesondere in EP-A 310 875, EP-A 356 725, EP-A 700 985 und US-A 4,877,416 beschrieben. Beispielsweise können als Polyetheramine Poly- C_2 - C_6 -Alkylenoxidamine oder funktionelle Derivate davon verwendet werden. Typische Beispiele hierfür sind Tridecanol- oder Isotridecanolbutoxylate, Isononylphenolbutoxylate sowie Polyisobutenolbutoxylate und -propoxylate sowie die entsprechenden Umsetzungsprodukte mit Ammoniak.
- Beispiele für Carbonsäureester langkettiger Alkanole sind insbesondere Ester aus Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren mit langkettigen Alkanolen oder Polyolen, wie sie insbesondere in der DE-A 38 38 918 beschrieben sind. Als Mono-, Di- oder Tricarbonsäuren

können aliphatische oder aromatische Säuren eingesetzt werden, als Esteralkohole bzw. -polyole eignen sich vor allem langkettige Vertreter mit beispielsweise 6 bis 24 C-Atomen. Typische Vertreter der Ester sind Adipate, Phthalate, iso-Phthalate, Terephthalate und Trimellitate des Isooctanols, Isononanols, Isodecanols und des Isotridecanols, wie z. B. Di-(n- oder iso-tridecyl)phthalat.

Weitere geeignete Trägerölsysteme sind beispielsweise in DE-A 38 26 608, DE-A 41 42 241, DE-A 43 09 074, EP-A 0 452 328 und EP-A 0 548 617 beschrieben.

Beispiele für besonders geeignete synthetische Trägeröle sind alkoholgestartete Polyether mit etwa 5 bis 35, wie z. B. etwa 5 bis 30, C₃-C₆-Alkylenoxideinheiten, wie z. B. ausgewählt unter Propylenoxid-, n-Butylenoxid- und i-Butylenoxid-Einheiten, oder Gemischen davon. Nichtlimitierende Beispiele für geeignete Starteralkohole sind langkettige Alkanole oder mit langkettigem Alkyl-substituierte Phenole, wobei der langkettige Alkylrest insbesondere für einen geradkettigen oder verzweigten C₆-C₁₈-Alkylrest steht. Als bevorzugte Beispiele sind zu nennen Tridecanol und Nonylphenol.

Weitere geeignete synthetische Trägeröle sind alkoxylierte Alkylphenole, wie sie in der DE-A 101 02 913 beschrieben sind.

Bevorzugte Trägeröle sind synthetische Trägeröle, wobei Polyether besonders bevorzugt sind.

Wenn ein Trägeröl mitverwendet wird, so wird dieses dem erfindungsgemäßen additierten Kraftstoff in einer Menge von vorzugsweise 1 bis 1000 Gew.-ppm, besonders bevorzugt von 10 bis 500 Gew.-ppm und insbesondere von 20 bis 100 Gew.-ppm, zugesetzt.

In einer bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße Kraftstoffzusammensetzung zusätzlich zu dem mindestens einen erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt, dem mindestens einen von dem erfindungsgemäßen Reaktionsprodukt verschiedenen Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung und gegebenenfalls dem mindestens einen Trägeröl in einer kleineren Menge als weiteres Kraftstoffadditiv mindestens einen Korrosionsinhibitor.

Als derartige Coadditive geeignete Korrosionsinhibitoren sind beispielsweise Bernstein-säureester, vor allem mit Polyolen, Fettsäurederivate, z.B. Ölsäureester, oligomerisierte Fettsäuren und substituierte Ethanolamine.

Als weitere Coadditive geeignete Demulgatoren sind beispielsweise die Alkali- und Erdalkalimetallsalze von alkylsubstituierten Phenol- und Naphthalinsulfonaten und die Alkali- und Erdalkalimetallsalze von Fettsäure, weiterhin Alkoholalkoxylate, z.B. Alkoholethoxylate, Phenolalkoxylate, z.B. tert.-Butylphenolethoxylate oder tert.-Pentyl-

phenoethoxylate, Fettsäure, Alkylphenole, Kondensationsprodukte von Ethylenoxid und Propylenoxid, z.B. Ethylenoxid-Propylenoxid-Blockcopolymere, Polyethylenimine und Polysiloxane.

