



⑪ Numéro de publication : **0 596 769 A1**

⑫ **DEMANDE DE BREVET EUROPEEN**

⑳ Numéro de dépôt : **93402614.7**

⑤① Int. Cl.⁵ : **C10L 1/22, C10L 1/14, C10L 10/00**

㉔ Date de dépôt : **25.10.93**

③① Priorité : **04.11.92 FR 9213353**

④③ Date de publication de la demande : **11.05.94 Bulletin 94/19**

④④ Etats contractants désignés : **AT BE CH DE DK ES FR GB IT LI LU NL PT**

⑦① Demandeur : **INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE**
4, avenue de Bois Préau
F-92502 Rueil-Malmaison (FR)

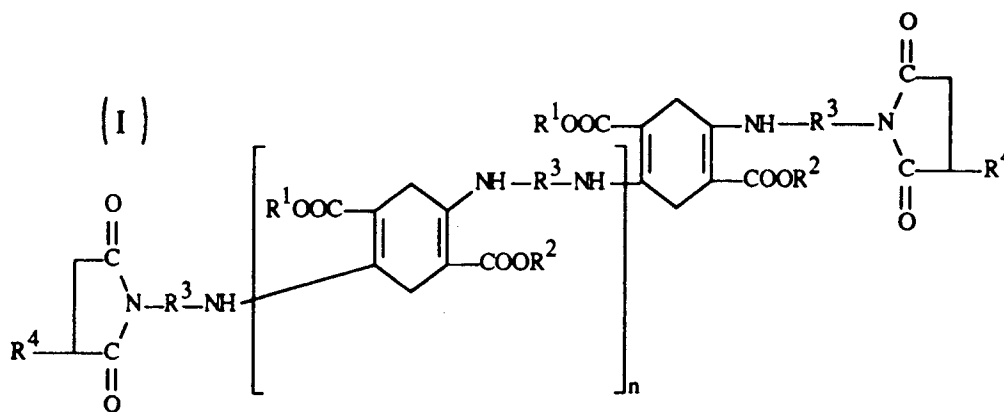
⑦① Demandeur : **ELF ANTAR FRANCE**
Tour Elf, Cedex 45
F-92078 Paris La Defense (FR)

⑦② Inventeur : **Garapon, Jacques**
120 rue Mazenod
F-69003 Lyon (FR)
Inventeur : **Forestière, Alain**
1369 Chemin du Pelet
F-69390 Vernaison (FR)
Inventeur : **Mulard, Philippe**
36 avenue Mozart
F-69780 St Pierre de Chandieu (FR)
Inventeur : **Labruyère, Yvan**
414-23ème rue de la Sauvegarde
F-69009 Lyon (FR)

⑦④ Mandataire : **Andreeff, François**
INSTITUT FRANCAIS DU PETROLE 4, avenue de Bois-Préau
F-92502 Rueil-Malmaison (FR)

⑤④ **Compositions d'additifs pour carburants comprenant des produits azotés comportant deux cycles imides et les carburants les contenant.**

⑤⑦ Composition d'additifs pour carburants comprenant au moins un constituant (A) et au moins un constituant (B), ledit constituant (A) consistant en au moins un composé polyazoté de formule générale (I) :



dans laquelle R^1 et R^2 identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné ou un groupe de formule $R^5-(-O-R^6)_a-(-O-R^7)_b-$; R^3 est un groupe hydrocarboné ou un groupe de formule $-R^8-(-X-R^9)_c-(-X-R^{10})_d-(-X-R^{11})_e-$ dans laquelle X est choisi parmi les groupes $-O-$ et $-NR^{12}-$, $R^5, R^6, R^7, R^8, R^9, R^{10}$ et R^{11} représentent chacun un groupe hydrocarboné ; a, d et e sont chacun zéro ou un nombre entier ; b et c sont chacun un nombre entier ; R^4 et R^{12} représentent chacun un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné et n est un nombre de 0 à 20 et ledit constituant (B) consistant en au moins un polyglycol soluble dans le carburant considéré. La composition d'additifs peut contenir en outre un produit détergent-dispersant. Utilisation de ces compositions comme additifs multifonctionnels pour les carburants employés dans les moteurs à combustion interne, en particulier pour ceux employés dans les moteurs à allumage commandé.

La présente invention concerne des compositions d'additifs, notamment pour carburants, comprenant au moins un produit azoté comportant deux cycles imides terminaux et au moins un polyglycol soluble dans ledit carburant, ainsi que de préférence, au moins un détergent-dispersant. Ces compositions sont utilisables comme additifs multifonctionnels pour les carburants et en particulier pour les carburants employés dans les moteurs à allumage commandé.

L'utilisation de carburants conventionnels conduit très souvent à l'encrassement des différentes parties du moteur par suite de la vaporisation et de la combustion incomplètes du carburant dans le système d'admission et dans les chambres de combustion.

En particulier, dans le cas des moteurs à allumage commandé, la formation et l'accumulation de dépôts dans les chambres de combustion perturbent les conditions de fonctionnement normales du moteur.

Ces dépôts modifient significativement les échanges thermiques entre les chambres de combustion et le système de refroidissement du moteur en formant une couche à caractère isolant.

Il s'ensuit une augmentation de la température dans les chambres à laquelle le mélange gazeux admis est soumis. L'auto-inflammation de ces gaz est alors favorisée, ce qui provoque l'apparition du phénomène bien connu de cliquetis du moteur.

Par ailleurs, l'accumulation de ces dépôts dans les chambres de combustion peut aboutir à une réduction du volume de la zone de combustion qui se traduit alors par une augmentation du taux de compression du moteur. Ce phénomène favorise également l'apparition du cliquetis. Par ailleurs les dépôts qui se forment dans les diverses parties du moteur en contact avec le carburant peuvent absorber partiellement une partie de ce carburant contribuant ainsi à une modification du mélange comburant-combustible avec une phase d'appauvrissement en combustible lors de l'absorption et une phase d'enrichissement dans le cas d'une désorption de ce carburant. La modification de la richesse du mélange carburant-air ne permet plus au moteur de travailler dans des conditions optimales.

Afin de remédier à l'encrassement il est possible de procéder à un nettoyage périodique, particulièrement onéreux, des organes concernés en particulier des soupapes.

L'accumulation de dépôts dans les moteurs et en particulier sur les soupapes d'admission peut également être réduite par l'utilisation de carburants contenant certains additifs, par exemple des additifs du type détergent éventuellement combinés par exemple avec des additifs anticorrosion ou antidépôts pour chambre de combustion.

Les additifs, bien connus dans le commerce, par exemple ceux du type polyisobutène-amine, sont habituellement associés à une huile minérale ou synthétique et sont susceptibles de provoquer un encrassement accru des chambres de combustion et donc une augmentation de l'exigence en octane du moteur avec une plus grande sensibilité au phénomène de cliquetis.

Parmi les nombreux additifs décrits dans l'art antérieur on peut citer les produits de condensation des anhydrides polyalcénylsucciniques sur des polyamines, telles que, par exemple, la tétraéthylènepentamine, qui sont en particulier décrits dans le brevet US-A-3172892. Ces additifs donnent de bons résultats au niveau des propriétés anticorrosion, mais ne sont pas efficaces comme détergents de soupapes.

On peut également citer les produits de condensation des anhydrides polyalcénylsucciniques sur des hydroxyimidazolines, et en particulier sur des 1-(2-hydroxyéthyl) imidazolines substituées en position 2 par un groupe alkyle ou alcényle, tels que ceux qui sont décrits dans la demande de brevet EP-A-74724. Les produits décrits dans cette demande sont de bons additifs pour carburants moteurs et ont une action anticorrosion importante mais ne sont pas très efficaces au niveau de la détergence du carburateur.

L'encrassement des chambres de combustion se produit de façon progressive lors du fonctionnement du moteur. Ce dernier est caractérisé par son exigence en octane qui correspond au niveau minimum d'indice d'octane du carburant nécessaire au moteur afin de fonctionner sans cliquetis. Lorsque la valeur de l'exigence en octane du moteur excède, notamment par suite de l'encrassement des chambres de combustion, la valeur de l'indice d'octane du carburant utilisé pour alimenter ce moteur, on observe le phénomène de cliquetis. L'augmentation d'exigence en octane du moteur constitue classiquement, pour l'homme de l'art, le phénomène d'ORI d'après l'abréviation anglo-saxonne de "Octane Requirement Increase".

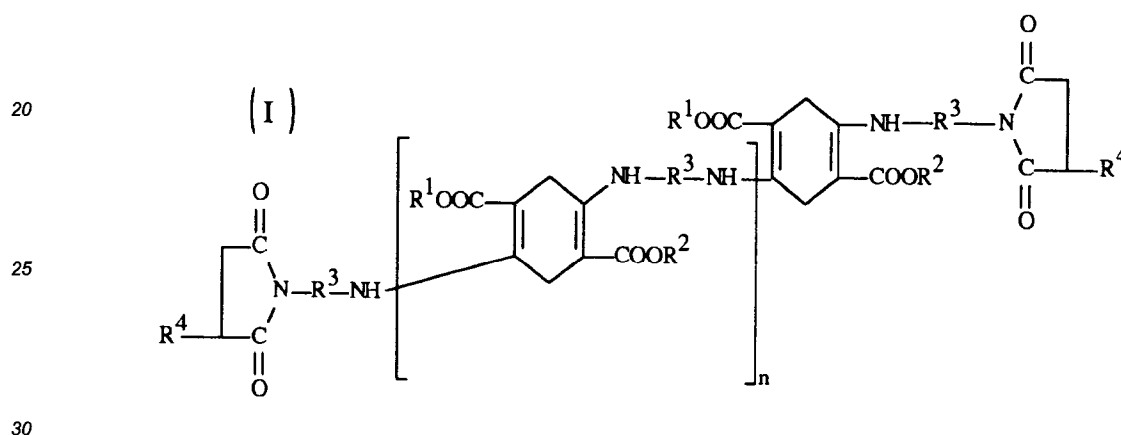
Afin de limiter l'apparition du cliquetis et ses conséquences néfastes sur le moteur telles que fatigue et usure accrues des parties vitales, il est possible de remédier à une trop forte exigence en octane du moteur en utilisant, sous réserve de disponibilité et à un coût économique élevé, un carburant ayant un indice d'octane supérieur à celui utilisé préalablement. On peut également procéder, de façon périodique, à un nettoyage des chambres de combustion afin d'éliminer les dépôts formés et réduire l'exigence en octane du moteur. Cette opération est toutefois longue et très coûteuse.

De très nombreux documents de brevets décrivent des additifs utilisables notamment dans les carburants moteurs. Les compositions telles que celles décrites par exemple dans la demande de brevet EP-A-327097 ont de bonnes propriétés anti-ORI mais des propriétés détergentes relativement limitées. De plus ces compo-

sitions ne sont pas décrites comme ayant de bonnes propriétés anticorrosion.

