

**NAVOIY DAVLAT KONCHILIK VA TEXNOLOGIYALAR
UNIVERSITETI HUZURIDAGI ILMIY DARAJA BERUVCHI
DSc.17/7.06.2024.K/T.06.03 RAQAMLI ILMIY KENGASH**

SAMARQAND DAVLAT UNIVERSITETI

JAVXAROV JONIBEK JURAQUL O'G'LI

**METILXLORIDDAN QUYI MOLEKULYAR ETILEN QATORI
UGLEVODORODLARINI OLISH TEXNOLOGIYASI**

02.00.14-Organik moddalar va ular asosidagi materiallar texnologiyasi

**Texnika fanlari bo'yicha falsafa doktori (PhD)dissertasiyasi
AVTOREFERATI**

Falsafa doktori (PhD) dissertatsiyasi avtoreferati mundarijasi

Оглавление автореферата диссертации доктора философии (PhD)

Contents of dissertation abstract of doctor philosophy (PhD)

Javxarov Jonibek Juraqul o‘g‘li

Metilxloriddan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlarini olish texnologiyasi.....5

Жавхаров Жонибек Журакул угли

Технология получения низкомолекулярных этиленовых углеводородов из хлористого метила.....23

Javxarov Jonibek Jurakul o‘g‘li

Technology for obtaining low molecular weight ethylene hydrocarbons from methylchloride.....41

E‘lon qilingan ishlar ro‘yxati

Список опубликованных работ

List of published works.....43

**NAVOIY DAVLAT KONCHILIK VA TEXNOLOGIYALAR
UNIVERSITETI HUZURIDAGI ILMIY DARAJA BERUVCHI
DSc.17/7.06.2024.K/T.06.03 RAQAMLI ILMIY KENGASH**

SAMARQAND DAVLAT UNIVERSITETI

JAVXAROV JONIBEK JURAQUL O‘G‘LI

**METILXLORIDDAN QUYI MOLEKULYAR ETILEN QATORI
UGLEVODORODLARINI OLISH TEXNOLOGIYASI**

02.00.14-Organik moddalar va ular asosidagi materiallar texnologiyasi

**Texnika fanlari bo‘yicha falsafa doktori (PhD) dissertasiyasi
AVTOREFERATI**

Navoiy-2025

Falsafa doktori (PhD) dissertatsiyasi mavzusi O'zbekiston Respublikasi Oliy ta'lim, fan va innovatsiyalar vazirligi huzuridagi Oliy attestatsiya komissiyasida B2024.3.PhD/T4839 raqam bilan ro'yxatga olingan.

Dissertatsiya Sharof Rashidov nomidagi Samarqand davlat universitetida bajarilgan.

Dissertatsiya avtoreferati uch tilda (o'zbek, rus, ingliz (rezyume)) Ilmiy kengash veb-sahifasida www.nsumt.uz va «Ziyonet» axborot-ta'lim portalida joylashtirilgan.

Ilmiy rahbar:	Fayzullayev Normurot Ibodullayevich texnika fanlari doktori, professor
Rasmiy oponentlar:	Vapoyev Husnitdin Mirzoyevich texnika fanlari doktori, professor Adilov Ravshan Irkinovich texnika fanlari doktori, professor
Yetakchi tashkilot:	Termiz davlat universiteti

Dissertatsiya himoyasi Navoiy davlat konchilik va texnologiyalar universiteti huzuridagi DSc.17/7.06.2024.K/T.06.03 raqamli Ilmiy kengashning «31» may 2025-yil soat 15-00 dagi majlisida bo'lib o'tadi (Manzil: 210100, Navoiy shahri, G'alaba shoh ko'chasi, 76 v-uy. Navoiy davlat konchilik va texnologiyalar universitetining majlislar zali. Tel.: 0 (436) 223-23-32; faks: 0 (436) 223-49-66; (e-mail: info@nsumt.uz).

Dissertatsiya bilan Navoiy davlat konchilik va texnologiyalar universitetining Axborot-resurs markazida tanishish mumkin (199) raqam bilan ro'yxatga olingan). Manzil: 210100, Navoiy shahri, G'alaba shoh ko'chasi, 76v-uy. Navoiy davlat konchilik va texnologiyalar universitetining majlislar zali. Tel.: 0 (436) 223-23-32; faks: 0 (436) 223-49-66; (e-mail: info@nsumt.uz)

Dissertatsiya avtoreferati 2025-yil «13» may kuni tarqatildi.
(2025-yil «13» maydagi 6 raqamli reyestr bayonnomasi).



B.F.Muxiddinov
Ilmiy darajalar beruvchi Ilmiy kengash raisi, k.f.d., professor

S.Sh.Sharipov
Ilmiy darajalar beruvchi Ilmiy kengash kotibi, PhD., dotsent

H.M. Vapoyev
Ilmiy darajalar beruvchi Ilmiy kengash qoshidagi Ilmiy seminar raisi, t.f.d., professor

KIRISH (falsafa doktori (PhD) dissertatsiyasi annotatsiyasi)

Dissertasiya mavzusining dolzarbligi va zarurati. Jahonda bugungi kunda to'yinmagan uglevodorodlar ayniqsa etilen va propilen eng ko'p ishlatiladigan organik mahsulotlardan biri bo'lib hisoblanib ular, kimyo va neft kimyosi sanoatida boshlang'ich yarim mahsulot sifatida keng ishlatish imkonini beradi. Mamlakatning neft-kimyo ishlab chiqarish sanoatining rivojlanishi qanday darajada ekanligini etilen va propilen, umuman olganda quyi molekulyar to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlarini qancha miqdorda sintez qilish darajasiga qarab baholash mumkin. Ta'kidlash lozimki etilen qatori uglevodorodlarini ishlab chiqarish bugungi kunda eng jadal rivojlanayotgan neft-kimyo sanoatlaridan biri hisoblanadi. Shu sababdan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilen ishlab chiqarish uchun xom ashyo bazasini ko'paytirish bundan tashqari yangidan-yangi xomashyo bazalarini yaratish neft-kimyo sanoatining muhim masalasi bo'lib hisoblanadi. Tabiiy gazni xomashyo sifatida ishlatib etilen va propilen olish va jarayonning texnologiyasini ishlab chiqish va amaliyotga qo'llash alohida ahamiyat kasb etadi.

Dunyoda bugungi kunda monoxlormetandan etilen va propilen ishlab chiqarish uchun tabiiy gazdan quyi to'yinmagan qo'sh bog' saqlagan uglevodorodlarni sintez qilish muqobil usul sifatida qaralmoqda. Ushbu jarayonlarda monoxlormetan molekularini parchalash orqali etilen, propilen va butilenlar olish jarayoni uchun yuqori tanlab ta'sir etuvchanlikka, faollikka, unumdorlikka va barqarorlikka ega bo'lgan katalizatorlar tanlash hamda katalizatorning regeneratsiya sharoitlarini o'rganish, jarayonlarning kinetikasini tadqiq qilish bo'yicha ilmiy izlanishlar olib borilmoqda. Bu borada, tabiiy gazni qayta ishlab undan etilen va propilenni maksimal darajadagi unum bilan sintez qilish maqsadida unumdorligi, sellktivligi va barqarorligi yuqori bo'lgan katalizator tarkibini tanlash hamda energiya va resurs tejankor manbalari asosida bo'lgan texnologiyalarini yaratishga alohida e'tibor qaratilmoqda.

Respublikamizda keyingi yillarda kimyo sanoatida, sanoatning boshqa sohalarida bo'lgani kabi yangi turdagi materiallar ishlab chiqish bo'yicha ilg'or ilmiy asoslangan chora-tadbirlarni joriy qilib, bir qator ilmiy-amaliy natijalarga erishilmoqda. O'zbekiston Respublikasi Prezidentining Farmonida¹ «yuqori texnologiyali qayta ishlash tarmoqlarini, eng avvalo, mahalliy xom ashyo resurslarini chuqur qayta ishlash asosida yuqori qo'shimcha qiymatli tayyor mahsulot ishlab chiqarishni jadal rivojlantirishga qaratilgan sifat jihatdan yangi bosqichga o'tkazish orqali sanoatni yanada modernizasiya va diversifikasiya qilish» kabi muhim vazifalar belgilab berilgan. Ushbu vazifalardan kelib chiqqan holda, to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlardan etilen va propilenni tabiiy gazdan olishning innovasion usullarini ishlab chiqish va bu usullarini takomillashtirish, ekologik jihatdan xavfsiz, energiya va resurs tejankor

¹ O'zbekiston Respublikasi Prezidentining 2017 yil 7 fevraldagi «O'zbekiston Respublikasini yanada rivojlantirish bo'yicha Harakatlar strategiyasi to'g'risi»dagi PF-4947-son Farmoni // O'zbekiston Respublikasi qonun hujjatlari to'plami. – T., 2017. – 103 b.

manbalaridan foydalaniladigan texnologiyalarni yaratish hamda ishlab chiqarishga joriy etishga qaratilgan tadqiqotlar kata ilmiy va amaliy ahamiyat kasb etadi.

O‘zbekiston Respublikasi Prezidentining 2019-yil 3-apreldagi PQ-4265-son “Kimyo sanoatini yanada isloh qilish va uning investitsiyaviy jozibadorligini oshirish chora-tadbirlari to‘g‘risida” gi va 2020-yil 12-avgustdagi PQ-4805-son "Kimyo va biologiya yo‘nalishlarida uzluksiz ta‘lim sifatini va ilm-fan natijadorligini oshirish chora-tadbirlari to‘g‘risida"gi qarorlari, O‘zbekiston Respublikasi Prezidentining 2022-yil 28-yanvardagi PF-60-sonli “2022-2026 – yillarda Yangi O‘zbekistonni rivojlantirish strategiyasi to‘g‘risidagi”gi farmonida va PQ-436-sonli “O‘zbekiston Respublikasini 2030-yilgacha “Yashil” iqtisodiyotga o‘tishga qaratilgan islohotlar samaradorligini oshirish chora-tadbirlari to‘g‘risida”gi, “Kimyo sanoati korxonalarini yanada isloh qilish va moliyaviy sog‘lomlashtirish, yuqori qo‘shilgan qiymatli kimyoviy mahsulotlar ishlab chiqarishni rivojlantirish chora-tadbirlari to‘g‘risida” gi 2021-yil 13-fevraldagi PQ-4992-son, “Respublikada ishlab chiqarishni rivojlantirish va sanoat kooperatsiyasini kengaytirishning samarali tizimini yaratish chora-tadbirlari to‘g‘risida” gi 2022-yil 24-yanvardagi PQ-99-son qarorlari hamda mazkur faoliyatga tegishli bo‘lgan boshqa bir qancha me‘yoriy-huquqiy hujjatlarda belgilab berilgan vazifalarni amalga oshirishda ushbu dissertasiya tadqiqoti natijalari muayyan darajada xizmat qiladi.

