

**(12) МЕЖДУНАРОДНАЯ ЗАЯВКА, ОПУБЛИКОВАННАЯ В СООТВЕТСТВИИ С
ДОГОВОРОМ О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ (РСТ)**

**(19) Всемирная Организация
Интеллектуальной Собственности
Международное бюро**



(43) Дата международной публикации
20 сентября 2007 (20.09.2007)

PCT

(10) Номер международной публикации
WO 2007/105982 A1

(51) Международная патентная классификация:
C07C 217/82 (2006.01) *C10L 1/223* (2006.01)
C07C 235/24 (2006.01) *C10L 1/224* (2006.01)

Vladimir Mixaylovich) [RU/RU]; Олимпийский пр-т,
д. 15, к. 4, кв. 7, Мытищи, Московская обл., 141006,
Mytische (RU).

(21) Номер международной заявки: PCT/RU2006/000428

(74) Агент: ШИРОКОВА Татьяна Константиновна
(SHIROKOVA, Tatyana Konstantinova); ул.
Первомайская, 66, кв. 135, Москва, 105554, Moscow
(RU).

(22) Дата международной подачи:

14 августа 2006 (14.08.2006)

(25) Язык подачи:

Русский

(26) Язык публикации:

Русский

(30) Данные о приоритете:

2006108236 16 марта 2006 (16.03.2006) RU

(71) **Заявители** (для всех указанных государств, кроме US): **ОБЩЕСТВО С ОГРАНИЧЕННОЙ ОТВЕТСТВЕННОСТЬЮ "ИФОХИМ" (OBSH-ESTVO S OGRANICHENNOY OTVETSTVEN-NJCTY "INOXIM") [RU/RU]; ул. Красная Пресня, д. 28, стр. 2, Москва, 123022 Moscow (RU). **КОМПАНИЯ С ОГРАНИЧЕННОЙ ОТВЕТСТВЕННОСТЬЮ IFO (LIMITED LIABILITY COMPANY IFO) [US/US]; Иншуранс Екчендж Билдинг, 279, Дес Мойнес, Айова 50309, Des Moines (US).****

(81) Указанные государства (если не указано иначе, для каждого вида национальной охраны): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(72) Изобретатели; и

(75) **Изобретатели/Заявители (только для US): ИВАНОВ Юрий Александрович (IVANOV, Yuri Alexandrovich) [RU/RU]; ул. Черкизовская Б, д. 6, корп. 1, кв. 50, Москва 107061, Moscow (RU). ФРОЛОВ Александр Юрьевич (FROLOV, Alexander Yurievich) [RU/RU]; ул. Кошкина, д. 12, корп. 3, кв. 580, Москва 115409, Moscow (RU). ОСИНИН Валерий Владимирович (OSININ, Valeriy Vladimirovich) [RU/RU]; ул. Люблинская, д. 5, к. 3, кв. 82, Москва, 109518, Moscow (RU). ПЕРЕВЕЗЕНЦЕВ Владимир Михайлович (PEREVEZENTZEV,**

(84) Указанные государства (если не указано иначе, для каждого вида региональной охраны): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), евразийский (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), европейский патент (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Декларация в соответствии с правилом 4.17:

— об авторстве изобретения (правило 4.17 (iv))

Опубликована:

— с отчётом о международном поиске

В отношении двубуквенных кодов, кодов языков и других сокращений см. "Пояснения к кодам и сокращениям", публикуемые в начале каждого очередного выпуска Бюллетеня РСТ.

(54) Title: PARA-ETHOXYANILINE DERIVATIVES ENHANCING THE ANTIKNOCK RATING OF HYDROCARBON FUELS AND COMPOSITIONS BASED THEREON

(54) Название изобретения: ПРОИЗВОДНЫЕ ПАРА-ЭТОКСИАНИЛИНОВ, ПОВЫШАЮЩИЕ СТОЙКОСТЬ УГЛЕВОДОРОДНЫХ ТОПЛИВ К ДЕТОНАЦИИ, И КОМПОЗИЦИИ НА ИХ ОСНОВЕ

(57) Abstract: The invention relates to novel N-methyl-para-ethoxyaniline, N,N-dimethyl-para-ethoxyaniline and N-methyl-N-acetyl-para-ethoxyaniline agents exhibiting a high antiknock activity, to para-ethoxyaniline, N-acetyl-para-ethoxyaniline, individual novel N-methyl-substituted para-ethoxyanilines or the mixtures thereof in the form of components, adjuvants (additives) and/or synergents efficiently enhancing the antiknock rating of the hydrocarbon combustibles (fuels) and to fuel compositions based thereon.

(57) Реферат: Новые вещества N-метил-пара-этоксианилин, N,N-диметил- пара-этоксианилин,N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин, обладающие высокой антидетонационной активностью. Паро-этоксианилин, N-ацетил-пара-этоксианилин и новые N- метилзамещенные, N-ацетилзамещённые паро-этоксианилины индивидуальные или их смеси как компоненты, присадки (добавки) или/и синергенты эффективно повышающие стойкость углеводородных горючих (топлив) к детонации и топливные композиции на их основе.

"Производные пара-этоксианилинов, повышающие стойкость углеводородных топлив к детонации, и композиции на их основе"

Новые соединения N-метил- или N,N-диметил-, или N-метил-N-ацетилзамещенные пара-этоксианилины, обладающие высокой антидетонационной активностью. Пара-этоксианилин, N-ацетил-пара-этоксианилин и новые N-метил- или N,N-диметил-, или N-метил-N-ацетилзамещенные пара-этоксианилины индивидуальные или их смеси как компоненты, присадки (добавки) или/и синергенты эффективно повышающие стойкость углеводородных горючих (топлив) к детонации и топливные композиции на их основе.

10

Область техники

Предлагаемое изобретение относится к веществам, повышающим антидетонационную стойкость углеводородных горючих (топлив) и может быть использовано в области нефтепереработки, переработке газа для создания высокооктановых топлив.

15

Предшествующий уровень техники.

Известно, что бензины прямой гонки состоят из устойчивых углеводородов, которые могут храниться в бензохранилищах без заметного смелообразования [1, 4].

20

Однако использование таких бензинов в двигателях внутреннего сгорания вызывает детонацию, которая способствует преждевременному его износу, уменьшению мощности, увеличению расхода топлива и неполному его сгоранию, что приводит к образованию окиси углерода и водорода при этом происходит большое выделение дыма [1, 2, 4].

С появлением двигателей внутреннего сгорания, работающих на повышенных степенях сжатия, возникла проблема повышения октанового числа углеводородных горючих (топлив) [1, 2, 4].

25

Известно, что октановое число топлив возрастает с увеличением в топливе содержания разветвленных и ненасыщенных углеводоролов

и углеводородов ароматического ряда [1-7]. Так как бензины прямой гонки, или рифайнинг-бензины сильно обогащены парафиновыми углеводородами нормального строения их октановые числа обычно не превышают 60 ед. [1-4]. В настоящее время вопрос 5 спрос на высокооктановые углеводородные горючие (топлива) и продолжает расти [1-8, 16, 17]. Термический крекинг позволил резко поднять производство бензина и улучшить его качество [1, 4]. Уменьшение тенденций крекинг-бензинов к детонации обусловлено 10 примесью в них олефиновых углеводородов, образующихся при термическом распаде больших молекул [1-7]. Постоянное развитие и совершенствование авиационной и автомобильной техники требует создание новых высокооктановых видов топлив [1-7]. Этую задачу можно решить созданием новых химических процессов риформинга 15 бензинов прямой гонки, каталитического крекинга и каталитического риформинга или добавлением к углеводородным горючим (топливам) специальных антидетонационных добавок и высокооктановых компонентов [1, 4].

При этом может возникнуть эффект синергизма [1-7]. Хотя и 20 считается перспективным получение высокооктановых углеводородных горючих (топлив, бензинов) технологическим путем, однако разработка самих методов и тем более создание и строительство новых технологических установок для получения высокооктановых топлив требует огромных капитальных затрат, что 25 не всегда приемлемо для многих стран.

Поэтому самым технологически и экономически выгодным является использование для получения высокооктановых углеводородных горючих (топлив, бензинов) антидетонационных добавок.

Известно, что для увеличения октанового числа топлив используют (применяют) как зольные, так и беззольные антидетонационные присадки (добавки) [1-17,35].

Известными, но мало применяемыми в настоящее время зольными 5 антидетонационными присадками (добавками), синергентами являются органические соединения марганца, железа, меди, хрома, кобальта, никеля, редкоземельных элементов, свинца [1, 4, 5, 17,35] и др., однако все они обладают высокой токсичностью, особенно 10 органические соединения свинца. Соединения свинца и железа, как сами, так и продукты их сгорания и оказывают отрицательное воздействие на работу двигателей внутреннего сгорания, накапливаясь на электродах свечей зажигания, поршнях и стенках камеры сгорания, значительно сокращая его ресурс [1, 4, 5, 10-17,35].

15 Беззольные антидетонационные добавки (присадки) хотя и менее эффективны, чем зольные, но находят более широкое распространение и применение, особенно в сочетании с другими компонентами [1-15, 17].

Наиболее известными и распространеными беззольными 20 антидетонационными добавками (присадками) являются: низкомолекулярные ароматические амины [N-метиланилин (ММА), ксилидин, толуидин].

Так, известна присадка экстрайлин ТУ 6.02.571-90, содержащая в процентных массовых соотношениях диметиланилин до 4,5 %, анилин 25 до 6% и N-метиланилин до 100% [14].

Другой известной присадкой аналогичного типа является присадка АДА ТУ 38-401-58-61-93, которая дополнительно содержит в своем составе антиокислительную добавку типа ионола [14].

Недостатками такого типа присадок являются: ограничение их 30 по содержанию в связи с увеличением продуктов окисления,

смелообразования в бензине при хранении и нагарообразование во время эксплуатации в двигателе при повышенной их концентрации, и относительно невысокий прирост октанового числа в топливах [14, 17].

5 В качестве антидетонаторов известны также гомологи бензола: ксиол, этилбензол, толуол [14, 16, 17], которые весьма незначительно повышают октановое число топлив.

Известно использование в качестве антидетонаторов 10 оксигенатов и их смеси этилового или метилового спирта с более высокомолекулярными спиртами: метил-трет-бутилового эфира и его смесь с изобутиловым спиртом в соотношениях 60-80% и 40-20% соответственно [14].

Недостатками таких добавок (присадок) является 15 незначительное поднятие октанового числа бензинов при высоком до 25% их содержании.

До настоящего времени имеется весьма ограниченный ассортимент беззольных антидетонационных добавок (присадок) в виде индивидуальных соединений (веществ), что не позволяет 20 создавать на их основе новые виды высокооктановых углеводородных горючих (топлив) с требуемыми свойствами для каждого конкретного случая в зависимости от поставленных целей или универсальными свойствами.

Добиться такого результата можно в случае использования в 25 качестве компонентов, добавок (присадок) к углеводородным горючим (топливам) предложенных веществ (соединений).

Общеизвестно, что свойства соединений (веществ) зависят в основном не только от элементов, входящих в состав их молекул, но и от взаимного расположения этих элементов или групп атомов 30 элементов по отношению друг к другу, а также за счет каких связей

проходит их объединение в молекуле вещества, то есть конструкция молекул, их состав и вид связей в них определенным образом влияют на физическое и химическое поведение веществ (соединений) как внутримолекулярное, так и межмолекулярное, 5 включая взаимодействие между молекулами разных веществ (соединений), что в свою очередь может существенно повлиять на свойства всей системы в целом.

Известно, что углеводородные горючие (топлива) состоят из 10 смеси различных углеводородов, которые могут при определенном сочетании компонентов приобретать нужные свойства в процессе их использования (применения), а именно как углеводородное горючее (топливо) в двигателях внутреннего сгорания, где для их оптимальной 15 работы требуется одновременное достижения максимального давления паровоздушной смеси в момент прохождения поршнем верхней мертвой точки и разложение (возгорание) этой смеси от электрической искры свечи зажигания. Если эти условия не соблюдаются возникает детонация, которая отрицательно влияет на 20 работу двигателя, расход топлива и состав отработанных газов [1-7].

Для регулирования таких процессов используется (принимаются) такие соединения (вещества), возбуждение молекул которых может происходить только от одного определенного фактора (например, электрической искры) и переносить возбуждение 25 сенсибилизировано на всю систему и при этом тормозить другие факторы преждевременно влияющие на этот процесс, например, высоко температурные воздействия (термическое) воздействие на систему, что является определяющим условием оптимальной работы двигателей внутреннего сгорания.

30 Ароматические амины могут в сочетании с углеводородными горючими (топливами), состоящими из смеси различных

углеводородов, образовывать межмолекулярные связи с молекулами веществ входящих в состав топлив посредством возникновения комплексов, с переносом заряда, π – комплексов, σ – комплексов, а также свободных стабильных радикалов и других активных промежуточных продуктов с резонансным обменом энергии или новых образований [18-32], что и определяет возможность проявления синергетического эффекта. Возбуждение системы может осуществляться различными и многочисленными факторами одновременно или избирательно только от какого-нибудь одного фактора, например от электрического разряда, что очень важно при протекании процессов определенной направленности, происходящих при данных условиях.

Известно применение этоксианилинов (фенетидинов, аминофенетолов) для получения лекарственных препаратов и для синтеза красителей (например триарилметановых) [33].