On a maintenant découvert de façon surprenante des compositions d'additifs, telles que décrites ci-après, utilisables notamment comme additifs multifonctionnels pour carburants moteurs en particulier pour les carburants utilisés dans les moteurs à allumage commandé, dans lesquels elles permettent en particulier de limiter l'augmentation d'exigence en octane (ORI) de ces moteurs et donc de limiter, de retarder ou même d'éviter, l'apparition du phénomène de cliquetis. Il est très surprenant que les compositions d'additifs selon la présente invention associent à leur action anti-ORI une action détergente aussi bien au niveau carburateur, qu'au niveau injecteurs et au niveau soupapes d'admission. Elles inhibent ou réduisent largement la formation de dépôts sur les soupapes d'admission, ainsi que l'encrassement des carburateurs ou des injecteurs. Par ailleurs, ces compositions d'additifs conservent leurs propriétés anticorrosion vis-à-vis des pièces avec lesquelles le carburant entre en contact, aussi bien dans le cas des carburants employés pour les moteurs à allumage commandé que dans ceux utilisés dans les moteurs à allumage par auto-inflammation (moteur Diesel).

La présente invention a pour objet une composition d'additifs, notamment pour carburants, qui comprend au moins un constituant (A) et au moins un constituant (B), ledit constituant (A) consistant en au moins un composé polyazoté, comportant deux cycles terminaux de type imide, répondant à la formule générale (I) :



dans laquelle R¹ et R², identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 120 atomes de carbone ou un groupe de formule R⁵-(-O-R⁶-)ₐ-(-O-R⁷-)ᵇ, dans laquelle R⁶ et R⁷, identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, R⁵ représente un groupe hydrocarboné monovalent ayant de 1 à 60 atomes de carbone a est zéro ou un nombre entier de 1 à 100 et b est un nombre entier de 1 à 100 ; R³ est un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 60 atomes de carbone ou un groupe divalent de formule -R⁸-(-X-R⁹-)ᶜ-(-X-R¹⁰-)ᵈ-(-X-R¹¹-)ₑ, dans laquelle X est choisi parmi les groupes -O- et -NR¹², R¹² représentant un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 6 atomes de carbone, R⁸, R⁹, R¹⁰ et R¹¹, identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, c est un nombre entier de 1 à 120, d et e, identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 120 et la somme c + d + e est un nombre entier de 1 à 120, R⁴ est un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 200 atomes de carbone et n est un nombre de 0 à 20 et ledit constituant (B) consistant en au moins un polyglycol soluble dans ledit carburant.

A titre d'exemples de carburants pouvant contenir au moins une composition d'additifs selon la présente invention, on peut citer les essences telles que celles qui sont définies par la norme ASTM D-439, les gazoles ou carburants Diesel tels que ceux qui sont définis par la norme ASTM D-975. Ces carburants peuvent également contenir d'autres additifs, tels que par exemple, notamment dans le cas des carburants employés pour les moteurs à allumage commandé, des additifs antidétonants tels que des composés du plomb (par exemple le plomb tétraéthyle), des éthers tels que le méthyltertiobutyléther ou le méthyltertioamyléther ou un mélange de méthanol et d'alcool tertibutylique et des additifs antigivres. On peut également ajouter les compositions d'additifs de la présente invention dans un carburant non hydrocarboné tel que par exemple un alcool ou un mélange d'alcools.

Le constituant (A) est de préférence choisi parmi les composés de formule générale (I) ci-devant dans laquelle R¹ et R², identiques ou différents, représentent chacun le plus souvent un groupe aliphatique, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 60 atomes de carbone et par exemple un groupe alkyle, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 30 atomes de carbone ou un groupe de formule R⁵-(-O-R⁶-)ₐ-(-OR⁷-)ᵇ, dans laquelle R⁶ et R⁷, identiques ou différents, représentent chacun le plus souvent un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone et par exemple un groupe alkylène, linéaire

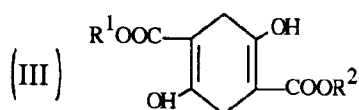
ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone tel que par exemple un groupe éthylène, triméthylène, propylène, tétraméthylène et isobutylène, R⁵ représente le plus souvent un groupe aliphatique monovalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 20 atomes de carbone et par exemple un groupe alkyle, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 20 atomes de carbone ; a est le plus souvent zéro ou un nombre entier de 1 à 50 et b est le plus souvent un nombre entier de 1 à 50, ou de préférence a est zéro ou un nombre entier de 1 à 25 et b est de préférence un nombre entier de 1 à 25 ; R³ est le plus souvent un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 20 atomes de carbone tel que par exemple un groupe alkylène, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 20 atomes de carbone ou un groupe divalent de formule -R⁸-(-X-R⁹)-_c-(-X-R¹⁰)-_d-(-X-R¹¹)-_e dans laquelle X est choisi parmi les groupes -O- et -NH-, R⁸, R⁹, R¹⁰ et R¹¹, identiques ou différents, représentent chacun un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone, c est un nombre entier de 1 à 60, d et e, identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 60 et la somme c + d + e est un nombre entier de 1 à 60 ; R⁴ est le plus souvent un groupe aliphatique monovalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié et de préférence un groupe alcényle, linéaire ou ramifié, ou un groupe formant avec le carbone méthylénique du cycle imide, un cycle saturé ou insaturé et de préférence insaturé, ponté ou non, ayant de 5 à 10 atomes de carbone et de préférence de 6 à 8 atomes de carbone, ledit groupe R⁴ ayant de 6 à 150, de préférence de 6 à 100 et le plus souvent de 12 à 60 atomes de carbone; n est le plus souvent un nombre de 0 à 10 et de préférence de 0 à 5.

Parmi les composés polyazotés (A) utilisables en particulier dans les compositions d'additifs multifonctionnels pour carburant moteur selon l'invention, on utilise habituellement ceux dans lesquels le groupe R⁴ comprend au moins 6 et de préférence au moins 12 atomes de carbone.

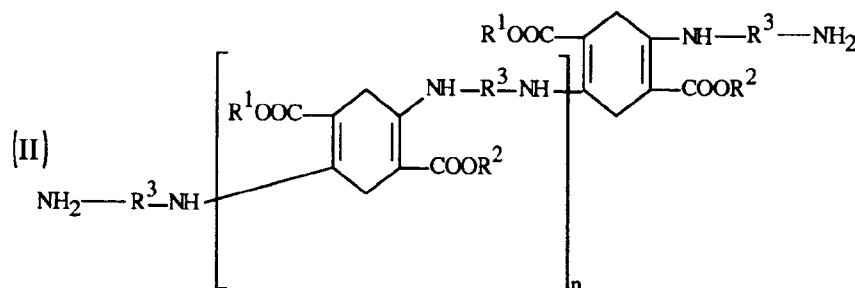
Les composés (A) polyazotés utilisés dans la présente invention peuvent être fabriqués par toutes méthodes connues de l'homme du métier. A titre d'exemples, non limitatifs, de méthodes permettant de préparer les composés de formule générale (I) ci-devant, on citera les deux méthodes suivantes.

Selon la première méthode de préparation, les composés de formule générale (I) peuvent être obtenus par un procédé comprenant les étapes suivantes :

a) on met en réaction, dans un solvant organique inerte, à température d'environ 60 °C à environ 160°C au moins un composé de formule générale (III) :



dans laquelle R¹ et R² ont les significations données ci-devant, avec au moins une diamine alpha-oméga biprimaire de formule générale NH₂-R³-NH₂, dans un rapport molaire diamine : composé de formule générale (III) d'environ 1,1 : 1 à environ 10 : 1, de préférence d'environ 1,2 : 1 à environ 5 : 1 et par exemple 2 : 1, de manière à former le composé de formule générale (II) :



dans laquelle R¹, R² et R³ ayant les significations données ci-devant, et

b) on met en réaction le composé de formule générale (II) obtenu à l'étape a) avec un acide ou un dérivé d'un acide dicarboxylique vicinal, à une température d'environ 30 °C à environ 160°C dans des conditions de formation des cycles imides et d'élimination des produits volatils formés, la quantité d'acide ou de dérivé d'acide employée étant d'environ au moins 2 moles par mole de composé de formule générale (II) mis en réaction et on isole éventuellement, de manière classique, le composé de formule générale (I) formé.

Les esters d'acides succinosucciniques que l'on utilise le plus souvent sont des composés commerciaux ou peuvent être obtenus facilement par les méthodes classiques de synthèse bien connu de l'homme du métier. Ces esters peuvent par exemple être obtenus par transestérification à partir du diméthylsuccinosuccinate

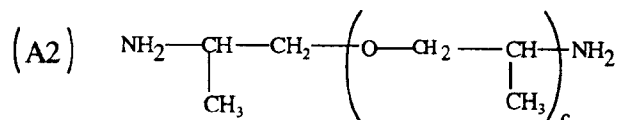
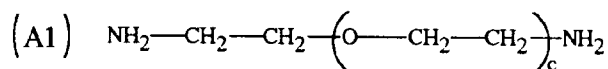
(DMSS). A titre d'exemples non limitatifs de ces esters, on citera les esters dérivant du méthanol, de l'éthanol, des propanols, des butanols, des alcools à longue chaîne, primaires ou secondaires, tel que l'éthyl-2 hexanol, des monoéthers alkylés de glycol ou de polyalkylèneglycols tels que les monoéthers d'alkyle de polypropylèneglycol, les monoéthers d'alkyle de polyéthylèneglycol et les monoéthers d'alkyle de polypropylène et éthylène glycol. Le groupe alkyle de ces produits contient le plus souvent au moins 5 atomes de carbone et il est le plus souvent linéaire. A titre d'exemples de groupes alkyles, on peut citer les groupes n-pentyle et n-heptyle. Ces produits oxyalkylés sont des produits commerciaux vendus par la société SHELL sous le nom générique OXYLUBE ou par la société ICI. Ces composés ont habituellement une masse moléculaire d'environ 500 à environ 2500 et le plus souvent d'environ 600 à environ 2000. A titre d'exemple de ces composés on peut citer ceux qui sont vendus par la société ICI ayant une structure bloc du type R5-O- + q1 (oxyde de propylène) + q2 (oxyde d'éthylène) dans laquelle R5 représente un groupe alkyle ayant de 1 à 20 atomes de carbone, q1 est le nombre d'unité d'oxyde de propylène et q2 est le nombre d'unité d'oxyde d'éthylène.

Les diamines alpha-oméga biprimaires que l'on emploie habituellement sont des composés bien connus de l'homme du métier. Comme composés spécifiques, on peut citer, à titre d'exemples non limitatifs, l'éthylènediamine, la propylènediamine, la diéthylènetriamine, la dipropylènetriamine, la triéthylènetétramine, la tripropylènetétramine, la tétraéthylènepentamine, la tétrapropylènepentamine, l'hexaméthylènediamine, la di(triméthylène)-triamine, la diméthyl-2,2 propanediamine-1,3, la N,N'-bis(amino-3 propyl)-éthylènediamine, la (amino-2 éthyl)-amino-3 propylamine, les triméthyl-hexaméthylènediamines pour le cas des amines ne contenant pas d'atomes d'oxygène dans leur formule. Dans le cas d'amines contenant des atomes d'oxygène dans leur formule, on peut citer les polyamines de formule :

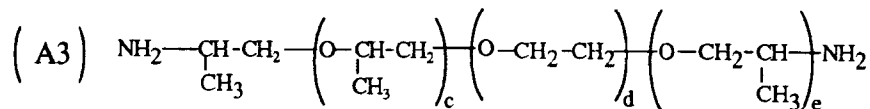


dans laquelle de préférence R⁸, R⁹, R¹⁰ et R¹¹, identiques ou différents, représentent chacun un groupe alkylidène ayant de 2 à 4 atomes de carbone par exemple éthylidène, propylidène, isopropylidène, butylidène, isobutylidène, de préférence c est un nombre entier de 1 à 60 et d et e sont égaux à zéro ou c est un nombre entier de 1 à 59, e est zéro ou un nombre entier tel que la somme c + e soit de 1 à 59 et d est un nombre entier de 1 à 50, avec dans chaque cas la somme c + d + e égale à un nombre entier de 1 à 60.