Tadqiqotning respublika fan va texnologiyalari rivojlanishining ustuvor yo‘nalishlariga bog‘liqligi. Mazkur tadqiqot ishi respublikamizning fan va texnologiyalar rivojlanishining VII. «Kimyoviy texnologiyalar va nanotexnologiyalar» ustuvor yo‘nalishlariga muvofiq bajarilgan.

Muammoning o‘rganilganlik darajasi. Monoxlormetandan etilen va propilenlar olish, katalizatorlarning samaradorligini oshirish, etilen ishlab chiqarishning istiqbollari, etilen ishlab chiqarish texnologiyalarini takomillashtirish bo‘yicha Treger Yu.A, Moiseyev I.I, Wei Y, Zhang D, Rozanov V.N, Timoshenko A.V, Sokolova S.V, Murashova O.P, Vinogradov A.S, Vorobyev V.S, Daut V.A, Tretyakov V.F, Dasayeva G.S, Ivanova I.I, Knyazeva E.E, Yaskova V.Ya, Silina I.S, Kasman E.A, Bruk L.G, Isxakova L.D, Yermakov R.P, Koltashev V.V, Turobjonov S.M. va Fayzullayev N.I. kabi olimlarning maktablarida maqsadli ilmiy izlanishlar davriy ravishda olib borilgan.

Shu bilan birga bugungi kunda monoxlormetandan etilen va propilenlar olish jarayoni bo‘yicha ko‘plab tadqiqotlar olib borilganiga qaramasdan yuqori unumdorlik va tanlab ta‘sir etuvchanlikka ega bo‘lgan, barqarorligi yuqori, turg‘un, mustahkam, arzon va faol katalizator yaratilmagan. Shuningdek, reaksiya tezligiga ta‘sir etuvchi omillarni kompleks o‘rganish, oraliq mahsulotlar hosil bo‘lish mexanizmini va kinetikasini batafsil yoritish hamda sanoatga joriy etish, ishlab chiqarish texnologiyalarini yaratish yo‘nalishida qator ilmiy ishlar olib borilmoqda.

Dissertasiya mavzusining dissertasiya bajarilayotgan oliy ta‘lim va ilmiy-tadqiqot muassasasining ilmiy-tadqiqot ishlari bilan bog‘liqligi. Dissertasiya tadqiqoti Sharof Rashidov nomidagi Samarqand davlat universiteti ilmiy tadqiqot ishlari rejasiga muvofiq “Metilxloriddan quyilgan molekulyar etilen

qatori uglevodorodlarini olish texnologiyasi” mavzusidagi loyiha doirasida bajarilgan.

Tadqiqotning maqsadi; monoxlormetandan etilen va propilenlar olish jarayonining texnologiyasini ishlab chiqishdan iborat.

Tadqiqotning vazifalari:

jarayonni amalga oshirishga imkon beradigan silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli yuqori faolligi, termik barqarorligi, unumdorligi, tanlab ta’sir etuvchanligi bilan xarakterlanadigan mahalliy xomashyolardan olingan mikrosferik katalizatorning maqbul tarkibini tanlash;

fizik-kimyoviy (elektron-mikroskopik, xromatografik analiz, rentgenostruktur, IQ-spektroskopiya va skanirlovchi elektron mikroskopiya) usullarda katalizatorning tuzilishini va tarkibini o’rganish hamda mahalliy xomashyolardan olingan katalizatorlar tuzilishini uning katalitik faolligiga ta’sirini aniqlash;

davriy rejimda silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarda monoxlormetandan etilen va propilenlar olish reaksiyasining kinetik qonuniyatlarini o’rganish asosida reaksiyaning kinetik modellarini tanlash va faollanish energiyasini baholash; silikoalyuminomagniyfosfat asosida yaratilgan mikrosferik YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarni regeneratsiyalash jarayonini o’rganish;

monoxlormetandan etilen va propilenlar olishning ilmiy asoslarini ishlab chiqish hamda etilen qatori uglevodorodlarini ishlab chiqarishning texnologik sxemasi yaratish.

Tadqiqotning obyekti sifatida etilen, propilen, metil xlorid va katalizator olingan.

Tadqiqotning predmetini etilen, propilen, katalizator, monoxlormetandan etilen va propilenlar olish reaksiyasi tashkil etadi.

Tadqiqotning usullari. Tadqiqot jarayonida gaz xromatografiyasi, IQ-spektroskopiya, rentgenfazoviy tahlil, skanerlovchi elektron mikroskopiya usullaridan foydalanilgan.

Tadqiqotning ilmiy yangiligi quyidagilardan iborat:

mahalliy xomashyolar asosida jarayonni amalga oshirishga imkon beradigan silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlar yaratilgan va ular ishtirokida monoxlormetandan etilen va propilen qatori uglevodorodlari sintez qilingan;

silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarning tuzilishi, tekstur xarakteristikalari va tarkibi fizik-kimyoviy usullarda o’rganilgan hamda katalizatorlar tuzilishi bilan faolligi orasidagi bog‘liqlik aniqlangan;

davriy rejimda YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarda monoxlormetandan quyi molekulyar to‘yinmagan uglevodorodlar olish reaksiyasining kinetik qonuniyatlari aniqlangan hamda faollanish energiyasi baholangan;

silikoaluminomagniyfosfat asosidagi mikrosferik katalizatorlarni regeneratsiyalash jarayoni birinchi marta o'rganilgan va regeneratsiyalashning maqbul sharoiti tanlangan;

mahalliy xomashyolar asosida tayyorlangan YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarni qo'llash orqali monoxlormetandan etilen qatori uglevodorodlarini ishlab chiqarish texnologiyasi yaratilgan.

Tadqiqotning amaliy natijalari quyidagilardan iborat:

mahsulot unumi bo'yicha reaksiya borishining maqbul sharoitlari tanlangan;

davriy rejimda differensial reaktor sharoitida monoxlormetandan quyi to'yinmagan ya'ni qo'sh bog' saqlagan uglevodorodlar sintez unumini oshirishga imkon beruvchi sharoitlar, yuqori tanlab ta'sir etuvchi va ish qobiliyati yuqori bo'lgan katalizator yaratilgan;

mahalliy xomashyolar asosida olingan katalizator tanlab ta'sir etuvchanligi 64-71%, unumdorligi 82% ekanligi aniqlangan.

Tadqiqot natijalarining ishonchliligi. Tegishli tarkibdagi yaratilgan katalizatorlarni va jarayon natijasida olingan mahsulotlarni tahlil qilishda gaz xromatografik, rentgenfazali tadqiqot usullarida ishlatilgan asbob-uskunalarining va uslublarning qo'llanilishi, nazariy va eksperimental natijalarning bir xil ekanligi ishonchli natijalar olishni ta'minlaydi. Olingan natijalarning ishonchliligi statistik usullar yordamida isbotlangan.

Tadqiqot natijalarining ilmiy va amaliy ahamiyati.

Tadqiqot natijalarining ilmiy ahamiyati amalga oshirilgan jarayonlarning kinetik qonuniyatlari o'rganilganligi, olib borilgan reaksiyaning faollanish energiyasining baholanganligi hamda katalizatorlarni qayta tiklash sharoitlari taklif etilganligi bilan izohlanadi.

Tadqiqot natijalarining amaliy ahamiyati esa texnologik ko'rsatkichlarning maqbul qiymatlarini ta'minlovchi etilen va propilenlarni olish usuli sifatida monoxlormetanning qizdirib katalitik parchalash jarayonini amalga oshirish uchun texnologik, ilmiy va fundamental yechimlar ishlab chiqildi hamda monoxlormetanning havosiz joyda yuqori haroratda qizdirib katalitik parchalash reaksiyasi orqali quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlari olishning asosiy texnologik sxemasi taklif qilinganligi natijasida organik sintez jarayonlari uchun muhim bo'lgan xom ashyolar: etilen va propilen olish imkoniyatini oshirishga, tabiiy gazdan unumli foydalanishga va tabiiy xom ashyo sarflarini tejashga xizmat qiladi.

Tadqiqot natijalarining joriy qilinishi. Metilxoriddan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlarini olish texnologiyasini yaratish bo'yicha olingan ilmiy natijalar asosida:

monoxlormetanni parchalab etilen sintezi uchun tanlangan silikoaluminomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarni olish texnologiyasi «Muborak gazni qayta ishlash zavodi» AJda amaliyotga joriy etilgan («Muborak gazni qayta ishlash zavodi» AJning 202-yil 20-avgustdagi №765/GK-08-son ma'lumotnomasi). Natijada, ushbu katalizatorlarni qo'llash xorijdan olib kelinadigan katalizatorlarga nisbatan iqtisodiy samaradorlikka erishish imkonini bergan.

silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizator ishtirokida monoxlormetandan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlarini olish texnologiyasi «Muborak gazni qayta ishlash zavodi» AJ da amaliyotga joriy etilgan («Muborak gazni qayta ishlash zavodi» AJning 2024-yil 20-avgustdagi №765/GK-08-son ma'lumotnomasi). Natijada, monoxlormetan konversiyasini 71% ga, etilen va propilen hosil bo'lishi bo'yicha umumiy sellektivlik 82% ga yetishiga imkon bergan.

Tadqiqot natijalarining aprobeasiyasi. Mazkur tadqiqot natijalari 6 ta ilmiy-amaliy konferensiyalarda ma'ruza qilindi va aprobeasiyadan o'tkazildi.

Tadqiqot natijalarining e'lon qilinishi. Dissertasiya mavzusi bo'yicha jami 16 ta ilmiy ish chop etilgan, shulardan O'zbekiston Respublikasi Oliy attestasiya komissiyasining doktorlik dissertasiyalari asosiy ilmiy natijalarini chop etish tavsiya etilgan ilmiy nashrlarda 7 ta maqola, jumladan, 2 tasi respublika va 5 tasi xorijiy jurnallarda nashr etilgan.

Dissertasiyaning tuzilishi va hajmi. Dissertasiya tarkibi kirish, to'rtta bob, umumiy xulosalar, foydalanilgan adabiyotlar ro'yxati va ilovalardan iborat. Dissertasiya hajmi 107 betni tashkil etadi.

