

ЗАКОНОМЕРНОСТИ АЛКИЛИРОВАНИЯ АРОМАТИЧЕСКИХ УГЛЕВОДОРОДОВ C₆-C₇ ОДНОАТОМНЫМИ НАСЫЩЕННЫМИ СПИРТАМИ C₁-C₃ НА ЦЕОЛИТАХ ТИПА ZSM-5, МОДИФИЦИРОВАННЫХ СОЕДИНЕНИЯМИ ФОСФОРА И РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫМИ МЕТАЛЛАМИ

Абдуллаева Н.М.^а, Искендерова А.А.^а, Воскресенский Л.Г.^б,
Гахраманов Т.О.^а, Ахмедова Н.Ф.^а, Мамедов С.Э.^а

^аБакинский Государственный Университет,
Азербайджан, AZ 1148, Ба-ку, ул. З. Халилова, 23, e-mail: n_akhmedova@mail.ru
^бРоссийский Университет Дружбы Народов, Россия, Москва, 117198, ул. Миклухо-Маклая, 6

Перспективным направлением в области катализа на цеолитах типа ZSM-5 является разработка пара-селективных катализаторов для процессов алкилирования ароматических углеводородов C₇-C₈ одноатомными насыщенными спиртами с целью получения важных промышленных продуктов – п-ксилола, п-диэтилбензола (п-ДЭБ), п-этилтолуола (п-ЭТ) и п-цимола. Целью настоящей работы является поиск пара-селективных катализаторов, нами было исследовано влияние концентрации редкоземельных элементов (La, Pr, Ho, Yb, Lu) на текстурные, физико-химические и каталитические свойства HZSM-5 в реакции алкилирования алкилароматических углеводородов C₇-C₈ одноатомными спиртами.

Для исследования катализаторов применяли химический, рентгенофазовый, электронномикроскопический, адсорбционный и ИК-спектроскопический методы анализа.

Установлено, что введение РЗЭ в состав HZSM-5 приводит к существенному изменению текстурных, физико-химических и каталитических свойств. В результате модификации РЗЭ сильно распределяется по внутренней и наружной поверхности ZSM-5 и структура цеолита сохраняется стабильной. Площадь поверхности по БЭТ и объём пор РЗЭ/HZSM-5 уменьшается с увеличением содержания РЗЭ, Увеличение содержания РЗЭ в цеолите до 10,0 мас.% приводит к снижению удельной поверхности с 266,3 до 212,4 м²/г, а объём пор с 0,24 г/см³ до 0,15г/см³.

Таким образом, модифицирование сопровождается также химическим воздействием РЗЭ с цеолитом, что приводит к снижению концентрации сильных брэнстедовских центров и образованию новых льюисовских кислотных центров. Изменение соотношения В/L центров и сужение размеров каналов цеолита в результате модифицирования являются основной причиной возрастания пара-селективности катализаторов. При оптимальной концентрации РЗЭ (5,0 мас.%) селективность по п-ксилолу, п-ЭТ, п-ДЭБ и п-цимолу составляет 71,5-80,3%.