

ЗАКЛЮЧЕНИЕ ДИССЕРТАЦИОННОГО СОВЕТА 24.2.428.02,
СОЗДАННОГО НА БАЗЕ ФЕДЕРАЛЬНОГО ГОСУДАРСТВЕННОГО
БЮДЖЕТНОГО ОБРАЗОВАТЕЛЬНОГО УЧРЕЖДЕНИЯ ВЫСШЕГО
ОБРАЗОВАНИЯ «УФИМСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ НЕФТЯНОЙ
ТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ» МИНИСТЕРСТВА НАУКИ И
ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ РФ ПО ДИССЕРТАЦИИ НА СОИСКАНИЕ
УЧЕНОЙ СТЕПЕНИ КАНДИДАТА НАУК

аттестационное дело № _____

решение диссертационного совета от 15 декабря 2021 г. № 13

О присуждении Джалиловой Софии Насибуллаевны, гражданке РФ,
ученой степени кандидата технических наук.

Диссертация «Кислотные и катализитические свойства
модифицированных цеолитных катализаторов в конверсии попутных
нефтяных газов C₃-C₄ в арены» по специальности 2.6.12. – «Химическая
технология топлива и высокоэнергетических веществ» принята к защите
15 октября 2021 г., протокол № 10 диссертационным советом 24.2.428.02,
созданным на базе ФГБОУ ВО «Уфимский государственный нефтяной
технический университет» Министерства науки и высшего образования РФ
(450062, г. Уфа, ул. Космонавтов, д. 1, приказ № 105/нк от 11 апреля 2012 г.).

Соискатель Джалилова София Насибуллаевна 1990 года рождения.

В 2013 г. окончила Национальный исследовательский Томский
политехнический университет по специальности «Химическая технология и
биотехнология» с присуждением степени бакалавра.

В 2015 г. окончила с отличием Национальный исследовательский Томский
политехнический университет по специальности «Энерго- и
ресурсосберегающие процессы в химической технологии, нефтехимии и
биотехнологии» с присвоением квалификации магистра.

В 2020 г. окончила очную аспирантуру по направлению подготовки «Химическая технология» при ФГАОУ «Национальный исследовательский Томский политехнический университет».

Работает ассистентом в отделении нефтегазового дела инженерной школы природных ресурсов федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский Томский политехнический университет».

Диссертация выполнена в отделении нефтегазового дела инженерной школы природных ресурсов федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский Томский политехнический университет».

Научный руководитель – Ерофеев Владимир Иванович, доктор технических наук, профессор, профессор отделения нефтегазового дела инженерной школы природных ресурсов федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Национальный исследовательский Томский политехнический университет».

Официальные оппоненты:

Григорьева Нелля Геннадьевна – доктор химических наук, доцент, Институт нефтехимии и катализа – обособленное структурное подразделение Федерального государственного бюджетного научного учреждения Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук (ИНК РАН), ведущий научный сотрудник лаборатории приготовления катализаторов;

Величкина Людмила Михайловна – кандидат химических наук, доцент, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт химии нефти Сибирского отделения Российской академии наук (ИХН СО РАН), старший научный сотрудник лаборатории каталитической переработки легких углеводородов

дали положительные отзывы на диссертацию.

Ведущая организация – Федеральное государственное бюджетное

учреждение науки Ордена Трудового Красного Знамени Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева Российской академии наук (ИНХС РАН), г. Москва, в своем положительном заключении, подписанным Колесниченко Наталией Васильевной, д.х.н., профессором, главным научным сотрудником лаборатории химии нефти и нефтехимического синтеза, указала, что автор диссертационной работы Джалилова С.Н. заслуживает присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.6.12. – «Химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ».

Соискатель имеет 18 научных работ, все по теме диссертационной работы (общий объем 5,7 п.л., авторский вклад 2,8 п.л.), в том числе 4 статьи в рецензируемых научных изданиях, входящих в перечень ВАК Минобрнауки Российской Федерации (общий объем 4,3 п.л., авторский вклад 1,2 п.л.), (из них 3 статьи в рецензируемых научных журналах, входящих в базу данных Scopus и Web of Science, общим объемом 3,5 п.л., авторский вклад 0,87 п.л.), 14 работ опубликованы в материалах международных и российских конференций объемом 3,2 п.л. (авторский вклад 1,6 п.л.).

