

Облікова картка дисертації (ОКД)

Шифр спецради: Д 26.210.01

Відкрита

Вид дисертації: 04

Державний обліковий номер: 0419U004350

Дата реєстрації: 09-10-2019



1. Відомості про здобувача

ПІБ (укр.): Кізиун Олена Валеріївна

ПІБ (англ.): Kiziun Olena Valeriivna

Аспірантура: так

Шифр спеціальності, за якою відбувся захист: 02.00.04

Дата захисту: 19-09-2019

На здобуття наукового ступеня: Кандидат хімічних наук (к. х. н.)

Спеціальність за освітою: Технологія електрохімічних виробництв

2. Відомості про установу, організацію, у вченій раді якої відбувся захист

Назва організації: Інститут хімії поверхні ім. О.О. Чуйка НАН України

Підпорядкованість: Національна академія наук України

Код ЄДРПОУ: 03291669

Адреса: вул.Генерала Наумова, 17, м. Київ, Київська обл., 03164, Україна

Телефон: 380444229632

E-mail: info@isc.gov.ua

WWW: <https://www.isc.gov.ua/>

Інше: +380444243567

3. Відомості про організацію, де виконувалася (готувалася) дисертація

Назва організації: Інститут сорбції та проблем ендоекології Національної академії наук України

Підпорядкованість: Президія національної академії наук України

Код ЄДРПОУ: 05398131

Адреса: вул. Генерала Наумова, 13, м. Київ, Київ, 03164, Україна

Телефон: 452-93-28

Інше: 453-93-27

4. Відомості про організацію, де працює здобувач

Назва організації: Інститут сорбції та проблем ендоекології Національної академії наук України

Підпорядкованість: Президія національної академії наук України

Код ЄДРПОУ: 05398131

Адреса: вул. Генерала Наумова, 13, м. Київ, Київ, 03164, Україна

Телефон: 452-93-28

Інше: 453-93-27

5. Наукові керівники та консультанти

Наукові керівники

Зажигалов Валерій Олексійович (д. х. н., член-кор., 02.00.15)

6. Офіційні опоненти

Тарасенко Юрій Олександрович (д. х. н., професор, 02.00.04)

Соловійов Сергій Олександрович (д. х. н., професор, 02.00.15)

7. Підсумки дослідження та кількісні показники

Підсумки дослідження: 22 - Теоретичне узагальнення і вирішення важливої наукової проблеми

Кількість сторінок: 170

Кількість додатків: 0

Ілюстрації: 61

Таблиці: 10

Схеми: 0

Використані першоджерела: 200

Кількість публікацій: 28

Кількість патентів: 2

Впровадження результатів роботи:

Мова документа: Українська

Зв'язок з науковими темами: 0101U002060 0104U003108

0105U001239 0105U008475 0108U000599 0113U001127

0118U003420

8. Індекс УДК тематичних рубрик НТІ

Індекс УДК: 544, 544.473+544.478

Тематичні рубрики: 31.15

9. Тема та реферат дисертації

Тема (укр.)

Вплив домішок на фізико-хімічні властивості VPO-каталізаторів окиснення н-пентану

Тема (англ.)

The influence of additives on the physical-chemical properties of VPO catalysts of the n-pentane oxidation

Реферат (укр.)

Дисертація присвячена вивченню впливу домішок іонів металів Bi, La, Mo, Te, Fe, W, Zr, Ti, Ag, Ni на фізико-хімічні властивості VPO-каталізаторів окиснення н-пентану. Встановлено, що модифікування VPO-каталізаторів домішками в більшості випадків не веде до зміни фазового складу базової композиції, але змінює температуру кристалізації активного

