

ОТЗЫВ

на автореферат диссертации Шуткиной Ольги Викторовны «Гидроалкилирование бензола ацетоном на бифункциональных катализаторах», представленной на соискание ученой степени кандидата химических наук по специальностям 02.00.15 – кинетика и катализ и 02.00.13 – нефтехимия

Диссертационная работа Шуткиной О.В. посвящена системному изучению реакции гидроалкилирования бензола ацетоном в присутствии бифункциональных катализаторов, содержащих металлический и кислотный компоненты.

Целью исследования было создание нового эффективного катализатора одностадийного процесса, обеспечивающего высокие выход и селективность по кумолу при высокой конверсии ацетона. Актуальность поставленной цели обусловлена необходимостью утилизации ацетона. Научная новизна не вызывает сомнений, т.к. разработанная и предложенная автором новая каталитическая система представляет собой высокоэффективный катализатор для одностадийного получения кумола и диизопропилбензолов из бензола и ацетона.

Для осуществления поставленной цели автором были решены следующие задачи:

1. Разработан катализатор селективного гидрирования ацетона в присутствии бензола. Из 4-х гидрирующих металлов, нанесенных на силикагель (Ru, Pt, Ni и Cu) и хромита меди $\text{CuCr}_2\text{O}_4\cdot\text{CuO}$ как наиболее активный и селективный был выбран Cu/SiO_2 с содержанием металла 5,5 мас.%. В реакции гидрирования смеси ацетон-бензол на 6Cu/SiO_2 (5,5 мас.%) конверсия ацетона была 47,4%, бензола - 0%, селективность по изопропанолу – 97,1 мас.%, по пропилену – 0 и др.побочным продуктам – 0,8-2 мас.%.

2. Разработан катализатор селективного алкилирования бензола изопропанолом в присутствии ацетона. Исследованы 4 типа цеолитов в декационированной форме – MFI, MOR, BEA и FAU(Y), обеспечивающие кислотный компонент. Максимальная селективность по сумме продуктов алкилирования (97%) наблюдалась на каталитических системах Cu/SiO_2 –BEA и Cu/SiO_2 –MOR. Конверсия ацетона была несколько выше на Cu/SiO_2 –BEA.

3. Предложена наиболее эффективная каталитическая система, представляющая собой послойное расположение катализатора с гидрирующим компонентом в верхней зоне реактора, и слоем H-формы цеолита в нижней зоне (Cu/SiO_2 :BEA в массовом соотношении 30:70, между ними - разделяющий слой кварца).

4. Предложены оптимальные условия проведения процесса на основании изучения его в широком интервале температур от 100 до 230 °С, давлений от 0,1 до 3.0 МПа, мольного состава реакционной смеси $\text{C}_6\text{H}_6/\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$ от 1 до 9 и массовой скорости подачи сырья от 0,5 до 15,0 ч⁻¹. Проведение реакции гидроалкилирования бензола ацетоном при температуре 170 °С, давлении 1 МПа, мольном соотношении бензола к ацетону 9:1 и массовой скорости подачи сырья 2,8 ч⁻¹ на каталитической системе 11Cu/SiO_2 -BEA (10,6 мас.% меди) позволило достичь селективности по продуктам гидроалкилирования 97 мас.% при конверсии ацетона 98%.

Диссертантом выполнен большой объем работы. Катализаторы, синтезированные автором, были исследованы комплексом современных физико-химических методов: ААС, РФА, ПЭМ, ТПД-NH₃, ТПВ-N₂, низкотемпературной адсорбции N₂.

Для исследования каталитического процесса, который сопровождается большим числом параллельно-последовательных реакций и осложняется образованием продуктов уплотнения, применен кинетический метод. Анализ полученных кривых зависимостей выхода продукта реакции от конверсии ацетона позволил составить последовательность их образования. Образование целевого продукта - кумола, который является вторичным, происходит путем гидрирования ацетона и алкилирования бензола образовавшимся изопропиловым спиртом. Отсюда ясно, что осуществление процесса возможно лишь на бифункциональном катализаторе с гидрирующей и кислотной функциями. Поскольку побочные реакции протекают также на кислотных центрах, необходим тщательный подбор кислотного компонента. Следуя этой логике, автору диссертации удалось минимизировать побочные реакции и достичь цели путем подбора цеолитного компонента и оптимизации взаимного расположения компонентов катализатора в реакторе.

Таким образом, Шуткиной О.В. в диссертации решена задача по разработке способа получения кумола из бензола и ацетона и предложен эффективный гетерогенный катализатор для этого процесса.

По автореферату следует сделать некоторые замечания.

1. Насколько корректно использование термина «бифункциональный катализатор» по отношению к описанной каталитической системе, содержащей послойно расположенные 11Cu/SiO₂ (гидрирование) ВЕА (алкилирование)? Может точнее было бы «каталитическая композиция».

2. Для цеолитного катализатора не представлено обоснование количества и типа связующего. Как правило, цеолиты практически не формуются.

Сделанные замечания ничуть не умаляют высокую оценку работы, которая является цельным исследованием, выполненным на высоком современном научно-экспериментальном уровне, а полученные в работе О.В. Шуткиной результаты несомненно являются ценным вкладом как в научном, так и в практическом отношении.

Диссертационная работа отвечает требованиям ВАК, предъявляемым к кандидатским диссертациям, а ее автор О.В. Шуткина заслуживает присуждения степени кандидата химических наук по специальностям 02.00.15 – кинетика и катализ и 02.00.13 -нефтехимия.

Зам.директора по связям с промышленностью и коммерциализации Химического института им.А.М. Бутлерова
Казанского (Приволжского) федерального университета,
доктор технических наук, профессор.
420008, г. Казань, ул. Кремлевская, 18.
тел: (843)233-73-46, E-mail: Alexander.Lamberov@ksu.ru



А.А. Ламберов