- 5 Als weitere Coadditive geeignete Dehazer sind beispielsweise alkoxylierte Phenol-Formaldehyd-Kondensate.

Als weitere Coadditive geeignete Antischaummittel sind beispielsweise Polyether-modifizierte Polysiloxane.

10

Als weitere Coadditive geeignete Antioxidantien sind beispielsweise substituierte Phenole, z.B. 2,6-Di-tert.-butylphenol und 2,6-Di-tert.-butyl-3-methylphenol, sowie Phenylendiamine, z.B. N,N'-Di-sec.-butyl-p-phenylendiamin.

- 15 Als weitere Coadditive geeignete Metalldeaktivatoren sind beispielsweise Salicylsäure-Derivate, z.B. N,N'-Disalicyliden-1,2-propandiamin.

- 20 Als Lösungsmittel eignen sich, insbesondere auch für Kraftstoffadditiv-Pakete, beispielsweise unpolare organische Lösungsmittel, insbesondere aromatische und aliphatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Toluol, Xylole, "white spirit" sowie die technischen Lösungsmittelgemische der Bezeichnungen Shellsol® (Hersteller: Royal Dutch / Shell Group), Exxol® (Hersteller: ExxonMobil) und Solvent Naphtha. Weiterhin kommen hier, insbesondere in Abmischung mit den genannten unpolaren organischen Lösungsmitteln, polare organische Lösungsmittel, vor allem Alkohole wie tert.-Butanol, Isoamylalkohol, 2-Ethylhexanol und 2-Propylheptanol, in Betracht.
- 25

Wenn die genannten Coadditive und/oder Lösungsmittel in Ottokraftstoff mitverwendet werden, werden sie in den hierfür übliche Mengen eingesetzt.

- 30 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch ein Additivkonzentrat, welches mindestens ein erfindungsgemäßes Reaktionsprodukt aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder derem Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I sowie mindestens ein von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenes Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung enthält. Im Übrigen kann das erfindungsgemäße Additivkonzentrat die weiteren oben genannten Coadditive enthalten.
- 35

- Das erfindungsgemäße Reaktionsprodukt liegt im erfindungsgemäßen Additivkonzentrat vorzugsweise in einer Menge von 1 bis 99 Gew.-%, besonders bevorzugt von 15 bis 95 Gew.-% und insbesondere von 30 bis 90 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht des Konzentrats, vor. Das mindestens eine von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenes Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung liegt im erfindungsgemäßen Additivkonzentrat vorzugsweise in einer Menge von 1 bis 99 Gew.-%, be-
- 40

sonders bevorzugt von 5 bis 85 Gew.-% und insbesondere von 10 bis 70 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht des Konzentrats, vor.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die vorliegende Erfindung näher erläutern, ohne sie zu beschränken.

Beispiel 1: Mischverhalten

Das Reaktionsprodukt ("RP1") aus einem Polyisobutenylsuccinanhydrid, erzeugt durch thermische En-Reaktion (200°C) von Maleinsäureanhydrid mit einem Polyisobuten des zahlenmittleren Molekulargewichtes M_n von 1000 und einem Gehalt an terminalen Vinyliden-Doppelbindungen von 85%, und Aminoguanidin-Hydrogencarbonat wurde in Analogie zu Beispiel 1 der US 2009/0282731 A1 hergestellt, wobei als Verdünnungsmittel Solvesso™ 150 (Hersteller: ExxonMobil) verwendet wurde.