Comme diamines spécifiques, on peut citer celles répondant aux formules



dans lesquelles c est 2, 3, 5, 6 ou environ 33, ou de formule :



dans laquelle d est environ égal à 8, 9, 15, 16 ou 40 et c + e est environ 2 ou 3.

Ces produits sont en particulier commercialisés par la société TEXACO Chemical sous le nom Jeffamine EDR 148 pour le produit de formule (A1) dans laquelle c = 2, Jeffamine D-230 pour un produit de formule (A2) de masse moléculaire moyenne en nombre de 230, Jeffamine D-400 pour un produit de formule (A2) de masse moléculaire moyenne en nombre de 400, Jeffamine D-2000 pour un produit de formule (A2) de masse moléculaire moyenne en nombre de 2000, Jeffamine ED-600 pour un produit de formule (A3) de masse moléculaire moyenne en nombre de 600, Jeffamine ED-900 pour un produit de formule (A3) de masse moléculaire moyenne en nombre de 900 et Jeffamine ED-2001 pour un produit de formule (A3) de masse moléculaire moyenne en nombre de 2000. Dans le cadre de la présente invention on peut utiliser, pour la synthèse des produits de formule (I), (II) ou (IV), une ou plusieurs diamines biprimaires.

L'acide ou le dérivé d'acide utilisé habituellement dans le cadre de la présente invention est un composé succinique ou un composé alkylsuccinique ou alcénylsuccinique, de préférence un anhydride de type succi-

nique. On peut également employer un dérivé phtalique, de préférence l'anhydride phtalique ou un anhydride phtalique comportant un groupe alkyle sur l'un des atomes de carbone du noyau. A titre d'exemples de composés de type succinique, on peut citer l'anhydride succinique, l'anhydride méthylsuccinique souvent dénommé anhydride citraconique, et les anhydrides alkylsucciniques ou alcénylsucciniques ayant habituellement une

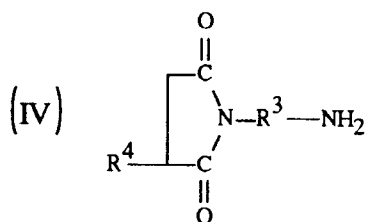
5 masse moléculaire moyenne en nombre d'environ 200 à 3000, de préférence 500 à 2000 et le plus souvent 700 à 1500. Ces dérivés succiniques sont largement décrits dans l'art antérieur ; ils sont par exemple obtenus par l'action d'au moins une oléfine alpha ou d'un hydrocarbure chloré sur l'acide ou l'anhydride maléique. L'oléfine alpha ou l'hydrocarbure chloré utilisé dans cette synthèse peuvent être linéaires ou ramifiés, et comportent

10 de 20 à 75 atomes de carbone dans leur molécule. Cette oléfine peut également être un oligomère, par exemple un dimère, un trimère ou un tétramère, ou un polymère d'une oléfine inférieure, ayant par exemple de 2 à 10 atomes de carbone, telle que l'éthylène, le propylène, le n-butène-1, l'isobutène, le n-hexène-1, le n-octène-1, le méthyl-2-heptène-1 ou le méthyl-2-propyl-5-hexène-1. Il est possible d'utiliser des mélanges d'oléfines ou des mélanges d'hydrocarbures chlorés.

15 A titre d'exemples d'anhydrides succiniques, on peut citer l'anhydride n-octadécénylsuccinique, l'anhydride dodécénylsuccinique et les anhydrides polyisobuténylsucciniques, souvent dénommés PIBSA, ayant une masse moléculaire moyenne en nombre telle que définie ci-devant.

Selon la deuxième méthode de préparation, les composés de formule générale (I), en particulier ceux dans lesquels n est égal à zéro, peuvent être obtenus par un procédé comprenant les étapes suivantes :

20 a) on met en réaction, au moins une diamine alpha-oméga biprimaire de formule générale $\text{NH}_2\text{-R}^3\text{-NH}_2$, avec un acide ou un dérivé d'un acide dicarboxylique vicinal, à une température d'environ 30 °C à environ 160 °C dans des conditions de formation des cycles imides et d'élimination des produits volatils formés, la quantité d'acide ou de dérivé d'acide employée étant d'environ 1 mole par mole de diamine, de manière à former le composé de formule générale (IV) :

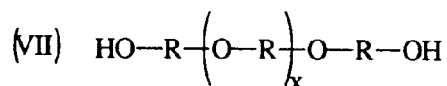


35 R^3 et R^4 ayant les significations données ci-devant et

b) on met en réaction le composé de formule générale (IV) obtenu à l'étape a) avec le composé de formule générale (III), dans un rapport molaire d'environ 2 moles de composé de formule générale (IV) par mole de composé de formule générale (III), dans des conditions de formation d'un composé de formule générale (I) dans laquelle $n = 0$.

40 Dans le cadre de la présente invention on peut utiliser, pour la synthèse des produits de formule (I), (II) ou (IV), une ou plusieurs diamines biprimaires.

Les compositions d'additifs de l'invention contiennent en outre au moins un constituant (B) choisi parmi les polyglycols solubles dans le carburant ayant de préférence une masse moléculaire moyenne en nombre de 480 à 2 100 et de formule générale (VII) :

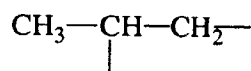


50 dans laquelle chacun des groupes R indépendamment représente un groupe hydrocarboné ayant de 2 à 6 atomes de carbone et x représente le degré moyen de polymérisation. Ces polyglycols sont par exemple décrits par la demanderesse dans la demande de brevet européen EP-A-349369.

Dans une forme avantageuse de réalisation, le constituant (B) est un polyglycol ayant un indice de polydispersité d'environ 1 à environ 1,25 et de préférence d'environ 1 à 1,15, de formule générale (VII) dans laquelle

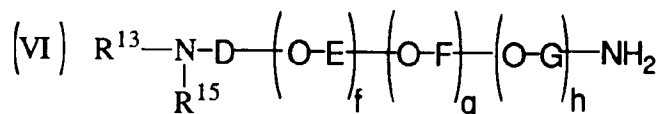
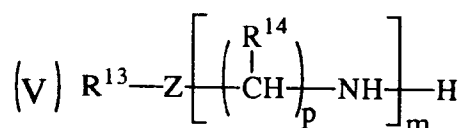
55 chacun des groupes R indépendamment représente un groupe alkylène, linéaire ou ramifié, ayant de 2 à 4 atomes de carbone, de préférence un groupe éthylène ou propylène.

Parmi les polyglycols de formule générale (VII) particulièrement préférés, on peut citer ceux dans lesquels chacun des groupes R représente un groupe propylène de formule :



Le polyglycol employé est de préférence un polyglycol de masse moléculaire moyenne en nombre de 600 à 1 800 et le plus souvent de 650 à 1 250.

Dans une forme préférée de réalisation de la présente invention, les compositions d'additifs comprennent en outre au moins un constituant (C) choisi dans le groupe formé par les produits détergent-dispersants. Ce constituant (C) est habituellement choisi dans le groupe formé par les polyoléfinés, de préférence les polyisobutènes, les polyisobutène-amines, les mélanges de ces types de composés et les produits qui sont en particulier décrits dans la demande de brevet européen EP-A-349369 au nom de la demanderesse, ainsi que ceux décrits dans le brevet US-A-4375974. Les produits décrits dans la demande EP-A-349369 résultent de la réaction dans une première étape d'au moins un dérivé succinique choisi dans le groupe formé par les acides et les anhydrides alcénylsucciniques et les acides et les anhydrides polyalcénylsucciniques sur au moins une 1-(2-hydroxyéthyl-)imidazoline substituée en position 2 par un radical alkyle ou alcényle, linéaire ou ramifié, ayant de 1 à 25 atomes de carbone, le rapport molaire imidazoline/dérivé succinique étant de 0,1:1 à 0,9:1, de préférence de 0,2 : 1 à 0,8 : 1 et le plus souvent de 0,3 : 1 à 0,7 : 1, ladite étape étant effectuée dans des conditions telles que l'on forme et que l'on élimine au moins 0,15 mole d'eau par mole d'imidazoline engagée ; et dans une deuxième étape de la réaction du produit issu de la première étape sur au moins une polyamine répondant à l'une des formules générales suivantes :



dans lesquelles R^{13} représente un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 60 atomes de carbone, Z est choisi parmi les groupes -O-, et -NR¹⁵- dans lesquels R^{15} représente un atome d'hydrogène ou groupe hydrocarboné ayant de 1 à 60 atomes de carbone, R^{13} et R^{15} pouvant former ensemble avec l'atome d'azote auquel ils sont liés un hétérocycle, chacun des R^{14} indépendamment représente un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 4 atomes de carbone, p est un nombre entier de 2 à 6, m est un nombre entier de 1 à 10 lorsque Z est -NR¹⁵- et un nombre entier de 2 à 10 lorsque Z est -O-, D, E, F et G, identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, f est un nombre entier de 1 à 60, g et h, identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 50 et la somme f + g + h est un nombre entier de 1 à 60, la quantité de polyamine mise en réaction étant d'au moins 0,1 mole par mole de dérivé succinique introduit dans la première étape. La quantité totale d'imidazoline substituée et de polyamine est de préférence de 0,8 à 1,2 mole par mole de dérivé succinique.

L'acide ou l'anhydride succinique utilisé dans le cadre de la présente invention pour préparer le constituant (C) est habituellement choisi parmi ceux définis ci-devant dans le cadre de la préparation des composés de formule générale (I). Les 1-(2-hydroxyéthyl-)imidazolines substituées en position 2 par un radical alkyle ou alcényle ayant de 1 à 25 atomes de carbone, utilisées dans le cadre de la présente invention pour préparer le constituant (C), sont habituellement des composés commerciaux ou qui peuvent être synthétisés par exemple par réaction d'au moins un acide organique avec la N-(2-hydroxyéthyl)-éthylènediamine. La réaction procède par une première étape d'amidification suivie d'une cyclisation. Les acides organiques utilisés ont habituellement de 2 à 26 atomes de carbone ; ce sont de préférence des acides aliphatiques monocarboxyliques.