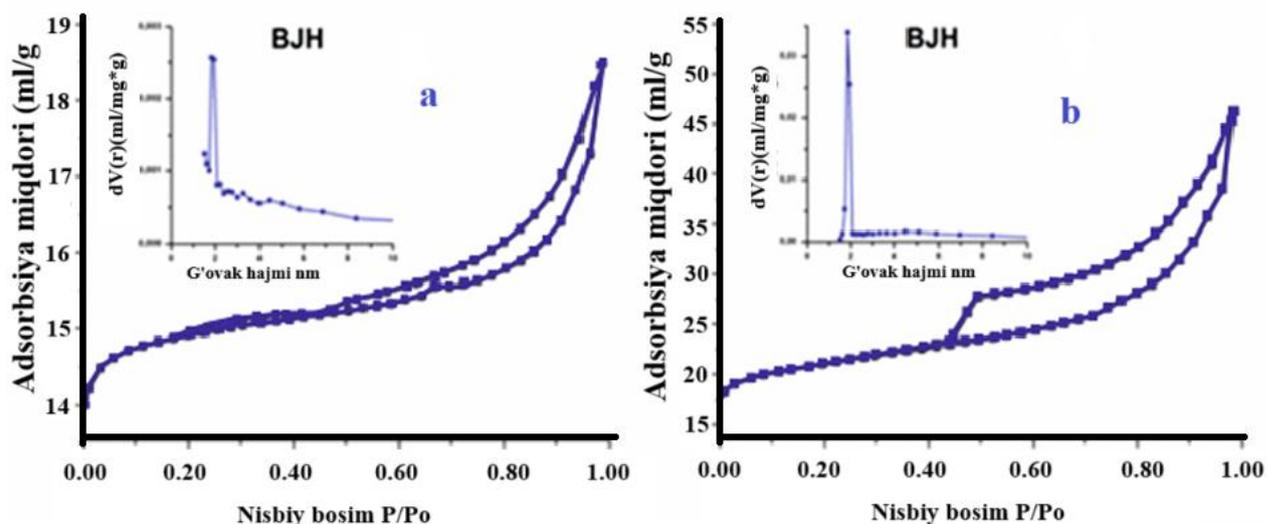
DISSERTATSIYANING ASOSIY MAZMUNI

Kirish qismida olib borilgan tadqiqotning dolzarbligi va unga bo'lgan talab, tadqiqotning maqsadi va vazifalari asoslangan, tadqiqot obyekti va predmetlari tavsiflangan, tadqiqotning respublika fan va texnologiyalari rivojlanishining ustuvor yo'nalishlariga mosligi ko'rsatilgan, tadqiqotning ilmiy yangiligi va amaliy natijalari bayon qilingan, olingan natijalarning ilmiy va amaliy ahamiyati ochib berilgan, tadqiqot natijalarini amaliyotga qo'llanilishi bo'yicha tavsiyalar, nashr ishlari va dissertatsiya tuzilishi keltirilgan.

Dissertatsiyaning «**Tabiiy gazdan quyi molekulyar to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ishlab chiqarish kimyosi va texnologiyasi bo'yicha adabiyot ma'lumotlari tahlili**» deb nomlangan birinchi bobida mavzu bo'yicha olib borilgan tadqiqotlar natijalari, xorijiy va mahalliy adabiyotlar tahlili batafsil yoritilgan.

Dissertatsiyaning «**Monoxlormetandan quyi molikulyar etilen qatori uglevodorodlarini olish jarayonining obyekti, predmeti va usullari**» deb nomlangan ikkinchi bobida monoxlormetanning katalitik pirolizi reaksiyasining kinetik qonuniyatlarini o'rganishning tajriba qurilmasi, tajribani o'tkazish va reaksiya mahsulotlarini tahlil qilish metodikasi yoritilgan.

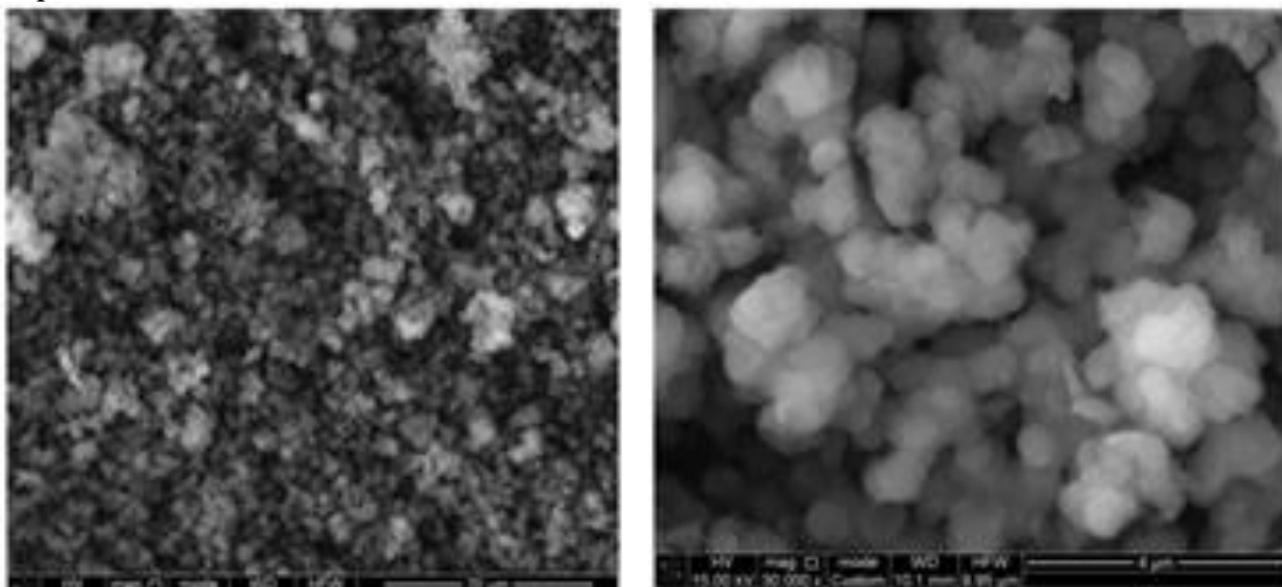
Katalizator sintezi bo'yicha tadqiqotlar berilgan. Katalizatorning xarakteristikallari fizik-kimoviy usullarda o'rganilgan. Reaksiya mahsulotlari unumi va tarkibi gaz-suyuqlik xromatografiyasi usulida aniqlangan. 1-rasmda dealyuminatsiyadan oldin va keyin YuKS-20 namunalari uchun azotning adsorbsiya/desorbsiya izotermalari va g'ovak o'lchamlari taqsimoti ko'rsatilgan. Ko'rinib turibdiki, ular uchun mezo-makrog'ovakli materiallarga xos bo'lgan P/P₀~1 bosimining keskin ko'tarilishi bilan IYUPAK tasnifi bo'yicha H1 tipidagi gisterezis halqasi bilan IV tipdagi izoterma olingan.



1-rasm. Azotning adsorbsion-desorbsion izotermalari va namunalari uchun g'ovak o'lchamlari taqsimoti: YuKS-20 (a) va YuKS-30 (b)

YuKS namunasining g'ovakli tuzilishi $315 \text{ m}^2/\text{g}$ o'ziga xos sirt maydoni va mos ravishda $0,12$, $0,20$ va $0,33 \text{ sm}^3/\text{g}$ mikro-, mezo- va makrog'ovak hajmlari bilan tavsiflanadi. YuKS mezog'ovakli yuqori kremniyli seolitni limon kislotasi eritmasi bilan ishlov berish mezog'ovakli yuqori kremniyli seolitning dealyuminatsiyasi natijasida solishtirma sirt maydonini, shuningdek, mezo- va makrog'ovaklar hajmini oshirishga olib keladi. Seolitga magniy, fosfor va temirlar kiritilganda ularning magniy, fosfor va temirlar oksidlari zarralari tomonidan qisman bloklanishi tufayli solishtirma sirt maydoni va g'ovak hajmi kamayadi.

Tarqalish egri chizig'ida kichik cho'qqining ko'rinishi tor g'ovakli hajmi taqsimotini ko'rsatadi.



2-rasm Sintezlangan YuKS-20 va YuKS-30 larning 5000 va 30000 marta kattalashtirilgan SEM tasvirlari

2-rasmga ko'ra, sintezlangan aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit) YuKS-30 namunasining SEM tasvirida o'rtacha diametri 610 nm bo'lgan ko'plab bir xil

dumaloq shakldagi zarrachalar ko'rsatilgan. Ushbu diametr asosiy muhitda sintez qilingan mezog'ovak aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lar uchun xos bo'lib, bu ham olingan namunalarning mezog'ovakligini ko'rsatadi.

Shunday qilib, past haroratli azot adsorbsiyasi/desorbsiyasi, BET, SEM va kichik burchakli rentgen fazali tahlillari ma'lumotlari sintezlangan namunalar olti burchakli g'ovak tartibi bilan mezog'ovaklik bilan tavsiflanganligini ko'rsatdi. Shuningdek, mezog'ovak aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lar shablonni olib tashlash uchun 600°C da kuydirilgandan keyin o'z tuzilishini saqlab qoladi. Ammo YuKS-20 misolida, sintezi uchun uning izopropoksidi alyuminiy manbai sifatida ishlatilgan, yuqori o'ziga xos sirt maydoniga qaramay, pasayish kuzatiladi, g'ovakli hajmida va mezostrukturaning buzilishi kuzatiladi.

Alyuminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lar tarkibidagi kislota-ishqor markazlarining kuchi va konsentratsiyasi reaksiya mahsulotlarining sifat va miqdoriy tarkibiga kuchli ta'sir qiladi. Shu munosabat bilan mezog'ovakli aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit) jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va unumdorlikka ega bo'lgan katalizatorlarining kislotalilik xossalari o'rganish ham ularning faol markazlarining tabiatini yoritib berish, ham kislotalilik funksiyasini tartibga solish orqali selektivligini oshirish hamda yangi samarali jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va unumdorlikka ega bo'lgan katalizatorlarni yaratish nuqtayi nazaridan katta ahamiyatga ega.

Sintezlangan aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)larning kislotalilik xarakteristikalarini haroratda dasturlashtirilgan ammiak desorbsiyasi yo'li bilan o'rganilgan va 1-jadvalda keltirilgan.

