

УДК 662.758.2:665.7.038

<https://doi.org/10.15407/kataliz2021.32.099>

Температурна інверсія дії багат шарових фулереноподібних структур в окисненні *n*-декану молекулярним киснем

Є.В. Полункін, В.С. Пилявський, Т.М. Каменсва, С.Л. Мельникова, О.О. Гайдай,
Ю.І. Богомолов

Інститут біоорганічної хімії та нафтохімії ім. В.П.Кухаря НАН України, 50, Харківське шосе,
02160 Київ, Україна, тел./факс: 044 292-30-88, E-mail: polunkin@i.ua

Роботу присвячено актуальній проблемі підвищення енергоефективності використання рідких моторних палив (бензинів, дизельних та реактивних палив) в транспортних енергетичних установках. Одним з найбільш прийнятних шляхів вирішення цієї проблеми на сучасному етапі, що не потребує капітальних витрат, є покращення процесів хімічних перетворень молекул палива в двигунах під дією присадок. Запропоновано використання багат шарових фулереноподібних структур (БФС) як присадки до моторних палив. Досліджено вплив добавок модифікованих БФС на конверсію реагентів в процесах рідкофазного окиснення *n*-декану молекулярним киснем за невисоких (70 °С) і високих (150 °С) температур. Експериментально виявлено зміну напрямку дії БФС на хімічні перетворення вихідних реагентів в залежності від температури процесу. Встановлено, що за невисоких температур БФС інгібують окиснення *n*-декану, а за температур, близьких до температури кипіння вуглеводню, навпаки, прискорюють трансформацію вихідних молекул алкану. Методом газорідної хроматографії проаналізовано склад продуктів перетворень алкану при високотемпературному двофазному (газорідному) режимі окиснення. Показано, що перетворення молекул *n*-декану відбувається за однаковими схемами як у випадку окиснення без добавки БФС, так і за наявності в складі рідини цих сполук. Інверсійну дію БФС на окиснення вуглеводнів в залежності від температурних умов пояснено зміною під впливом наночастинок БФС надмолекулярної структури, яку утворюють у рідкій вуглеводневій матриці полярні продукти неповного окиснення.

Ключові слова: моторне паливо, багат шарові фулереноподібні структури, окиснення вуглеводнів молекулярним киснем, енергоефективність використання палив

Вступ

Основна доля нафтових ресурсів Землі витрачається зараз в енергоагрегатах, до яких відносяться, зокрема, двигуни внутрішнього згорання транспортних засобів. Поряд зі споживанням великої кількості ресурсів, енергоагрегати є також головними забруднювачами оточуючого середовища. Загрозлива техногенна ситуація, яку створила експлуатація сучасного енергетичного обладнання, обумовлена, в великій мірі, малою енергоефективністю використання палив в таких агрегатах. Відомо, що коефіцієнт корисної дії бензинових двигунів досягає 30–35 %, а дизельних не перевищує 45% [1, 2].

Енергоефективність використання палив залежить від повноти їх згорання. З хімічної точки зору, під повним згоранням палива розуміють хімічну трансформацію молекул до кінцевих продуктів окиснення – CO₂ і H₂O. При неповному окисненні палив утворюються токсичні сполуки – проміжні продукти перетворень вуглеводнів

(альдегіди, кетони, спирти, кислоти тощо) [3, 4]. Тому підвищення повноти згорання палив в двигунах є актуальною проблемою для ресурсозбереження та покращення екологічного стану. На сучасному етапі найбільш прийнятним шляхом підвищення повноти згорання палив, що не потребує капітальних витрат, слід вважати пошук та використання ефективних присадок – каталізаторів горіння палив [4].

Нові хімічні просторові сполуки на основі вуглецю (фулерени, їх похідні, багат шарові фулереноподібні структури) зараз широко досліджуються. Оцінюються перспективи застосування таких матеріалів у різних галузях науки і техніки: електроніці, лазерній техніці, медицині та ін. [5–9]. Встановлено, що фулерени активні як інгібітори термоокиснювальної деструкції полімерів, перекисного окиснювання ліпідів, ініційованого окиснення вуглеводнів та ряду інших окиснювальних хімічних та біохімічних процесів [8–10].

