

## АННОТАЦИЯ

диссертации на соискание степени доктора философии (PhD) по специальности 6D060600 - Химия

**Балпанова Назерке Жумагалиевна**

### **Гидрооблагораживание угольной смолы в присутствии нанокаталитических добавок и полимерных материалов**

**Общая характеристика работы.** Диссертационная работа посвящена исследованию каталитических свойств нанокатализатора на основе хризотила с нанесенным активным агентом оксидом никеля (NiO/Хризотил), влияния размерного эффекта частиц нанесенного никеля на гидрогенизацию и кавитацию ПКС, установлению кинетических параметров и термодинамических функций процесса гидрогенизации и кавитации каменноугольной смолы. В качестве физико-химических методов исследований и расчетных методов в работе были использованы: хромато-масс спектрометрия, рентгенофазовый анализ, рентгенофлуоресцентный анализ, рентгеноспектральный флуоресцентный анализ, гравиметрический анализ, метод Брунауэра-Эммета-Теллера, сканирующая электронная микроскопия, трансмиссионная электронная микроскопия и атомно-эмиссионный спектральный анализ, также методы определения кинетических параметров и термодинамических функций.

**Актуальность работы.** Сложность органического вещества каким является каменноугольная смола, как объект изучения, обуславливает необходимость комплексного использования инструментальных и деструктивных методов, которые обеспечивают возможность сопоставления и систематизации данных по полученным фракциям. Наибольшую трудность при исследовании высокотемпературных превращений КС в процессе деструктивной гидрогенизации представляет анализ начальных этапов деструкции КС в присутствии катализаторов и полимерных материалов. Следует отметить, что катализатор оксид никеля, нанесенный на поверхность и внутрь нанотрубок хризотила в присутствии полимерного материала обладает высокой активностью и селективностью в процессе гидрогенизации и позволяет проводить процесс в мягких условиях. Хризотил, который является основой для нанокатализатора выполняет роль носителя и является экологически безопасным отходом асбестового производства, а также использование полимеров, таких как ПЭ, ПС и ПЭГ в качестве донора водорода для процесса термической деструкции и гидрогенизации КС позволяет решить проблему утилизации отходов, содержащие полиолефиновые материалы. Исследование состава нанокатализаторов и понимание зависимости каталитических свойств нанокатализаторов от размерного фактора частиц нанесенного никеля на хризотил и природы полимерных материалов приводит к увеличению активности и селективности

выбранных нанокатализаторов в процессах термической деструкции, гидрогенизации и кавитации КС. В связи с этим, разработка нанокатализаторов на основе хризотила, имеющих высокую активность и селективность для процессов термической деструкции и гидрогенизации ТУС является актуальной на сегодняшний день.

**Цель диссертационной работы** заключается в исследовании кинетики термического разложения, гидрогенизации каменноугольной смолы в присутствии разработанного нанокатализатора на основе хризотила с нанесенным активным агентом оксидом никеля, определении термодинамических функций средней фракции каменноугольной смолы и энтальпии реакций гидрирования ПАУ.

**Задачи исследования.** В работе поставлены следующие задачи:

– исследовать морфологию поверхности и размер частиц с помощью сканирующего электронного микроскопа и трансмиссионного электронного микроскопа и кристаллическую структуру волокон нанокатализатора на основе хризотила с нанесенным оксидом никеля с помощью рентгенофазового анализа, текстурные характеристики исходного хризотила и нанокатализатора методом БЭТ;

– исследовать влияние размерного фактора на активность нанокатализатора в реакции гидрогенизации фенантрена и кавитации ПКС;

– определить оптимальные условия процесса гидрогенизации ПКС в присутствии нанокатализатора и полимерного материала;

– определить кинетические параметры и термодинамические функции термической деструкции, гидрогенизации и кавитации ВКС и ПКС;

– определить индивидуальный и групповой состав ПКС и фракции гидрогенизата;

– исследовать влияние воды на индивидуальный химический состав широкой фракции с т.к. 200-350 °С ПКС в процессе кавитации.

**Объект и предмет исследования.** Объект исследования – средняя фракция 230-300°С ВКС, ПКС, фенантрен, нанокатализатор (NiO/Хризотил) и полимерные материалы.

Предметом исследования является процесс термической деструкции, ультразвуковой кавитации, каталитической гидрогенизации ПКС и ВКС в атмосфере водорода.