1-jadval

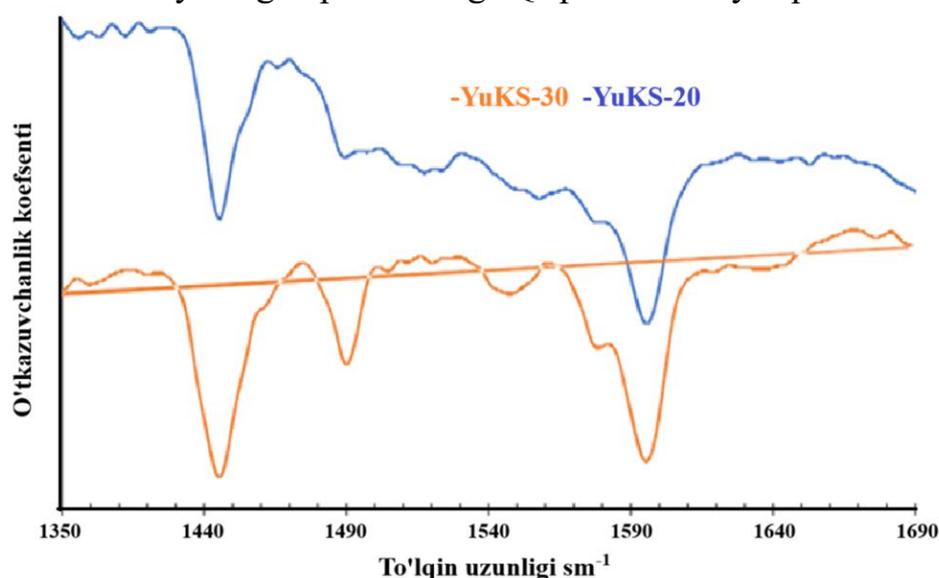
Sintezlangan mezog'ovakli aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit) kislotali joylarining konsentratsiyasi va kuchi

№	Namuna	Kislotali markazlar soni (so'rilgan NH ₃ miqdori, mkmol/g)			
		zaif T _{max} <300°C	o'rtacha T _{max} = 300-500°C	kuchli T _{max} >500°C	Umumiy miqdorlar
1	YuKS-20	1876	-	-	1876
2	YuKS-30	1144	27	-	1171

Mezog'ovakli aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lar yuzasida Brensted va Lyuis kislotalari joylari sonini aniqlash uchun adsorbsiyalangan piridin namunalari diffuz aks ettiruvchi infraqizil spektroskopiyasi tahlili o'tkazildi. Adsorbsiyalangan piridinning mezog'ovakli aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lardagi IQ spektrlari 3-rasmda keltirilgan.

3-rasmdagi ma'lumotlardan ko'rinib turibdiki, o'rganilayotgan namunalar 1445-1446, 1490 va 1595 sm⁻¹ da yutilish zonalarini namoyish etadi. Spektrlarda 1445-1446, 1595 sm⁻¹ da kuzatilgan chiziqlar Lyuis kislotali joylarida adsorbsiyalangan vodorod bilan bog'langan piridin mavjudligi bilan izohlanadi. Taxminan 1490 sm⁻¹ da kuzatilgan chiziq piridinning Lyuis va Brensted kislotali

joylarida adsorbsiyasi bilan bog‘liq. Shuni ta’kidlash kerakki, bu yutilish zonasi YuKS-20 da adsorbsiyalangan piridinning IQ spektrlarida yo‘q.

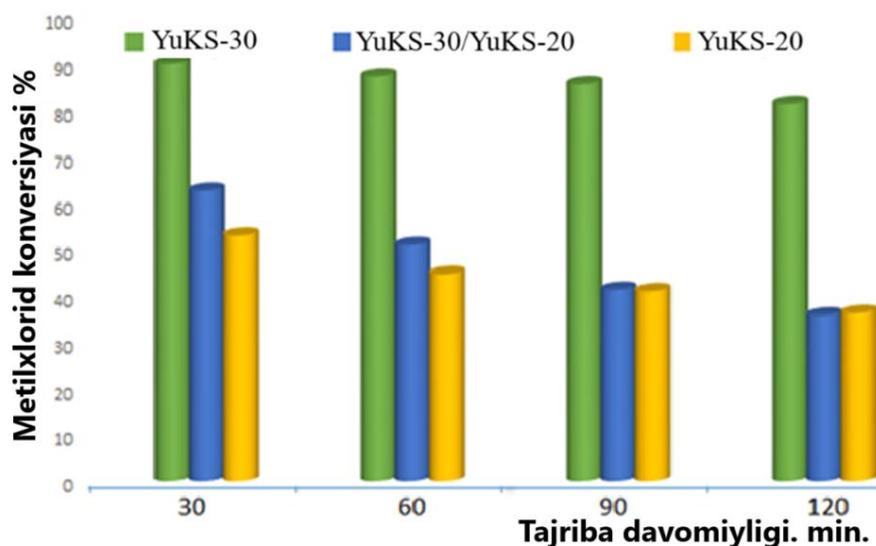


3-rasm. YuKS-20 va YuKS-30 mezog‘ovakli aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)larning IQ-spektrlari

Shunday qilib, turli xil manbalar yordamida YuKS-20 va YuKS-30 mezog‘ovak aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)lar sintez qilindi. Sintezlangan namunalar turli fizik-kimoviy tahlil usullaridan foydalangan holda o‘rganildi. Sintezlangan aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit)larda mezog‘ovak strukturaning mavjudligi past haroratli azot adsorbsiyasi/desorbsiya ma’lumotlari, SEM, rentgen nurlari diffraksiyasi va IQ spektroskopiyasi bilan tasdiqlangan. FTIR diffuz aks ettirish spektroskopiyasi va TPD-NH₃ tahlillariga ko‘ra, sintez qilingan materiallar yuzasida asosan zaif kislotalar joylari mavjudligi ko‘rsatilgan. Olingan ma’lumotlarga asosan, ikki funksiyali jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va unumdorlikka ega bo‘lgan katalizator uchun Al-manba sifatida alyuminiy ikkilamchi-butoksid yordamida sintez qilingan mezog‘ovak aluminosilikat (yuqori kremniyli seolit) istiqbolli sifatida tanlandi.

Dissertatsiyaning **“Monoxlormetandan etilen qatori uglevodorodlarini olish jarayonining natijalari va ularning muhokamasi”** deb nomlangan uchinchi bobida jarayonlarning kinetik qonuniyatlari o‘rganilgan va reaksiyaning maqbul sharoiti tanlangan.

Katta o‘lchamli kristallarga ega bo‘lgan YuKS-20 kristall panjarasi tuzilishi monoxlormetanning dastlabki konversiyaning 52% quyi qiymatini yuzaga keltiradi. YuKS-30 kristallari o‘lchamlari bilan solishtiriladigan kristallar o‘lchamlariga ega sokristallizat YuKS-20/YuKS-30 monoxlormetan boshlang‘ich konversiyasining oraliq qiymatini ta’minlaydi. Tadqiq qilingan silikoalyumomagniyfosfatlar namunalari: YuKS-20 va YuKS-20/YuKS-30 reaksiya vaqti davomida 35% gacha faollikning keskin tushishi bilan xarakterlanadi (4-rasm).



(Harorat 430°C, hajmiy tezlik 500 soat⁻¹).

4-rasm. Silikoalyumomagniyfosfatlarda (YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30, YuKS-30) monoxlormetanning konversiyasi bo'yicha ma'lumotlar

Etilenning hosil bo'lish selektivligi, shuningdek C₂₊ larning selektivligi deyarli kristall panjara tuzilish tipiga bog'liq emas. Barcha uchala namunalar uchun qiymatlar yaqin va etilen uchun 25-31 mol.% oraliqda, C₂₊ uchun 27-35 mol.% oraliqda tajriba boshlanganidan 500 daq o'tgach o'zgaradi. YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-20 namunalarda olingan propilen bo'yicha selektivlik YuKS-30 da olingan bu ko'rsatkich qiymatidan sezilarli past. Demak silikoalyumomagniyfosfatlarning 500 daq ekspluatatsiyasi o'tgach YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-20 da propilenning hosil bo'lish selektivligi mos ravishda 32mol% va 36mol%, YuKS-30 da esa 45 mol.% ni tashkil qildi. Bunda YuKS-20 va YuKS-20/YuKS-30 namunalarda tajribaning 500 daq C₂-C₃ quyi molekulyar to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya'ni etilen va propilenlarning umumiy hosil bo'lish selektivligi 64 mol% dan oshmasligi kuzatilgan, YuKS-30 da bu ko'rsatkich 71 mol.% ga teng. YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-20 silikoalyumomagniyfosfatlarda metanning hosil bo'lishi YuKS-30 olingan ma'lumotlar bilan solishtirganda ikki marta oshgan (2-jadval).

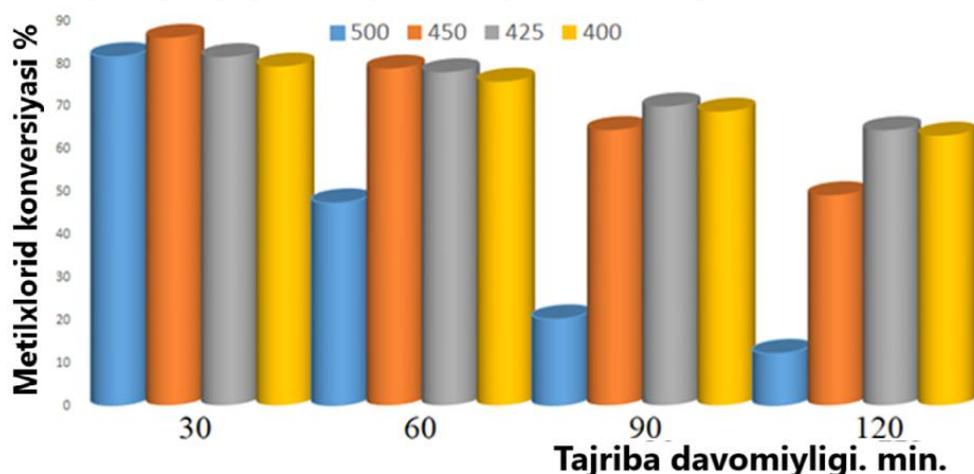
2-jadval

Silikoalyumomagniyfosfatlar asosida monoxlormetanni havosiz joyda yuqori haroratda qizdirish mahsulotlarining hosil bo'lish selektivligi
(Harorat 430°C, Hajmiy tezlik =500 soat⁻¹)

	Tajriba vaqti, daq.	YuKS-30	YuKS-20/ YuKS-30	YuKS-20
	Hosil bo'lish selektivligi, mol.%			
CH ₄	30	2,68	2,79	2,81
	60	2,01	3,42	3,11
	90	1,60	3,86	3,33
	500	1,44	3,96	4,02
C ₂ H ₄	30	10,58	18,24	20,69
	60	16,66	22,79	24,56

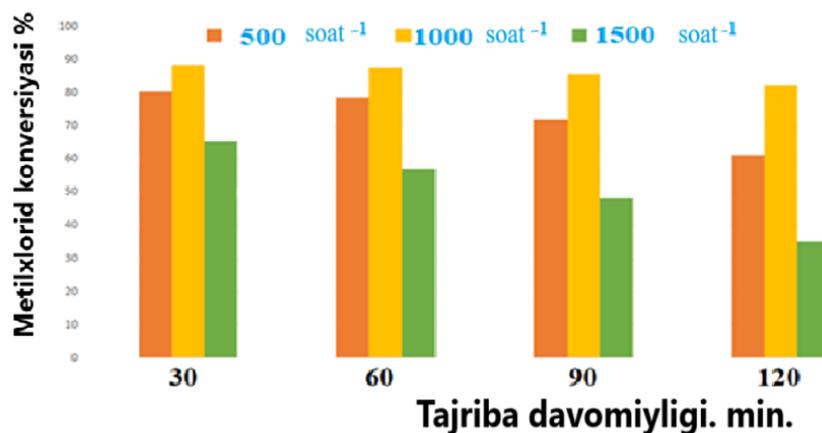
	90	22,04	25,66	26,69
	500	26,18	25,64	31,22
C_3H_6	30	22,29	32,47	34,38
	60	32,84	36,29	36,89
	90	39,45	37,53	38,23
	500	44,88	35,82	32,17
$\sum C_{2=} - C_{3=}$	30	32,86	50,68	55,07
	60	49,49	59,09	61,44
	90	61,48	63,19	64,92
	500	71,06	61,45	62,39
$\sum C_{2+}$	30	64,51	46,56	42,18
	60	48,53	37,55	35,49
	90	36,96	32,99	31,83
	500	27,51	34,65	32,66

5-rasmda monoxlormetan konversiyasi va quyi molekulyar to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya’ni etilen va propilenlar hosil bo‘lish selektivligi temperaturaviy bog‘liqligini aniqlash natijalari keltirilgan.