Известно применение N-цетил-пара-этоксианилина (N-ацетил-пара-фенетидина, фенацетина, ацетфенетидина) в качестве жаропонижающего, болеутоляющего и противовоспалительного средства при невралгиях, головных болях, воспалительных заболеваниях [33, 36]

Нами предложены соединения (вещества) известные и новые, проявляющие высокоэффективные антидетонационные свойства, в конструкции структур молекул которых имеются одновременно не только первичная или вторичная, или третичная аминогруппа, но и алcoxигруппа, что определяет их сродство как с ароматическими аминами, так и с оксигенатами, причем, по своим антидетонационным свойствам они превосходят известные по аналогичному применению ароматические амины и значительно эффективнее оксигенатов, а наличие в составе молекул таких соединений (веществ)

кислородосодержащих групп, может частично снизить дефицит кислорода в случае возникновения его недостатка по разным причинам в камере сгорания и тем самым уменьшить вероятность образования (как из веществ, входящих в состав самих бензиновых 5 фракций, так и из компонентов, присадок класса ароматических аминов, добавляемых к топливам для повышения их октанового числа) канцерогенных соединений типа бензпирена, выбрасываемых в атмосферу вместе с выхлопными газами, что может улучшить экологию окружающей среды, а также снизить возможность смоло- и 10 нагарообразования на внутренних деталях двигателей внутреннего сгорания в процессе их работы, а это в свою очередь может значительно увеличить процентное содержание предложенных нами соединений в углеводородных горючих (топливах) по сравнению с известными ароматическими аминами.

15 Таким образом, предложенные нами соединения (вещества), являющиеся одновременно и оксигенатами, и ароматическими аминами, обладающие совокупными свойствами каждого из них, существенно и выгодно отличаются от всех известных ароматических аминов и оксигенаторов используемых в настоящее время для 20 повышения октанового числа углеводородных горючих (топлив).

Прототипами в данном случае могут быть выбраны как оксигенаты: этил- или метил-трет-бутиловый эфир, так и анилин, ксилидин, толуидин, N-метиланилин, N,N-диметиланилин, которые являются первичными, вторичными и третичными аминами.

25 Недостатками оксигенаторов является необходимость их добавления в бензин в больших количествах 10-25%, для поднятия октанового числа на 3-8 единиц при этом снижается энергетика топлив и отрицательное влияние на резинотехнические детали автомобилей [14, 16,17].

Недостатками присадок содержащих анилин и его производных является их нестабильность, повышение смолообразования вследствие чего их допустимые концентрации ограничены 1-1,3% (масс) и необходимость их применения в 5 сочетании с антиоксидантами.

Задачу эффективного повышения стойкости углеводородных горючих (топлив) к детонации решают использованием (применением) предложенных известных пара-этоксианилина (пара-фенетидина, пара-аминофенетола) и/или N-ацетил-пара-этоксианилина (N-ацетил-пара-фенетидина, фенацетина), и/или новых, синтезированных нами N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина (N-метил-N-ацетил-пара-фенетидина), и/или N-метил-пара-этоксианилина (N-монометил-пара-этоксианилина, N-метил-пара-фенетидина), и/или N,N-диметил-пара-этоксианилина (N,N-диметил-пара-фенетидина) индивидуальных или их смесей в качестве компонентов, присадок (добавок), или/и синергентов без или с оксигенатами.

Раскрытие графических материалов

Предлагаемое изобретение поясняется нижеследующим описанием и графиками, где :

На графике 1- Спектр ЯМР 1H N-метил-пара-этоксианилина

На графике 2 - Спектр ЯМР 13C N-метил-пара-этоксианилина

На графике 3- ИК-спектр N-метил-пара-этоксианилина

25 На графике 4 -УФ-спектр N-метил-пара-этоксианилина

На графике 5- Масс-спектр N-метил-пара-этоксианилина

На графике 6 -Спектр ЯМР 1H N,N-диметил-пара-этоксианилина

На графике 7 -Спектр ЯМР 13C N,N-диметил-пара-этоксианилина

На графике 8- ИК-спектр N,N- диметил-пара-этоксианилина

На графике 9 - УФ-спектр N,N-диметил-пара-этоксианилина

На графике10- Масс-спектр N,N-диметил-пара-этоксианилина

На графике 11- Спектр ЯМР 1H N-метил-N-ацетил-пара-
5 этоксианилина

На графике 12- Спектр ЯМР 13C N-метил-N-ацетил-пара-
этоксианилина

На графике 13- ИК-спектр N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина

На графике 14- УФ-спектр N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина

10 На графике15- Масс-спектр N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина

Лучшие примеры исполнения изобретения.

Получение N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина.

22,78 г N-ацетил-пара-этоксианилина, полученного согласно
методикам, описанным в [34,36,37,38], растворяют в 150 мл ацетона,
15 добавляют 20,36 г мелкорастертого едкого натра.

Смесь доводят до кипения, порциями добавляют раствор 12 мл
йодистого метила в 50 мл ацетона. После 15 минутного . кипячения
смеси максимально отгоняют ацетон.

20 В реакционную массу добавляют 40 мл воды и перемешивают ее
5 мин. при 50⁰C.

Добавляют 150 мл толуола. Органический слой отделяют,
сушат над KOH и после фильтрации перегоняют в вакууме, собирая
фракцию с Т кип.=115-117⁰C при 1мм рт. ст. Получают 20 г (81.4%)
светложелтой жидкости N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина
25 n²⁰D=1,5280; d=1,03 г/см3.

Найдено C 68,39; H 7,81; N 7,28%. M+193 (масс-спектром).
C11H15NO2.

Вычислено C 68,37; H 7,82; N 7,25; O 16,56% M 193,249.

Получение N-метил-пара-этоксианилина.

В колбу на 0,15 л, загружают 75 мл. дистиллированной воды и при перемешивании прикальпывают 14 мл. концентрированной серной кислоты, затем добавляют 20г N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина.

Полученная при интенсивном перемешивании эмульсия 5 желтого цвета, после нагрева до кипения образует гомогенную систему, в которую после 2-х часового кипячения и последующего охлаждения добавляют 30г едкого натра.

Смесь переносят в делительную воронку и дважды экстрагируют целевой продукт толуолом по 70 мл.

10 Толуольный раствор сушат, деконтируют, толуол отгоняют, а остаток перегоняют в вакууме, собирая фракцию с Т кип.=91-94⁰C (при 1 мм.рт.ст.). Получат 15 г (95,86% от теор.) светло-желтой жидкости с nD²⁰ = 1,5520, d= 0,990 г/см³ при 20⁰C.

Найдено С 71,52; Н 8,70; Н 9,23%. М+151 (масс-спектром).
15 С9H13NO.

Вычислено С 71,49; Н 8,67; Н 9,26; О 10,58% М 151,210.

Получение N,N-диметил-пара-этоксианилина.

20 В колбу на 0,25л, снабженную эффективно действующим обратным холодильником, загружают смесь 100мл. (106,52г) (0,775M) свежеперегнанного пара-этоксианилина (парафенетидина) и 61,82мл. (140,89г) (0,993M) йодистого метила и эту реакционную массу нагревают до кипения и кипятят в течение двух часов, при этом вся масса затвердевала.

Затем реакционную массу охлаждают до комнатной температуры 25 и при охлаждении к ней небольшими порциями (частями) прибавляют раствор 48,03г (1,2M) едкого натра, растворенного в 144,44 мл дистиллированной воды. Выделившийся N-метил-пара-фенетидин отделяют в делительной воронке, и снова кипятят в колбе с

эффективным обратным холодильником с 61,82 мл (140,89 г) (0,993М) йодистого метила до затвердевания всей массы.

Полученную йодистоводородную соль N,N-диметил-парафенетидина растворяют в воде и кипятят этот раствор в течении 5 нескольких минут, охлаждали и осторожно разлагали раствором 48, 03г (1,2М) едкого натра в 144,44мл. дистиллированной воды.

Образавшийся N,N-диметил-парафенетидин переносят в делительную воронку и извлекают из смеси 280 мл (184,8г) (2,144М) гексана, прибавляя его небольшими порциями в делительную воронку 10 и интенсивно встряхивают смесь.

Гексановые растворы, содержащие N,N-диметил-парафенетидин, отделяют и объединяют, и затем переносят в колбу для перегонки.

Гексан упаривают, а остаток перегоняют в вакууме, отбирая 15 фракцию с Т кип.= 129-131⁰С при 3 мм рт.ст.

Получили 83,39г. (65% от теор.) желтоватых кристаллов с Т л.= 36,5-39⁰С, nD⁴⁰ = 1,5400.

Найдено: С 72,67; Н 9,18; Н 8,51 %. М+165 (масс-спектром). 20 C10H15NO.

Вычислено С72,69; Н 9,15; Н 8,48; О 9,68% М 165,237

Получение N-метил-пара-этоксианилина и N,N-диметил-пара-этоксианилина.

N-монометил-пара-этоксианилин и N,N-диметил-пара-25 этоксианилин были получены так же с использованием диметилсульфата, бикарбоната натрия, едкого натра или калия по методике описанной в [Вейганд-Хильгетаг. Методы эксперимента в

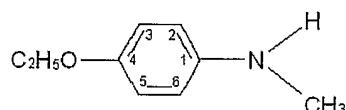
12

органической химии. – Москва. : Издательство, «Химия», 1964. – 944 с.] с выходом 50 и 65 % от теоретического соответственно.

Показатели преломления, плотности (удельные веса), УФ-, ИК-, ЯМР-, масс-спектры полностью идентичны со спектрами этих же 5 веществ (соединений), полученных другими способами [Ю.К. Юрьев. Практические работы по органической химии. Выпуск первый и второй. 2-ое дополнение издание. – Москва.: Издательство Московского университета. 1961. – 420с.].

Физико-химические исследования полученных веществ 10 (соединений) полностью подтвердили их строение и идентичность.

Исследование N-метил-пара-этоксианилина методом ЯМР.



Спектры ЯМР ^1H и ^{13}C раствора N-метил-пара-этоксианилина 15 (4-этокси-N-метиланилина) в CDCl_3 измерены на спектрометре Bruker AM-360 на частотах 360 и 90 МГц соответственно.

В спектре ЯМР ^1H N-метил-пара-этоксианилина (Фиг. 1) 20 наблюдаются следующие сигналы резонансов протонов молекулы: триплет метильных протонов этокси-группы при 1.39 м.д. с $J(\text{H-H}) = 7.2 \text{ Гц}$;

синглет протонов метильной группы при атоме N при 2.81 м.д.; уширенный синглет протона при атоме азота (группы NH) при 3.33 м.д.;

квадруплет протонов CH_2 -группы при атоме O при 3.98 м.д. с $J(\text{H-H}) = 7.2 \text{ Гц}$;

дублет двух протонов при атомах C6 и C2 при 6.58 м.д. $J(\text{H-H}) = 9.36 \text{ Гц}$;

дублет двух протонов при атомах C3 и C5 при 6.82 м.д. $J(\text{H-H}) = 8.64 \text{ Гц}$.

13

В спектре ЯМР ^{13}C N-метил- пара-этоксианилина (Фиг. 2) наблюдаются следующие сигналы резонансов углеродных атомов молекулы:

при 15.07 м.д. – сигнал метильного углерода этокси-группы;

5 при 31.61 м.д. – сигнал от метильного атома углерода при атоме N;

при 64.05 м.д. – сигнал метиленового атома углерода этокси-группы;

при 113.66 м.д. – сигнал от двух атомов углерода C6 и C2;

при 115.89 м.д. – сигнал от двух атомов углерода C3 и C5;

10 при 143.88 м.д. – сигнал атома углерода при атоме азота в ароматическом кольце;

при 151.4 м.д. – сигнал атома углерода при атоме кислорода в ароматическом кольце.

Таким образом спектры ЯМР ^1H и ^{13}C полностью подтверждают химическую структуру (порядок соединения атомов в молекуле) N-

15 метил-пара-этоксианилина.

Исследования N-метил-пара-этоксианилина методом ИК спектрофотометрии.

ИК-спектр измерен в капиллярном слое в KBr на спектрофотометре SPECORD M82.

20 Спектр N-метил-пара-этоксианилина (Фиг. 3) содержит полосы поглощения с максимумами при 450, 518, 647, 705, 751, 946 1116, 1151, 1179, 1446, 1479 cm^{-1} (слабой интенсивности), при 921, 1304,

1394 cm^{-1} (средней интенсивности), при 819, 1048, cm^{-1} (высокой интенсивности), а также характеристические полосы поглощения

25 валентных колебаний связи C-O при 1233 cm^{-1} (сильная), C=C при 1618 cm^{-1} (слабая), и связи C-H при 2807, 2871, 2935, 2979 и 3027 cm^{-1} .

Группа N-H проявляется в спектре интенсивными полосами деформационных колебаний при 1513 cm^{-1} и валентных колебаний при 3405 cm^{-1} .

14

Основные характеристические частоты поглощения соответствуют и подтверждают данную структуру молекулы N-метил-пара-этоксианилина.

Исследования N-метил-пара-этоксианилина методом УФ 5 спектрофотометрии.

УФ-спектры измерены в растворе этанола в кюветах 1 см на приборе SPECORD UV VIS (Carl Zeiss, Jena).

УФ-спектры N-метил-пара-этоксианилина (Фиг. 4) с 10 характерной концентрационной зависимостью интенсивности полос поглощения отмечаются максимумы при 242 и 307 нм и минимумы при 218 и 275 нм.

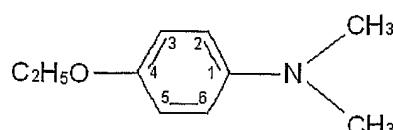
Масс-спектрометрические исследования N-метил-пара-этоксианилина

Масс-спектр измерен на масс-спектрометре Finnigan MAT 95 XL 15 пропусканием через капиллярную колонку (фаза – полидиметилсилоксан, содержащий 5% фенильных групп) при энергии ионизирующих электронов 70 эВ.