Відомо, що на початкових стадіях окиснення вуглеводнів утворюються два типи вільних радикалів

– алкільні ($R\bullet$) та пероксидні ($ROO\bullet$). Такі радикали є активними центрами зародження ланцюгових реакцій перетворень вуглеводнів при взаємодії з молекулярним киснем.

Інгібуюча дія фулеренів обумовлена захватом пероксидних та алкільних вільних радикалів ненасиченими подвійними зв'язками вуглецевого остова багатoshарових фулеренів з утворенням стабільних радикалів [11, 12]. Стабілізація активних вільних радикалів фулеренами за класичною схемою відбувається, як правило, стехіометрично і характеризується часом, протягом якого спостерігається ефект гальмування окиснення під впливом інгібітора [13].

Дослідження інгібуючої дії фулеренів при окисненні рідких органічних речовин було проведено здебільшого за невисоких температур в гомогенних системах, де взаємодія відбувалась за участю молекулярного кисню, розчиненого в рідкій фазі окиснюваного субстрату. Тестові експерименти з виявлення активності багатoshарових фулеренів в таких дослідженнях здійснюють, як правило, з використанням газометричної установки методом волюмометрії [13–18].

Якщо спиратись на результати оцінки інгібуючих властивостей фулеренів за невисоких температур і поширювати їх на область високотемпературного окиснення (та горіння) вуглеводнів, то слід було б чекати, що добавка фулеренів в палива повинна гальмувати швидкість процесів окиснення компонентів моторних палив і знижувати їх повноту згорання.

Але в роботі [19] нами показано, що при додаванні в дизельне паливо декількох ppm багатoshарових фулереноподібних структур (БФС) питомі витрати палива (витрати палива для отримання одиниці корисної потужності) зменшились на 10–15% при одночасному зменшенні кількості викидів проміжних токсичних сполук у відпрацьованих газах двигуна. За результатами вимірювання індикаторної діаграми двигуна [20], нами було виявлено підвищення максимального тиску в камері згорання за наявності в паливі добавки цих сполук. Отримані результати пояснено збільшенням повноти згорання палива під впливом фулереноподібних наночастинок [19].

Метою роботи є виявлення та обґрунтування умов, за яких інгібуюча дія БФС на окиснення компонентів рідких моторних палив молекулярним киснем може змінюватись на протилежну – поглиблення конверсії вихідних молекул вуглеводнів.

Матеріали та методи дослідження

Як модельну систему окиснення використовували аліфатичний вуглеводень *n*-декан,

що є одним з характерних компонентів рідких моторних палив. Дослідження проводили з однієї партії *n*-декану (виробництво фірми “Merck”, Німеччина, з вмістом основного компоненту 99,56%).

Багатoshарові фулереноподібні структури було напрацьовано високочастотним розрядно-імпульсним синтезом з використанням залізних електродів і легких вуглеводнів (пропан-бутанова фракція) як вихідного матеріалу за методикою, викладеною в [21].

Хімічну модифікацію отриманих БФС проводили бромованням за кімнатної температури (20 °C) в надлишку рідкого броду. Залишковий бром відгоняли у вакуумі при 20 °C. Виділення наночастинок та фракціонування їх за розмірами проводили шляхом екстрагування абсолютним етанолом. За результатами хімічного аналізу, вміст броду в синтезованому продукті становив приблизно 60%, мас. Середній розмір відібраних БФС за оцінками, проведеними методами електронної та атомно-силової мікроскопії, складав 10–15 нм.

Інгібуючі властивості бромованих похідних БФС оцінювали волюмометричним методом на газометричній установці в умовах ініційованого 2,2'-азо-*bis*-ізобутиронітрилом (АІБН, $1,83 \cdot 10^{-2}$ М) окиснення *n*-декану за температури 70 °C по поглинанню кисню повітря [22]. АІБН очищали методом перекристалізації з етанолу.

Перемішування рідкої фази відбувалось за рахунок безперервного струшування за допомогою спеціального пристрою. На практиці частота струшування складає 5–10 сек⁻¹. При цьому досягається кінетичний режим процесу.