Наиболее значимые научные работы по теме диссертации:

1. Dzhalilova, S.N. Acidic and Catalytic Properties of Zeolite Modified by Zinc in the Conversion Process of Lower C₃–C₄ Alkanes / V.I. Erofeev, V.V. Khasanov, S.N. Dzhalilova, W.P. Reshetilowski, A.A. Syskina A.A., L.A. Bogdankova // Catalysts. - 2019. - Vol.9. – P. 421 – 431;
2. Dzhalilova, S.N. Conversion of the Propane-Butane Fraction into arenes on MFI Zeolites Modified by Zinc Oxide and Activated by Low-Temperature Plasm / V.I. Erofeev, S.N. Dzhalilova, M.V. Erofeev, V.S. Ripenko, W.P. Reshetilowski, // Molecules. - 2020. – Vol. 25. - №11. – P. 2704;
3. Erofeev, M. Conversion of the propane-butane fraction into arenes on MFI zeolites activated by diffuse discharge plasma / M. Erofeev, V. Ripenko, V. Erofeev, S. Dzhalilova, V. Tarasenko // XIV International Conference on Pulsed

Lasers and Laser Applications. - 2019. -Vol. 11322. - P. 113222W.
DOI.ORG/10.1117/12.2543650;

4. Джалилова, С.Н. Исследование и корректировка технологических режимов процессов подготовки нефтяного сырья / С.Н. Джалилова, Н.В. Ушева, В.И. Ерофеев // Успехи современного естествознания. – 2017. - № 4. - С. 19-23.

На диссертацию и автореферат поступили положительные отзывы из следующих организаций:

1) Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Национальный исследовательский Томский государственный университет», подписан старшим научным сотрудником отдела новых материалов для электротехнической и химической промышленности к.х.н. Мещеряковым Е.П. (1. Из содержания автореферата не понятно, чем был обусловлен выбор в качестве объектов исследования цеолитов с такими добавками, как оксид железа, ГПС Мо, нанопорошок железа и железоалюмосиликатного катализатора; 2. В тексте автореферата отмечено, что были проведены испытания цеолитсодержащего катализатора в конверсии пропан-бугановой 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 Н-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);

- 2) Федеральное государственное бюджетное научное учреждение Федеральный исследовательский центр «Красноярский научный центр Сибирского отделения Российской академии наук» Институт химии и химической технологии Сибирского отделения Российской академии наук (ИХХТ СО РАН) - обособленное подразделение ФИЦ КНЦ СО РАН подписан руководителем научного направления заслуженным деятелем науки РФ, д.х.н. Кузнецовым Б.Н. (1. Какие существуют технологии переработки попутных нефтяных газов. 2. Как влияет низкотемпературная плазма на степень конверсии пропан-бутановой фракции и выход аренов);
- 3) ООО «Томскнефтехим», подписан экспертом по качеству Служба главного технолога к.х.н. Рябовым Ю.В. (1. Как меняется состав аренов после модификации катализатора. 2. Какой катализатор Вы порекомендуете для внедрения);
- 4) Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники», подписан доцентом кафедры КУДР радиоконструкторского факультета к.х.н. Екимовой И.А. (1. С чем связано увеличение концентрации слабокислотных центров модифицированных цеолитных катализаторов в результате активации низкотемпературной плазмой. 2. Какие центры образуются в камере плазменной установки. 3. Следовало бы уделить внимание вопросу образования водорода в процессе конверсии);
- 5) ФГБОУ ВО «Кузбасский государственный технический университет имени Т.Ф. Горбачева», подписан профессором кафедры углехимии, пластических масс и инженерной защиты окружающей среды, Институт

химических и нефтегазовых технологий д.х.н. Трясуновым Б.Г. (1. Работа имеет ярко выраженный прикладной характер, и ее результаты (синтез новых цеолитных материалов, разработка технологической схемы процесса конверсии ПФБ) нацелены, в первую очередь, на решение практических задач, связанных с промышленной переработкой побочных продуктов добычи нефти и газа. Однако выбранный автором метод синтеза и модификации цеолитных катализаторов (см. с. 7-9), включающий длительную (в течение 6 суток!) гидротермальную обработку в автоклаве, использование в качестве модифицирующих добавок сравнительно дорогостоящих нанопорошков железа и ГПС молибдовисмутата никеля, а также активацию готового катализатора (перед его применением) низкотемпературной плазмой в специальном аппарате достаточно сложной конструкции, вряд ли можно назвать экономически обоснованным и легко технически реализуемым решением рассматриваемой проблемы. Хотелось бы видеть здесь данные технико-экономических расчетов к решению этой задачи, которые в автореферате отсутствуют. 2. Автор диссертации на с. 8 автореферата относит полученный образец цеолита в декатионированной форме (Н-ЦКЕ-ХМ) к микропористым высококремнеземным цеолитам типа MFI «по данным ИК-спектроскопии». По каким характеристическим полосам ИК-поглощения сделан такой вывод).

Выбор официальных оппонентов обосновывается тем, что они являются компетентными в данной отрасли науки (химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ), что подтверждается имеющимися у них публикациями в сфере исследований соискателя, ведущая организация широко известна своими достижениями в области химической технологии топлива и высокоэнергетических веществ: синтеза цеолитных катализаторов, модификация различными металлами для получения высокооктанового бензина.