В спектре N-метил-пара-этоксианилина(Фиг.5)наблюдается пик молекулярного иона $[M]^+$ с m/z 151 (относительная интенсивность 20 60%), пик иона $[M-C_2H_5]^+$ с m/z 122 (100%), а также малоинтенсивные пики продуктов распада последнего с m/z 108, 94, 77 и 65 с относительной интенсивностью 2-7%.

Исследование N,N-диметил-пара-этоксианилина методом ЯМР.

25



Спектры ЯМР ^1H и ^{13}C раствора N,N-диметил-пара-этоксианилина (4-этокси-N,N-диметиланилина) в CDCl_3 измерены на спектрометре Bruker AM-360 на частотах 360 и 90 МГц соответственно.

15

В спектре ЯМР ^1H N,N-диметил-пара-этоксианилина (Фиг. 6) наблюдаются следующие сигналы резонансов протонов молекулы:

триплет метильных протонов этокси-группы при 1.39 м.д. с $J(\text{H-H}) =$

5 7.2 Гц;

синглет протонов двух метильных групп при атоме N при 2.88 м.д.

квадруплет протонов CH_2 – группы при атоме O при 4.0 м.д. с $J(\text{H-H}) = 7.2$ Гц;

дублет двух протонов при атомах C6 и C2 при 6.76 м.д. $J(\text{H-H}) = 8.64$

10 Гц;

дублет двух протонов при атомах C3 и C5 при 6.86 м.д. $J(\text{H-H}) = 8.64$

Гц.

В спектре ЯМР ^{13}C N,N-диметил-пара-этоксианилина (Фиг.7) наблюдаются следующие сигналы резонансов углеродных атомов молекулы:

при 14.85 м.д. – сигнал метильного углерода этокси-группы;

при 41.62 м.д. – сигнал от двух метильных атомов углерода при атоме N;

при 63.85 м.д. – сигнал метиленового атома углерода этокси-группы;

20 при 114.71 м.д. – сигнал от двух атомов углерода C6 и C2;

при 115.34 м.д. – сигнал от двух атомов углерода C3 и C5;

при 145.56 м.д. – сигнал атома углерода при атоме азота в ароматическом кольце;

при 151.13 м.д. – сигнал атома углерода при атоме кислорода в ароматическом кольце.

Таким образом спектры ЯМР ^1H и ^{13}C полностью подтверждают химическую структуру (порядок соединения атомов в молекуле) N,N-диметил-пара-этоксианилина.

16

Исследования N,N-диметил-пара-этоксианилина методом ИК спектрофотометрии.

ИК-спектр измерен в капиллярном слое в KBr на спектрофотометре Bruker IFS-113.

Спектр N,N-диметил-пара-этоксианилина (Фиг. 8) содержит полосы поглощения с максимумами при 407, 679, 922, 1090, 1117, 1162, 1185 cm^{-1} (слабой интенсивности), при 527, 705, 948, 1296, 1337, 1446, 1479 cm^{-1} (средней интенсивности), при 816, 1052 cm^{-1} (высокой интенсивности), а также характеристические полосы поглощения валентных колебаний связи C–O при 1239 cm^{-1} (сильная), C=C при 1511 (сильная) и 1616 cm^{-1} (слабая), и связи C–H при 2794, 2876, 2935, 2979 и 3046 cm^{-1} .

Основные характеристические частоты поглощения соответствуют и подтверждают данную структуру молекулы N,N-диметил-пара-этоксианилина.

Исследования N,N-диметил-пара-этоксианилина методом УФ спектрофотометрии.

УФ-спектры измерены в растворе этанола на приборе SPECORD UV VIS (Carl Zeiss, Jena).

УФ-спектры N,N-диметил-пара-этоксианилина (Фиг.9) с характерной концентрационной зависимостью интенсивности полос поглощения отмечаются максимумы при 247 и 308 нм и минимумы при 221 и 283 нм.

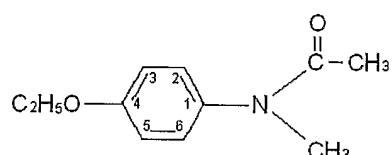
Масс-спектрометрические исследования N,N-диметил-пара-этоксианилина

Масс-спектр измерен на масс-спектрометре Finnigan MAT 95 XL пропусканием через капиллярную колонку (фаза – полидиметилсилоксан, содержащий 5% фенильных групп) при энергии ионизирующих электронов 70 эВ.

В спектре N,N-диметил-пара-этоксианилина (Фиг.10) наблюдается пик молекулярного иона $[M]^+$ с m/z 165 (относительная интенсивность 47%), пик иона $[M-C_2H_5]^+$ с m/z 136 (100%), а также малоинтенсивные пики (менее 3%) продуктов распада последнего с 5 m/z 122, 108, 93 и 65.

Исследование N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина методом ЯМР.

10



Спектр ЯМР ^1H и раствора N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина (4-Этокси-N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина) в CDCl_3 измерен на спектрометре Bruker AM-360 на частоте 360 МГц соответственно.

15 В спектре ЯМР ^1H (Фиг. 11) наблюдаются следующие сигналы резонансов протонов молекулы:

триплет метильных протонов этокси-группы при 1.42 м.д. с $J(\text{H}-\text{H}) = 6.48$ Гц;

20 синглет протонов метильной группы ацильного заместителя при 1.84 м.д.;

синглет протонов метильной группы при атоме азота при 3.21 м.д.;

квадруплет метиленовых протонов этокси-группы при 4.03 м.д. с $J(\text{H}-\text{H}) = 6.48$ Гц;

дублет двух протонов при атомах C2 и C6 при 6.88 м.д. с $J(\text{H}-\text{H}) = 8.64$

25 Гц;

дублет двух протонов при атомах C3 и C5 при 7.07 м.д. с $J(\text{H}-\text{H}) = 8.64$ Гц.

В спектре ЯМР ^{13}C (Фиг.12) наблюдаются следующие сигналы резонансов углеродных атомов молекулы:

30 при 14.52 м.д. – сигнал метильного углерода этокси-группы;

- при 22.06 м.д. – сигнал метильного углерода ацетильной группы;
- при 37.01 м.д. – сигнал от метильного атома углерода при атоме N;
- при 63.49 м.д. – сигнал метиленового атома углерода этокси-группы;
- 5 при 115.09 м.д. - сигнал от двух атомов углерода C3 и C5;
- при 127.86 м.д. – сигнал от двух атомов углерода C2 и C6;
- при 137.09 м.д. – сигнал атома углерода при атоме азота в ароматическом кольце;
- при 157.98 м.д. - сигнал атома углерода при атоме кислорода в 10 ароматическом кольце;
- при 170.67 м.д. – сигнал карбонильного атома углерода.

Таким образом спектры ЯМР ^1H и ^{13}C полностью подтверждают химическую структуру (порядок соединения атомов в молекуле) N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина.

15 Исследования N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина методом ИК спектрофотометрии.

ИК-спектр измерен в капиллярном слое в KBr на спектрофотометре Specord M82.

Спектр N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина (Фиг.13) 20 содержит полосы поглощения с максимумами при 808, 924, 976, 1012, 1088, 1116, 1144, 1172, 1420 и 1480 cm^{-1} (слабой интенсивности), при 844, 1048, 1300 и 1380 cm^{-1} (средней интенсивности), при 1248, 1516 и 1664 cm^{-1} (высокой интенсивности). Последняя полоса характерна для амидного карбонила.

25 Характеристические полосы поглощения валентных колебаний связи C-H проявляются при 2900, 2920 и 2980cm^{-1} .

Основные характеристические частоты поглощения соответствуют и подтверждают данную структуру молекулы N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина.

19

Исследования N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина методом УФ спектрофотометрии.

УФ-спектры измерены в растворе этанола в кюветах 1 см на приборе SPECORD UV VIS (Carl Zeiss, Jena).

УФ-спектры N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина (Фиг. 14) с характерной концентрационной зависимостью интенсивности полос поглощения отмечаются максимумы при 228 и 275 нм, плечо при 282 нм и минимумы при 216 и 263 нм.

Масс-спектрометрические исследования N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина

Масс-спектр измерен на масс-спектрометре Finnigan MAT 95 XL пропусканием через капиллярную колонку (фаза – полидиметилсилоксан, содержащий 5% фенильных групп) при энергии ионизирующих электронов 70 эВ.

В спектре N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилина (Фиг. 15) наблюдается пик молекулярного иона $[M]^+$ с m/z 193 (относительная интенсивность 50%), пик иона $[M-COCH_3+H]^+$ с m/z 151 (23%), пик иона $[C_6H_5OC_2H_5]^+$, а также малоинтенсивные пики продуктов распада последнего с m/z 108, 94, 77 и 65 с относительной интенсивностью 2-7% и пики иона $[NCOCH_2]^+$ и продуктов его распада с m/z 56 (15%) и 43 (10%).

Впервые, нами были получены и исследованы спектральными методами и элементным анализом N-метил-пара-этоксианилин, N,N-диметил-пара-этоксианилин и N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин, а также определены их температуры плавления, кипения, показатели преломления и плотности.

Типичные примеры, подтверждающие эффективность указанных соединений, смесей.

Эффективность предложенных нами соединений, определялась по приросту октанового числа, определяемого моторным методом (ОЧМ) и исследовательским методом (ОЧИ) в эталонной топливной смеси изооктана и нормального гептана (70:30 объемных % соответственно) и на бензинах прямой гонки из нефти ОЧМ 51,5 ед., бензине газовом стабильном (БГС) ОЧМ 65,5 ед. и др. товарных бензинах.

Пример 1. Пара-этоксианилин, взятый 1,3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ на 5,5 ед. (ОЧМ) и 7 ед. (ОЧИ).

Пример 2. N-метил-пара-этоксианилин, взятого 1,3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ на 6 ед. (ОЧМ) и 8 ед. (ОЧИ).

Пример 3. N,N-диметил-пара-этоксианилин, взятый 1,3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 3 ед. (ОЧМ) и 5,3 ед. (ОЧИ).

Пример 4. Смесь N-ацетил-пара-этоксианилина и бутанола в соотношении 1:1 соответственно, взятую 5% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 3,5 ед. (ОЧМ) и 5 ед. (ОЧИ).

Пример 5. Смесь N-метил-пара-этоксианилина и N,N-диметил-пара-этоксианилина в соотношении 1:1, взятую 2% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 6,5 ед. (ОЧМ) и 8 ед. (ОЧИ).

Пример 6. Смесь Пара-этоксианилина, N-метил-пара-этоксианилина и N,N-диметил-пара-этоксианилина в соотношении 1:1:1, взятую 2% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 7 ед. (ОЧМ) и 9 ед. (ОЧИ).

Пример 7. Смесь N-метил- пара-этоксианилина и МТБЭ в соотношении 1:1, взятую 3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 8 ед. (ОЧМ) и 10,5ед. (ОЧИ).

Пример 8. Смесь N,N-диметил-пара-этоксианилина и изопропилового спирта в соотношении 1:1 соответственно, взятую 3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 7,5 ед. (ОЧМ) и 9,5ед. (ОЧИ).

Пример 9. Смесь N,N-диметил-пара-этоксианилина и МТБЭ в соотношении 1:1 соответственно, взятую 3% масс, по отношению к 10 эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ на 4,5 ед. (ОЧМ) и 7ед. (ОЧИ).

Пример 10. Смесь N,N-диметил-пара-этоксианилина и изопропилового спирта в соотношении 1:1 соответственно, взятую 3% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 15 на 4 ед. (ОЧМ) и 6,5ед. (ОЧИ).

Пример 11. Смесь паро-этоксианилина и метил-трет.-бутилового эфира (МТБЭ) в соотношении 1:1 соответственно, взятую 3% , по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ на 7,5ед. (ОЧМ) и 9 ед. (ОЧИ).

Пример 12. Смесь паро-этоксианилина и изопропилового спирта (ИПС) в соотношении 1:5 соответственно, взятую 10% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ на 10 ед. (ОЧМ) и 14 ед. (ОЧИ).

Пример 13. N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин, взятый 2% 25 масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 1 ед. (ОЧМ) и 1,5 ед. (ОЧИ).

Пример 14. N-метил-пара-этоксианилин, взятого 5% масс, по отношению к эталонной топливной смеси дал прирост ОЧ 18 ед. (ОЧМ) и 21 ед. (ОЧИ).

В качестве оксигенатов также были использованы, проверены и получены сходные результаты с фенетолом, аизолом, метил-трет-амиловым, метил-втор-пентиловым, этил-трет-бутиловым, дизопропиловым эфирами, метиловым, этиловым, бутиловыми спиртами, эфирными фракциями и кубовыми остатками бутиловых спиртов и их смесями.

Сходные результаты получены на образцах бензина прямой гонки (из нефти), бензина газового стабильного (БГС), авиационного бензина, авиационного керосина, товарных бензинов марок АИ 80, АИ 92, АИ 95, АИ 98.

Источники информации принятые во внимание.