Вплив БФС на кінетику окиснення *n*-декану за підвищених температур (150 °C) досліджували за методом оцінки термоокиснювальної стабільності нафтопродуктів, ідентичним стандартному методу АСТМ Д 943 "Standard Test Method for Oxidation Characteristics of Inhibited Mineral Oils".

Газохроматографічний аналіз продуктів окиснення було виконано на хроматографі “Agilent Technologies 7890A” з полум'яно-іонізаційним детектором з використанням кварцової капілярної колонки довжиною 60 м, внутрішнім діаметром 0,320 мм з середньополярною ціанопріліметилсиліконовою (6% ціанопріліл, 94% метилполісиліоксан) нерухоною фазою DB-624 UI (товщина шару 1,8 мкм) в ізотермічному режимі. Температура аналізу становила 210 °C, температура випарника – 270 °C, детектора – 250 °C. Проби вводились в колонку мікро-шприцем ємністю 10,0 мкл. Об'єм проби: 0,4–0,6 мкл. Обробку результатів проводили з використанням аналітичної програми ChemStation.

Результати досліджень та їх обговорення

Результати оцінки впливу добавки БФС на швидкість ініційованого окиснення *n*-декану за невисоких температур наведено на рис. 1.

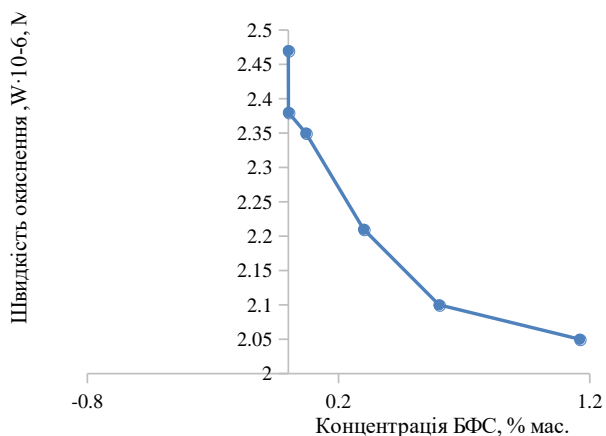


Рис. 1. Вплив концентрації БФС на швидкість ініційованого окиснення *n*-декану при 70 °С.

Отримані результати свідчать, що бромовані БФС при ініційованому окисненні вуглеводнів за умов невисоких температур дійсно є інгібіторами слабкої дії. Згідно з експериментальними даними, швидкість неінгібованого ініційованого окиснення *n*-декану (W_0) становила $2,47 \cdot 10^{-6} M \cdot c^{-1}$. Введення в окиснювальну систему бромованих БФС уповільнює поглинання кисню *n*-деканом, швидкість окиснення вуглеводню знижується на 20% в діапазоні концентрацій добавки $0,5 \cdot 10^{-3}$ –1,2% мас. (рис. 1). Найбільш стрімке зниження швидкості окиснення спостерігалось при внесенні малих кількостей добавки БФС (менше 10^{-3} % мас.), а при подальшому додаванні бромованих БФС в окиснюваний *n*-декан швидкість окиснювання слабо змінюється зі зростанням концентрації добавки.

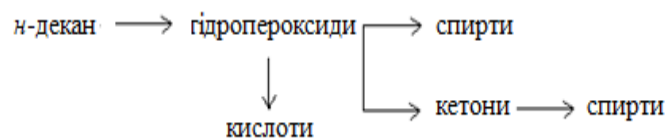
За умов проведення експериментів швидкість окиснення *n*-декану не залежала від парціального тиску кисню в інтервалі 0,02–0,1 МПа, тобто обрив ланцюгів відбувається переважно за реакцією БФС з пероксильними радикалами [13].

На рис. 2 наведено результати дослідження конверсії чистого *n*-декану та *n*-декану з добавкою $1 \cdot 10^{-3}$ г/л бромованих БФС у часі при автоокисненні в барботажному реакторі у потоці повітря $10 \text{ дм}^3/\text{год}$ за температури 150 °С.