A titre d'exemples, on peut citer l'acide acétique, l'acide propanoïque, l'acide butanoïque, l'acide caproïque, l'acide caprique, l'acide laurique, l'acide myristique, l'acide palmitique, l'acide stéarique, l'acide béhénique, l'acide cérotique et les acides gras insaturés suivant :

	CH ₃ -CH ₂ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide dodécylénique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₅ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide palmitoléique
5	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₇ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide oléique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₅ -CHOH-CH ₂ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide ricinoléique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₁₀ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₄ -COOH	acide pétrosélénique
10	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₅ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₉ -COOH	acide vaccénique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₄ -CH=CH-CH ₂ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide linoléique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₉ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₇ -COOH	acide gadoléique
15	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₉ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₉ -COOH	acide cétoléique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₇ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₁₁ -COOH	acide érucique
	CH ₃ -(-CH ₂ -) ₇ -CH=CH-(-CH ₂ -) ₁₃ -COOH	acide sélacholéique

20 On utilisera par exemple la 1-(2-hydroxyéthyl)-2-heptadécényl imidazoline, préparée par exemple à partir de l'acide oléique et de la N-(2-hydroxyéthyl)-éthylènediamine. Cette préparation est par exemple décrite dans le brevet US-A-2987515. On peut également citer à titre d'exemple la 1-(2-hydroxyéthyl)-2-méthyl imidazoline préparée par exemple à partir de l'acide acétique et de la N-(2-hydroxyéthyl)-éthylènediamine. La 1-(2-hydroxyéthyl)-2 heptadécénylimidazoline est commercialisée par la société CIBA-GEIGY sous le nom "Amine-O" et par la société PROTEX sous le nom "Imidazoline-O".

25 La première étape de préparation du constituant (C) est habituellement effectuée par addition progressive du dérivé de l'imidazoline à une solution du dérivé succinique dans un solvant organique, à température ordinaire, puis chauffage à une température habituellement comprise entre 65 °C et 250 °C et de préférence entre 80 °C et 200 °C. Le solvant organique utilisé dans cette préparation a un point d'ébullition compris entre 65 °C et 250 °C et est habituellement choisi manière à pouvoir permettre l'élimination de l'eau formée au cours de la condensation de l'imidazoline sur le dérivé succinique, de préférence sous forme d'un azéotrope eau-solvant organique. On utilisera habituellement un solvant organique tel que par exemple le benzène, le toluène, les xylènes, l'éthylbenzène ou une coupe d'hydrocarbures telle que par exemple la coupe commerciale SOLVES-SO 150 (190-209 °C) contenant 99 % en poids de composés aromatiques. Il est possible d'utiliser des mélanges de solvants, par exemple un mélange de xylènes. La durée du chauffage après la fin de l'addition de l'imidazoline est habituellement de 0,5 à 7 heures, de préférence de 1 à 5 heures. Cette première étape sera de préférence poursuivie à la température choisie jusqu'à la fin du dégagement de l'eau formée au cours de la réaction.

40 La quantité d'eau éliminée au cours de cette première étape est habituellement d'environ 0,15 à 0,6 mole et le plus souvent d'environ 0,5 mole par mole d'imidazoline engagée dans la réaction. Au produit ou mélange issu de cette première étape, après refroidissement éventuel, on ajoute de préférence progressivement au moins une polyamine, de préférence diluée dans un solvant organique, puis habituellement on chauffe à une température comprise entre 65 °C et 250 °C et de préférence entre 80 °C et 200 °C. Le solvant employé dans la deuxième étape est de préférence le même que celui qui est dans la première étape et la température est également la même au cours de ces deux étapes. Les réactions sont habituellement effectuées à une température correspondant à la température de reflux. La durée de ce chauffage au cours de cette deuxième étape est habituellement de 0,1 à 7 heures et de préférence de 0,2 à 5 heures. La quantité de polyamine employée est d'au moins 0,1 mole par mole d'anhydride succinique introduite au cours de la première étape et elle est de préférence telle que la quantité totale d'imidazoline substituée et de polyamine employée dans la préparation soit de 0,8 à 1,2 mole, de préférence de 0,9 à 1,1 mole par mole de dérivé succinique. Le rapport molaire imidazoline substituée sur polyamine est de préférence de 1 : 1 à 7 : 1 et de manière la plus préférée de 1 : 1 à 3 : 1.

50 La quantité d'eau éliminée au cours de cette deuxième étape est habituellement telle que la quantité d'eau totale éliminée au cours des deux réactions successives représente de 0,2 à 0,7 mole par mole de dérivé succinique.

55 Les polyamines de formule (V) sont de préférence celles dans lesquelles R¹³ est un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 30 atomes de carbone, Z est de préférence un groupe -NR¹⁵- dans

lequel R¹⁵ représente de préférence un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 30 atomes de carbone, chacun des R¹⁴ indépendamment représente de préférence un atome d'hydrogène ou un groupe méthyle, p est un nombre entier de 2 à 4 et lorsque Z est un groupe -NR¹⁵- m est de préférence un nombre entier de 1 à 5.

5 Parmi les composés de formules (V) ci-devant on emploie avantageusement ceux dans lesquels Z est -NR¹⁵-, R¹³, R¹⁴ et R¹⁵ représentent chacun un atome d'hydrogène, p est égal à 2 et m est un nombre entier de 1 à 5 ou ceux dans lesquels R¹³ représente un groupe hydrocarboné ayant de préférence de 5 à 24 atomes de carbone, Z représente un groupe -NR¹⁵- dans lequel R¹⁵ est un atome d'hydrogène, R¹⁴ représente un atome d'hydrogène, p est un nombre entier de 2 à 4, de préférence 3, et m est un nombre entier de 1 à 5, de préférence 1.

10 Les groupes hydrocarbonés R¹³ et R¹⁵ sont habituellement des groupes alkyles, alcényles, linéaires ou ramifiés, aryles, aryl-alkyles (aralkyles), alkyl-aryles (alkaryles) ou cycloaliphatiques. Les groupes R¹³ et R¹⁵ sont de préférence des groupes alkyles ou alcényles, linéaires ou ramifiés. Le groupe hydrocarboné R¹⁴ est habituellement un groupe alkyle de préférence linéaire et par exemple méthyle, éthyle, n-propyle ou n-butyle.

15 Comme composés spécifiques on peut citer : les diamines alpha-oméga biprimaires mentionnées ci-devant, la triméthylènediamine, les triméthyl-2,2,4 et -2,4,4 hexaméthylènediamine, les N-alkyl diamino-1,3 propane par exemple le N-dodécyldiamino-1,3 propane, le N-tétradécyldiamino-1,3 propane, le N-hexadécyldiamino-1,3 propane, le N-octadécyldiamino-1,3 propane, le N-éicosyldiamino-1,3 propane et le N-docosyldiamino-1,3 propane ; on peut également citer les N-alkyldipropylène triamines par exemple la N-héxadécyldipropylène triamine, la N-octadécyldipropylène triamine, la N-éicosyldipropylène triamine et la N-docosyldipropylène triamine ; on peut également citer les N-alcényldiamino-1,3 propane et les N-alcényldipropylène triamines par exemple le N-octadécényldiamino-1,3 propane, le N-héxadécényldiamino-1,3 propane, le N-dodécényldiamino-1,3 propane, le N-octadécadiényldiamino-1,3 propane et le N-docosényldiamino-1,3 propane. On peut citer à titre d'exemples de diamines N,N disubstituées le N,N-diéthyl diamino-1,2 éthane, le N,N-diisopropyl diamino-1,2 éthane, le N,N-dibutyl diamino-1,2 éthane, le N,N-diéthyl diamino-1,4 butane, le N,N-diméthyl diamino-1,3 propane, le N,N-diéthyl diamino-1,3 propane, le N,N-diocetyl diamino-1,3 propane, le N,N-didécyl diamino-1,3 propane, le N,N-didodécyl diamino-1,3 propane, le N,N-ditétradécyl diamino-1,3 propane, le N,N-di-hexadécyl diamino-1,3 propane, le N,N-dioctadécyl diamino-1,3 propane, la N,N-didodécyldipropylène triamine, la N,N-ditétradécyldipropylène triamine, la N,N-dihexadécyldipropylène triamine, la N,N-dioctadécyldipropylène triamine, le N-méthyl, N-butyl diamino-1,2 éthane, le N-méthyl N-octyl diamino-1,2 éthane, le N-éthyl, N-octyl diamino-1,2 éthane, le N-méthyl, N-décyl diamino-1,2 éthane, le N-méthyl N-dodécyl diamino 1,3 propane, le N-méthyl, N-hexadécyl diamino-1,3 propane et le N-éthyl N-octadécyl diamino-1,3 propane.

30 A titre d'exemples d'étheramines on peut citer le N-(octyloxy-3 propyl)diamino-1,3 propane, le N-(décyloxy-3 propyl)diamino-1,3 propane, le N- [(triméthyl-2,4,6 décyl)oxy-3 propyl] diamino-1,3 propane.

35 Il doit être entendu qu'il est possible de mettre en jeu comme composé polyaminé un ou plusieurs composés répondant à la formule (V) et/ou (VI). Comme exemples spécifiques de mélange de composés répondant à la formule (V) on peut citer : les coupes de diamines grasses répondant à la formule R¹³-NH-(CH₂)₃-NH₂ dont les groupes R¹³ sont des radicaux hydrocarbonés aliphatiques en C₈, C₁₀, C₁₂, C₁₄, C₁₆, C₁₈, C₂₀ et C₂₂, en proportions molaires approximatives données dans le tableau I ci-après.

TABLEAU I

Chaînes alkyles	C ₈	C ₁₀	C ₁₂	C ₁₄	C ₁₆	C ₁₈	C ₁₈₋₁ *	C ₂₀	C ₂₂
Coupe									
A	0 %	0 %	0 %	1 %	28 %	71 %	0 %	0 %	0 %
B	0 %	0 %	0 %	1 %	5 %	42 %	0 %	12 %	40 %
C	3 %	6 %	56 %	18 %	10 %	2 %	5 %	0 %	0 %
D	0 %	0 %	0 %	0 %	16 %	4,9 %	79,1 %	0 %	0 %
E	0 %	0 %	0 %	2,3 %	31,8 %	24,2 %	39 %	2,7 %	0 %

*C₁₈₋₁ Chaîne comportant une insaturation éthylénique.

Les polyamines de formules (VI) sont de préférence celles dans lesquelles R¹³ et R¹⁵ représentent cha-

cun un atome d'hydrogène, D, E, F et G, identiques ou différents, représentent chacun un groupe alkylène ayant de 2 à 4 atomes de carbone par exemple éthylène, triméthylène, méthyléthylène, tétraméthylène, méthyltriméthylène, méthyl-1 triméthylène et méthyl-2 triméthylène, f est un nombre entier de 1 à 60 et g et h sont égaux à zéro ou f est un nombre entier de 1 à 59, h est zéro ou un nombre entier tel que la somme f + h soit de 1 à 59 et g est un nombre entier de 1 à 50, avec dans chaque cas la somme f + g + h égale à un nombre entier de 1 à 60.

Comme composés spécifiques de formule (VI) on peut citer les diamines de formules (A1), (A2) et (A3) mentionnées ci-devant.

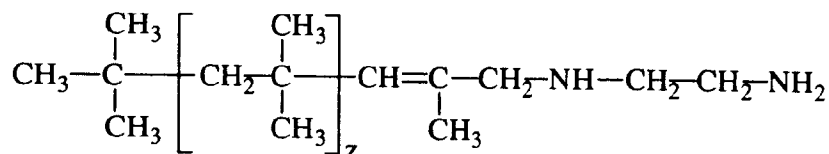
Les produits décrits par la demanderesse dans le brevet US-A-4375974 et utilisables, dans le cadre de la présente invention comme constituant (C) sont ceux résultant de la réaction d'au moins une polyamine, ayant au moins un groupe amino primaire et répondant à la formule générale (V) ci-devant, sur au moins un dérivé succinique tels que ceux décrits ci-devant, ladite réaction étant effectuée dans des conditions de formation et d'élimination de l'eau de réaction. Le plus souvent la réaction est effectuée à une température d'environ 120 °C à environ 200 °C avec un rapport molaire amine sur dérivé succinique d'environ 0,9 : 1 à environ 1,2 : 1. Cette réaction peut être effectuée en l'absence de solvant ou en présence d'un solvant tels que par exemple un hydrocarbure aromatique ou une coupe d'hydrocarbures ayant un point d'ébullition d'environ 70 °C à environ 250 °C.