1. Топлива, смазочные материалы, технические жидкости. Ассортимент и применение: Справочник./И.Г. Анисимов, К.М. Бадыштова, С.А. Бнатов и др.: Под ред. В. М. Школьникова. Издание 5 второе, переработанное и дополненное. – Москва.: Издательский центр «Техинформ», 1999.-596 с.: ил.
2. Б. А. Павлов и А. П. Терентьев. Курс органической химии. – Москва.: Государственное научно-техническое издательство химической литературы, 1961. – 592с.
- 10 3. Е. С. Хотинский. Курс органической химии. – Харьков.: Издательство Харьковского Ордена Трудового Красного Знамени Государственного Университета им. А. М. Горького, 1959.-724 с.
4. Э. Г. Розанцев. Разрушение и стабилизация органических материалов. – Москва.: Издательство «Знание», 1974.-64 с.
- 15 5. А. Е. Чичибабин. Основные начала органической химии. Том I. – Москва.: Государственное научно-техническое издательство химической литературы, 1963. – 912 с.
6. Н. Л. Глинка. Общая химия. Издание двенадцатое. – Москва, Ленинград.: Издательство «Химия», 1965. – 688 с.
- 20 7. Б. Н. Степаненко. Курс органической химии Часть I. Алифатические соединения. – Москва.: Издательство «Высшая школа», 1976. – 448 с.
8. Г. И. Шор, В.А. Винокуров, И. А. Голубева. Производство и применение присадок к нефтепродуктам в новых условиях 25 хозяйствования. Под ред. И. Г. Фукса. – Москва.: Издательство «Нефть и газ», 1996.- 44 с.
9. А. С. СССР 152526, кл. С 10L 1/26, 1963.
10. Патент РФ 2032708, кл. С 10 L 1/18,1995

11. К. К. Панок, И.А. Рагозин. Словарь по топливам, маслам, смазкам, присадкам и специальным жидкостям.- Москва.: Издательство «Химия», 1975. – 326 с.
12. Патент РФ 2064965, кл. C 10 L 1/18, 1996
- 5 13. Патент СССР 461512, кл. C 10 L 1/18 , 1975
14. Патент РФ 2078118, кл. C 10 L 1/18, 1997
15. Патент РФ 2184767 кл. C 10 L 1/22 ,2002 .
- 10 16. С. Н. Онойченко. Применение оксигенатов при производстве перспективных автомобильных бензинов. - Москва.: Издательство «Техника» ООО «Тума Групп». 2003. – 64 с.
17. А. М. Данилов. Применение присадок в топливах. – Москва.: Издательство «Мир», 2005.-288с., ил.
18. А. Н. Несмейнов, Н.А. Несмейнов. Начала органической химии. Книга первая.- Москва.: Издательство «Химия», 1974.-624с.
- 15 19. А. Н. Несмейнов, Н.А. Несмейнов. Начала органической химии. Книга вторая.- Москва.: Издательство «Химия», 1974.-744с.
- 20 20. Дж. Робертс, М. Касерио. Основа органической химии. Том 1. – Москва.: Издательство «Мир», 1978. – 848 с.
21. Дж. Робертс, М. Касерио. Основа органической химии. Том 2. – Москва.: Издательство «Мир», 1978. – 888 с.
22. Ф. Керн , Р. Сандберг. Углубленный курс органической химии. Книга 1. структура и механизмы. – Москва.: Издательство «Химия», 1981. – 520с.
23. Дж. Марч. Органическая химия. Реакции, механизмы и структура. Том 1. – Москва.: Издательство «Мир», 1987.- 384с.
- 25 24. Дж. Марч. Органическая химия. Реакции, механизмы и структура. Том 3. – Москва.: Издательство «Мир», 1987.- 464с.
25. К. Ингольд. Теоретические основы органической химии. – Москва.: Издательство «Мир», 1973. – 1056с.

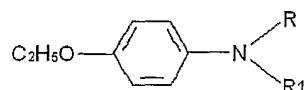
26. Ж. Матье, Р. Панико. Курс теоретических основ органической химии. – Москва.: Издательство «Мир», 1975. – 556с.
27. Изв. АН СССР. Сер. Хим., 1978. №9, с 2134-2136.
28. Изв. АН СССР. Сер. Хим., 1980. №2, с 421-424.
- 5 29. Изв. АН СССР. Сер. Хим., 1980. №4, с 942-943.
30. Изв. АН СССР. Сер. Хим., 1981. №9, с 2008-2014.
31. Изв. АН СССР. Сер. Хим., 1993. №7, с 1321.
32. Координационная химия, 1994, том 20, №4, с. 311-317.
33. Краткая химическая энциклопедия. Ред. кол. И. Л. Кнусянц (отв. 10 ред.) и др. т.5, М., «Советская энциклопедия», 1967. т. (Энциклопедии. Словари. Справочники). т. 5. Т-Я. 1967., 1184 стб. с илл.
34. А. М. Беркенгейм. Химия и технология синтетических лекарственных средств. – Москва.: ОНТИ Главная редакция 15 химической литературы, 1935. – 642с.
35. Перевалова Э. Г., Решетова М. Д., Грандберг К. И. Железоорганические соединения. Ферроцен. – М.: Наука, 1983. – 544 с. (Серия «Методы элементоорганической химии»)
36. Швицер Ю. Производство химико-фармацевтических и техно- 20 химических препаратов, пер. с нем., М.-Л., 1934.
37. Препартивная органическая химия. Издание 2-е, М., Госхимиздат. 1964.
38. Агрономов А. Е., Шабаров Ю. С. Лабораторные работы в органическом практикуме. Изд. 2-е, пер. и доп. М. «Химия», 1974 г. 25 376с., 18 табл., 113 рис.

Формула

изобретения.

1. Новые соединения N-метил- или N,N-диметил-, или N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин общей формулы I, обладающие высокоэффективными антидетонационными свойствами, для создания на их основе высокооктановых углеводородных горючих (топлив).

5



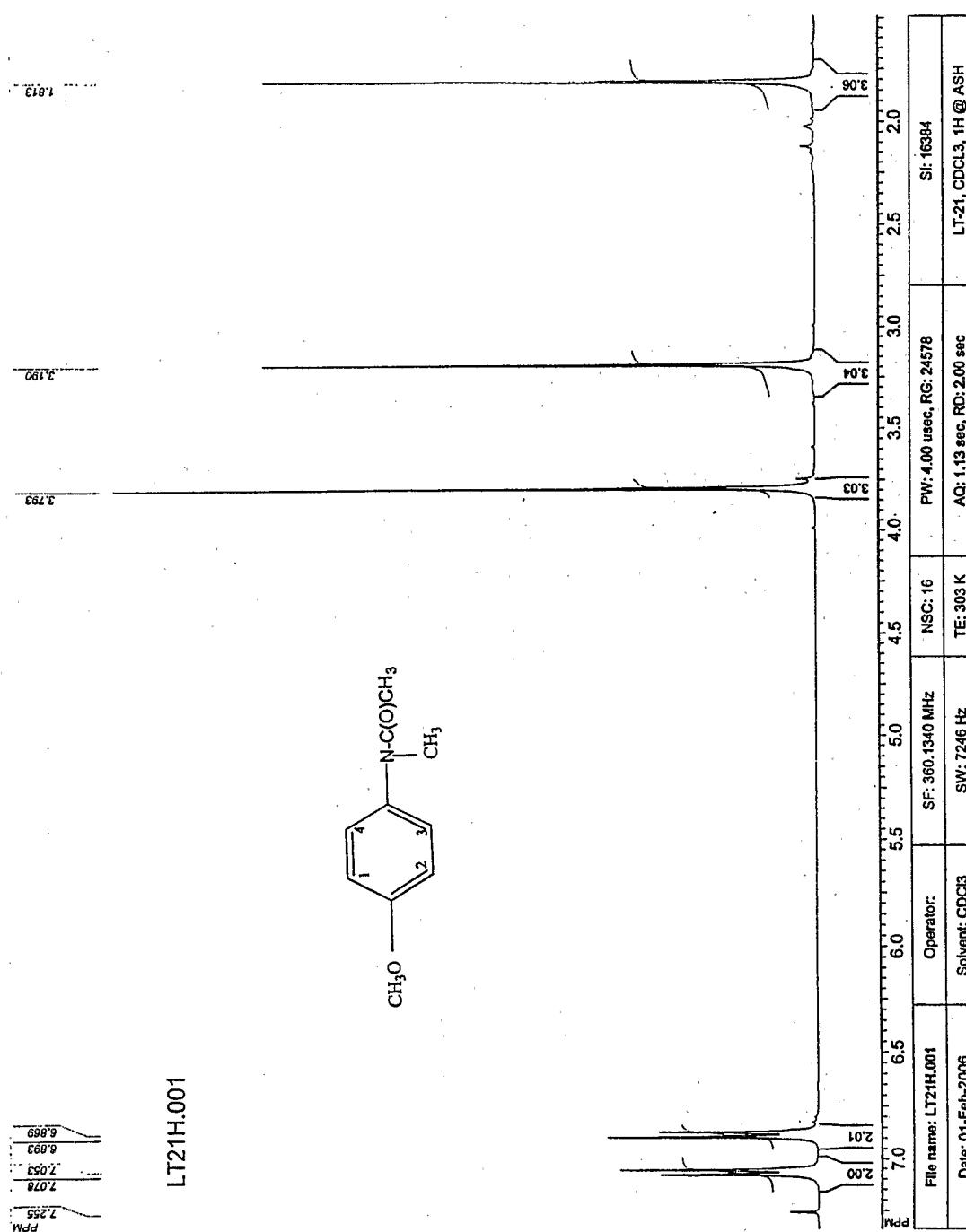
I

при R = - CH₃; R₁ = - H соответствует соединению (веществу) N-метил-пара-этоксианилину (N-монометил-пара-этоксианилин, N-метил-пара-фенетидин, N-метил-пара-аминофенетол);
 при R = R₁ = - CH₃ соответствует соединению (веществу) N,N-диметил-пара-этоксианилину (N,N-диметил-пара-фенетидин, N,N-диметил-пара-аминофенетол);

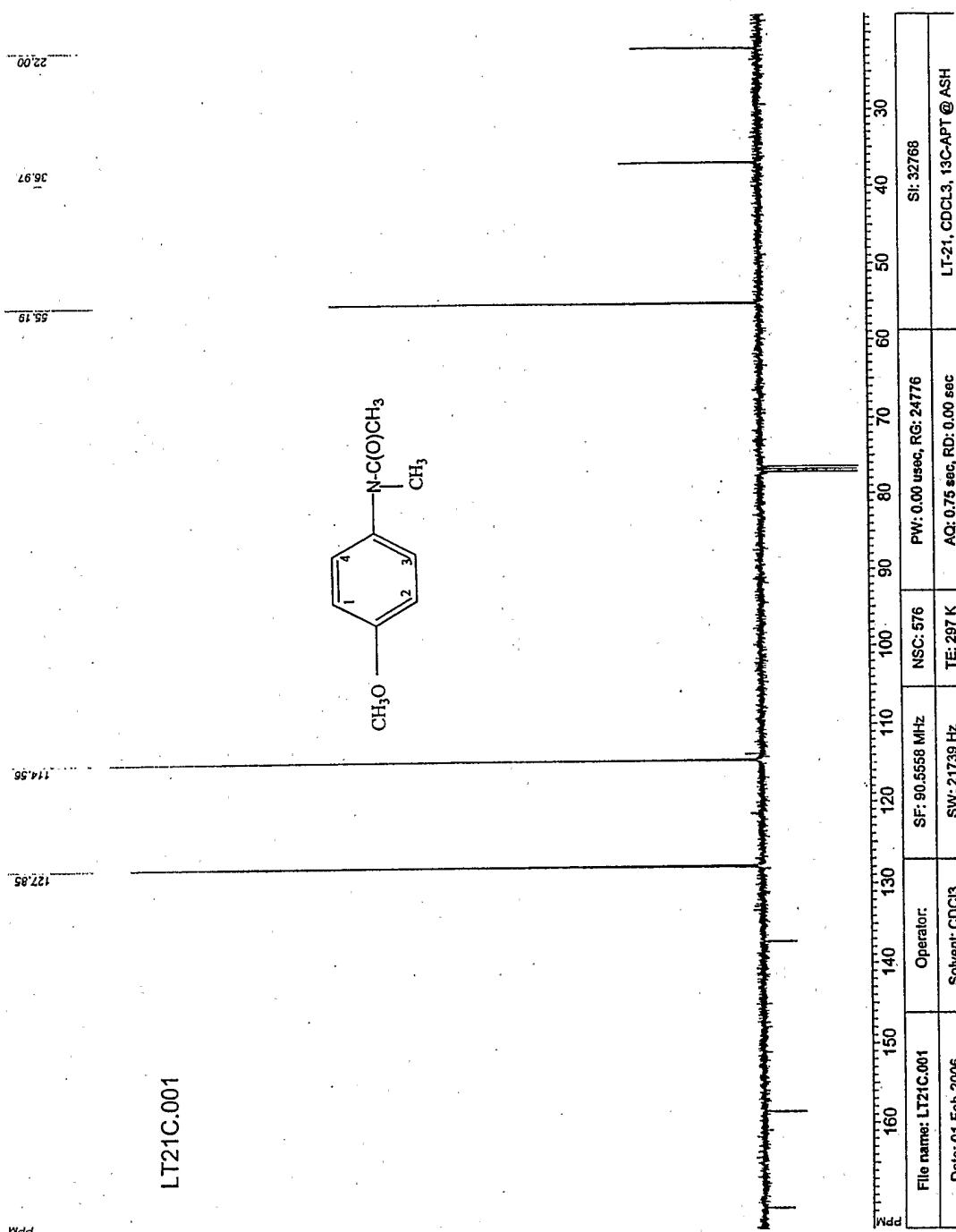
15 при R = - CH₃; R₁ = - C = O соответствует соединению (веществу) N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилину (N-метилацетил-пара-фенетидин, N-метил-N-ацетил-пара-фенетидин, N-метил-N-ацетил-пара-аминофенетол).