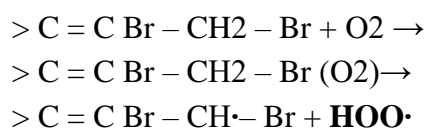
З кінетичних залежностей, наведених на рис. 2, видно зменшення концентрації *n*-декану та зростання концентрації основних продуктів окиснення – ізомерних кетонів C_{10} з різним розміщенням карбонільної групи вздовж

вуглеводневого ланцюга (деканон-5, деканон-4, деканон-3 та деканон-2). Вміст ізомерних деканонів в оксидаті становить ~50% від суми усіх продуктів окиснення.

Серед інших оксигенатів знайдено деяку кількість алифатичних кислот C_1 – C_9 та залишки альдегідів. З поглибленням процесу окиснення у часі понад 2,0–2,5 години в продуктах окиснення з'являються сполуки з температурою кипіння понад 260 °С, які можна віднести до естерних сполук. Вміст їх невеликий, але в системі з добавкою він в 3,5–5 разів вищий, ніж для вихідного *n*-декану (рис. 2, в). Характер кривих окиснення *n*-декану у часі відповідає кінетиці накопичення гідропероксидів: спостерігається повільний розвиток реакції (період індукції) на початку процесу, який змінюється періодом автоприскореного розвитку. Така закономірність корелює зі швидкістю розкладу гідропероксиду, яка зростає з утворенням кисневмісних сполук в оксидаті. Послідовність утворення продуктів окиснення *n*-декану описується схемою [22, 23]



Враховуючи наявність в молекулі бромованих БФС, поряд з електронодефіцитною системою з кратними зв'язками між атомами вуглецю, також атомів бром, які поляризують молекулу, можна припустити, що у відсутності ініціатора за підвищених температур швидкість реакції кисню з молекулами добавки за схемою:



буде вищою, ніж з молекулами субстрату і що ланцюгову реакцію окиснення *n*-декану, в першу чергу, ініціюють саме радикали $HOO\cdot$, утворені за наведеною схемою. Дійсно, за згаданих умов, період індукції для чистого вуглеводню, суттєво перевищує відповідні дані для системи з добавкою бромованих БФС (~120 хв для *n*-декану і ~90 хв для *n*-декану з добавкою), а швидкість окиснення *n*-декану в другому випадку значно перевищує відповідні дані для вихідного вуглеводню. Конверсія *n*-декану в присутності добавки при п'ятигодинному окисненні становила 19,3%, в той час, як чистого *n*-декану – лише 4,8% (рис. 2).