**Научная новизна полученных результатов.** В диссертационной работе впервые:

– установлена кристаллическая структура волокон хризотила и частиц оксида никеля в составе исследуемого нанокатализатора (NiO/Хризотил) и наличие высокодисперсных частиц оксида никеля с размерами в диапазоне 12-18 нм, которые равномерно распределены на поверхности нанотрубок нанокатализатора;

– определена удельная поверхность (109,9 м<sup>2</sup>/г) и объем сорбционного пространства (0,169 см<sup>3</sup>/г) нанокатализатора (NiO/Хризотил);

– показано влияние размерного фактора на активность нанокатализатора в реакции гидрогенизации фенантрена и кавитации ПКС;

– разработана кинетическая схема, определены кинетические параметры и термодинамические функции деструктивной гидрогенизации и кавитации КС, установлены кинетические параметры термической деструкции ПКС по данным термогравиметрического анализа;

– определены оптимальные условия процесса гидрогенизации ПКС в присутствии нанокатализатора и полимерного материала;

– установлен индивидуальный и групповой состав ПКС и фракции гидрогенизата;

– показано влияние воды на индивидуальный химический состав широкой фракции с т.к. 200-350 °С ПКС в процессе кавитации.

**Связь диссертационной работы с планами НИР и государственными программами.** Диссертационная работа выполнена в рамках научно-исследовательских работ, проводимых в Карагандинском университете им. Е.А. Букетова в соответствии с программой фундаментальных исследований МОН РК по проекту «Термохимическая переработка тяжелых нефтяных остатков в смеси с первичной каменноугольной смолой в атмосфере коксового газа» (2015-2017 гг., № гос. регистрации 0115РК00935).

**Теоретическая и практическая значимость.** Теоретическая значимость заключается в расширении фундаментальных знаний о групповом и индивидуальном составе фракции до 200 и 200-300 °С, полученных из гидрогенизата в процессе гидрогенизации ПКС в присутствии нанокатализатора, содержащий активный агент никеля и полимерного материала. Предложена кинетическая модель каталитической гидрогенизации и гидродинамической кавитации широкой фракции ВКС в присутствии нанокатализатора превращения смеси ПАУ, которая позволяет описывать все химические превращения компонентов в реакционной смеси. Рассчитанные константы скорости и термодинамические функции образования промежуточных соединений могут быть включены в справочный материал.

Разработанный нанокатализатор позволяет в мягких условиях при низком давлении и температуре проводить процесс гидрогенизации ПКС с высоким выходом легкой и средней фракций (52-55 масс.%). Полученные данные с использованием ультразвуковой кавитационной обработки фракции ПКС в присутствии нанокатализатора могут быть востребованы в масштабировании при коммерциализации данной разработки.

**Основные положения, выносимые на защиту:**

– снижение среднего размера частиц никеля увеличивает выход парафино-нафтеновых углеводородов в процессе гидрогенизации и кавитации ПКС;

– вероятная кинетическая схема кинетики процесса гидрогенизации и кавитации средней фракции 230-300 °С ВКС;

– предварительная активация хризотила и нанесения активного агента на поверхность хризотила, определение оптимальных условий гидрогенизации ПКС и влияние факторов на выход легкой и средней фракции, установление индивидуального и группового состава;

– сравнение результатов расчета термодинамических функций средней фракции 230-300 °С ВКС, полученная унифицированным аддитивным методом со справочными данными.

**Личный вклад автора** заключается в том, что автор лично проводил анализ и систематизацию научно-технической литературы, планировала и осуществляла эксперименты по получению нанокатализатора на основе хризотила с нанесенным активным агентом оксидом никеля и тестирование на модельном органическом объекте, обобщение и интерпретация полученных результатов и их теоретическое обоснование.

**Публикации и апробация работы.** По результатам диссертационной работы опубликовано 12 печатных работ, в том числе 1 статья в рейтинговом журнале, входящем в базу данных Web of Science и Scopus, 3 статьи в изданиях, рекомендованных Комитетом по обеспечению качества в сфере образования и науки МОН РК, тезисы 5 докладов и 3 статьи в сборниках трудов конференций. Фрагменты работ докладывались на международных и региональных конференциях: XXII Международная научно-практическая конференция студентов и молодых ученых «Химия и химическая технология в XXI веке» имени выдающихся химиков Л.П. Кулёва и Н.М. Кижнера, посвященной 125-летию со дня основания Томского политехнического университета (Томск, 2021); 83-я Международная научно-техническая конференция профессорско-преподавательского состава, научных сотрудников и аспирантов «Химическая технология и техника», (Минск, 2019); XIV Международная научно-практическая конференция посвященная памяти основателей Костанайского филиала «ЧелГУ» Т.Ж. Атжанова и А.М. Роднова, 25-летию Конституции и Ассамблеи народа Казахстана «Парадигма современной науки глазами молодых» (Костанай, 2020); Международная научно-практическая online конференция «Интеграция науки, образования и производства – основа реализации Плана нации (Сагиновские чтения №12)» (Караганда, 2020).

**Структура и объем диссертации.** Диссертационная работа изложена в объеме 160 страниц и включает стандартные разделы: введение, три главы, в том числе 38 рисунков, 32 таблиц, заключение, список из 314 использованных источников и приложение.