2. Паро-этоксианилин (пара-фенетидин, паро-аминофенетол) и/или N-ацетил-пара-этоксианилин (N-ацетил-пара-фенетидина, фенацетин), и/или N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин (N-метилацетил-пара-фенетидин), и/или N-метил-пара-этоксианилин (N-метил-пара-фенетидин), и/или N,N-диметил-пара-этоксианилин (N,N-диметил-пара-фенетидин) в индивидуальном виде или их смеси как компоненты, присадки (добавки) или/и синергенты без или с оксигенатами эффективно повышающие стойкость углеводородных горючих (топлив) к детонации для создания на их основе высокооктановых топливных композиций (составов, рецептур).

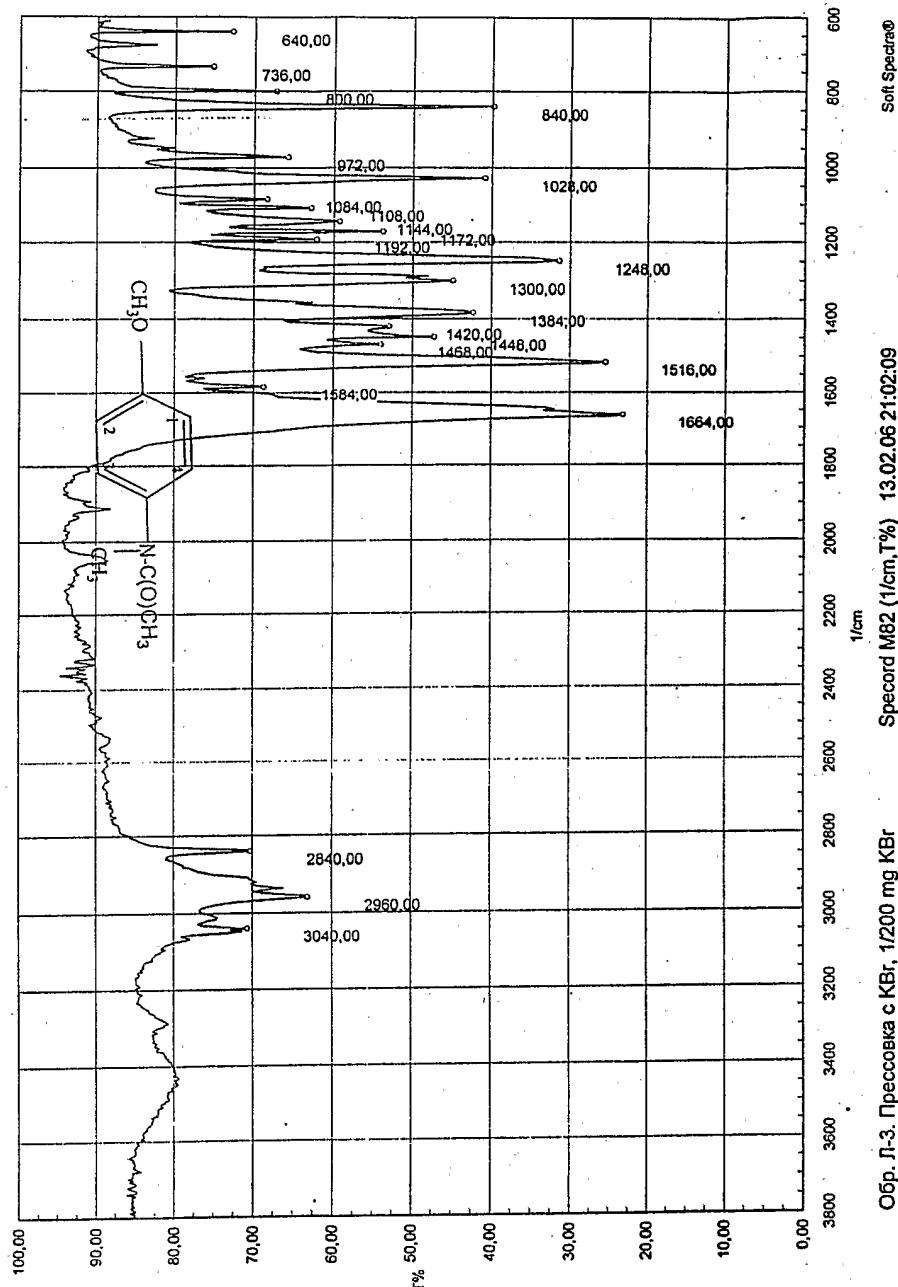
3. Высокооктановые топливные композиции (составы, рецептуры), отличающиеся тем, что в качестве компонентов, присадок (добавок), для повышения октанового числа углеводородных горючих (топлив) используются (применяются) пара-этоксианилин (пара-фенетидин, пара-аминофенетол) и/или N-ацетил-пара-этоксианилин (фенацетин), и/или N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин (N-метилацетил-пара-фенетидин), и/или N-метил-пара-этоксианилин (N-метил-пара-фенетидин), и/или N,N-диметил-пара-этоксианилин (N,N-диметил-пара-фенетидин) индивидуальные или их смеси взятые в массовых соотношениях 0-100% и 0,1-30% по отношению к углеводородным горючим (топливам).
4. Высокооктановые топливные композиции (составы, рецептуры) отличающиеся тем, что в качестве компонентов (добавок), для повышения октанового числа углеводородных горючих (топлив) используются пара-этоксианилин (пара-фенетидин, пара-аминофенетол) и/или N-ацетил-пара-этоксианилин (N-ацетил-пара-фенетидин, фенацетин), и/или N-метил-N-ацетил-пара-этоксианилин (N-метилацетил- пара-фенетидин), и/или N-метил-пара-этоксианилин (N-метил-пара-фенетидин), и/или N,N-диметил-пара-этоксианилин (N,N-диметил-пара-фенетидин) индивидуальные или их смеси взятые с оксигенатами в массовых соотношениях 0,1-95% и оксигенаты до 100% соответственно и 0,1-50% по отношению к углеводородным горючим (топливам).