Диссертационный совет отмечает, что на основании выполненных соискателем исследований:

- **доказана** зависимость кислотных и каталитических свойств цеолитных катализаторов от природы, концентрации и способов введения модифицирующих добавок, а также влияние предварительной активации модифицированных цеолитных катализаторов низкотемпературной плазмой на их кислотные и каталитические свойства в процессе конверсии пропан-бутановой фракции попутных нефтяных газов в арены;
- **предложены** технологические параметры процесса конверсии пропан-бутановой фракции и дезактивации модифицированных цеолитных катализаторов;
- **разработана** технологическая схема и материальный баланс процесса конверсии пропан-бутановой фракции в арены на модифицированных микропористых цеолитных катализаторах.

Теоретическая значимость исследования обоснована тем, что:

- **доказан** эффективный метод воздействия предварительной обработки низкотемпературной плазмой цеолитных катализаторов Н-ЦКЕ-ХМ, модифицированных 1, 3 и 5% ZnO и 0,5–2,0% ГПС (Mo–Bi–Ni) на кислотные и каталитические свойства в процессе конверсии ПБФ в арены. Влияние способов модификации цеолита Н-ЦКЕ-ХМ добавками железа и 0,5–2,0% Fe₂O₃ на выход жидкой фазы;
- **применительно к проблематике диссертации результативно использован** комплекс методов анализа в системном изучении эффективности модифицированных цеолитных катализаторов в процессе превращения пропан-бутановой фракции в жидкие углеводороды с применением плазменного метода активации и стандартных методов анализа полученных продуктов. Эффективность каталитических систем исследовалась в ходе длительных испытаний на лабораторной прямоточной каталитической установке;

- изложены зависимости конверсии пропан-бутановой фракции, выхода жидкой фазы из пропан-бутановой фракции и выхода бензол, толуол, ксиол фракции из пропан-бутановой фракции от температуры на цеолитных катализаторах, модифицированных различными добавками;

- изучены физико-химические, кислотные и каталитические свойства микропористого цеолита Н-ЦКЕ-ХМ, синтезированного с использованием новой органической структурообразующей добавки «Х-масла», с силикатным модулем 45 в процессе превращения пропан-бутановой фракции в арены. Установлено, что цеолит Н-ЦКЕ-ХМ, синтезированный с использованием многокомпонентной органической структурообразующей добавки «Х-масла», относится к микропористому высококремнеземному цеолиту типа MFI.

Значения полученных соискателем результатов исследования для практики подтверждается тем, что:

- определена оптимальная концентрация модифицирующих добавок в цеолитсодержащий катализатор. Необходимо отметить, что прямая зависимость между кислотными и каталитическими свойствами модифицированных цеолитных катализаторов позволяет целенаправленно вести поиск новых цеолитов, способов их модификации и активации для разработки эффективных катализаторов;

- представлены результаты по конверсии пропан-бутановой фракции на микропористом высококремнеземном цеолите Н-ЦКЕ-ХМ, типа MFI, модифицированного 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 большой интерес для специалистов, занимающихся переработкой легкого углеводородного сырья в низшие олефины и ароматические углеводороды. Технологическая схема производства ароматических углеводородов из пропан-бутановой фракции

производительностью 5 тыс. т/год по сырью для использования в практической деятельности ООО «Газпромнефть-Восток».

- **полученные результаты положены в основу технологии** в ФГБОУ ВО «Национальный исследовательский Томский политехнический университет» при проведении практических занятий и лабораторных работ в цикле подготовки бакалавров и магистров по направлению 21.04.01 «Нетегазовое дело» по специальности «Разработка и эксплуатация нефтяных и газовых месторождений» при изучении дисциплины «Химия нефти и газа», «Сбор и подготовка углеводородного сырья».

Оценка достоверности результатов исследования выявила:

- **для экспериментальных работ** - получены результаты посредством ряда современных методов исследования (ИК-спектроскопия, электронная микроскопия, термогравиметрический и рентгенофазовый анализ, термопрограммированная десорбция аммиака, активация низкотемпературной плазмой ЦСК) подтверждает выводы и основные положения, представленные в работе. Результаты конверсии ПБФ попутного нефтяного газа в жидкие углеводороды на модифицированных цеолитных катализаторах подтверждены экспериментальными данными, полученными на каталитической установке;

- **теория построена** на взаимосвязи между кислотными и катализическими свойствами модифицированных цеолитсодержащих катализаторов.