Le constituant (C) utilisable dans le cadre de la présente invention peut aussi être choisi dans le groupe formé par les polyisobutènes, les polyisobutène-amines, les mélanges de ces deux types de composés. Les polyoléfinés employés peuvent être des polymères ou des copolymères ou les dérivés aminés ou hydrogénés correspondant formés à partir d'hydrocarbures ayant de 2 à 10 atomes de carbone dans leur molécule. Ces composés polymériques sont habituellement préparés à partir de composés monooléfiniques ou dioléfiniques et ont habituellement une masse moléculaire moyenne en nombre d'environ 500 à 10 000 souvent d'environ 500 à 3500 et de préférence d'environ 650 à 2600. Le plus souvent les composés de départ employés pour fabriquer ces polymères sont des oléfines ayant de 2 à 6 atomes de carbone dans leur molécule, telles que par exemple l'éthylène, le propylène, l'isopropylène, le butène, l'isobutène, l'amylène, l'héxylène, le butadiène et l'isoprène. On utilise très fréquemment le propylène, l'isopropylène, le butène et l'isobutène. Les autres polyoléfinés qui peuvent également être employés sont celle obtenues par craquage de polymères ou de copolymères oléfiniques de poids moléculaire élevés en composés ayant une masse moléculaire dans la gamme de poids moléculaire mentionnée ci-devant.

A titre d'exemples non limitatifs de composés spécifiques que l'on utilise fréquemment, on peut citer les polypropylènes de masse moléculaire moyenne en nombre d'environ 750 à 1000 et par exemple d'environ 800, les polyisobutènes de masse moléculaire moyenne en nombre d'environ 1000 à 1500 et par exemple d'environ 1300.

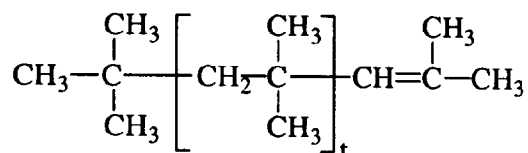
Dans une autre réalisation préférée selon la présente invention, le constituant (C) est un mélange comprenant une proportion majoritaire de polyisobutène-éthylènediamine et une proportion minoritaire de polyisobutène. Ce mélange est le plus souvent employé dissous dans un solvant hydrocarboné de manière à faciliter son incorporation dans le carburant. La proportion de polymère aminé au sein de ce mélange est habituellement d'environ 50 % à environ 80 % en poids et par exemple d'environ 60 % en poids et la proportion de polymère hydrocarboné est habituellement d'environ 5 % à environ 30 % en poids et de préférence d'environ 10 % à environ 25 % en poids.

La polyisobutène éthylène diamine est un composé de formule générale :



dans laquelle z est un nombre d'environ 10 à environ 40, de préférence d'environ 30 à environ 35 et par exemple d'environ 33.

Le polyisobutène est un composé de formule générale :



dans laquelle t est un nombre d'environ 10 à environ 40, de préférence d'environ 30 à environ 35 et par exemple d'environ 33.

Le solvant employé pour dissoudre les composés polymériques et faciliter leur incorporation au carburant est le plus souvent un distillat aromatique léger. On peut employer en tant que constituant (C) comprenant, dissous dans un distillat aromatique léger, un polyisobutène et un polyisobutène-éthylène-diamine tels que décrits ci-devant, le produit vendu par la société CHEVRON CHEMICAL COMPANY sous le nom commercial ORONITE OGA-472. L'ORONITE OGA-472 est une composition comprenant approximativement 60 % en poids de polyisobutène-éthylène-diamine, approximativement 27% en poids de polyisobutène et approximativement 13 % en poids de distillat aromatique léger comprenant du xylène et des alkylbenzènes en C₉.

Les compositions d'additifs selon l'invention sont en particulier utilisables comme additif ayant une bonne activité anticorrosion pour un carburant à base d'hydrocarbures ou d'un mélange d'hydrocarbures et d'au moins un composé oxygéné choisi dans le groupe formé par les alcools et les éthers. Ces compositions sont en outre utilisables comme additif multifonctionnels ayant en particulier de bonnes propriétés anti-ORI et détergente-dispersantes pour un carburant moteur, pour moteur à allumage commandé, à base d'hydrocarbures ou d'un mélange d'hydrocarbures et d'au moins un composé oxygéné choisi dans le groupe formé par les alcools et les éthers. Habituellement, ces compositions d'additifs sont ajoutées au carburant de manière à obtenir une concentration en masse, de la composition d'additif dans le carburant moteur, de 10 à 10 000 ppm, souvent de 100 à 5 000 ppm et de préférence de 100 à 2000 ppm.

Dans les compositions d'additifs selon la présente invention le rapport pondéral du constituant (A) au constituant (B) [(A)/(B)] est habituellement d'environ 0,05 : 1 à environ 5 : 1. Ce rapport est souvent d'environ 0,05 : 1 à environ 2 : 1 et de préférence d'environ 0,1 : 1 à environ 2 : 1. Lorsque la composition comprend également un constituant (C) le rapport pondéral du constituant (B) au constituant (C) [(B)/(C)] est habituellement d'environ 0,1 : 1 à environ 50 : 1 et de préférence d'environ 0,2 : 1 à environ 20 : 1.

Les exemples suivants illustrent l'invention sans en limiter la portée.

EXEMPLE 1

a) Première étape

Dans un réacteur de 2 litres à double enveloppe, muni d'un système d'agitation, d'un tube plongeant permettant une introduction d'argon, d'un thermomètre et d'un réfrigérant, on introduit sous agitation 182,4 g (0,8 mole) de diméthylsuccinosuccinate (DMSS) et 2512 g (2,29 moles) d'un monoalcool polyoxypropylé et éthoxylé (vendu par la société ICI) à 70 % de fonction alcool primaire et dont la masse moléculaire est de 1097 (soit un excès de 30 %). La température est portée à 135 °C puis on introduit 11,6 g (3,4x10⁻² mole) de titanate de butyle Ti(OC₄H₉)₄, et on élève ensuite la température à 145 °C en maintenant l'agitation. On maintient sous agitation la température à 145 °C pendant une heure et trente minutes. On recueille une première fraction de méthanol à la pression atmosphérique puis on diminue progressivement la pression à l'aide d'une trompe à eau jusqu'à une valeur égale à 27 KiloPascals (KPa) et on recueille, (la température du ballon étant maintenue à 145 °C) après condensation, une phase alcoolique. Une analyse par chromatographie en phase gazeuse montre que la phase alcoolique ainsi récupérée contient du méthanol, de l'alcool polyoxyalkylé et du butanol. La quantité totale de méthanol récupéré (51,2 g) correspond à la quantité attendue. Le réacteur contient 1811 g de produits, qui, d'après une analyse par chromatographie de perméation sur gel, contiennent 89,4 % de succinosuccinate d'alcool polyoxyalkylé soit 1619 g (0,76 moles) ce qui correspond à une conversion molaire du DMSS de 95 %. Par distillation sous une pression partielle de 270 Pa et à la température de 120 °C on élimine les alcools résiduels. Le produit obtenu, est dissous dans du xylène avec un rapport pondéral de 1 : 1. La solution ainsi obtenue est appelée solution N° 1.

b) Deuxième étape

Dans un réacteur de 2 litres à double enveloppe, muni d'un système d'agitation, d'une ampoule de coulée, d'un thermomètre et d'un séparateur de Dean-Stark, on introduit 0,2 mole de triméthylhexaméthylènediamine commerciale (mélange de triméthyl-2,2,4 et de triméthyl-2,4,4 hexaméthylène diamine) sous forme d'une so-

lution dans le xylène, à 50 % en poids. A température ambiante, sous agitation, on fait couler goutte à goutte 333 g d'une solution, à 50 % en poids, dans le xylène, d'anhydride polyisobutènesuccinique à 0,12 fonction anhydride pour 100 g, soit 0,2 mole. La température est ensuite élevée progressivement au reflux du xylène (140 °C.) Après 2 heures de réaction à 140 °C, on a recueilli 3,6 g d'eau ce qui correspond à la quantité théorique pour la formation d'un cycle succinimide. On récupère dans le réacteur 487 g d'une solution dite solution N° 2. Le produit obtenu est caractérisé par les méthodes classiques d'analyse.

c) Troisième étape

Dans un réacteur identique à celui utilisé dans la deuxième étape, on introduit une quantité de la solution N° 1 préparée au cours de la première étape correspondant à 0,1 mole du diester de l'acide succinosuccinique et de l'alcool polyoxyalkylé A température ambiante sous agitation, on ajoute goutte à goutte la solution N° 2 obtenue au cours de la deuxième étape. La température est élevée progressivement à 120 °C et on recueille 3,5 millilitres (ml) d'eau, soit 97 % de la quantité théorique pour la formation d'un produit de formule (I) (2 moles d'eau par mole de diester). dans laquelle $n=0$. On récupère 568 g d'une solution à 50 % en poids de produit dans le xylène. Cette solution est appelée additif 2. L'additif 2 a été analysé après évaporation du solvant. Sa masse moléculaire moyenne en nombre, mesurée par tonométrie, est de 3000. Le spectre infrarouge montre les bandes caractéristiques suivantes : 1610 cm^{-1} attribuable à la double liaison énamine, 1660 cm^{-1} attribuable à la liaison carbonyle de l'ester de l'acide succinosuccinique, et le doublet caractéristique des succinimides aliphatiques à 1710 cm^{-1} et 1770 cm^{-1} .

EXEMPLE 2

a) Première étape

Dans un réacteur de 2 litres à double enveloppe, muni d'un système d'agitation, d'une ampoule de coulée, d'un thermomètre et d'un séparateur de Dean-Stark, on introduit 1000 g d'une solution dans le xylène, à 50 % en poids, de polyoxypropylène-diamine de masse moléculaire 2000 (Produit vendu par la société TEXACO sous le nom Jeffamine D2000), soit 0,25 mole d'amine. A température ambiante, sous agitation, on fait couler goutte à goutte 416,25 g d'une solution, à 50 % en poids, dans le xylène, d'anhydride polyisobutènesuccinique à 0,12 fonction anhydride pour 100 g, soit 0,25 mole. La température est ensuite élevée progressivement au reflux du xylène (140 °C.) Après 2 heures de réaction à 140 °C, on a recueilli 4,5 g d'eau ce qui correspond à la quantité théorique pour la formation d'un cycle succinimide. On récupère dans le réacteur une solution dite solution N° 3. Le produit obtenu est caractérisé par les méthodes classiques d'analyse.

b) Deuxième étape

Dans un réacteur identique à celui utilisé dans la première étape, on introduit sous forme d'une solution à 50 % en poids dans le xylène 0,1 mole du diester méthylrique de l'acide succinosuccinique A température ambiante sous agitation, on ajoute goutte à goutte la solution N° 3 obtenue au cours de la première étape. La température est élevée progressivement à 120 °C et on recueille 3,5 millilitres (ml) d'eau, soit 97 % de la quantité théorique pour la formation d'un produit de formule (I) (2 moles d'eau par mole de diester). dans laquelle $n=0$. On récupère une solution à 50 % en poids de produit dans le xylène. Cette solution est appelée additif 2. L'additif 2 a été analysé après évaporation du solvant. Sa masse moléculaire moyenne en nombre, mesurée par tonométrie, est de 5800. Le spectre infrarouge montre les bandes caractéristiques suivantes : 1610 cm^{-1} attribuable à la double liaison énamine, 1660 cm^{-1} attribuable à la liaison carbonyle de l'ester de l'acide succinosuccinique, et le doublet caractéristique des succinimides aliphatiques à 1710 cm^{-1} et 1770 cm^{-1} .