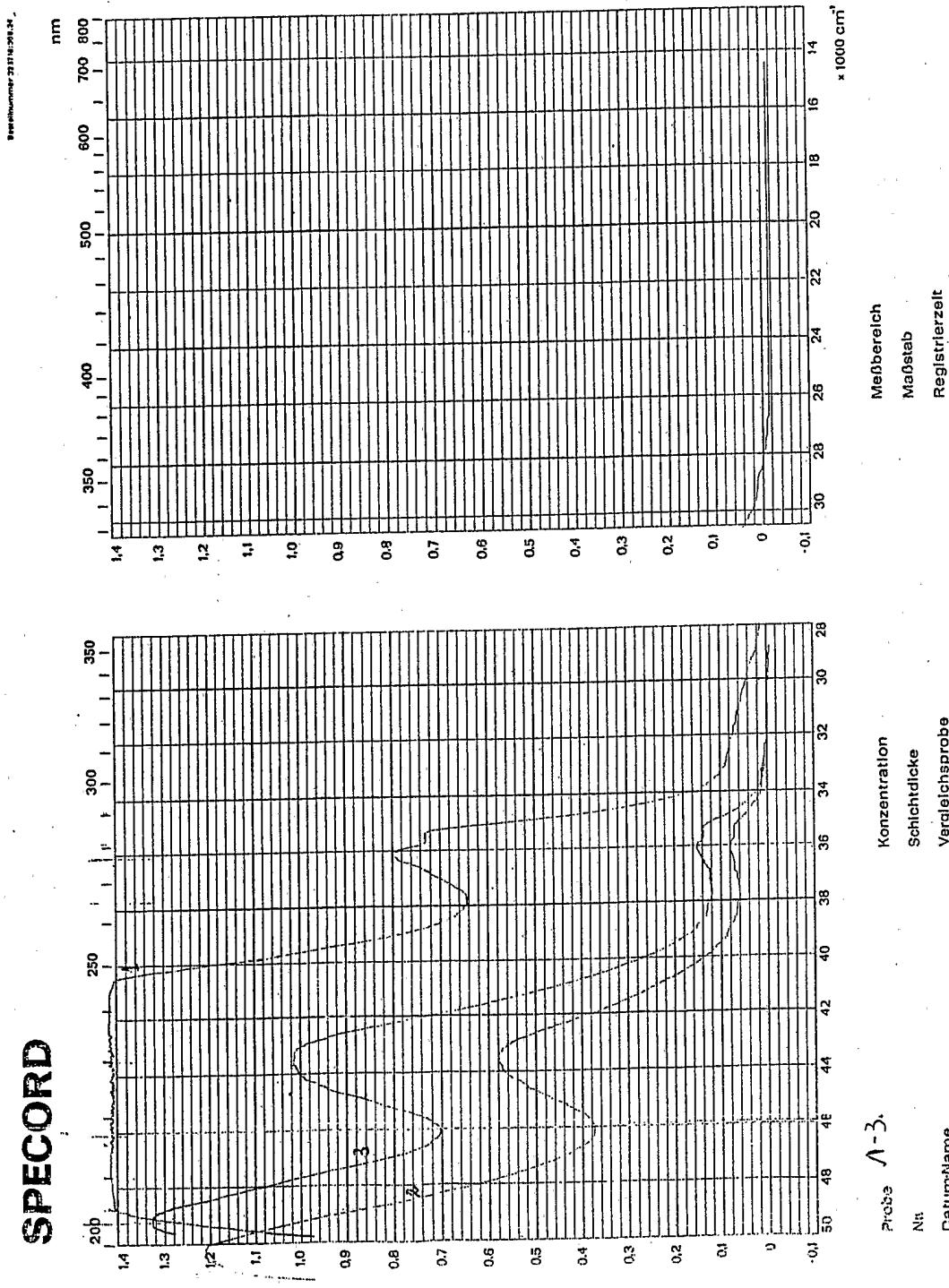
Фиг. 1

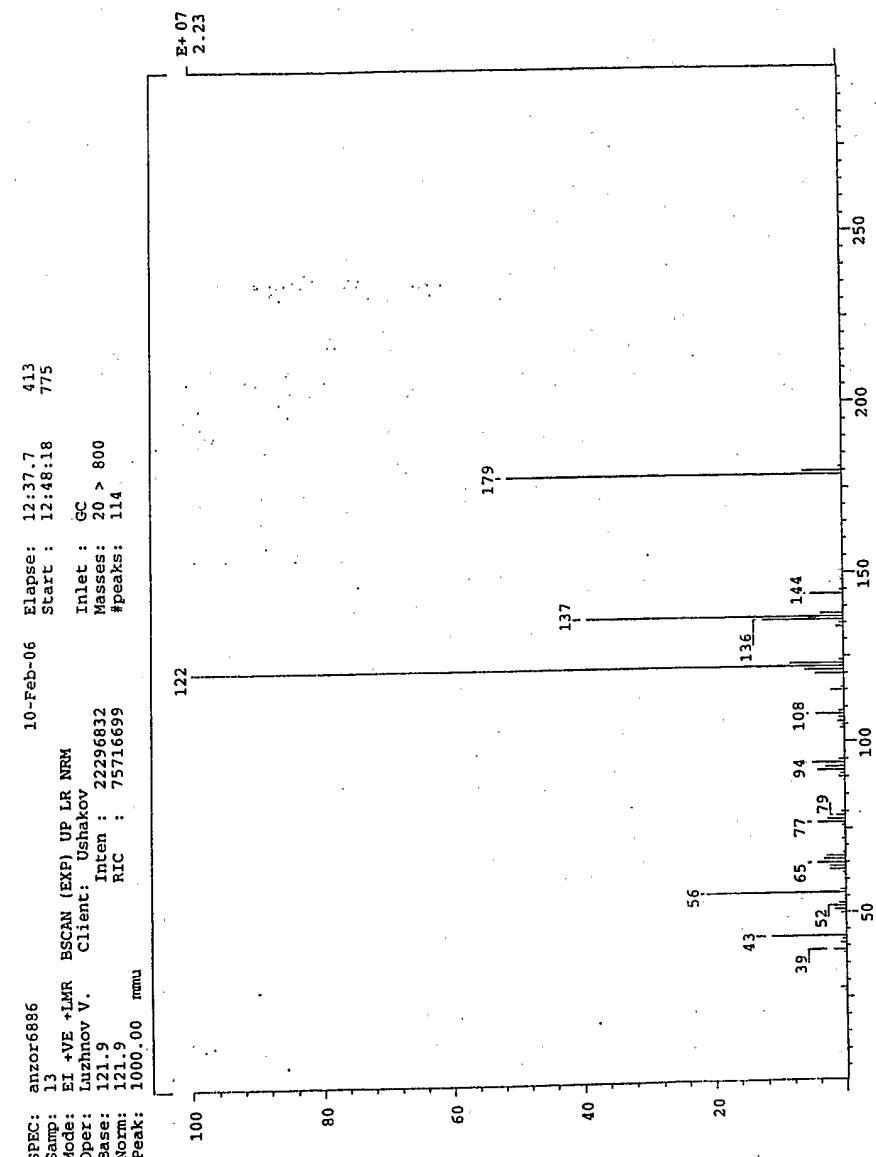


Фиг. 2

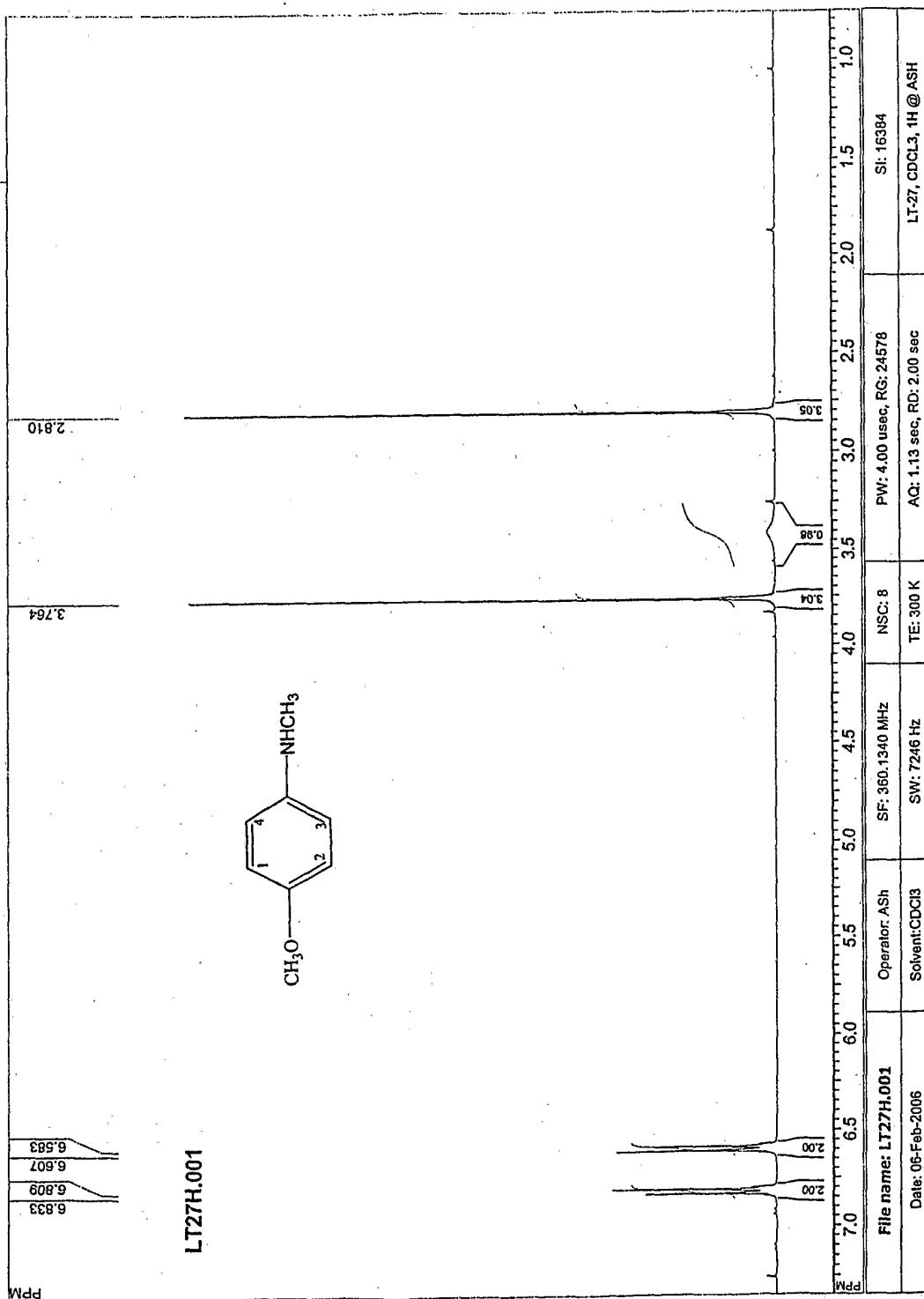


Фиг. 3

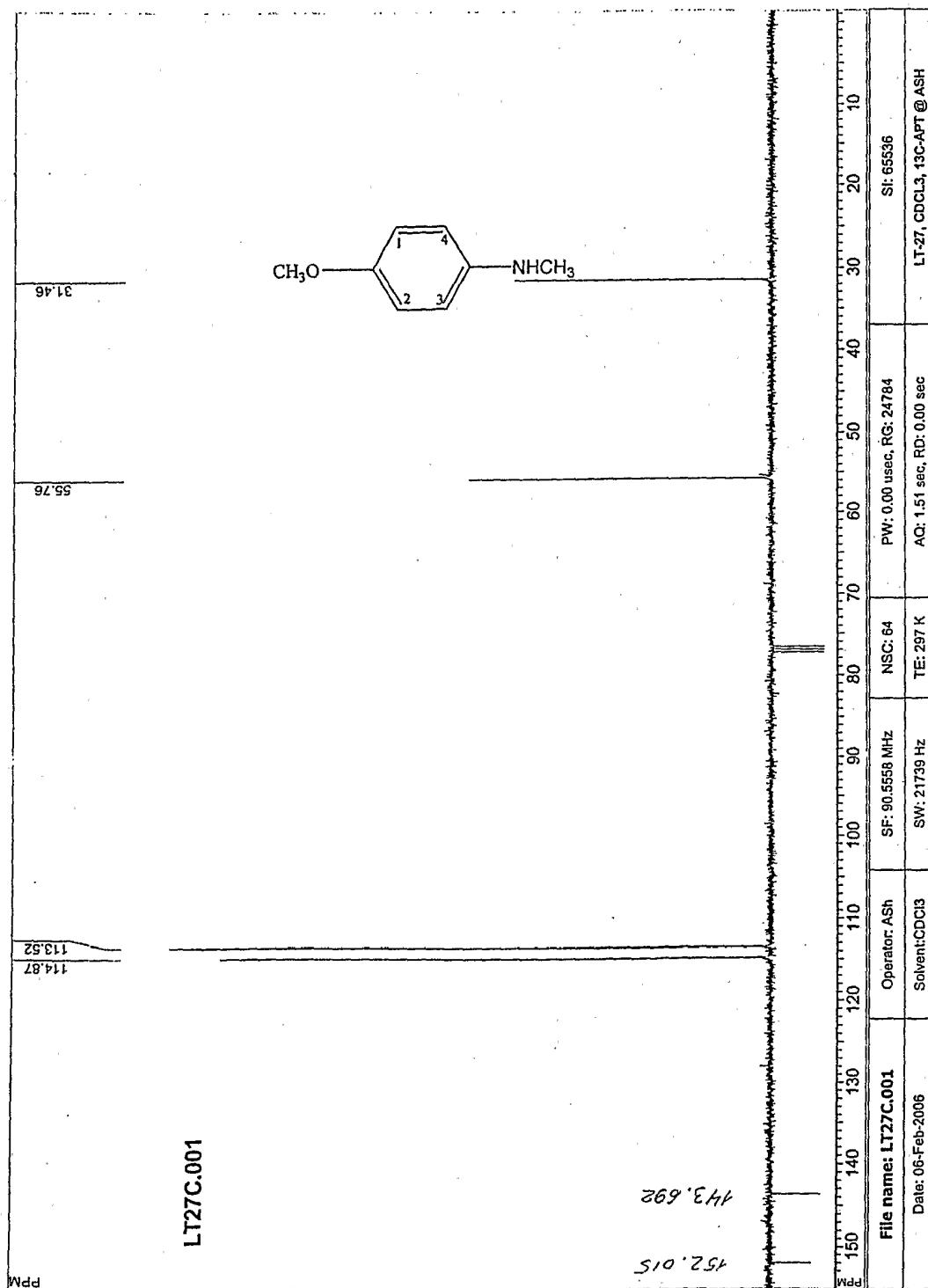
SPECORD**Фиг. 4**



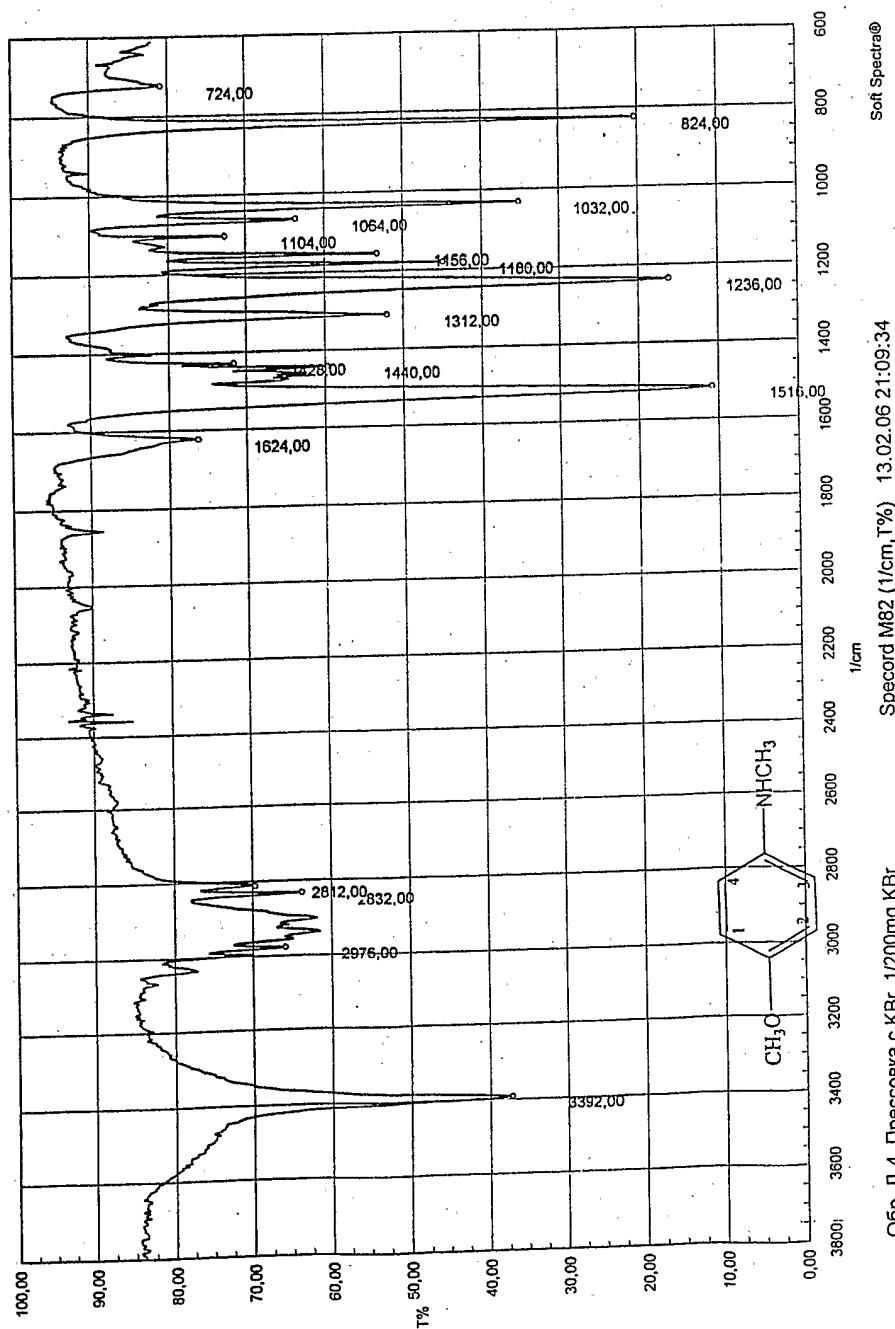
Фиг. 5



Фиг. 6