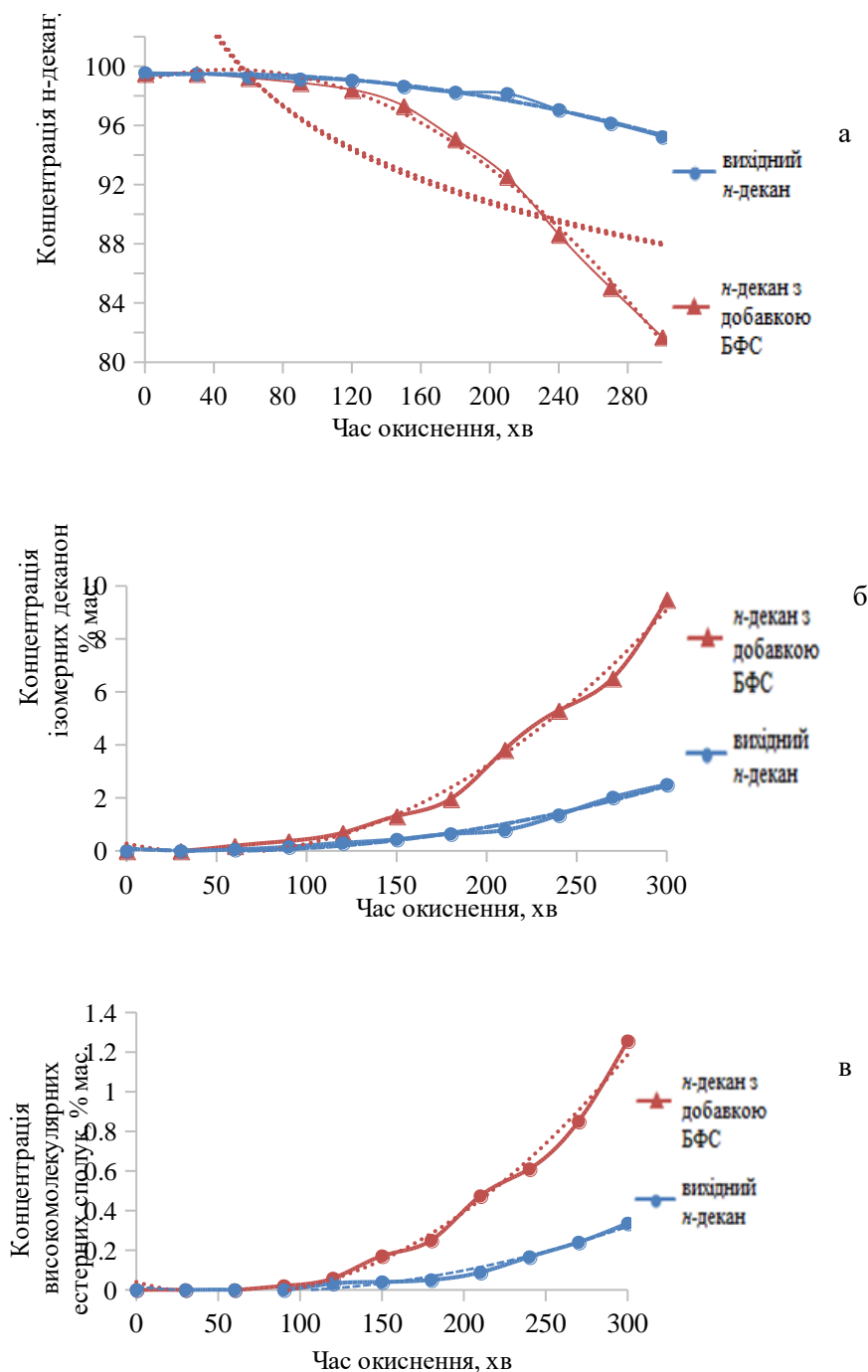


Рис. 2. Зміна у часі концентрації *n*-декану (а), основних продуктів його автоокиснення – ізомерних деканонів (б), а також високомолекулярних естерних сполук (в) у рідких модельних системах (температура 150 °С, швидкість потоку повітря 10 дм³/год.).

За результатами газохроматографічного аналізу, на фоні зростання вмісту продуктів окиснення у часі, компонентний склад досліджуваних систем практично не змінюється з переходом від вихідного *n*-декану до композицій з добавкою бромованих БФС. Це є свідченням того, що додані наночастинки виконують роль каталізатора окиснення, але не змінюють механізм реакції. Саме властивістю бромованих

фулереноподібних матеріалів за підвищених температур ініціювати радикально-ланцюгові реакції автоокиснення вуглеводнів можна пояснити прискорення і поглиблення процесів згоряння палив в двигунах внутрішнього згоряння, підвищення повноти згоряння та зменшення витрат палива, що було показано нами в попередніх дослідженнях [19].

Висновки

Встановлено різноспрямований вплив бромованих багаточарових фулереноподібних структур на окиснення алканів в різних умовах: за невисоких температур бромовані БФС інгібують вільно-радикальне перетворення органічних речовин, а за температур, наближених до температури кипіння рідкого субстрату, прискорюють процес та поглиблюють конверсію вуглеводнів, але не змінюють механізм радикально-ланцюгових перетворень, продукти окиснення відрізняються лише кількісним співвідношенням компонентів.

Виявлений інверсний характер впливу БФС на окиснення алканів в залежності від температури дозволяє рекомендувати їх як перспективну активну основу присадок подвійної дії для вуглеводневих рідких моторних палив (антиоксиданти при зберіганні та каталізатори при використанні в двигунах).

