

Общая характеристика работы

Актуальность. Стирол является одним из основных мономеров для производства полимерных материалов, без которых в настоящее время не может обойтись ни одна отрасль промышленности, как в России, так и за рубежом. Стирол используется для получения полистирола, термоэластопластов, различных лакокрасочных композиций. Одним из основных способов получения стирола является процесс дегидрирования этилбензола.

Интенсификация процесса дегидрирования этилбензола в стирол может быть достигнута путем совершенствования катализатора и оптимизации технологических параметров процесса (снижение расхода пара, температуры и других параметров) при одновременном снижении себестоимости производства каталитических систем.

Анализ литературных данных показал, что железооксидные катализаторы дегидрирования этилбензола имеют многообразный состав и используются различные методы синтеза. В качестве сырья применяются гидроксиды и оксиды железа (III) различного фазового состава, вводятся в качестве промотирующих добавок соединения различных металлов, редкоземельные элементы.

До настоящего времени нет единого мнения о природе активного компонента катализатора, о роли различных отдельно вводимых в состав соединений, об их влиянии на эксплуатационные характеристики катализатора. Видимо это объясняется многообразием применяемых каталитических систем, сочетанием различных методов синтеза и исследований их фазового состава.

В этой связи актуальной является задача по модификации существующих катализаторов с целью увеличения их активности, механической прочности, термостойкости и других эксплуатационных характеристик. Решение этой задачи возможно лишь при изучении механизма взаимодействия отдельных компонентов катализатора и влияния состава каталитических систем на конверсию и селективность в реакции дегидрирования этилбензола.

Настоящее диссертационное исследование выполнено при финансовой поддержке Фонда содействия развитию малых форм предприятий в научно-технической сфере (ФСР МПФ НТС) РФ, программа «У.М.Н.И.К.» (Государственный контракт №5114p/7432 от 6.04.2007г., Тема №1: «Исследование, разработка и создание гетерогенной железооксидной каталитической системы для дегидрирования углеводородов с заданными технологическими параметрами, обеспечивающими конкурентоспособность и импортозамещение»).

Цель работы. Исследование влияния состава каталитических систем на активность в реакции дегидрирования этилбензола в стирол путем изучения механизма взаимодействия отдельных компонентов катализатора.

Для достижения поставленной цели были определены следующие задачи:

1. Провести системное исследование высокотемпературных изменений фазового состава и каталитической активности в процессе дегидрирования

этилбензола железоксидных соединений и многокомпонентных систем на их основе.

2. Рентгенографическим и термоаналитическим методом определить фазовый состав железоксидных-, железоксидных- и железомолибденооксидных систем и их влияние на активность и селективность в процессе дегидрирования этилбензола.

3. Определить кинетические параметры реакции дегидрирования этилбензола в стирол для железоксидных-, железоксидных-, железомолибден-, железоксидных-, железоксидныхмолибденооксидных каталитических систем.

4. Установить форму и морфологию частиц исходных железоксидных соединений и исследовать физико-механические свойства каталитических систем (удельная поверхность, распределение частиц по размерам, механическая прочность на раздавливание).

Научная новизна. Системное исследование высокотемпературных изменений фазового состава железоксидных соединений и многокомпонентных систем на их основе, позволило установить взаимосвязь между каталитической активностью и превращениями в составе оксидов железа и при их взаимодействии с соединениями калия, церия и молибдена.

Введение в состав железоксидной системы соединений калия при термообработке приводит к образованию основной фазы в виде «магнетизированного» магнетита, а также моноферрита калия $KFeO_2$, которые по сравнению с исходным железоксидным соединением проявляют высокую активность и селективность.

В системе состоящей из кислородосодержащих железоксидных и железомолибденовых соединений происходит образование в качестве основной фазы $\alpha-Fe_2O_3$, а также фиксируется наличие CeO_2 или MoO_3 и MoO_2 соответственно. Также можно предположить взаимодействие кислородосодержащих соединений железа с оксидами церия или молибдена, например, путем образования твердых растворов оксида молибдена в оксиде железа (III). Что послужило причиной существенного увеличения селективности железоксидных систем при введении в них соединений церия и молибдена.

Определены кинетические параметры: кажущаяся энергия активации, предэкспоненциальный множитель реакции дегидрирования этилбензола в стирол для железоксидных-, железоксидных-, железомолибден-, железоксидных-, железоксидныхмолибденооксидных каталитических систем.

Установлена форма и морфология частиц железоксидных соединений методами электронной и растровой микроскопии.

Практическая значимость. Выполнены исследования физико-механических свойств исходного железоксидного соединения и синтезированных каталитических систем (удельная поверхность, распределение частиц по размерам, механическая прочность на раздавливание).

На основе комплексного исследования железоксидных-, железоксидных-, железомолибденооксидных систем синтезированы многокомпонентные