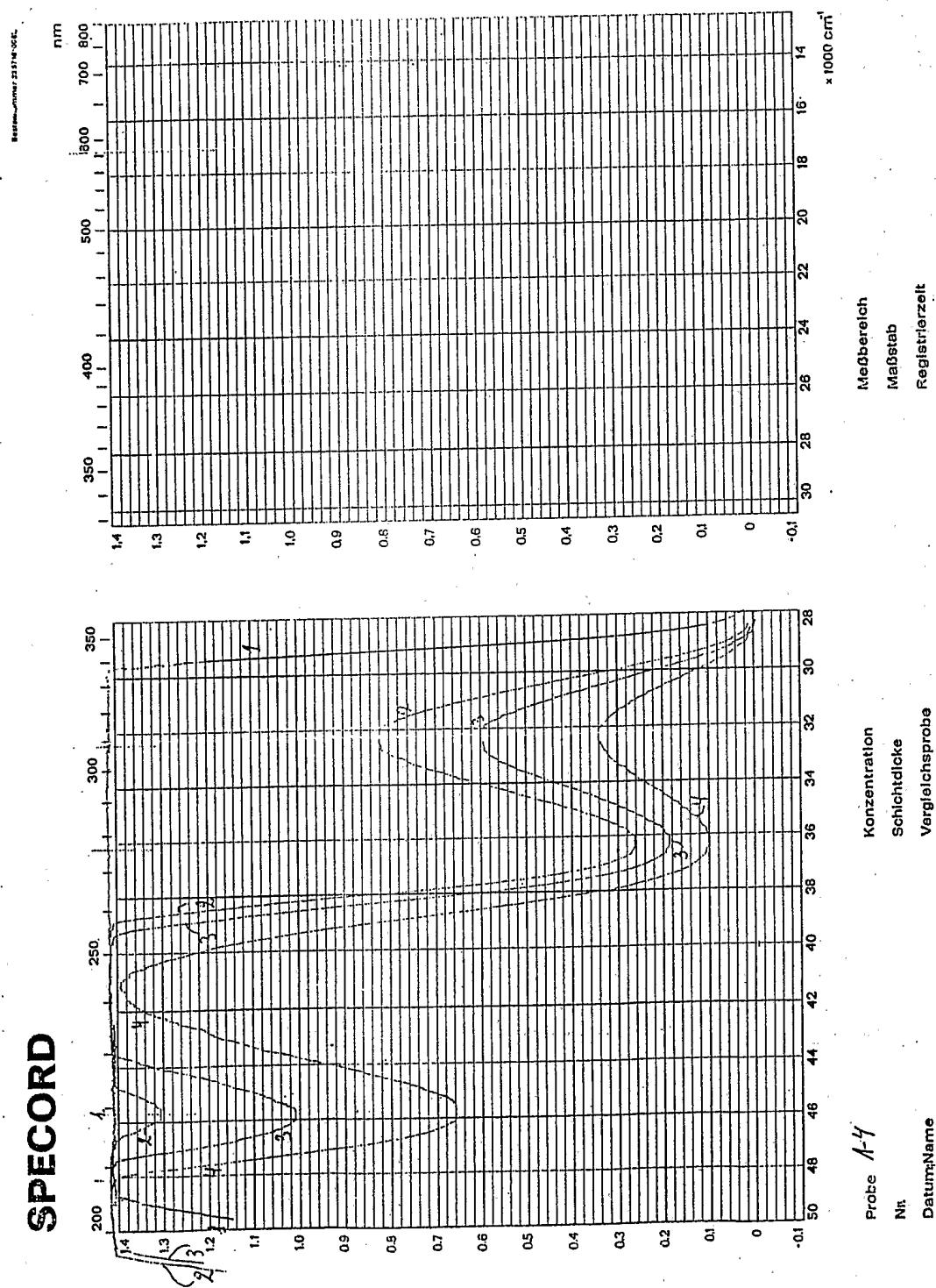


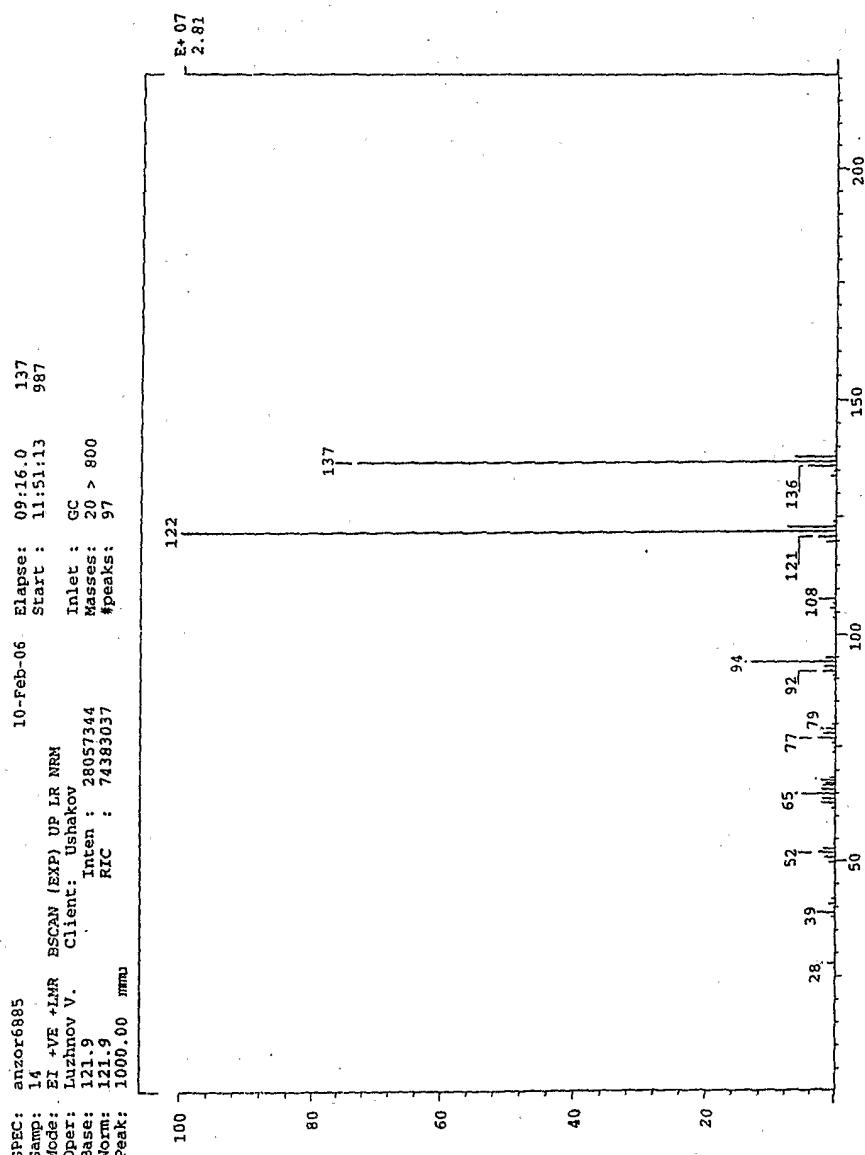
Фиг. 7



Фиг. 8

Обр. І-4. Пресовка с KBr, 1/200mg KBr

SPECORD**Фиг. 9**



Фиг. 10

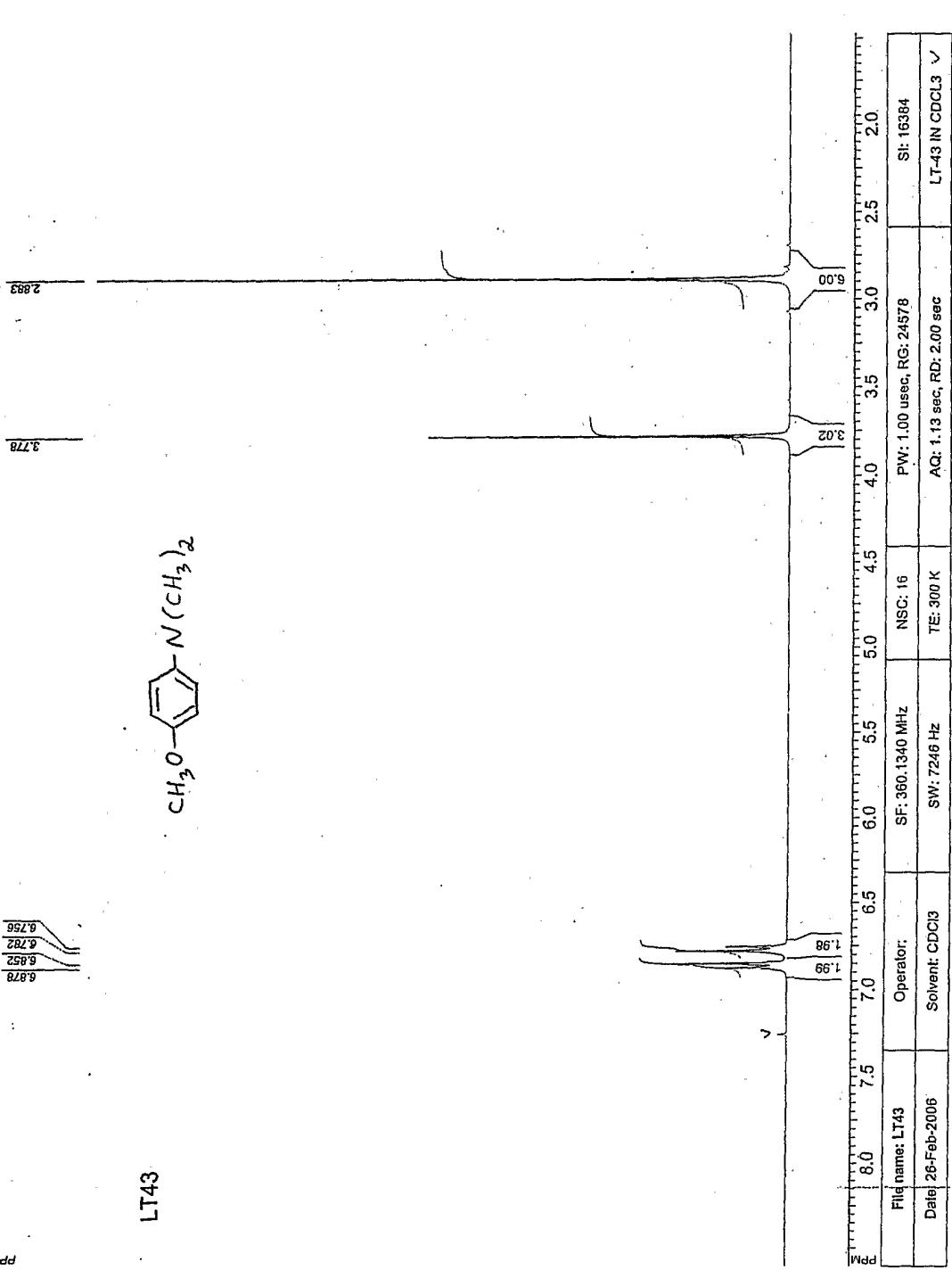
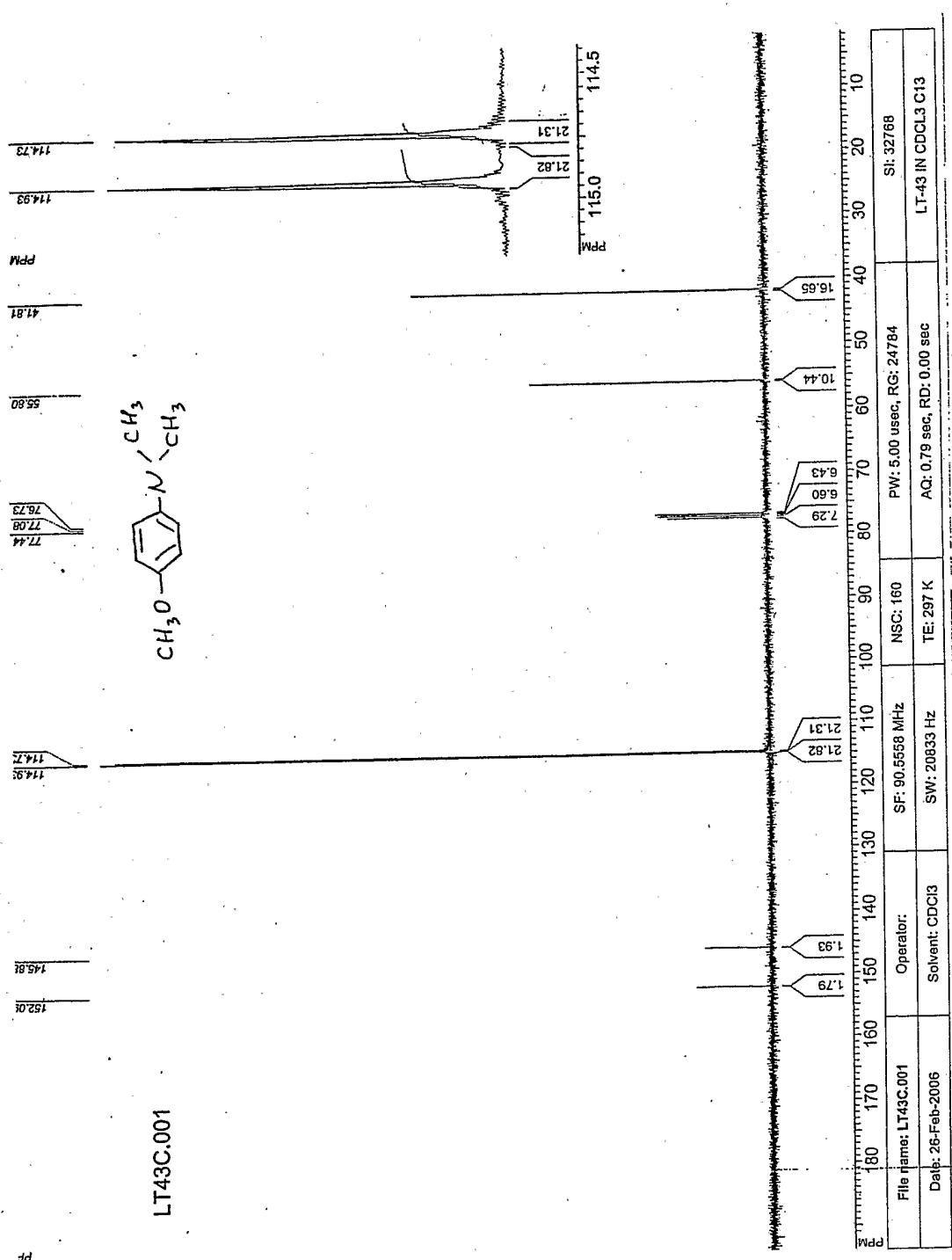
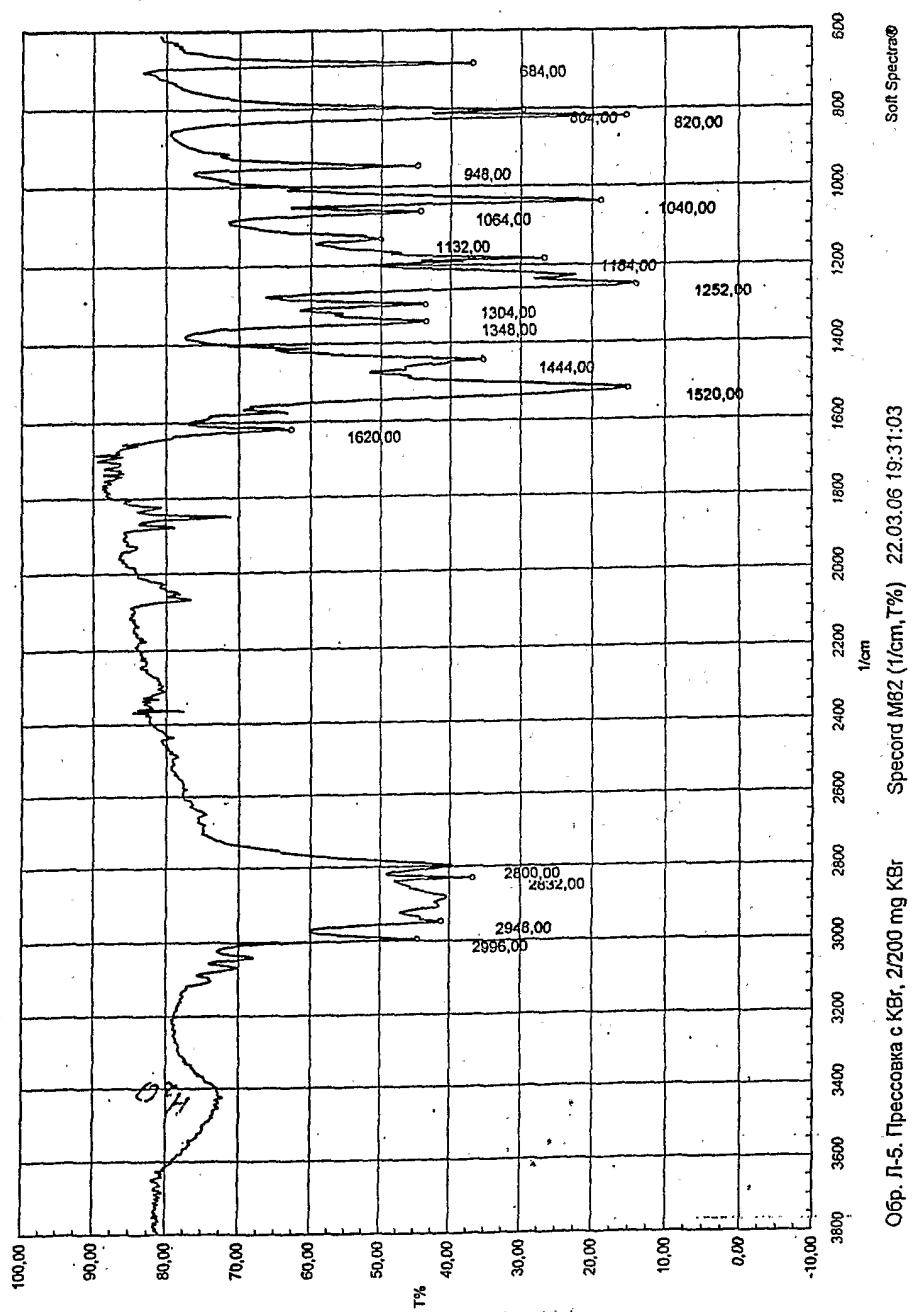