5-rasm. Turli temperaturalarda YuKS-30 silikoalyumomagniyfosfatda tajriba davomiyligiga bog‘liq holda CH_3Cl konversiyasi o‘zgarish dinamikasi. (Hajmiy tezlik – 1500 soat^{-1})

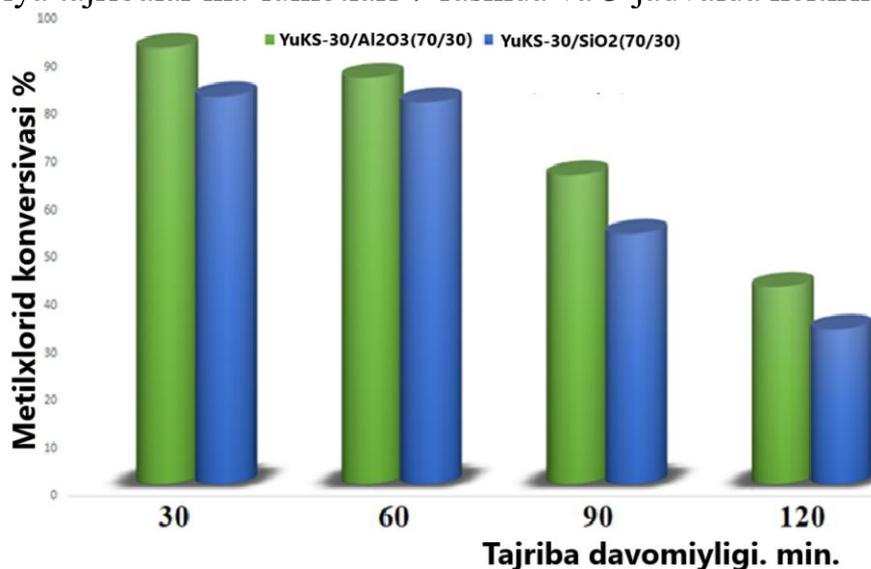
Quyi molekulyar to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya’ni etilen va propilenlar bo‘yicha umumiy selektivlik 400-450°C oraliqda harorat ortishi bilan 81 mol.% darajada saqlanadi, reaksiyani o‘tkazish haroratining 500°C gacha oshirilishi ko‘rsatkich qiymatining 28 mol.% gacha keskin pasayishi bilan kuzatiladi.



Harorat-430°C

6-rasm. Tajribaning davomiyligi bilan YuKS-30 da reagentlarning turli hajmiy tezligida monoxlormetan konversiyasining o'zgarish dinamikasi

Tajribalar qatori 430°C haroratda va monoxlormetanning 1000 soat⁻¹ hajmiy tezligida qo'zg'almas jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka ega bo'lgan katalizator qavatli reaktordan foydalanib o'tkazildi. Laboratoriya tajribalar ma'lumotlari 7-rasmda va 3-jadvalda keltirilgan.



Harorat 430°C, hajmiy tezlik – 1000 soat⁻¹

7-rasm. Tajriba davomiyligiga bog'liq holda CH₃Cl konversiyasi o'zgarishi dinamikasi

YuKS-30/Al₂O₃ namunada monoxlormetanning boshlang'ich konversiyasi yuqori 66 % ni tashkil qilishini ko'rsatdi. Sintez qilingan ikkala namunalarda ham katalizator ishlash vaqtining ko'payishi bilan katalizator faolligining pasayishi kuzatiladi. YuKS-30/Al₂O₃ da tajriba boshlanishidan 500 daq o'tgach monoxlormetan konversiyasining 42% gacha pasayadi, YuKS-30/SiO₂ da esa 36% gacha tushadi.

YuKS-30/Al₂O₃ va YuKS-30/SiO₂ namunalarda quyi molekulyar to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya‘ni etilen va propilenlar bo‘yicha umumiy selektivlik jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka ega bo‘lgan va selektiv katalizator ishlashining 500 daq o‘tgach, mos ravishda 82 mol.% va 75 mol.% etadi.

Vodorod xlorid havosiz joyda yuqori haroratda qizdirish jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka ega bo‘lgan va selektiv katalizatori uchun bog‘lovchi tarkibiy qism sifatida Al₂O₃ foydalanish tavsiya etiladi.

Monoxlormetanning 1000 soat⁻¹ hajmiy tezligida va 430°C haroratda chiziqli tezlikning 1,0-7,0 sm/m opalig‘ida o‘zgartirilganda tajribalar oshirildi. Tanlangan chiziqli tezliklar oralig‘ida monoxlormetanning konversiyasi, shuningdek yuqori haroratda havosiz joyda qizdirib parchalash asosiy mahsulotlarining hosil bo‘lish selektivligi deyarli o‘zgarishsiz qoladi.

3 - jadval

Silikoaliumomagniyfosfatlarda: YuKS-30/Al₂O₃ va YuKS-30/SiO₂ reaksiya mahsulotlari hosil bo‘lishi selektivligi.

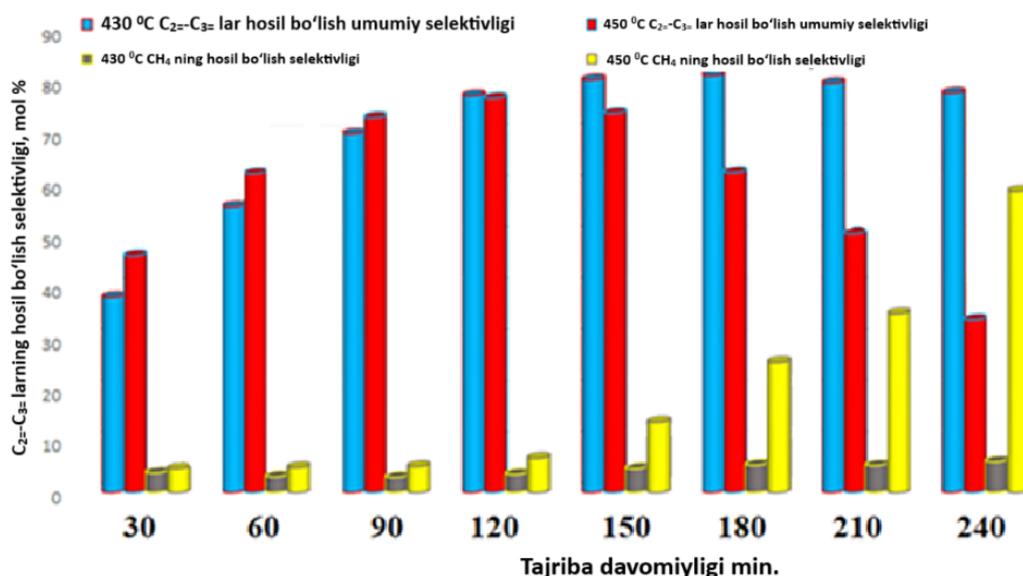
Harorat 430°C, hajmiy tezlik – 1500 soat⁻¹

Katalizator namunalari	Tajriba vaqti, daq.	Hosil bo‘lish selektivligi, mol.%				
		CH ₄	C ₂ H ₄	C ₃ H ₆	$\sum C_2 - C_3$	C ₂₊
YuKS-30/ Al ₂ O ₃ (70/30)	30	2,25	18,59	32,35	50,86	47,06
	60	2,26	27,78	42,99	70,79	27,13
	90	2,59	35,31	42,94	78,27	19,29
	500	4,11	40,01	40,88	81,87	14,11
YuKS-30/ SiO ₂ (70/30)	30	2,18	17,06	31,07	48,08	49,94
	60	2,21	25,96	40,03	65,66	32,23
	90	2,46	30,98	40,44	71,35	26,29
	500	3,03	37,63	37,46	75,12	21,07

Monoxlormetan konversiyasi va quyi molekulyar to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya‘ni etilen va propilenlar hosil bo‘lishi umumiy selektivligi bo‘yicha sanoat ahamiyatiga molik qiymatlar monoxlormetan katalitik havosiz joyda yuqori haroratda qizdirish jarayonini soxta suyultirish rejimida 430-450°C haroratlar oralig‘ida va monoxlormetanning 1000 soat⁻¹ hajmiy yuborilish tezligida erishilishi qayd qilingan.

Reaksiya mahsulotlari aralashmasi tahlili ko‘rsatadiki, jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka ega bo‘lgan va selektiv katalizator ishlashining birinchi 500 daqiqasida to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya‘ni etilen bilan propilenlar bo‘yicha umumiy selektivlik 430-450°C haroratlar oralig‘ida 77-79 mol.% ga etadi. Jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan katalizatorning ancha uzoq ekspluatatsiyasi 240 daq davomida 430°C haroratda to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya‘ni etilen bilan propilenlar bo‘yicha umumiy selektivlikning 79-80% darajada barqarorlashiga olib keladi. O‘z navbatida, tajriba davomiyligini 450°C haroratda 240 daqiqagacha oshirilishi bilan quyi molekulyar to‘yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya‘ni etilen va

propilenlar bo'yicha selektivlikning 79 mol.% dan 32 mol.% gacha pasayishi kuzatiladi.