Aus dem so hergestellten Reaktionsprodukt ("RP1") wurde durch einfaches Zumischen der nachfolgend aufgeführten Komponenten ein Additivkonzentrat ("AK1") hergestellt:

- 400 Gew.-Teile des erfindungsgemäßen Reaktionsproduktes RP1 (50 gew.-%ig in Solvesso 150)
- 390 Gew.-Teile (Polymergehalt) einer üblichen Detergensadditiv-Komponente (Polyisobutenmonoamin auf Basis eines Polyisobutens mit $M_n = 1000$)
- 310 Gew.-Teile eines üblichen Trägeröls auf Basis eines alkoholgestarteten Polyethers
- 270 Gew.-Teile Solvent Naphtha als Verdünnungsmittel
- 470 Gew.-Teile 2-Propylheptanol als weiteres Verdünnungsmittel
- 4 Gew.-Teile einer üblichen Dehazer-Komponente (auf Basis eines alkoxylierten Phenol-Formaldehyd-Kondensates)

Die genannten Komponenten ließen sich problemlos miteinander zu einer klaren Flüssigkeit vermischen, deren Konsistenz über mehrere Tage stabil blieb.

Zum Vergleich wurde das Additivkonzentrat "AK2" hergestellt, welches sich von AK1 nur dadurch unterschied, dass das erfindungsgemäße Reaktionsprodukt RP1 durch die gleiche Wirkstoffmenge eines üblichen Schmierfähigkeitsverbesserers des Standes der Technik ("RP2"), nämlich dem Imid aus Polyisobutenylsuccinanhydrid (auf Basis eines Polyisobutens mit $M_n = 1000$) und Tetraethylenpentamin, ersetzt wurde. – Nach dem

Zusammenmischen lag RP2 als trübe Flüssigkeit vor, aus der sich nach einigen Tagen ein Niederschlag abschied.

Beispiel 2: Emulsionsverhalten

5

Ein typischer marktüblicher Eurosuper Grundkraftstoff gemäß EN 228 wurde als Ottokraftstoff jeweils mit dem Additivkonzentrat AK1 (erfindungsgemäß) und AK2 (zum Vergleich) in einer solchen Menge additiviert, dass die Dosierung an Schmierfähigkeitsverbesserer RP1 (erfindungsgemäß) bzw. RP2 (zum Vergleich) jeweils 390 Gew.-ppm betrug. Gemäß dem Phasentrennungstest ASTM D 1094 wurde den Systemen Wasser zusetzt und das Phasentrennverhalten bewertet. Nach 5 Minuten ergaben sich mit AK1 zwei klare und scharf voneinander getrennte Phasen (Phasentrennnote nach ASTM D 1094: 1), wogegen nach 5 Minuten mit AK 2 eine Emulsion in der Wasserphase und eine trübe Kraftstoffphase resultierten (Phasentrennnote nach ASTM D 1094: 4).

15

Beispiel 3: Kraftstoffeinsparung ("fuel economy")

Ein durch Additivierung mit AK1 in der in Beispiel 2 genannten Dosierate auf Basis eines U.S.-marktüblichen Grundkraftstoffes hergestellter Ottokraftstoff wurde zur Ermittlung der Kraftstoffeinsparung in einem Flottentest mit drei verschiedenen Automobilen gemäß dem U.S. Environmental Protection Agency Test Protocol, C.F.R. Title 40, Part 600, Subpart B, eingesetzt. Für jedes Automobil wurde der Kraftstoffverbrauch zunächst mit unadditiviertem Kraftstoff und anschließend mit demselben Kraftstoff, der jetzt aber das Additivkonzentrat AK1 in der in Beispiel 2 angegebenen Dosierung enthielt, bestimmt. Im Mittel über alle eingesetzten Automobile ergab sich hieraus eine durchschnittliche Kraftstoffeinsparung von 1,3 %

25

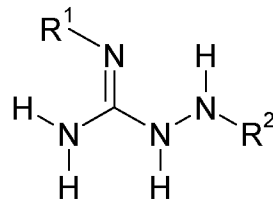
Beispiel 4: Einlassventilsauberkeit

Die Einlassventilsauberkeit (Intake valve deposits, "IVD") wurde gemäß CEC F-20-98 in einem Mercedes Benz-Motor M111 mit den beiden mit AK1 (erfindungsgemäß) oder AK2 (zum Vergleich) additivierten Ottokraftstoffen bestimmt. Bei einem Grundwert von 94 mg pro Ventil für den unadditivierten Ottokraftstoff ergab bei dem mit AK1 (erfindungsgemäß) additivierten Ottokraftstoff ein Wert von 2 mg pro Ventil und bei dem mit AK2 (zum Vergleich) additivierten Ottokraftstoff ein Wert von 6 mg pro Ventil.