EXEMPLE 3 (Composition détergente)

1018 g d'anhydride polyisobuténylsuccinique (PIBSA), résultant de la condensation de polyisobutène (polyisobutène de masse moléculaire moyenne en nombre de 920), sur l'anhydride maléique (le dosage des fonctions anhydride de ce produit montre que l'on a 0,7 fonction anhydride par kilogramme) et 1018 g de xylène sont chargés dans un réacteur de 2 litres muni d'une agitation mécanique, d'un séparateur de Dean-Stark et d'un système de régulation de température.

On procède ensuite, à température ambiante et sous agitation, à l'addition goutte à goutte de 148 g (0,423 mole) de 1-(2-hydroxy-éthyl)-2-heptadécényl imidazoline diluée dans 148 g de xylène. L'addition est effectuée en 30 minutes et accompagnée d'une augmentation rapide de température du mélange réactionnel d'environ

5 °C. Le mélange est ensuite porté à reflux pendant 3 heures avec élimination d'eau réactionnelle par distillation azeotropique. La quantité d'eau recueillie est de 2,3 ml (millilitre) L'état d'avancement de la réaction peut également être suivi par spectrométrie infrarouge au niveau de la bande d'absorption de la fonction imine à 1660 cm⁻¹ qui disparaît progressivement au cours de la réaction.

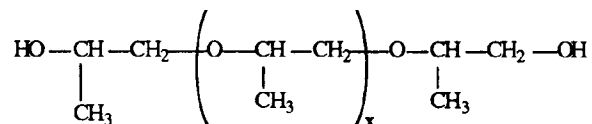
La température du réacteur est diminuée jusqu'à 50 °C puis maintenue à cette valeur durant le temps de l'addition progressive (goutte à goutte) de 56 g (0,297 mole) de tétraéthylènepentamine diluée dans 49 g de xylène. A la fin de cette addition le mélange est à nouveau porté à reflux pendant 15 minutes. Il se produit de nouveau une élimination d'eau. La quantité totale d'eau recueillie au cours de ces deux étapes de réaction est de 7,2 ml Le spectre infrarouge montre deux bandes d'absorption (1710 cm⁻¹ et 1770 cm⁻¹) caractéristique de la fonction succinimide avec un épaulement (1740 cm⁻¹) caractéristique de la fonction ester.

On obtient ainsi une solution, à 50 % en poids de matière active, dans le xylène, d'une composition dont l'analyse élémentaire fait apparaître une teneur en azote de 2,55 % en poids.

EXEMPLE 4

On prépare des solutions, dans le xylène, de compositions F1 à F5 comprenant diverses quantités pondérales des constituants (A), (B) et (C) définis ci-après. Le constituant (A) est formé par l'une des compositions obtenues dans les exemples 1 et 2.

Le constituant (B) est un polypropylèneglycol de formule :



dont la masse moléculaire moyenne en nombre est de 922 ($x = 13,6$) et dont la polydispersité est de 1,1. Le constituant (C) est formé par la composition obtenue dans l'exemple 3.

La composition F1 selon la présente invention contient le constituant (A) formé par la composition obtenue dans l'exemple 1, le constituant (B) formé par le polypropylèneglycol décrit ci-devant et le constituant (C) formé par la composition obtenue dans l'exemple 3. Ces constituants sont utilisés dans un rapport pondéral, en terme de matière active, A : B : C de 1 : 5 : 5.

La composition F2 selon la présente invention contient le constituant (A) formé par la composition obtenue dans l'exemple 2, le constituant (B) formé par le polypropylèneglycol décrit ci-devant et le constituant (C) formé par la composition obtenue dans l'exemple 3. Ces constituants sont utilisés dans un rapport pondéral, en terme de matière active, A : B : C de 1 : 5 : 5.

La composition F3 (composition de comparaison) contient le constituant (B) formé par le polypropylèneglycol décrit ci-devant ainsi que le constituant (C) formé par la composition obtenue dans l'exemple 3, mais pas de constituant (A). Le rapport pondéral en matière active B : C est de 1 : 1.

La composition F4 (composition de comparaison) contient le constituant (A) formé par la composition obtenue dans l'exemple 1 et le constituant (C) formé par la composition obtenue dans l'exemple 3, mais pas de constituant (B). Le rapport pondéral en matière active A : C est de 1 : 5.

La composition F5 selon la présente invention contient le constituant (A) formé par la composition obtenue dans l'exemple 1 et le constituant (B) formé par le polypropylèneglycol décrit ci-devant, mais pas de constituant (C). Le rapport pondéral en matière active A : B est de 1 : 5.

EXEMPLE 5

Une série d'essais est effectuée de manière à évaluer les propriétés de limitation de l'augmentation de l'exigence en octane d'un moteur alimenté avec un carburant seul, un carburant contenant l'une des compositions d'additifs décrites dans l'exemple 4. Le carburant utilisé est un carburant sans plomb comprenant en volume :

- 30 % d'aromatiques
- 5 % d'oléfinés et
- 65 % de composés saturés (paraffines et naphéniques).

Les diverses compositions d'additifs ont été ajoutées au carburant de manière à avoir une concentration en poids de matière active de 660 ppm. Les essais ont été effectués sur un banc moteur équipé d'un moteur

Renault de type F 2 N ayant une cylindrée de 1721 cm³ et un taux de compression de 9,5. Ces essais ont été effectués en suivant la procédure Renault 22700 modifiée, avec une température de l'eau en sortie de culasse de 95 °C à plus ou moins 2 degrés et une température de l'huile au niveau de la rampe de 140 °C. Le cycle d'essai dure 12 heures (h) et comprend :

- 1 h de ralenti à vide,
- 4 h à 2500 tours par minutes (t/min.) à la moitié de la pleine charge,
- 3 h à 3500 t/min. à vide et,
- 4 h à 2500 tours par minutes (t/min.) à la moitié de la pleine charge.

Les valeurs d'avance correspondant à l'apparition du cliquetis, et exprimées en degrés de vilebrequin et désignées très souvent par les initiales KLSA (initiales anglo-saxonnes de "Knock Limit Spark Advance") sont déterminées 1 fois à 0 et 150 heures à différents régimes du moteur. Les résultats obtenus sont exprimés en KLSA à 150 heures pour sept régimes différents du moteur : 1500 t/min., 2000 t/min., 2500 t/min., 3000 t/min., 3500 t/min., 4000 t/min. et 4500 t/min. Ces résultats sont présentés dans le tableau II ci-après. Le poids global (exprimé en gramme (g)) des dépôts sur les 4 soupapes d'admission a également été mesuré et les résultats sont donnés dans le tableau II. Ces résultats montrent : d'une part que les compositions selon l'invention donnent des valeurs plus faibles de KLSA, limitent l'augmentation de l'exigence en octane du moteur et retardent l'apparition de ralenti instable ; et que d'autre part avec les compositions d'additifs selon l'invention le poids de dépôts sur les soupapes d'admission est largement diminué par rapport à ce que l'on obtient avec le carburant seul ou avec le carburant contenant les compositions d'additifs de comparaison. On constate par ailleurs que la composition F5 selon l'invention (mais qui ne fait pas partie des compositions préférées selon l'invention) est efficace au niveau de la limitation de l'augmentation de l'exigence en octane du moteur et retarde l'apparition de ralenti instable mais n'est pas très efficace pour limiter le poids de dépôts sur les soupapes d'admission

TABLEAU II

KLSA à	carburant seul	carburant + F1	carburant + F2	carburant + *F3	carburant + *F4	carburant + F5
1500	13	12	12	13	13	12
2000	15	15	15	16	15	15
2500	22	19	19	21	20	20
3000	23	21	21	24	23	22
3500	24	22	22	24	23	22
4000	28	24	23	26	25	25
4500	30	26	26	28	28	27
Dépôts g	1,8	0,5	0,5	0,5	0,8	1,2

*Comparaison

EXEMPLE 6

On procède à l'évaluation des propriétés de détergence "carburateur" des compositions d'additifs préparées dans l'exemple 4. La procédure d'essai moteur est effectuée en suivant la norme européenne R5-CEC-F03-T-81. Les résultats sont exprimés en terme de mérite de zéro à dix. Un mérite 10 correspond à un carburateur propre et un mérite 0 à un carburateur très encrassé. Les compositions d'additifs sont ajoutées au carburant de manière à obtenir une concentration en poids de matière active dans le carburant additivé précisée pour chaque exemple dans le tableau III ci-après qui donne les résultats obtenus :

TABLEAU III

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	MERITE
*Carburant seul	0 ppm	4,1
Carburant + Composition F1	660 ppm	9,7
Carburant + Composition F2	660 ppm	9,8
*Carburant + Composition F3	660 ppm	9,6
*Carburant + Composition F4	660 ppm	9,4
Carburant + Composition F5	660 ppm	9,7

*Comparaison

Le carburant utilisé dans ces évaluations est un supercarburant sans plomb d'indice d'octane moteur de 85,3 et d'indice d'octane recherche de 96,7. Ce supercarburant a un point initial de distillation de 36 °C et un point final de distillation de 203 °C.

Ce supercarburant comprend en volume :

- 50 % de composés saturés (paraffines + naphténiques)
- 8 % d'oléfines
- 30 % d'aromatiques
- 12 % de méthyltertiobutyléther.

EXEMPLE 7

Une nouvelle série d'essais est effectuée de manière à évaluer les propriétés de détergence "carburateur" des compositions d'additifs préparées dans l'exemple 4. Les essais ont été réalisés en suivant la procédure indiquée dans l'exemple 6. Le carburant employé dans ces essais est un supercarburant additivé en alkyles de plomb à 0,15 g de plomb par litre, comprenant en volume :

- 30 % d'aromatiques
- 8 % d'oléfines
- 62 % de composés saturés (paraffines + naphténiques).

Ce carburant a un indice d'octane moteur de 86 et un indice d'octane recherche de 96. Les compositions d'additifs sont ajoutées au carburant de manière à obtenir une concentration, en poids de matière active dans le carburant additivé, précisée pour chaque exemple dans le tableau IV ci-après qui donne les résultats obtenus :

TABLEAU IV

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	MERITE
*Carburant seul	0 ppm	4,2
Carburant + Formulation F1	660 ppm	9,7
Carburant + Formulation F2	660 ppm	9,8
*Carburant + Formulation F3	660 ppm	9,7
*Carburant + Formulation F4	660 ppm	9,4
Carburant + Formulation F5	660 ppm	9,7

*Comparaison

EXEMPLE 8

On procède à l'évaluation des propriétés de détergence "injecteurs" des compositions d'additifs préparées dans l'exemple 4.