YuKS-30/Al₂O₃-mikrosfera, hajmiy tezlik-1000 soat⁻¹.

8-rasm. Tanlangan katalizator va turli haroratlarda yuqori katalitik faollikka ega bo'lgan, tanlab ta'sir etuvchi katalizatorning ishlash vaqtiga bog'liq holda C₂-C₃ larning hosil bo'lish selektivligi va CH₄ hosil bo'lishiga selektivligining o'zgarish dinamikasi

Monoxlormetanning yuqori haroratda havosiz joyda qizdirib parchalash jarayonini 430-450°C haroratda va monoxlormetan yuborilishining 1000-900 soat⁻¹ hajmiy tezliklari oralig'ida amalga oshirish tavsiya etiladi.

Tanlangan sharoitlarda YuKS-30/Al₂O₃-mikrosfera katalizatorining faol ishlash davri 500 daq ga teng, bu monoxlormetanni havosiz joyda yuqori haroratda qizdirish jarayonini monoxlormetanning 65% dan yuqori konversiyasi, shuningdek esa to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlar ya'ni etilen bilan propilenlar bo'yicha umumiy selektivlik bilan 79% darajada o'tishini ta'minlaydi.

Dissertatsiyaning **“Monoxlormetandan etilen qatori uglevodorodlari ishlab chiqarish texnologiyasi”** deb nomlangan to'rtinchi bobida monoxlormetanni katalitik pirolizlab, etilen qatori uglevodorodlarini olish texnologiyalari yoritilgan.

Tadqiqot davomida olingan ilmiy va eksperimental ma'lumotlar natijalari asosida monoxlormetanni katalitik yuqori haroratda va havosiz joyda qizdirib quyi molekulyar to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilen olish usulining asosiy texnologik sxemasi ishlab chiqilgan (9-rasm). Tabiiy gazdan olingan monoxlormetan rekuperativ issiqlik almashtirgichda isitiladi va rektifikatsion kolonnasidan (5) reaksiyaga kirishmagan monoxlormetanni qayta ishlash bilan birga monoxlormetanni yengil to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilenlarga katalitik aylantirish uchun talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan katalizatorga yuboriladi. Monoxlormetandan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilenni olish talab etilayotgan eksperimental jarayoni 3 atm bosim va

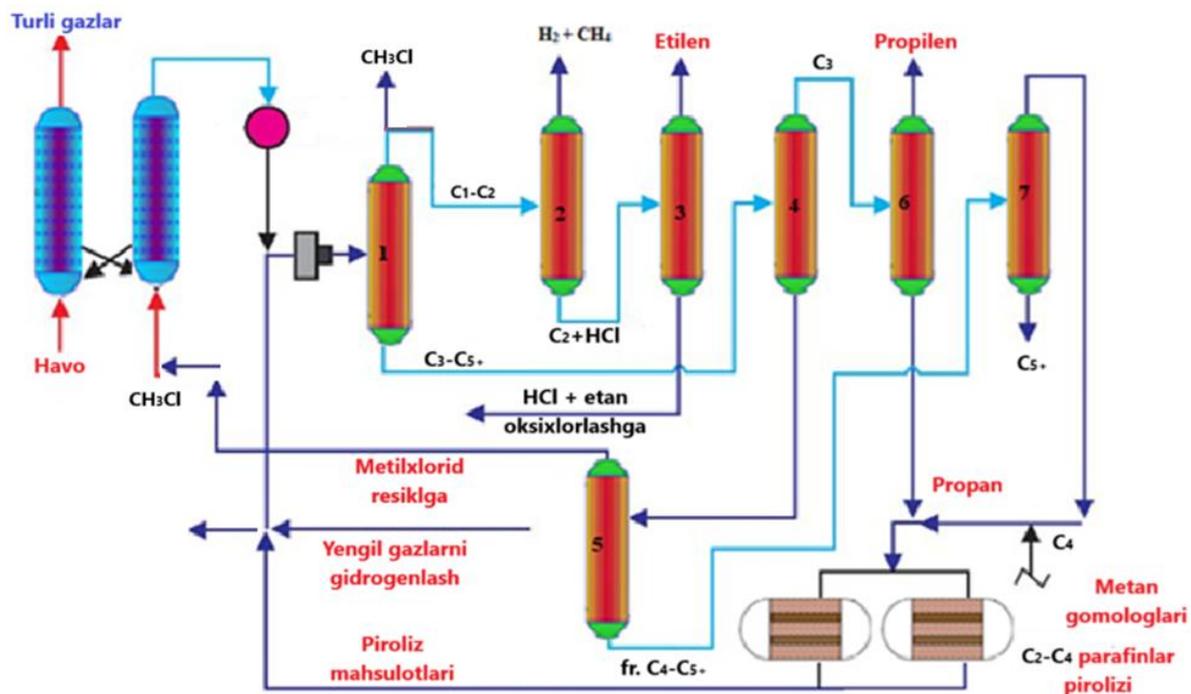
425-450 °C haroratda silikoalyuminomagniyfosfat talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va tanlab ta'sir etuvchanlikka ega bo'lgan katalizatori YuKS-30 ning suyuqlangan qatlamida amalga oshiriladi. Reaksiyaning issiqlik effekti juda sezilarsiz va etilen va yon mahsulot metan uchun talab etilayotgan eksperimental jarayonning tanlab ta'sir etuvchanligiga qarab, ijobiy yoki salbiy bo'lishi mumkin.

Monoxlormetandan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilenni olish talab etilayotgan eksperimental jarayonini amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va tanlab ta'sir etuvchanlikka ega bo'lgan katalizatorning doimiy faolligini ta'minlash uchun regeneratori ishlatiladi, unga kokslangan talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va tanlab ta'sir etuvchanlikka ega bo'lgan katalizatorning bir qismi doimiy ravishda sochiladi va talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va tanlab ta'sir etuvchanlikka ega bo'lgan katalizator yuzasida to'plangan uglerod qatlamlari havo bilan yondiriladi. Regeneratsiya qilingan talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan yuqori katalitik faollikka va tanlab ta'sir etuvchanlikka ega bo'lgan katalizator doimiy ravishda talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan katalizatorga qaytariladi. Regeneratsiya issiqligi o'rnatilgan issiqlik almashtirgichda chiqariladi, natijada suv bug'lari paydo bo'ladi.

Regeneratsiya uchun beriladigan havo regeneratsiyadan so'ng chiqindi havo bilan rekuperativ issiqlik almashtirgichda isitiladi.

Metan vodorod fraksiyasi oltingugurt saqlovchi birikmalarni vodorodning birikishi uchun vodorod manbai sifatida dastlabki tabiiy gaz bilan aralashtirish va metanni talab etilayotgan eksperimental jarayonga qaytarish uchun yuboriladi. Kolonnaning pastki suyuqligi (2) etilen kolonnasiga (3) xomashyo sifatida kiradi. Ushbu kolonnaning yuqori qismidan tayyor etilen chiqariladi va etan bilan birga kubdan vodorod xlorid chiqariladi, ular orasidagi qaynash nuqtalari farqi ~ 3,5 °C ni tashkil qiladi. Vodorod xloridni etilendan to'liq ajratish talab qilinmaydi, chunki ajratilgan etilen vinilxlorid ishlab chiqarishda etilenni to'g'ridan-to'g'ri va oksidlovchi xlorldash orqali dixloroetan olish bosqichiga o'tadi. 1% gacha etan bo'lgan vodorod xlorid metanni oksidlovchi xlorldash orqali monoxlormetan hosil qilish bosqichi beriladi. Olingan xloroetanlar, shuningdek, monoxlormetan havosiz joyda yuqori haroratda qizdirishda asosan to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilennlarni beradi. Kolonnaning pastki suyuqligi (4) kolonnaning yuqori qismidan talab etilayotgan eksperimental jarayonni amalga oshirish uchun tanlangan katalizatorga qaytarilgan reaksiyaga kirishmagan monoxlormetan (5) va C₄-C₅ fraksiyasi ajratilgan kolonnaga (5) kiradi. Kolonnaning flegmali sig'imidan propan-propilen fraksiyasi (4) propilen kolonnasiga nasos orqali yuboriladi (6). Tovar propilen kolonnaning yuqori qismidan olinadi (6) va propan fraksiyasi kolonnaning pastki qismidan chiqariladi, u qo'shimcha miqdorda quyi to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilennlarga qayta ishlash uchun yuboriladi yoki butan bilan aralashmada suyultirilgan maishiy gaz sifatida butilen fraksiyasi ishlatilishi mumkin.

Kolonnaning pastki qismidan (5) C_4-C_{5+} fraksiyasi chiqariladi, u kolonnada (7) distillat shaklida C_4 fraksiyasiga va pastki suyuqlik shaklida C_{5+} fraksiyasiga bo'linadi. C_{5+} fraksiyasi suyuq yoqilg'i sifatida ishlatilishi mumkin va C_4 fraksiyasi quyi to'yinmagan etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilenlarga qayta ishlash uchun yuborilishi yoki suyultirilgan gaz sifatida ishlatilishi mumkin.



9-rasm. Monoxlormetandan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlaridan etilen va propilen olish jarayonining texnologik sxemasi

XULOSA

“Metilxloriddan quyi molekulyar etilen qatori uglevodorodlarini olish texnologiyasi” mavzusidagi falsafa doktori (PhD) dissertatsiyasi bo'yicha olib borilgan tadqiqotlarga asoslangan holda, nazariy va amaliy ahamiyatga ega bo'lgan quyidagi xulosalar taqdim etiladi.

1. Jarayonni amalga oshirishga imkon beradigan silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli yuqori faolligi, termik barqarorligi, unumdorligi, tanlab ta'sir etuvchanligi bilan xarakterlanadigan mahalliy xomashyolardan olingan mikrosferik katalizatorning maqbul tarkibi tanlandi.

2. Fizik-kimyoviy (rentgenostruktur, elektron-mikroskopik, xromatografik analiz, skanirlovchi elektron mikroskopiya va IQ-spektroskopiya) usullarda katalizatorning tuzilishi va tarkibi o'rganildi hamda mahalliy xomashyolardan olingan katalizatorlar tuzilishining uning katalitik faolligiga ta'siri aniqlandi.

3. Davriy rejimda silikoalyumomagniyfosfatlardan iborat YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 va YuKS-30 tarkibli katalizatorlarda monoxlormetandan quyi to'yinmagan ya'ni qo'sh bog' saqlagan uglevodorodlar olish reaksiyalarining

kinetik qonuniyatlari aniqlandi va reaksiyasining kinetik qonuniyatlarini o'rganish asosida reaksiyaning kinetik modellari tanlandi va faollanish energiyasi baholandi.