35

Patentansprüche

1. Verwendung des Reaktionsproduktes aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure, deren Hydrocarbylrest 8 bis 250 Kohlenstoffatome aufweist, oder deren Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I



(I)

- oder einem Salz der Stickstoffverbindung I, wobei R¹ und R² unabhängig voneinander Wasserstoff oder einen C₁- bis C₂₀-Hydrocarbylrest bedeuten,
- als Additiv in einem Kraftstoff zur Reduktion des Kraftstoffverbrauches beim Betreiben eines fremdgezündeten Verbrennungsmotors mit diesem Kraftstoff oder als Additiv in einem Ottokraftstoff zur Reduktion des Kraftstoffverbrauches beim Betreiben eines selbstzündenden Verbrennungsmotors mit diesem Kraftstoff.
2. Verwendung nach Anspruch 1, wobei die hydrocarbylsubstituierte Dicarbonsäure der Komponente (a) auf Bernsteinsäure oder deren Anhydrid basiert.
3. Verwendung nach Anspruch 1 oder 2, wobei der Hydrocarbylsubstituent in der Komponente (a) ein linearer oder verzweigter C₈- bis C₄₀-Alkyl- oder -Alkenylrest oder ein Polyisobutenylrest mit 24 bis 250 Kohlenstoffatomen ist.
4. Verwendung nach den Ansprüchen 1 bis 3, wobei die Stickstoffverbindung der Komponente (b) unsubstituiertes Aminoguanidin-Hydrogencarbonat ist.
5. Kraftstoffzusammensetzung, enthaltend in einer größeren Menge einen Ottokraftstoff und in einer kleineren Menge mindestens ein Reaktionsprodukt aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I gemäß den Ansprüchen 1 bis 4 sowie mindestens ein von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenes Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung.
6. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 5, enthaltend als von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenem Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung mindestens einen Vertreter ausgewählt unter:
- (Da) Mono- oder Polyaminogruppen mit bis zu 6 Stickstoffatomen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat;

- (Db) Nitrogruppen, gegebenenfalls in Kombination mit Hydroxylgruppen;
- (Dc) Hydroxylgruppen in Kombination mit Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat;
- 5 (Dd) Carboxylgruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen;
- (De) Sulfonsäuregruppen oder deren Alkalimetall- oder Erdalkalimetallsalzen;
- 10 (Df) Polyoxy-C₂-C₄-alkylengruppierungen, die durch Hydroxylgruppen, Mono- oder Polyaminogruppen, wobei mindestens ein Stickstoffatom basische Eigenschaften hat, oder durch Carbamatgruppen terminiert sind;
- (Dg) Carbonsäureestergruppen;
- 15 (Dh) aus Bernsteinsäureanhydrid abgeleiteten Gruppierungen mit Hydroxy- und/oder Amino- und/oder Amido- und/oder Imidogruppen; und/oder
- (Di) durch Mannich-Umsetzung von substituierten Phenolen mit Aldehyden und
- 20 Mono- oder Polyaminen erzeugten Gruppierungen.
7. Kraftstoffzusammensetzung nach Anspruch 5 oder 6, enthaltend zusätzlich in einer kleineren Menge als weiteres Kraftstoffadditiv mindestens ein Trägeröl.
- 25 8. Kraftstoffzusammensetzung nach den Ansprüchen 5 bis 7, enthaltend zusätzlich in einer kleineren Menge als weiteres Kraftstoffadditiv mindestens einen Korrosionsinhibitor.
- 30 9. Additivkonzentrat, enthaltend mindestens ein Reaktionsprodukt aus (a) einer hydrocarbylsubstituierten Dicarbonsäure oder deren Anhydrid und (b) einer Stickstoffverbindung der allgemeinen Formel I gemäß den Ansprüchen 1 bis 4 sowie mindestens ein von dem genannten Reaktionsprodukt verschiedenes Kraftstoffadditiv mit Detergenswirkung.