FIG. 11.



Фиг. 12



Фиг. 13

Обр. Н-5. Прессовка с KBr, 2/200 mg KBr Specord M62 (1/cm, T%) 22.03.06 19:31:03

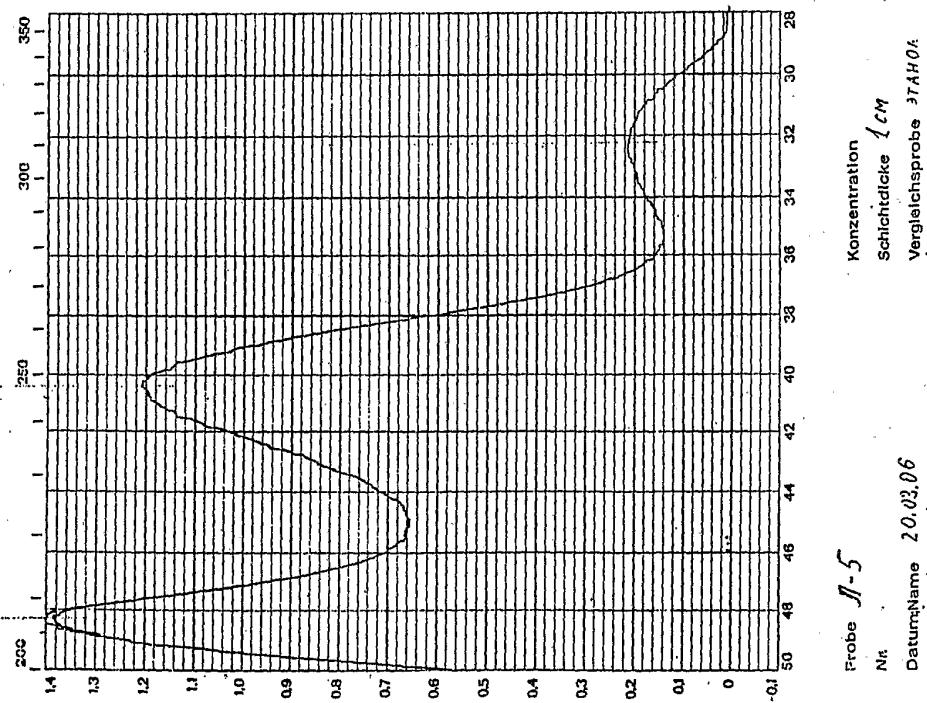
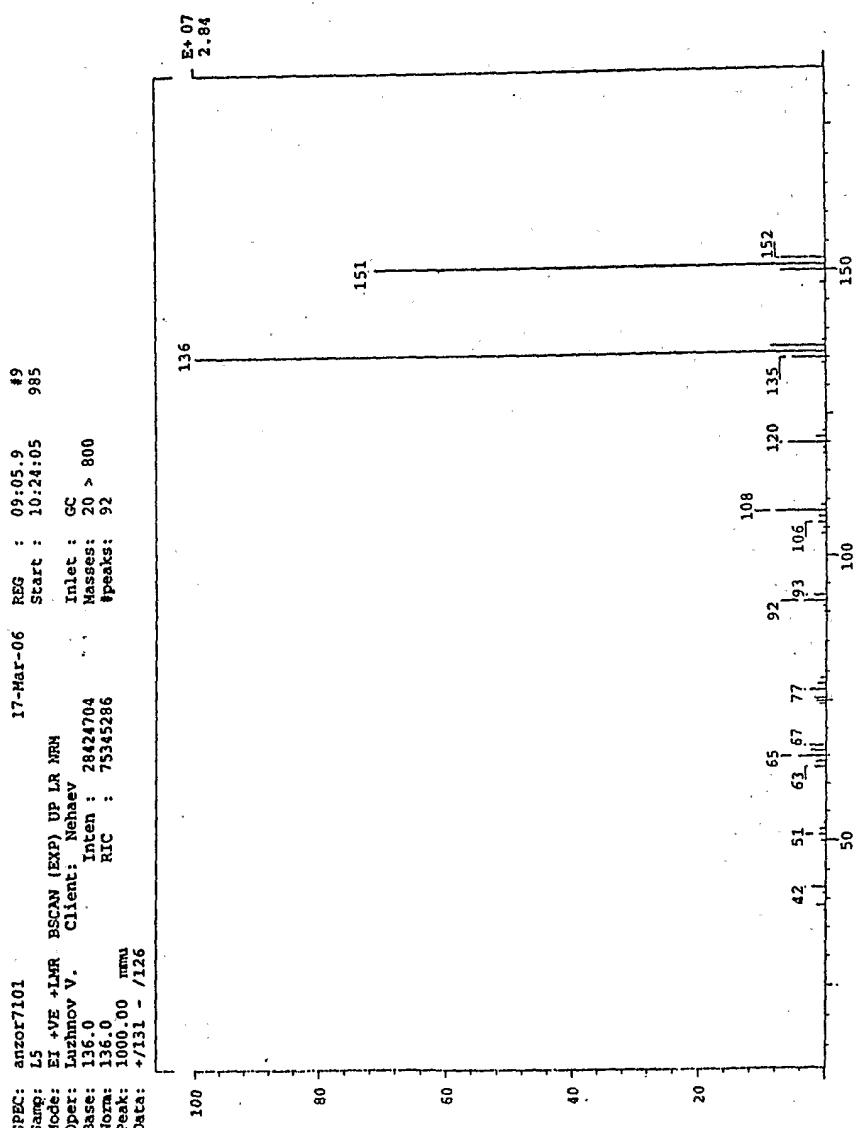
SPECORD

FIG. 14



Фиг. 15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/RU 2006/000428

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

see supplemental sheet

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C07C 217/82, 235/25, C10L 1/223, 1/224

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

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

Chem. Abstr., RUPAT, EARUPATIS, Esp@cenet, PAJ, USPTO, CIPO, DEPATIS, PCT Online

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 2120641 A (SUMITOMO CHEMICAL CO. LTD.) 11.11.1971, table, link 21	1-2
X	US 1497251 A (ROY F. STEWARD) 10.06.1924	1-2
X	Sitzungsberichte. Societe de Chimie de Geneve. Sitzung vom 29. Juni 1911. CHEMIKER-ZEITUNG, 1911, Nr. 94, S. 865 JEROME E. BROWN et al. Mechanism of aromatic amine antiknock action. Industrial & Engineering Chemistry. 1995, v. 47, No. 10, pp. 2141-2146, table 1, column 2, paragraph 2	1-2 2-3
Y		4
X		2-3
Y	BE 893220 A (DOMINICO MAROTTA et al.) 17.11.1982, claims 1-2	4
Y	RU 2184767 C1 (AVETISYAN VLADIMIR EVGENEVICH et al.) 10.07.2002	4

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

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

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

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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

17 January 2007 (17.01.2007)

Date of mailing of the international search report

25 January 2007 (25.01.2007)

Name and mailing address of the ISA/

RU

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/RU 2006/000428

CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C07C 217/82 (2006.01)

C07C 235/24 (2006.01)

C10L 1/223 (2006.01)

C10L 1/224 (2006.01)

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ

Международная заявка №
PCT/RU 2006/000428

A. КЛАССИФИКАЦИЯ ПРЕДМЕТА ИЗОБРЕТЕНИЯ:

см. дополнительный лист

Согласно Международной патентной классификации (МПК) или национальной классификации и МПК

B. ОБЛАСТИ ПОИСКА:

Проверенный минимум документации (система классификации и индексы) МПК-8:
C07C 217/82, 235/25, C10L 1/223, 1/224

Другая проверенная документация в той мере, в какой она включена в поисковые подборки:

Электронная база данных, использовавшаяся при поиске (название базы и, если, возможно, поисковые термины):
Chem. Abstr., RUPAT, EARUPATIS, Esp@cenet, PAJ, USPTO, CIPO, DEPATIS, PCT Online

C. ДОКУМЕНТЫ, СЧИТАЮЩИЕСЯ РЕЛЕВАНТНЫМИ:

Категория*	Ссылки на документы с указанием, где это возможно, релевантных частей	Относится к пункту №
X	DE 2120641 A (SUMITOMO CHEMICAL CO. LTD.) 11.11.1971, табл., соед. 21	1-2
X	US 1497251 A (ROY F. STEWARD) 10.06.1924	1-2
X	Sitzungsberichte. Societe de Chimie de Geneve. Sitzung vom 29. Juni 1911. CHEMIKER-ZEITUNG, 1911, Nr. 94, S. 865	1-2
X	JEROME E. BROWN et al. Mechanism of aromatic amine antiknock action. Industrial & Engineering Chemistry, 1995, v. 47, No. 10, pp. 2141-2146, табл. 1, кол. 2, абзац 2	2-3 4
X	BE 893220 A (DOMINICO MAROTTA et al.) 17.11.1982, п.п. 1-2 формулы	2-3
Y		4
X	RU 2184767 C1 (АВЕТИСЯН ВЛАДИМИР ЕВГЕНЬЕВИЧ и др.) 10.07.2002	4
Y		

последующие документы указаны в продолжении графы С.

данные о патентах-аналогах указаны в приложении

* Особые категории ссылочных документов:

- A документ, определяющий общий уровень техники и не считающийся особо релевантным
- B более ранняя заявка или патент, но опубликованная на дату международной подачи или после нее
- L документ, подвергающий сомнению притязание (я) на приоритет, или который приводится с целью установления даты публикации другого ссылочного документа, а также в других целях (как указано)
- O документ, относящийся к устному раскрытию, использованию, экспонированию и т.д.
- P документ, опубликованный до даты международной подачи, но после даты испрашиваемого приоритета

- T более поздний документ, опубликованный после даты международной подачи или приоритета, но приведенный для понимания принципа или теории, на которых основывается изобретение
- X документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; заявленное изобретение не обладает новизной или изобретательским уровнем, в сравнении с документом, взятым в отдельности
- Y документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; заявленное изобретение не обладает изобретательским уровнем, когда документ взят в сочетании с одним или несколькими документами той же категории, такая комбинация документов очевидна для специалиста
- & документ, являющийся патентом-аналогом

Дата действительного завершения международного поиска: 17 января 2007 (17.01.2007)

Дата отправки настоящего отчета о международном поиске:
25 января 2007 (25. 01.2007)

Наименование и адрес Международного поискового органа
Федеральный институт промышленной
собственности
РФ, 123995, Москва, Г-59, ГСП-5, Бережковская наб.,
30,1 Факс: 243-3337, телетайп: 114818 ПОДАЧА

Уполномоченное лицо:
С. Крылова
С. Полякова

Телефон № 240-25-91

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ

Международная заявка №
PCT/RU 2006/000428

КЛАССИФИКАЦИЯ ПРЕДМЕТА ИЗОБРЕТЕНИЯ

C07C 217/82 (2006.01)

C07C 235/24 (2006.01)

C10L 1/223 (2006.01)

C10L 1/224 (2006.01)