4. Silikoalyuminomagniyfosfat asosidagi mikrosferik katalizatorlarni qayta tiklash jarayoni birinchi marta o'rganildi va regenerasiya sharoitlarida monoxlormetanni qizdirib katalitik parchalanishi va katalizatorning regenerasiyasi uchun mo'ljallangan reaktor blokida birlashtirishga imkon berishi o'rganildi.

5. Monoxlormetandan etilen va propilenlar olishning ilmiy asoslari ishlab chiqildi hamda etilen qatori uglevodorodlarini ishlab chiqarishning texnologiyasi yaratildi.

**НАУЧНЫЙ СОВЕТ DSc.17/7.06.2024.К/Т.06.03 ПО ПРИСУЖДЕНИЮ
УЧЕНЫХ СТЕПЕНЕЙ ПРИ НАВОЙСКОМ ГОСУДАРСТВЕННОМ
ГОРНО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКОМ УНИВЕРСИТЕТЕ**

САМАРКАНДСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ

ЖАВХАРОВ ЖОНИБЕК ЖУРАҚУЛ УГЛИ

**ТЕХНОЛОГИЯ ПОЛУЧЕНИЯ НИЗКОМОЛЕКУЛЯРНЫХ
УГЛЕВОДОРОДОВ ЭТИЛЕНОВОГО РЯДА ИЗ ХЛОРИДА МЕТИЛА**

02.00.14–Технология органических веществ и материалы на их основе

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации доктора философии (PhD) по техническим наукам

Навои – 2025

Тема диссертации доктора философии (PhD) зарегистрирована в Высшей аттестационной комиссии при министерстве Высшего образования, науке и инноваций Республики Узбекистан под номером № В2024.3.PhD/Т4839

Докторская диссертация выполнена в Самаркандском государственном университете. Автореферат диссертации на трех языках (узбекском, русском, английском (резюме) размещен на веб-странице Научного совета по адресу www.nsumt.uz и на информационно-образовательном портале «Ziyonet» (www.ziyonet.uz).

Научный руководитель:	Файзуллаев Нормурот Ибодуллаевич доктор технических наук, профессор
Официальные оппоненты:	Вапоев Хуснитдин Мирзоевич доктор технических наук, профессор Адилов Равшан Иркинович доктор технических наук, профессор
Ведущая организация:	Термезский государственный университет

Защита диссертации состоится 31.05.2025 года в 15-00 часов на заседании Научного совета DSc.17/7.06.2024.К/Т.06.03. (Адрес: 210100, г. Навои, ул. Галаба шох, 76в. Зал заседаний Навоийского государственного горно-технологического университета. Тел.: 0 (436) 223-23-32; факс: 0 (436) 223-49-66; (e-mail: info@ndki.uz).

С диссертацией можно ознакомиться в Информационно-ресурсном центре Навоийского государственного горно-технологического университета (зарегистрирован за № 199). Адрес: 210100, г. Навои, ул. Галаба шох, 76в. Тел.: 0 (436) 223-23-32; факс: 0 (436) 223-49-66.

Автореферат диссертации разослан 13.05.2025

(реестр протокола рассылки №7 от 13.05.2025).

Б.Ф.Мухамдинов

Председатель Научного совета
по присуждению ученых
степеней, д.т.н., профессор

С.Ш.Шарипов

учетный секретарь Научного совета по
присуждению ученых степеней, PhD., доцент

Х.М. Вапоев

Председатель Научного семинара при Научном
совете по присуждению ученых
степеней, д.т.н., профессор

ВВЕДЕНИЕ(аннотация диссертации доктора философии (PhD))

Актуальность и востребованность темы диссертации. В мире ненасыщенные углеводороды, особенно этилен и пропилен, являются одними из наиболее востребованных органических продуктов. Они широко используются в химической и нефтехимической промышленности в качестве исходных полуфабрикатов. Уровень развития нефтехимической промышленности страны во многом определяется объемами синтеза этилена и пропилена, а также ненасыщенных низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда. Следует отметить, что производство углеводородов этиленового ряда в настоящее время является одной из наиболее динамично развивающихся отраслей нефтехимии. В связи с этим увеличение сырьевой базы для производства этилена и пропилена из низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда, а также создание новых источников сырья представляют собой важные задачи нефтехимической промышленности. Использование природного газа в качестве сырья для получения этилена и пропилена, разработка технологий данного процесса и их внедрение в промышленность имеют особое значение.

В настоящее время в мире рассматриваются альтернативные методы синтеза ненасыщенных углеводородов с двойной связью из природного газа для производства этилена и пропилена из монохлорметана. В этих процессах ведутся научные исследования по выбору катализаторов, обладающих высокой селективностью, активностью, производительностью и стабильностью для получения этилена, пропилена и бутиленов путем разложения молекул монохлорметана, а также по изучению условий регенерации катализатора и кинетики процессов. В этом направлении особое внимание уделяется выбору состава катализаторов с высокой производительностью, селективностью и стабильностью, а также разработке энергосберегающих и ресурсосберегающих технологий для переработки природного газа и синтеза из него этилена и пропилена с максимальной эффективностью.

В последние годы в химической промышленности нашей республики, как и в других отраслях, достигнуты значительные научно-практические результаты благодаря внедрению передовых научных мер, направленных на создание новых материалов. В указе¹ Президента Республики Узбекистан подчеркивается важность «ускоренного развития перерабатывающих отраслей, особенно производства готовой продукции с высокой добавленной стоимостью на основе глубокой переработки местных сырьевых ресурсов, а также модернизации и диверсификации промышленности». Исходя из этих задач, разработка инновационных методов получения этилена и пропилена из ненасыщенных углеводородов этиленового ряда на основе природного газа, их усовершенствование, создание экологически

¹Указ Президента Республики Узбекистан от 7 февраля 2017 года №ПФ-4947 «О Стратегии действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан» // Сборник нормативно-правовых актов Республики Узбекистан. – Ташкент, 2017. – 103 с.

безопасных, энергетически и ресурсосберегающих технологий и внедрение их в производство представляют большую научную и практическую значимость.

Указы Президента Республики Узбекистан от 3 апреля 2019 года № ПҚ-4265 «О мерах по дальнейшему реформированию химической промышленности и повышению её инвестиционной привлекательности» и от 12 августа 2020 года № ПҚ-4805 «О мерах по повышению качества непрерывного образования и эффективности научных исследований в химических и биологических направлениях», а также Указ Президента Республики Узбекистан от 28 января 2022 года № ПФ-60 «О Стратегии развития Нового Узбекистана на 2022–2026 годы» и Постановление № ПҚ-436 «О мерах по повышению эффективности реформ, направленных на переход Республики Узбекистан к "Зелёной" экономике до 2030 года», Постановление от 13 февраля 2021 года № ПҚ-4992 «О мерах по дальнейшему реформированию и финансовому оздоровлению предприятий химической промышленности, развитию производства химической продукции с высокой добавленной стоимостью», Постановление от 24 января 2022 года № ПҚ-99 «О мерах по созданию эффективной системы развития производства и расширения промышленной кооперации в республике», а также другие нормативно-правовые акты, относящиеся к данной деятельности, определяют задачи, которые служат основой для реализации результатов данного диссертационного исследования.

Соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологий республики. Данное исследование выполнено в соответствии с приоритетным направлением VII «Химические технологии и нанотехнологии» развития науки и технологий в Республике Узбекистан.

Степень изученности проблемы. Целенаправленные научные исследования по получению этилена и пропилена из монохлорметана, повышению эффективности катализаторов, перспективам производства этилена и совершенствованию технологий его производства периодически проводились в научных школах таких ученых, как Ю.А. Трегер, И.И. Моисеев, Вэй И, Чжан Д., В.Н. Розанов, А.В. Тимошенко, С.В. Соколова, О.П. Мурашова, А.С. Виноградов, В.С. Воробьев, В.А. Даут, В.Ф. Третьяков, Г.С. Дасаева, И.И. Иванова, Е.Е. Князева, В.Я. Яскова, И.С. Силина, Е.А. Касман, Л.Г. Брук, Л.Д. Исхакова, Р.П. Ермаков, В.В. Колташев, С.М. Туробжонов и Н.И. Файзуллаев.

Несмотря на большое количество исследований, посвященных процессу получения этилена и пропилена из монохлорметана, до сих пор не создан высокоэффективный, стабильный, прочный, недорогой и активный катализатор, обладающий высокой селективностью. Кроме того, продолжаются научные работы по комплексному изучению факторов, влияющих на скорость реакции, детальному описанию механизмов образования промежуточных продуктов и их кинетики, а также созданию промышленных технологий и внедрению их в производство.

Связь диссертационного исследования с планами научно-исследовательских работ высшего образовательного учреждения, где выполнена диссертация. Диссертационное исследование выполнено в рамках проекта «Технология получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда из метилхлорида» в соответствии с планом научно-исследовательских работ Самаркандского государственного университета имени Шарофа Рашидова.

Цель исследования заключается в разработке технологии получения этилена и пропиленов из монохлорметана.

Задачи исследования:

подбор оптимального состава микросферического катализатора, характеризующегося высокой активностью, термической стабильностью, производительностью и селективностью, изготовленного из местного сырья на основе силикоалюмомагнийфосфатов (YuKS-20, YuKS-20/ YuKS-30 и YuKS-30).

изучение структуры и состава катализатора методами физико-химического анализа (электронно-микроскопический, хроматографический анализ, рентгеноструктурный анализ, ИК-спектроскопия и сканирующая электронная микроскопия), а также определение влияния структуры катализаторов, изготовленных из местного сырья, на их каталитическую активность.

изучение кинетических закономерностей реакции получения этилена и пропиленов из монохлорметана на катализаторах состава YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30 в периодическом режиме, выбор кинетических моделей реакции и оценка энергии активации.

исследование процесса регенерации микросферических катализаторов состава YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30, созданных на основе силикоалюмомагнийфосфатов.

разработка научных основ процесса получения этилена и пропиленов из монохлорметана и создание технологической схемы производства углеводородов этиленового ряда.

Объект исследования В качестве объекта исследования были взяты этилен, пропилен, метилхлорид и катализатор.

Предмет исследования Предметом исследования являются реакции получения этилена и пропилена из монохлорметана с использованием катализаторов.

Методы исследования: В процессе исследования применялись следующие методы-газовая хроматография, ИК-спектроскопия, рентгенофазовый анализ и сканирующая электронная микроскопия.