Література

1. Гальшев Ю.В., Магидович Л.Е., Румянцев В.В. Топливные проблемы транспортной энергетики. Санкт-Петербург, Изд-во Санкт-Петербургского Политехнического университета, 2005. 235.
2. Гусаров А.П. Потребление топлива и выбросы CO₂ автомобилями. *Журнал автомобильных инженеров*. 2009. **5**. 48–53.
3. Сафонов А.С., Ушаков А.И., Гришин В.В. Химмотология горюче-смазочных материалов. Санкт-Петербург. НПИКЦ. 2007. 488.
4. Данилов А.М. Применение присадок в топливах. Москва. Химиздат. 2010. 368.
5. Трошин П.А., Трошина О.А., Любовская Р.Н., Разумов В.Ф. Функциональные производные фуллеренов: методы синтеза и перспективы использования в органической электронике и биомедицине. Иваново. Ивановский государственный университет. 2008. 310.
6. Пиотровский Л.Б., Киселев О.И. Фуллерены в биологии. Санкт-Петербург. Росток. 2006. 336.
7. Сидоров Л.Н., Юровская М.А., Борщевский А.Я., Трушков И.В., Иоффе И.Н. Фуллерены. Москва. Экзамен. 2005. 688.
8. Фуллерены и фуллереноподобные структуры в конденсированных средах: Сб. тез. докл. Мн. УП «Технопринт». 2002. 224.
9. Zeynalov E.B., Kozmehl G. Fullerene C₆₀ as an antioxidant for polymers. *Polym. Degrad. Stabil.* 2001. **71**. 197–202.
10. Денисов Е.Т., Саркисов О.М., Лихтенштейн Г.И. Химическая кинетика. Москва. Химия. 2000. 568.
11. Krusic P.J., Wasserman E., Keizer P.N., Morton J.R., Preston K.F. Radical reactions of C₆₀. *Science*. 1991. **254**. 1223–1225.
12. Morton J.R., Negri F., Preston K.F. Addition of free radicals to C₆₀. *Acc. Chem. Res.* 1998. **31**. 63–69.
13. Ковтун Г.О., Жила Р.С., Каменева Т.М. Кинетична модель інгібуючої дії фуллерену C₆₀ при окисненні бензилового спирту. *Каталіз и нефтехимия*. 2007. №15. 97–99.
14. Ковтун, Г.А., Каменева Т.М., Кочканян Р.О. Фуллерен C₆₀ в обрыве цепей окисления органических соединений. *Каталіз и нефтехимия*. 2003. №11. 36–38.
15. Zeynalov E.B., Kozmehl G. Fullerene C₆₀ as an antioxidant for polymers. *Polym. Degrad. Stabil.* 2001. **71**. 197–202.
16. Zeynalov E.B., Allen N.S., Salmanova N.I. Radical scavenging efficiency of different fullerenes C₆₀–C₇₀ and fullerene soot. *Polym. Degrad. Stabil.* 2009. **94**. 1183–1189.
17. Якупова Л.Р., Сахаутдинов И.М., Маликова Р.Н., Сафиуллин Р.Л. Влияние фуллерена, содержащего малеопимариимидный заместитель, на кинетику жидкофазного радикально-цепного окисления этилбензола. *Кинетика и катализ*. 2019. **60**(1). 25–32.
18. Сафарова И.В., Шарипова Г.М., Нугуманова Э.Ф., Герчиков А.Я. Кинетические характеристики фуллерена C₆₀ в качестве антиоксиданта в реакции инициированного окисления этилбензола. *Вест. БГУ*. 2016. **21**(1). 37–40.
19. Полункін Є.В., Пилявський В.С., Березницький Я.О., Каменева Т.М., Левтеров А.М., Авраменко А.М. Покращення хімотологічних властивостей дизельного палива мікродобавкою вуглецевих сфероїдальних наночастинок. *Каталіз та нафтохімія*.-2020. №29. 59–64.
20. Колчин А.И., Демидов В.П. Расчет автомобильных и тракторных двигателей. Москва. Высшая школа. 2008. 496.
21. Рудь А.Д., Кускова Н.И., Богуславский Л.З., Кирьян И.М., Зелинская Г.М., Белый Н.М. Структурно-энергетические аспекты синтеза углеродных наноматериалов высоковольтными электроразрядными методами. *Химия и химическая технология*. 2013. **56**(7). 99–104.
22. Денисов Е.Т., Азатян В.В. Ингибирование цепных реакций. Черногловка. Изд-е РАН. 1997. 288 с.
23. Эмануэль Н.М., Денисов Е.Т., Майзус З.К. Цепные реакции окисления углеводородов в жидкой фазе. М.: Наука, 1965. 375 с.

