ТЕЗИСЫ ДОКЛАДОВ

**МЕЖДУНАРОДНАЯ КОНФЕРЕНЦИЯ
«Перспективные материалы с иерархической структурой
для новых технологий и надежных конструкций»**

**X МЕЖДУНАРОДНАЯ КОНФЕРЕНЦИЯ
«Химия нефти и газа»**

Томск

Издательский Дом ТГУ

2018

DOI: 10.17223/9785946217408/563

НОВЫЙ СПОСОБ АКТИВАЦИИ МЕТАНА В НЕОКИСЛИТЕЛЬНЫХ УСЛОВИЯХ

Виниченко Н.В., Голинский Д.В., Затолокина Е.В., Белый А.С.

ФГБУН Институт проблем переработки углеводородов СО РАН, Омск, Россия
ostanina_n@mail.ru

Метан (CH_4) один из самых распространённых углеводородов на Земле. К его основным источникам относятся: природный, попутный нефтяной и сланцевый газы, гидраты метана, шахтный CH_4 , а также метан, образующийся биогенным путём. На данный момент CH_4 преимущественно используется как энергетический ресурс и не более 10% в качестве сырья нефтехимии. Ограничение образования углеводородов с большей молекулярной массой из метана связано со сложностью его активации. В последние годы наибольшее внимание уделяется изучению превращения CH_4 в присутствии образцов на основе высококремнезёмных цеолитов. Однако до сих пор не преодолен ряд проблем (основная – быстрая дезактивация катализаторов). Таким образом, создание рентабельных технологий по превращению CH_4 в продукты большей химической ценности путём создания желаемых C-C связей остаётся крайне актуальной задачей.

В данной работе превращение метана в неокислительных условиях осуществляли в 2 этапа: изначально активировали метан хемосорбцией на нанесённом катализаторе в диапазоне 20-550 °C в реакторе идеального смешения. После этого в реакционную среду при 550 °C вводили более высокомолекулярный алкан (н-пентан).

Установлено, что наиболее активным образцом в реакции совместной конверсии CH_4 с н-пентаном является $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$: выход ароматических углеводородов (Ar) увеличивается в 6,5 раз по сравнению с индивидуальным превращением н- C_5H_{12} в тех же условиях. При этом опыт с меченым метаном подтверждает реакционную способность его хемосорбированных форм в образовании новой C-C-связи, так как 41,8 % аренов содержат атом ^{13}C .

Для алюмоплатинового катализатора также рассмотрено влияние количества нанесённого металла и кислотности носителя на хемосорбцию метана и каталитические характеристики.

Установлено, что снижение содержания платины в образце приводит к увеличению количества хемосорбированного метана относительно Pt с 1,1 до 1,6 моль CH_4 /моль Pt при 550 °C, что, вероятно, связано с разным зарядовым состоянием платины. Наиболее активным катализатором в реакции совместной конверсии метана с н-пентаном является 0,6% $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ при конверсии C_5H_{12} 58,4%, выходе углеводородных газов 21,2 %мас. и максимальном выходе ароматических углеводородов 17,1 %мас.

Кислотные свойства носителя $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ варьировали за счёт введения диоксида циркония (снижение) и фтора (увеличение кислотности). В обоих случаях отмечено отсутствие влияния на хемосорбцию CH_4 во всем температурном диапазоне исследований, что, вероятно, связано с неизменно высокой дисперсностью платины на модифицированных образцах. Введение в реакционную среду к хемосорбированному метану н-пентана приводит к росту выхода аренов в присутствии образца с содержанием ZrO_2 0,5 %мас. по сравнению с немодифицированным катализатором и снижению содержания ароматических углеводородов при дальнейшем увеличении концентрации модифицирующего оксида. Для образцов промотированных фтором отмечены как значительный рост продуктов крекинга, так и снижение выхода Ar, что объясняется увеличением силы и концентрации кислотных центров носителя Al_2O_3 .

Работа выполнена в рамках государственного задания ИППУ СО РАН в соответствии с Программой фундаментальных научных исследований государственных академий наук на 2013-2020 годы по направлению V.46, проект № V.46.2.4, этап 1 (Номер госрегистрации в системе ЕГИСУ НИОКТР АААА-А17-117021450095-1).