

ОТЗЫВ

на автореферат диссертации Джалиловой Софии Насибуллаевны
«Кислотные и каталитические свойства модифицированных цеолитных катализаторов в конверсии попутных нефтяных газов C₃ - C₄ в арены»,
представленной на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.6.12 – Химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ

Диссертационная работа посвящена актуальной как в практическом, так и в теоретическом плане теме – созданию новых высокоэффективных микропористых цеолитных катализаторов с использованием модифицирующих добавок и физико-химических методов активации катализаторов для процессов переработки легкого углеводородного сырья в низшие олефины, арены и другие ценные продукты. Основным вопросом, поставленным на рассмотрение в работе, является оценка влияния модифицирующих добавок и предварительной активации низкотемпературной плазмой цеолитных катализаторов на физико-химические и каталитические свойства синтезированных катализаторов в процессе превращения низших алканов в жидкие углеводороды. Рассмотренная тематика представляет интерес для специалистов в области катализа и каталитических систем на основе микропористых цеолитов типа MFI, для специалистов, занимающихся переработкой легкого углеводородного сырья в низшие олефины и ароматические углеводороды, актуальна для теоретического прогнозирования каталитических свойств цеолитного катализатора.

Объект, предмет, цель и задачи исследований сформулированы в автореферате диссертации достаточно четко.

Исследования были проведены по следующим направлениям: 1) осуществлен синтез микропористого цеолита H-ЦКЕ-ХМ с силикатным модулем 45 с использованием новой органической структурообразующей добавки «Х-масла» и изучены его физико-химические, кислотные и каталитические свойства в процессе превращения пропан-бутановой фракции в арены. Установлено, что синтезированный цеолит относится к микропористому высококремнеземному цеолиту типа MFI. Показано, что с повышением температуры с 525 до 600 °С выход жидких продуктов реакции превращения ПБФ на этом цеолите увеличивается с 50,8 до 56,0% за счет повышения степени превращения ПБФ с 74,6 до 81,6%; 2) изучено влияние модифицирующих добавок ZnO, Fe₂O₃, гетерополисоединения Mo (молибдовисмутата никеля), нанопорошка железа на кислотные и каталитические свойства высококремнеземного цеолита H-ЦКЕ-ХМ в процессе ароматизации пропан-бутановой фракции. Выявлено, что введение этих добавок в цеолит H-ЦКЕ-ХМ приводит к изменению кислотных свойств цеолита с повышением выхода аренов из ПБФ на 3-9%. Синтезирован железоалюмосиликатный катализатор и изучены его характеристики. Отмечено, что кислотные характеристики полученных катализаторов хорошо коррелируют с их каталитической активностью; 3) проведена предварительная активация низкотемпературной плазмой цеолитных катализаторов с последующим исследованием кислотных и каталитических свойств модифицированных цеолитных катализаторов в процессе конверсии пропан-бутановой фракции ПНГ в арены. Зафиксировано, что в результате предварительной активации образуются дополнительные слабокислотные и сильнокислотные центры на поверхности цеолитных катализаторов и

происходит значительное повышение активности катализаторов и увеличение выхода жидких углеводородов в процессе конверсии пропан-бутановой фракции; 4) разработаны технологическая схема и материальный баланс процесса конверсии пропан-бутановой фракции в ароматические углеводороды на модифицированных микропористых цеолитных катализаторах. Технологическую схему производства ароматических углеводородов из пропан-бутановой фракции производительностью 5 тыс. т/год по сырью предполагается использовать в практической деятельности ООО «Газпромнефть-Восток».

К числу наиболее важных и значимых результатов, которые определяют научную новизну диссертационной работы, следует отнести следующие. Изучены физико-химические, кислотные и каталитические свойства микропористого цеолита H-ЦКЕ-ХМ, синтезированного с использованием новой органической структурообразующей добавки «Х-масла», с силикатным модулем 45 в процессе превращения пропан-бутановой фракции в арены и модифицированных H-ЦКЕ-ХМ катализаторов. Впервые показано, что предварительная активация низкотемпературной плазмой цеолитных катализаторов, модифицированных оксидом цинка и ГПС молибдовисмутатом никеля, значительно меняет их кислотные свойства и активность катализаторов в процессе ароматизации ПБФ.