компонента каталізатора фази пірофосфату ванадилу $(VO)_2P_2O_7$ та температуру його окиснення до фосфату ванадилу $VOPO_4$, що позитивно впливає на умови його активування та стабільної експлуатації. Уведені домішки змінюють морфологію базової VPO-композиції і розподілені двома способами: 1) нанодисперсно, рівномірно, 2) з утворенням рентгеноаморфних фаз домішок. Показано, що промотування VPO-каталізатора впливає на ступінь окиснення ванадію та енергію зв'язку O 1s-електронів, що дозволяє регулювати активність каталізаторів. Запропонована нова схема окиснення n-пентану та утворення фталевого (ФА) і малеїнового (МА) ангідридів. Встановлено, що основним шляхом утворення ФА є реакція Дільса-Альдера між МА та ненасиченим вуглеводнем C₄. Запропонована схема окиснення n-пентану дозволяє спрямовано регулювати процес окиснення n-пентану в бік утворення МА або ФА шляхом введення в базову VPO-композицію домішок, які змінюють співвідношення центрів Бренстеда та Льюїса, що підтверджено експериментально. Показано, що на основі даної схеми окиснення n-пентану можна реалізувати нову технологію одержання ФА при пошаровому завантаженні різних за кислотними властивостями каталізаторів, яка дозволяє підвищити вихід цього продукту

Реферат (англ.)

The dissertation is devoted to the study of influence of additives (Bi, La, Mo, Te, Fe, W, Zr, Ti, Ag, Ni metal ions) on the physical-chemical properties of VPO catalysts of the n-pentane oxidation. It was established that mainly a modification of the VPO catalysts by additives does not lead to the change of a phase composition – the semihydrate vanadyl phosphate ($VOHPO_4 \cdot 0,5H_2O$) rests the basic phase, with the exception lanthanum and molybdenum ions introduction. The introduction of the lanthanum accompanied by $VOPO_4$ phase formation and molybdenum ions lead to the formation of molybdenum phosphate phase. It was shown that the additives introduction in VPO composition changes a temperature of the catalyst active component – vanadyl pyrophosphate phase ($(VO)_2P_2O_7$) crystallization and the temperature of its oxidation to the vanadyl phosphate ($VOPO_4$). It was established the Ti, Bi, Fe ions decrease the values of the first temperature and increase the second temperature that have positive effect connected with the reduce the activation temperature of VPO catalyst and to raise the range of its stability work without loss of a selectivity. The introduction of the W, Te, Mo (Mo/V=0,10) ions in basic composition increases both temperatures that necessary to take in account for the effective conducting of the activation stage. Other additives decrease both temperatures. This fact must be taken into account at determination of critical temperature of the catalyst exploitation. It was established that additives introduced in the basic VPO composition can be distributed by two ways: 1) highly dispersive and evenly (Fe, Te, Ni, Ag), 2) with formation of X-ray amorphous phase of the additive phosphate (Ti, Bi, La, W, Zr). It was shown that the additives introduction has any effect on an oxidation state of phosphorus but the oxidation state of vanadium changed. It was the increase of the P/V ratio on a surface of catalysts was observed after the introduction of additives and this fact has positive effect on life time of the catalyst. It was established that the introduction of additives, its nature and content affect on acidic properties of the catalyst surface, namely the number of acid centers and ratio of Brönsted and Lewis centres. The study of mechanism of n-pentane transformation by different methods permits to propose the principle new scheme of the n-pentane oxidation. According this scheme the activity of the catalyst, connected with proton abstraction from hydrocarbon, determines by effective negative charge on surface oxygen which can be relative to BE O 1s-electrons. It was shown that a main route of the PhA formation is the Diels-Alder reaction between MA and an unsaturated hydrocarbon C₄. So, the ratio of MA and PhA in products of n-pentane oxidation is determined by the content of Brönsted and Lewis centres. The increase of the Lewis acidic centres on the surface of catalyst allows to an increase the PhA selectivity. These established relations permit to predict the ways of VPO catalyst modification by additives introduction and regulate the catalytic activity and selectivity to one of anhydride formation. It was proposed the layered loading of two different catalysts with different acidic properties in catalytic reactor which permits to an increase the PhA selectivity on 6-10 %.

Голова спеціалізованої вченої ради: Картель Микола Тимофійович (д. х. н., професор, акад., 02.00.04)

Підпис

М.П.

Відповідальний за подання документів: Дацюк А.М. (Тел.: 380444229632)

Підпис

**Керівник відділу реєстрації наукової діяльності
УкрІНТЕІ**



Юрченко Т.А.