Сафронова Светлана Сергеевна. Совместная конверсия метанола и углеводородов C3-C4 на катализаторах кислотно-основного типа : Дис. ... канд. хим. наук : 02.00.04 Томск, 2006 179 с. РГБ ОД, 61:06-2/190

выводы

1. Выявлено влияние структурных, адсорбционных, кислотных

характеристик сульфокатионитов на их активность и селективность по

метил-трет-бутиловому эфиру в процессе конверсии метанола и изобутена.

Установлено, что наибольшую активность и селективность по МТБЭ в

изучаемом процессе проявляют образцы с наиболее крупными мезопорами и

наибольшей концентрацией сильных кислотных (Но = 2.8) центров: КУ-23-

10/60, КУ-23-16/60.

2. На основании сопоставления адсорбционных, кислотных и

каталитических характеристик сульфокатионитов предложена схема

механизма реакции синтеза метил-трет-бутилового эфира на их поверхности,

согласно которому образование МТБЭ происходит в результате

взаимодействия изобутена с метанолом, находяш;имся на поверхности

сульфокатионита в слабосвязанной ассоциативной форме.

3. Ноказана перспективность использования широкопористых

цеолитов (H/Beta), позволяюш,их расширить температурный интервал

взаимодействия метанола и изобутена в синтезе метил-трет-бутилового

эфира, по сравнению с сульфокатионитами. Нри низких температурах

реакции механизм взаимодействия метанола и изобутена на цеолитах

аналогичен механизму, предложенному для сульфокатионитов. Нри высоких

темнературах реакции происходит смеш;ение направления конверсии в

сторону образования ДМЭ *\*'* углеводороды.

4. Впервые установлено преимуш;ество процесса совместной

конверсии метанола и пропан-бутана, но сравнению с их индивидуальным

превраш,ением: введение метанола в пропан - бутановую смесь позволяет

снизить температуру процесса конверсии алканов С3-С4 и повысить

селективность процесса по алкенам и аренам.

5. Метод оценки неоднородности адсорбционных центров позволил

выявить, что независимо от способа модифицирования на поверхности

162

цеолита происходит: 1) частичное встраивание галлия в решетку цеолита с

образованием мостиковых групн Si-OH-Ga; 2) образование фазы оксида

галлия, локализованной на внешней поверхности цеолита; 3) частичная

локализация галлия вблизи В-центров с образованием сложного активного

центра, химизм образования которого показан впервые.

6. Показано, что наибольшую селективность в образовании алкенов и

аренов проявляет образец, приготовленный методом механического

смешения, в результате которого достигается разрыхление вторичной

пористой структуры, увеличение размера микропор и максимальное

соотношение L/B центров.\_\_