В разделе «Теоретическая и практическая значимость работы» отмечено, что модификация добавками 0,5–2,0% нанопорошка Fe, 0,5–2,0% гетерополисоединений Mo (молибдовисмутата никеля) и предварительная активация катализаторов низкотемпературной плазмой позволяют значительно повысить их активность и селективность в образовании ароматических углеводородов и представляют практический интерес. Можно согласиться с автором диссертационной работы, что найденная зависимость между кислотными и каталитическими свойствами модифицированных цеолитных катализаторов способствует более целенаправленному поиску новых цеолитов, способов их модификации и активации для разработки эффективных катализаторов.

В автореферате представлен список публикаций автора по теме диссертации, состоящий из 18 научных работ, в том числе 4 статей в изданиях, входящих в перечень ВАК Министерства науки и высшего образования Российской Федерации. Результаты исследования неоднократно представлялись на российских международных конференциях.

Замечания и пожелания к автореферату диссертации:

1) из содержания автореферата не понятно, чем был обусловлен выбор в качестве объектов исследования цеолитов с такими добавками как оксид железа, ГПС Mo, нанопорошок железа и железосиликатного катализатора;

2) в тексте автореферата отмечено, что были проведены испытания цеолитсодержащего катализатора в конверсии пропан-бутановой фракции в арены и межрегенерационный пробег катализатора составил 240 часов, а количество циклов регенерации цеолитсодержащего катализатора не менее 6 циклов. Непонятно какой из полученных катализаторов был испытан, проводились ли подобные испытания для остальных катализаторов и какой из синтезированных катализаторов показал наилучшие результаты в процессе превращения низших алканов в жидкие углеводороды;

3) В «Заключении» при описании исследования влияния способов модифицирования цеолита H-ЦКЕ-ХМ добавками железа логично было бы начать с более

общего пункта, который идет в «Заключении» автореферата под пунктом 2 и в конце его добавить предложение из пункта 1;

4) есть недочеты в оформлении автореферата: обнаружены опечатки в слове «зависимость» (стр.5, 11 строка сверху), в слове «Закономерности» (стр.5, 12 строка снизу), в слове «микропористых» (стр.5, 8 строка снизу), в слове «выхода» (стр.10, 3 строка снизу и стр.14, 2 строка сверху), вместо «600 мкмоль/г» на стр.14, 11 строка сверху написано «675 мкмоль/г», на стр. 18 дважды повторяется одно и то же предложение (4 строка сверху и 24 строка снизу). Ссылка на рис.4 и его обсуждение идут после ссылок на рис.5-7.


Указанные замечания не затрагивают основных выводов работы и положений, выносимых на защиту, не снижают общей положительной оценки автореферата диссертации. Считаю, что диссертационная работа полностью соответствует требованиям, установленным п.9 «Положения о порядке присуждения ученых степеней», утвержденного постановлением Правительства РФ №842 от 24 сентября 2013 г., а её автор, Джалилова София Насибуллаевна, заслуживает присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.6.12 – Химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ.

Старший научный сотрудник отдела новых материалов для электротехнической и химической промышленности Федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский Томский государственный университет»

Мещеряков Евгений Павлович

кандидат химических наук (02.00.04 – Физическая химия),

Мещеряков Евгений Павлович



«28» октября 2021 г.

(подпись)

Согласен на включение своих персональных данных в документы, связанные с работой диссертационного совета, и их дальнейшую обработку.

Почтовый адрес: 644050, г. Томск, пр. Ленина, 36

Контактные телефоны: 8-906-954-12-37

e-mail: meevgeni@mail.ru

Подпись Мещерякова Е.П. заверяю:

Ученый секретарь Ученого совета ТГУ



Н. А. Сазонтова