La procédure d'essai moteur est effectuée en suivant la méthode IFP-TAE I 87 établie par l'Institut Français

du Pétrole telle que décrite ci-après. Les essais sont réalisés sur banc moteur Peugeot XU5JA suivant une procédure cyclique d'une durée totale de 150 heures correspondant à la répétition du cycle suivant :

- 15 minutes de fonctionnement à 3000 tr/min. sous une charge de 18 kilowatt (kW)
- 45 minutes d'arrêt moteur.

5 Le débit de chaque injecteur est mesuré en début et en fin d'essai afin d'évaluer le pourcentage de restriction de débit induit par l'encrassement des injecteurs.

Le carburant employé dans ces essais est un supercarburant additivé en alkyles de plomb à 0,4 g de plomb par litre, comprenant en volume :

- 32 % d'aromatiques
- 10 - 20% d'oléfinés
- 48 % de composés saturés (paraffines + naphténiques).

Ce carburant a un indice d'octane moteur de 85,7 et un indice d'octane recherche de 97,5.

Les compositions sont ajoutées au carburant de manière à obtenir une concentration, en poids de matière active dans le carburant additivé, précisée pour chaque exemple dans le tableau V ci-après qui donne les résultats obtenus :

TABLEAU V

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	POURCENTAGE DE RESTRICTION DEBIT INJECTEUR A 150 HEURES (MESURE A 6000 tr/min.)
*Carburant seul	0 ppm	18,6 %
25 Carburant + Composition F1	660 ppm	0,2 %
Carburant + Composition F2	660 ppm	0,1 %
30 *Carburant + Composition F3	660 ppm	0,3 %
*Carburant + Composition F4	660 ppm	0,2 %
Carburant + Composition F5	660 ppm	0,2 %

35 *Comparaison

EXEMPLE 9

40 Une série d'essais est effectuée de manière à évaluer les propriétés de détergence "soupapes d'admission" des compositions d'additifs préparées dans l'exemple 4.

La procédure d'essai moteur suivie est celle décrite dans la littérature publiée par la S.A.E. (initiales anglaises de Society of Automotive Engineers) sous la référence SAE 892121 (1989).

Les essais sont réalisés sur un groupe électrogène Honda équipé d'une génératrice (240 Volt, 5500 Watt) entraînée par un moteur bicylindre de 359 cm³ à 4 temps et à soupapes culbutées.

Chaque essai est mené pendant une durée de 80 heures suivant la procédure cyclique suivante :

- 1 heure de fonctionnement avec un débit génératrice de 1 500 W (quart de charge)
- 1 heure de fonctionnement avec un débit génératrice de 2 500 W (demi-charge).

50 Au départ de chaque test, le moteur est conditionné avec des soupapes neuves que l'on pèse. En fin d'essai, les soupapes sont démontées, lavées à l'hexane, séchées, puis pesées après élimination physique (par grattage) des dépôts formés sur la soupape côté chambre de combustion. Les résultats présentés ci-après donnent la moyenne des dépôts en poids rapportée à une soupape, calculée à partir du poids de dépôts mesuré, sur la tulipe de chaque soupape d'admission, par différence entre le poids de ladite soupape neuve et le poids de ladite soupape à la fin de chaque essai après élimination des dépôts côté chambre de combustion.

55 Le carburant utilisé dans ces évaluations est un supercarburant sans plomb identique à celui décrit dans l'exemple 5.

Les compositions d'additifs sont ajoutées au carburant de manière à obtenir une concentration, en poids de matière active dans le carburant additivé, précisée pour chaque exemple dans le tableau VI ci-après, don-

nant également les résultats obtenus.

TABLEAU VI

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	MOYENNE DES DEPOTS EN mg	POURCENTAGE REDUCTION DEPOTS/CARBURANT SEUL
*Carburant seul	0 ppm	82	-
Carburant + Composition F1	660 ppm	4	95 %
Carburant + Composition F2	660 ppm	3	96 %
*Carburant + Composition F3	660 ppm	5	94 %
*Carburant + Composition F4	660 ppm	5	94 %
Carburant + Composition F5	660 ppm	4	95 %

* Comparaison

EXEMPLE 10

On procède à l'évaluation des propriétés anticorrosion des Compositions d'additifs préparées dans l'exemple 4. Les essais consistent à déterminer l'étendue de la corrosion produite sur des échantillons d'acier ordinaire poli, en présence d'eau, en suivant la norme ASTM D 665 modifiée (température 32,2 °C, durée 20 heures). Les résultats sont exprimés en pourcentage (%) de la surface de l'éprouvette corrodée au bout de 20 heures. Le carburant est le même que celui employé dans l'exemple 5. La quantité de composition est ajoutée au carburant de manière à obtenir une concentration, en poids de matière active dans le carburant additivé, précisée pour chaque exemple dans le tableau VII ci-après, donnant également les résultats obtenus :

TABLEAU VII

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	% DE SURFACE CORRODEE
*Carburant seul	0 ppm	100
Carburant + Composition F1	660 ppm	0
Carburant + Composition F2	660 ppm	0
*Carburant + Composition F3	660 ppm	0
*Carburant + Composition F4	660 ppm	0
Carburant + Composition F5	660 ppm	0

* Comparaison

EXEMPLE 11

Des essais sont réalisés de façon à évaluer les propriétés anticorrosion des compositions d'additifs selon l'invention préparées dans l'exemple 4. Les essais sont réalisés de manière similaire à celle décrite dans l'exemple 10 (température 60 °C durée 20 heures) dans un carburant Diesel. Le carburant Diesel utilisé a les principales caractéristiques suivantes :

- . Température limite de filtrabilité : - 4 °C
- . Point initial de distillation : 160 °C
- . Point 95 % de distillation : 370 °C
- . Masse volumique à 15 °C : 0,84
- . Indice de cétane calculé : 52

La quantité de composition est ajoutée au carburant de manière à obtenir une concentration, en poids de matière active dans le carburant additivé, précisée pour chaque exemple dans le tableau VIII ci-après, résumant en outre les résultats obtenus :

TABLEAU VIII

CARBURANT ADDITIVE	QUANTITE ADDITIF	% DE SURFACE CORRODEE
*Carburant seul	0 ppm	100
Carburant + Composition F1	660 ppm	0
Carburant + Composition F2	660 ppm	0
*Carburant + Composition F3	660 ppm	0
*Carburant + Composition F4	660 ppm	0
Carburant + Composition F5	660 ppm	0

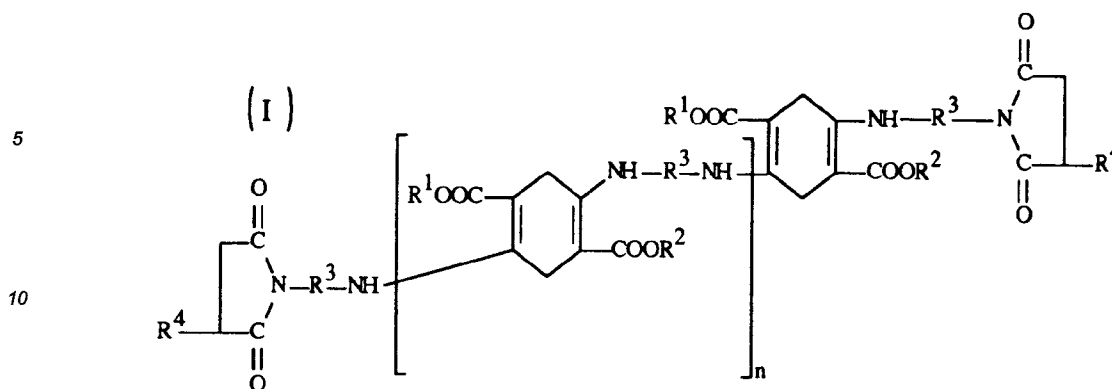
* Comparaison

L'analyse des résultats obtenus dans les exemples précédents montre que les compositions selon la présente invention permettent de limiter très significativement l'augmentation d'exigence en octane des moteurs à allumage commandé et possède des qualités d'additifs détergents du système d'admission ainsi que d'anticorrosion.

Ces compositions d'additifs employées dans un carburant Diesel possèdent également des propriétés anticorrosion.

Revendications

1 - Composition d'additifs, notamment pour carburants, caractérisée en ce qu'elle comprend au moins un constituant (A) et au moins un constituant (B), ledit constituant (A) consistant en au moins un composé polya-zoté, comportant deux cycles terminaux de type imide, répondant à la formule générale (I) :



dans laquelle R^1 et R^2 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 120 atomes de carbone ou un groupe de formule $R^5-(O-R^6)_a-(O-R^7)_b$ dans laquelle R^6 et R^7 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, R^5 représente un groupe hydrocarboné monovalent ayant de 1 à 60 atomes de carbone ; a est zéro ou un nombre entier de 1 à 100 et b est un nombre entier de 1 à 100 ; R^3 est un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 60 atomes de carbone ou un groupe divalent de formule $-R^8-(X-R^9)_c-(X-R^{10})_d-(X-R^{11})_e$ dans laquelle X est choisi parmi les groupes $-O-$ et $-NR^{12}$, R^{12} représentant un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 6 atomes de carbone, R^8 , R^9 , R^{10} et R^{11} , identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, c est un nombre entier de 1 à 120, d et e , identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 120 et la somme $c + d + e$ est un nombre entier de 1 à 120, R^4 est un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 200 atomes de carbone et n est un nombre de 0 à 20 et ledit constituant (B) consistant en au moins un polyglycol soluble dans le carburant considéré.

2 - Une composition d'additifs selon la revendication 1 dans laquelle le constituant (A) est choisi parmi les composés de formule générale (I) dans laquelle R^1 et R^2 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe aliphatique, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 60 atomes de carbone ou un groupe de formule

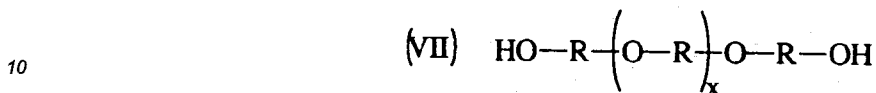
$R^5-(O-R^6)_a-(O-R^7)_b$ dans laquelle R^6 et R^7 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone, R^5 représente un groupe aliphatique monovalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 20 atomes de carbone ; a est zéro ou un nombre entier de 1 à 50 et b est un nombre entier de 1 à 50 ; R^3 est un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 20 atomes de carbone ou un groupe divalent de formule $-R^8-(X-R^9)_c-(X-R^{10})_d-(X-R^{11})_e$ dans laquelle X est choisi parmi les groupes $-O-$ et $-NH-$, R^8 , R^9 , R^{10} et R^{11} , identiques ou différents, représentent chacun un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone, c est un nombre entier de 1 à 60, d et e , identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 60 et la somme $c + d + e$ est un nombre entier de 1 à 60 ; R^4 est un groupe aliphatique monovalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ou un groupe formant avec le carbone méthylénique du cycle imide, un cycle saturé ou insaturé, ponté ou non, ayant de 5 à 10 atomes de carbone, ledit groupe R^4 ayant de 6 à 150 ; n est un nombre de 0 à 10.