- **идея базируется** на анализе результатов научных и экспериментальных исследований в области синтеза ароматических углеводородов и высокооктановых компонентов бензина из газообразных парафинов и олефинов на модифицированных цеолитсодержащих катализаторах;

- **установлены** зависимости кислотных и катализических свойств цеолитных катализаторов от природы, концентрации и способов введения модифицирующих добавок подтверждается результатами экспериментов и

согласуются с известными работами в области превращения легкого углеводородного сырья в ароматические углеводороды, низшие олефины и получения высокооктановых компонентов моторных топлив на цеолитсодержащих катализаторах;

- **использованы** стандартные и оригинальные методики экспериментальных исследований. Все экспериментальные данные обрабатывались с использованием математической статистики.

Личный вклад соискателя состоит в:

- подборе и анализе литературных данных; постановке задач и непосредственном участии в научных экспериментах, в получении, обработке и интерпретации экспериментальных данных, подготовке основных публикаций по выполненной работе. Разработке технологической схемы производства ароматических углеводородов из пропан-бутановой фракции производительностью 5 тыс. т/год по сырью для использования в практической деятельности ООО «Газпромнефть-Восток».

Диссертация охватывает основные вопросы поставленной научной задачи и соответствует критерию внутреннего единства, что подтверждается наличием последовательного плана, охватывающим все аспекты исследований кислотных и каталитических свойств модифицированных цеолитных катализаторов в конверсии попутных нефтяных газов C₃-C₄ в арены.

Диссертационный совет пришел к выводу о том, что в диссертации:

тема и содержание диссертационной работы охватывают вопросы, включенные в паспорт специальности 2.6.12 – «Химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ», а именно:

- п.3 – катализаторы и каталитические процессы переработки углеводородного сырья;
- п.4 – подготовка продуктов переработки нефти и газа для нефтехимического синтеза;

- п. 5 - химмотологические аспекты физико-химической технологии нефти и газа.
 - соблюдены установленные Положением о присуждении ученых степеней критерии, которым должна отвечать диссертация на соискание ученой степени;
 - отсутствуют недостоверные сведения об опубликованных соискателем ученой степени работах, в которых изложены основные научные результаты диссертации;
 - соискатель ссылается на авторов и источники заимствования;
 - оригинальность диссертационной работы составляет более 85%.

Диссертационная работа Джалиловой Софии Насибуллаевны отвечает критериям, установленным «Положением о присуждении ученых степеней» критериям п.9 «Положения о присуждении ученых степеней» ВАК Министерства науки и высшего образования РФ, предъявляемым к кандидатским диссертациям.

В диссертации отсутствуют недостоверные сведения об опубликованных соискателем ученой степени работах, в которых изложены основные научные результаты диссертации. В диссертации не используется заимствованный материал без ссылки на автора и источник заимствования.

В ходе защиты диссертации не было высказано критических замечаний.

На заседании 15 декабря 2021г. диссертационный совет принял решение за новые научно обоснованные технологические разработки, имеющие существенное значение для развития страны, а именно: научно обоснованные результаты по конверсии пропан-бутановой фракции в жидкие углеводороды на микропористом высококремнеземном цеолите Н-ЦКЕ-ХМ, типа MFI, модифицированного добавками 0,5–2,0 % n-Fe / 99,5–98,0 % Н-ЦКЕ-ХМ, 0,5-2,0 % Fe₂O₃ / 99,5–98,0 % Н-ЦКЕ-ХМ и на катализаторе железоалюмосиликате, а также на цеолите модифицированном 1,0-5,0 % ZnO / 99,0–95,0 % Н-ЦКЕ-ХМ и 0,5 – 2,0 % ГПС (Mo-Bi-Ni) / 99,5 – 98,0 % Н-

ЦКЕ-ХМ и активированном низкотемпературной плазмой, которая позволяет значительно повысить их активность и селективность в образовании ароматических углеводородов и представляет большой интерес для специалистов, занимающихся переработкой легкого углеводородного сырья в низшие олефины и ароматические углеводороды, за разработку технологической схемы установки получения ароматических углеводородов из пропан-бутановой фракции на цеолитсодержащих катализаторах и расчет материальный баланса блока получения ароматических углеводородов из пропан-бутановой фракции присудить Джалиловой С.Н. ученую степень кандидата технических наук по специальности 2.6.12. – Химическая технология топлива и высокоэнергетических веществ.

При проведении тайного голосования с использованием информационно-коммуникационных технологий диссертационный совет в количестве 18 человек, из них 7 докторов наук по специальности рассматриваемой диссертации, участвовавших в заседании, из 25 человек, входящих в состав совета, проголосовали: за – 17 , против – нет. Один член совета не смог принять участие в голосовании из-за технических неполадок.

Председатель

диссертационного совета

Ученый секретарь

диссертационного совета

Ильдус Гамирович Ибрагимов

Альбина Дарисовна Бадикова

15 декабря 2021 г.