References

- Galyshev Yu.V., Magidovich L.E., Rumyantsev V.V. *Toplivnyye problemy transportnoy energetiki*. Sankt-Peterburg. Izd-vo Sankt-Peterburgskogo Politehnicheskogo universiteta. 2005. 235. [In Russian].
- Gusarov A.P. Potrebleniye topliva i vybrosy CO₂ avtomobilyami. *Zhurnal avtomobilnykh inzhenerov*. 2009. **5**. 48-53. [In Russian].
- Safonov A.S., Ushakov A.I., Grishin V.V. *Khimmotologiya goryuche-smazochnykh materialov*. Sankt-Peterburg. NPIKTs. 2007. 488. [In Russian].
- Danilov A.M. *Primeneniye prisadok v toplivakh*. Moskva. Khimizdat. 2010. 368. [In Russian].
- Troshin P.A., Troshina O.A., Lyubovskaya R.N., Razumov V.F. *Funktsionalnyye proizvodnyye fullerenov: metody sinteza i perspektivy ispolzovaniya v organicheskoy elektronike i biomeditsine*. Ivanovo. Ivanovskiy gosudarstvennyy universitet. 2008. 310. [In Russian].
- Piotrovskiy L.B., Kiselev O.I. *Fullereny v biologii*. Sankt-Peterburg, Rostok. 2006. 33. (In Russian).
- Sidorov L.N., Yurovskaya M.A., Borshchevskiy A.Ya., Trushkov I.V., Ioffe I.N. *Fullereny*. Moskva. Ekzamen. 2005. 688. [In Russian].
- Fullereny i fullerenopodobnyye struktury v kondensirovannykh sredakh: Sb. tez. dokl. Mn. UP «Tekhnoprint». 2002. 224. (In Russian).
- Zeynalov E.B., Koßmehl G. Fullerene C₆₀ as an antioxidant for polymers. *Polym. Degrad. Stabil.* 2001. **71**. 197-202.
- Denisov E.T., Sarkisov O.M., *Likhtenshteyn G.I. Khimicheskaya kinetika*. Moskva. Khimiya. 2000. 568. [In Russian].
- Krusic P.J., Wasserman E., Keizer P.N., Morton J.R., Preston K.F. Radical reactions of C₆₀. *Science*. 1991. **254**. 1223-1225.
- Morton J.R., Negri F., Preston K.F. Addition of free radicals to C₆₀. *Acc. Chem. Res.* 1998. **31**. 63-69.
- Kovtun G.O., Zhila R.S., Kamenyeva T.M. Kinetichna model ingibuyuchoyi diyi fulerenu S60 pri okisnenni benzilovogo spirtu. *Kataliz i neftehimiya*. 2007. **15**. 97-99. [In Ukrainian].
- Kovtun G.A., Kameneva T.M., Kochkanyan R.O. Fulleren C₆₀ v obryve tsepey okisleniya organicheskikh soyedineniy. *Kataliz i neftehimiya*. 2003. **11**. 36-38. [In Russian].
- Zeynalov E.B., Koßmehl G. Fullerene C₆₀ as an antioxidant for polymers. *Polym. Degrad. Stabil.* 2001. **71**. 197-202.
- Zeynalov E.B., Allen N.S., Salmanova N.I. Radical scavenging efficiency of different fullerenes C₆₀-C₇₀ and fullerene soot. *Polym. Degrad. Stabil.* 2009. **94**. 1183-1189.
- Yakupova L.R., Sakhautdinov I.M., Malikova R.N., Safiullin R.L. Vliyaniye fullerena. sodержashchego maleopimariimidnyy zamestitel. na kinetiku zhidkofaznogo radikalno-tsepnogo okisleniya etilbenzola. *Kinetika i kataliz*. 2019. **60**(1). 25-32. [In Russian].
- Safarova I.V., Sharipova G.M., Nugumanova E.F., Gerchikov A.Ya. Kineticheskiye kharakteristiki fullerena C₆₀ v kachestve antioksidanta v reaktsii initsirovannogo okisleniya etilbenzola. *Vest. BGU*. 2016. **21**(1). 37-40. [In Russian].
- Polunkin Ye.V., Pilyavskiy V.S., Bereznickij Ya.O., Kamenyeva T.M., Levterov A.M., Avramenko A.M. Pokrashennyya himmotologichnih vlastivostej dizelnogo paliva mikrodozvokoyu vuglecevih sferoidalnih nanochastok. *Kataliz ta naftohimiya*.—2020. **29**. 59-64. [In Ukrainian].
- Kolchin A.I., Demidov V.P. Raschet avtomobilnykh i traktornykh dvigateley. Moskva. Vysshaya shkola. 2008. 496. [In Russian].
- Rud A.D., Kuskova N.I., Boguslavskiy L.Z., Kirian I.M., Zelinskaya G.M, Belyy N.M. Strukturno-energeticheskiye aspekty sinteza uglerodnykh nanomaterialov vysokovoltnymi elektrorazryadnymi metodami. *Khimiya i khimicheskaya tekhnologiya*. 2013. **56**(7). 99-104. [In Russian].
- Denisov E.T., Azatyan V.V. *Ingibirovaniye tsepnnykh reaktsiy*. Chernogolovka. Izd-e RAN. 1997. 288. [In Russian].
- Emanuel N.M., Denisov E.T., Majzus Z.K. *Tsepnnyye reaktsii okisleniya uglevodородov v zhidkoy faze*. M.: Nauka, 1965. 375 c. [In Russian].