3 - Une composition d'additifs selon la revendication 1 ou 2 dans laquelle le constituant (A) est choisi parmi les composés de formule générale (I) dans laquelle R^1 et R^2 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe alkyle, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 30 atomes de carbone ou un groupe de formule $R^5-(O-R^6)_a-(O-R^7)_b$ dans laquelle R^6 et R^7 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe alkylène, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone, R^5 représente un groupe alkyle, linéaire ou ramifié ayant de 1 à 20 atomes de carbone ; a est zéro ou un nombre entier de 1 à 25 et b est un nombre entier de 1 à 25 ; R^3 est un groupe alkylène, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 20 atomes de carbone ou un groupe divalent de formule $-R^8-(X-R^9)_c-(X-R^{10})_d-(X-R^{11})_e$ dans laquelle X est choisi parmi les groupes $-O-$ et $-NH-$, R^8 , R^9 , R^{10} et R^{11} , identiques ou différents, représentent chacun un groupe aliphatique divalent, saturé ou insaturé, linéaire ou ramifié ayant de 2 à 4 atomes de carbone, c est un nombre entier de 1 à 60, d et e , identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 60 et la somme $c + d + e$ est un nombre entier de 1 à 60 ; R^4 est un groupe alcényle, linéaire ou ramifié, ou un groupe formant avec le carbone méthylénique du cycle imide, un cycle insaturé, ponté ou non, ayant de 6 à 8 atomes de carbone, ledit groupe R^4 ayant de 6 à 100 ; n est un nombre de 0 à 5.

4 - Une composition d'additifs selon l'une des revendications 1 à 3 dans laquelle le constituant (A) est choisi

parmi les composés de formule générale (I) dans laquelle R^6 et R^7 , identiques ou différents, représentent chacun un groupe éthylène, triméthylène, propylène, tétraméthylène ou isobutylène et R^4 est un groupe ayant de 12 à 60 atomes de carbone.

- 5 - Une composition d'additifs selon l'une des revendications 1 à 3 dans laquelle le constituant (B) est un polyglycol soluble dans le carburant considéré, ayant une masse moléculaire moyenne en nombre de 480 à 2 100 et de formule générale (VII) :



dans laquelle chacun des groupes R indépendamment représente un groupe hydrocarboné ayant de 2 à 6 atomes de carbone et x représente le degré moyen de polymérisation.

- 6 - Une composition d'additifs selon la revendication 5 dans laquelle le constituant (B) est un polyglycol, ayant un indice de polydispersité d'environ 1 à environ 1,25, de formule générale (VII) dans laquelle chacun des groupes R indépendamment représente un groupe alkylène, linéaire ou ramifié, ayant de 2 à 4 atomes de carbone de préférence un groupe éthylène ou propylène.

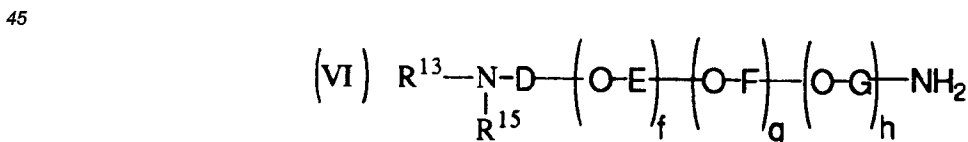
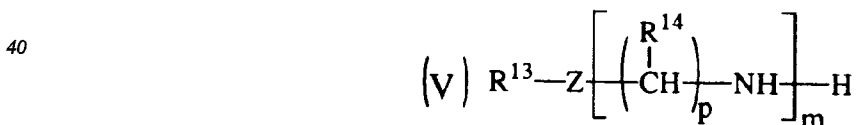
- 7 - Une composition d'additifs selon la revendication 5 ou 6 dans laquelle le constituant (B) est un polyglycol de formule générale (VII) dans laquelle chacun des groupes R représente un groupe propylène de formule :



de masse moléculaire moyenne en nombre de 600 à 1 800 et de préférence de 650 à 1 250.

- 8 - Une composition d'additifs selon l'une des revendications 1 à 7 caractérisée en ce qu'elle contient en outre au moins un constituant (C) choisi dans le groupe formé par les produits détergent-dispersants.

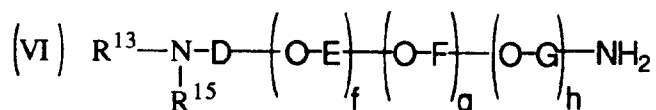
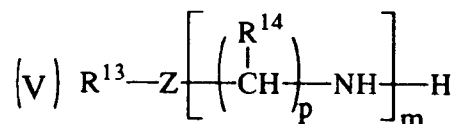
- 9 - Une composition d'additifs selon la revendication 8 dans laquelle le constituant (C) est choisi dans le groupe formé par les polyoléfinés, les polyisobutène-amines, les mélanges de ces types de composés, les produits résultant de la réaction dans une première étape d'au moins un dérivé succinique choisi dans le groupe formé par les acides et les anhydrides alcénysucciniques et les acides et les anhydrides polyalcénysucciniques sur au moins une 1-(2-hydroxyéthyl)-imidazoline substituée en position 2 par un radical alkyle ou alcényle, linéaire ou ramifié, ayant de 1 à 25 atomes de carbone, le rapport molaire imidazoline/dérivé succinique étant de 0,1:1 à 0,9:1, ladite étape étant effectuée dans des conditions telles que l'on forme et que l'on élimine au moins 0,15 mole d'eau par mole d'imidazoline engagée ; et dans une deuxième étape de la réaction du produit issu de la première étape sur au moins une polyamine répondant à l'une des formules générales suivantes :



dans lesquelles R^{13} représente un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 60 atomes de carbone, Z est choisi parmi les groupes -O-, et -NR¹⁵- dans lesquels R^{15} représente un atome d'hydrogène ou groupe hydrocarboné ayant de 1 à 60 atomes de carbone, R^{13} et R^{15} pouvant former ensemble avec l'atome d'azote auquel ils sont liés un hétérocycle, chacun des R^{14} indépendamment représente un atome d'hydrogène ou un groupe hydrocarboné ayant de 1 à 4 atomes de carbone, p est un nombre entier de 2 à 6, m est un nombre entier de 1 à 10 lorsque Z est -NR¹⁵- et un nombre entier de 2 à 10 lorsque Z est -O-, D, E, F et G, identiques ou différents, représentent chacun un groupe hydrocarboné divalent ayant de 2 à 6 atomes de carbone, f est un nombre entier de 1 à 60, g et h, identiques ou différents, sont chacun zéro ou un nombre entier de 1 à 50

et la somme $f + g + h$ est un nombre entier de 1 à 60, la quantité de polyamine mise en réaction étant d'au moins 0,1 mole par mole de dérivé succinique introduit dans la première étape.

10 - Une composition d'additifs selon la revendication 8 ou 9 dans laquelle le constituant (C) est choisi dans le groupe formé par les produits résultant de la réaction dans une première étape d'au moins un dérivé succinique choisi dans le groupe formé par les anhydrides alcénysucciniques ou polyalcénysucciniques de masse moléculaire moyenne en nombre de 200 à 3000 sur au moins une 1-(2-hydroxyéthyl)imidazoline substituée en position 2 choisie dans le groupe formé par la 1-(2-hydroxyéthyl)-2-heptadécénylimidazoline et la 1-(2-hydroxyéthyl)-2-méthylimidazoline ; et dans une deuxième étape de la réaction du produit issu de la première étape sur au moins une polyamine répondant à l'une des formules générales suivantes :



dans lesquelles Z représente un groupe $-NR^{15}-$, R^{13} , R^{14} et R^{15} représentent chacun un atome d'hydrogène, p est égal à 2 et m est un nombre entier de 1 à 5, D, E, F et G, identiques ou différents représentent chacun un groupe alkylène ayant de 2 à 4 atomes de carbone, f est un nombre entier de 1 à 60 et g et h sont égaux à zéro ou f est un nombre entier de 1 à 59, h est zéro ou un nombre entier tel que la somme $f + h$ soit de 1 à 59 et g est un nombre entier de 1 à 50, avec dans chaque cas la somme $f + g + h$ égale à un nombre entier de 1 à 60.

11 - Une composition d'additifs selon la revendication 8 ou 9 dans laquelle le constituant (C) est choisi dans le groupe formé par les polyisobutènes, les polyisobutène-amines, les mélanges de ces types de composés et de préférence par les mélanges contenant une proportion minoritaire de polyisobutènes et une proportion majoritaire de polyisobutène-éthylène-diamines.

12 - Une composition de carburant comprenant une proportion majeure d'hydrocarbures ou d'un mélange d'hydrocarbures et d'au moins un composé oxygéné choisi dans le groupe formé par les alcools et les éthers; et une proportion mineure d'au moins une composition d'additifs selon l'une des revendications 1 à 11.

13 - Une composition de carburant selon la revendication 12 dans laquelle un carburant est employé dans les moteurs à allumage commandé.

14 - Une composition de carburant selon la revendication 12 ou 13 dans laquelle on ajoute de 10 à 10 000 ppm en poids de la composition d'additifs dans le carburant.

15 - Une composition de carburant selon la revendication 14 dans laquelle la composition d'additifs comprend les constituants (A) et (B) dans un rapport pondéral (A)/(B) d'environ 0,05:1 à environ 5:1

16 - Une composition de carburant selon la revendication 15 dans laquelle la composition d'additifs comprend en outre un constituant (C) en quantité pondérale telle que le rapport pondéral (B)/(C) soit d'environ 0,1:1 à environ 50:1.



Office européen
des brevets

RAPPORT DE RECHERCHE EUROPEENNE

Numero de la demande
EP 93 40 2614

DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS			
Catégorie	Citation du document avec indication, en cas de besoin, des parties pertinentes	Revendication concernée	CLASSEMENT DE LA DEMANDE (Int.Cl.5)
P,Y	EP-A-0 526 314 (ELF) * page 1; exemple 10 * ---	1-14	C10L1/22 C10L1/14 C10L10/00
P,Y	EP-A-0 530 094 (I.F.P.) * le document en entier * ---	1-14	
D,Y	EP-A-0 349 369 (I.F.P. & ELF) * revendications 1-21; exemple 15 * ---	1-10, 12-14	
D,Y	EP-A-0 327 097 (TEXACO) * revendications 1-10 * * page 14, ligne 13 - ligne 24 * ---	1-4,8,9, 11-14	
A	DE-A-21 52 271 (TEKKOSHA CO.) * page 4; revendication 2 * -----	1	
			DOMAINES TECHNIQUES RECHERCHES (Int.Cl.5)
			C10L C07D
Le présent rapport a été établi pour toutes les revendications			
Lieu de la recherche LA HAYE		Date d'achèvement de la recherche 16 Décembre 1993	Examineur De La Morinerie, B
CATEGORIE DES DOCUMENTS CITES X : particulièrement pertinent à lui seul Y : particulièrement pertinent en combinaison avec un autre document de la même catégorie A : arrière-plan technologique O : divulgation non-écrite P : document intercalaire T : théorie ou principe à la base de l'invention E : document de brevet antérieur, mais publié à la date de dépôt ou après cette date D : cité dans la demande L : cité pour d'autres raisons ***** & : membre de la même famille, document correspondant			

EPO FORM 1503 03.92 (P04C02)