Надійшла до редакції 18.11.2021р.

Temperature inversion of the action of multilayer fullerene structures in the oxidation of *N*-decan by molecular oxygen

Ie.V. Polunkin, V.S. Pilyavsky, T.M. Kamenieva, S.L. Melnykova, O.O. Gajdaj, Yu.I. Bogomolov

¹ V.P. Kukhar Institute of Bioorganic Chemistry and Petrochemistry of the National Academy of Sciences of Ukraine, Ukraine, 02160, Kyiv, 50, Kharkivske shausse, tel./fax: 044 292-30-88, E-mail: polunkin@i.ua

It was established that at low temperatures MFS inhibit the oxidation of *n*-decan, and at temperatures close to the boiling point of the hydrocarbon, on the contrary, accelerate the transformation of the original alkane molecules. The composition of alkane transformation products in the high-temperature two-phase (gas-liquid) oxidation regime was analyzed by gas-liquid chromatography. It is shown that the transformation of *n*-decan molecules occurs according to the same schemes both in the case of oxidation without the additive of MFS, and in the presence of these compounds in a liquid. The work is devoted to the actual problem of increasing the energy efficiency of liquid motor fuels (gasoline, diesel and jet fuels) in transport power plants. One of the most acceptable ways to solve this problem at the present stage, which does not require capital expenditure, is to improve the processes of chemical transformations of fuel molecules in engines under the action of additives. The use of multilayer fullerene-like structures (MFS) as additives to motor fuels is proposed. The influence of additives modified MFS on the conversion of reagents in the processes of liquid-phase oxidation of *n*-decan by molecular oxygen at low (70 °C) and high (150 °C) temperatures has been studied. The change in the direction of the MFS action on chemical transformation of initial reagents depending on process temperature is experimentally revealed. It was established that at low temperatures MFS inhibit the oxidation of *n*-decan, and at temperatures close to the boiling point of hydrocarbons, on the contrary, accelerate the transformation of the original alkane molecules. The composition of alkane transformation products at high-temperature two-phase (gas-liquid) oxidation regime was analyzed by gas-liquid chromatography. It is shown that the transformation of *n*-decan molecules occurs according to the same schemes both in the case of oxidation without the additive of MFS, and in the presence of these compounds in a liquid.

Keywords: motor fuel, multilayer fullerene structures, oxidation of hydrocarbons with molecular oxygen, energy efficiency of fuel use