Научная новизна исследования заключается в следующем:

На основе местного сырья были созданы катализаторы, содержащие силикоглиноземно-магниево-фосфаты, такие как YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30, и с их участием был осуществлён синтез ряда углеводородов, включая этилен и пропилен, из монохлорметана;

исследованы структура, текстурные характеристики и состав катализаторов YuKS-20, YuKS-20/ YuKS-30 и YuKS-30 физико-химическими методами, а также установлена взаимосвязь между их структурой и активностью;

определены кинетические закономерности реакции получения низкомолекулярных ненасыщенных углеводородов из монохлорметана на катализаторах YuKS-20, YuKS-20/ YuKS-30 и YuKS-30 в периодическом режиме, а также оценена энергия активации;

впервые изучен процесс регенерации микросферических катализаторов на основе силикалюмомагнийфосфатов и выбраны оптимальные условия регенерации;

на основе местного сырья разработана технология производства углеводородов ряда этилена из монохлорметана с использованием катализаторов состава YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30.

Практические результаты исследования заключаются в следующем:

были выбраны оптимальные условия проведения реакции с точки зрения выхода продукта.

разработан высокоселективный и работоспособный катализатор, который в условиях периодического режима и в дифференциальном реакторе позволяет увеличить выход ненасыщенных углеводородов с двойной связью из монохлорметана.

установлено, что катализатор, изготовленный на основе местного сырья, обладает селективностью 64-71% и производительностью 82%.

Достоверность полученных результатов обеспечивается использованием газохроматографического анализа, рентгенофазового анализа и других методов исследования. Совпадение теоретических и экспериментальных данных подтверждает надежность выводов. Кроме того, достоверность результатов доказана с использованием статистических методов.

Научная и практическая значимость результатов исследований.

Научное значение заключается в том, что были изучены кинетические закономерности проводимых процессов, оценена энергия активации реакций и предложены условия для регенерации катализаторов.

Практическое значение заключается в разработке технологических, научных и фундаментальных решений для осуществления процесса каталитического разложения монохлорметана в условиях высокой температуры и без доступа воздуха. Также предложена технологическая схема получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда, таких как этилен и пропилен.

Результаты исследования позволяют увеличить выход этилена и пропилена, что способствует более эффективному использованию природного газа, снижению расхода природного сырья и расширению возможностей получения сырья, важного для процессов органического синтеза.

Внедрение результатов исследования. На основе научных результатов, полученных по разработке технологии получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда из метилхлорида:

Технология получения катализаторов состава YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30, содержащих силикоглиноземно-магниево-фосфаты, предназначенных для синтеза этилена путём разложения монохлорметана, была внедрена на практике на АО «Муборакский газоперерабатывающий завод» (справка №765/GK-08 от 20 августа 2024 года АО «Муборакский газоперерабатывающий завод»). В результате применение данных катализаторов позволило достичь экономическую эффективность по сравнению с импортными аналогами.

Технология получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда из монохлорметана с использованием катализаторов YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30 была успешно внедрена на АО «Муборакский газоперерабатывающий завод».

В результате удалось достичь 71% конверсию монохлорметана и общую селективность образования этилена и пропилена на уровне 82%.

Апробация результатов исследования. Результаты данного исследования были представлены и апробированы на 6 научно-практических конференциях.

Опубликованность результатов исследования. По теме диссертации опубликовано в общей сложности 16 научных работ, из них 7 статей в изданиях, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией Республики Узбекистан для публикации основных научных результатов докторских диссертаций. В том числе 2 статьи опубликованы в республиканских журналах, а 5 — в зарубежных.

Структура и объем диссертации. Структура диссертации состоит из введения, четырех глав, общих выводов, списка использованной литературы и приложений. Общий объем диссертации составляет 107 страниц.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Во введении обоснована актуальность проводимого исследования и его востребованность, определены цель и задачи исследования, охарактеризованы объект и предметы исследования. Показано соответствие исследования приоритетным направлениям развития науки и технологий Республики. Изложена научная новизна и практические результаты исследования, раскрыта научная и практическая значимость полученных результатов. Приведены рекомендации по применению результатов исследования на практике, информация о публикациях и структура диссертации.

В первой главе диссертации, под названием «Анализ литературных данных по катализатору и технологии производства углеводородов этиленового ряда с низкой молекулярной массой из природного газа»,

детально рассматриваются результаты исследований по теме, а также проведен анализ зарубежной и отечественной литературы.

Во второй главе, под названием «**Объект, предмет и методы получения низкомолекулярных углеводородов ряда этилена из монохлорметана.**», описана экспериментальная установка для изучения кинетики реакции каталитического пиролиза монохлорметана, методика проведения эксперимента и анализа продуктов реакции.

Представлены исследования по синтезу катализатора. Характеристики катализаторов изучены с использованием физико-химических методов. Продуктивность реакции и состав продуктов реакции были определены с помощью газовой хроматографии.

На рисунке 1 показаны изотермы адсорбции/десорбции азота и распределение пор до и после делюминации для образцов YuKS-20. Видно, что для этих образцов, свойственных мезо-макропористым материалам, при резком повышении давления $P/P_0 \sim 1$ была получена изотерма типа IV с гистерезисной петлей типа H1 по классификации IUPAC.

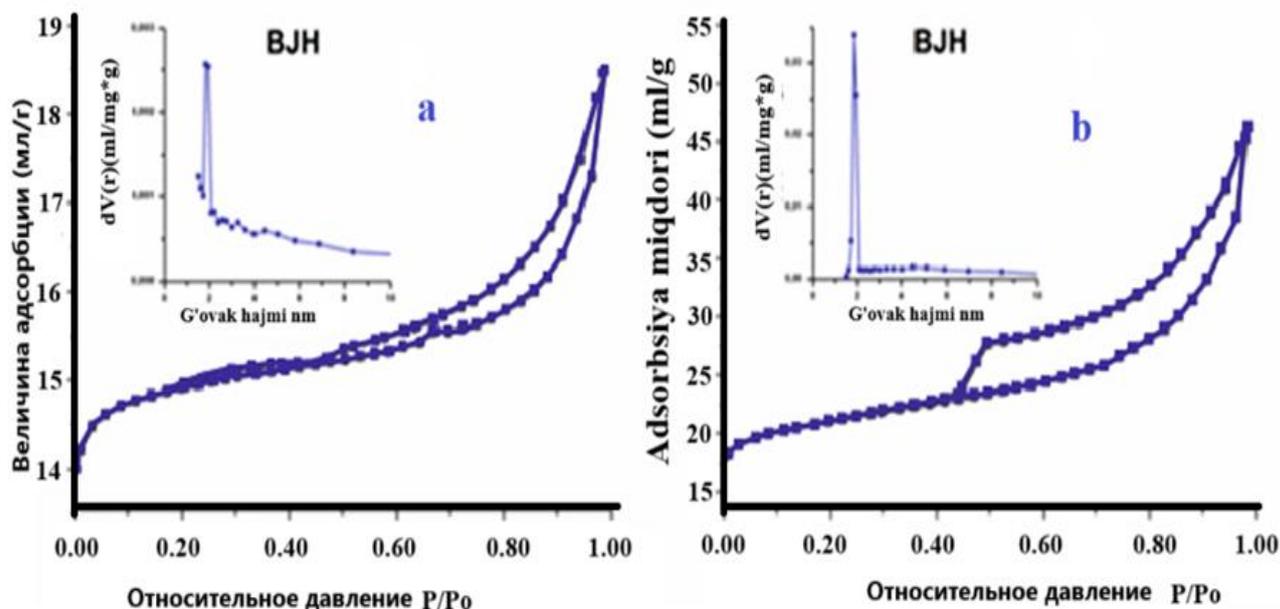


Рис.1. Изотермы адсорбции-десорбции азота и распределение пор для образцов: YuKS-20 (a) и YuKS-30 (b).

Пористая структура образца YuKS описана специфической поверхностью $315 \text{ м}^2/\text{г}$ и соответствующими объемами микро-, мезо- и макропор $0,12$, $0,20$ и $0,33 \text{ см}^3/\text{г}$. Обработка мезо- и макропористого высококремнеземного цеолита лимонной кислотой приводит к увеличению специфической поверхности и объема мезо- и макропор. Когда в цеолит вводят магний, фосфор и железо, из-за частичной блокировки их оксидами поверхность и поры уменьшаются.

На кривой распределения виден узкий пик, который указывает на распределение по размеру мелких пор.

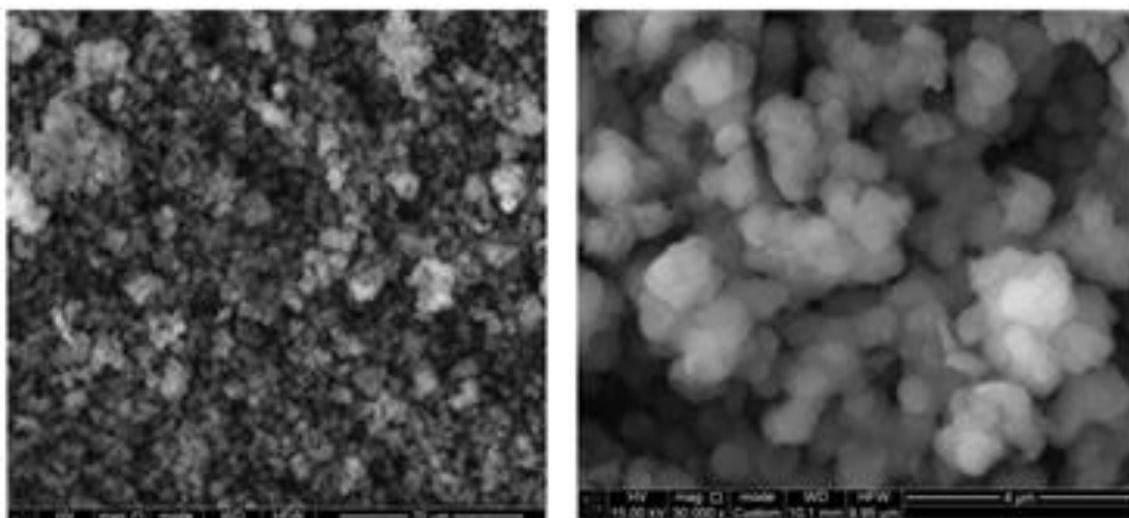


Рис.2. SEM -изображения синтезированных YuKS-20 и YuKS-30, увеличенные в 5000 и 30000 раз.

Рис.2. Согласно изображению SEM синтезированного алюмосиликата (высококремнеземного цеолита) YuKS-30, видно множество одинаковых круглых частиц со средним диаметром 610 нм. Этот диаметр является характерным для мезопор, синтезированных в основной среде, что подтверждает мезопористую структуру полученных образцов.

Таким образом, данные, полученные с помощью низкотемпературной азотной адсорбции/десорбции, BET, SEM и рентгенофазового анализа с малым углом, показывают, что синтезированные образцы характеризуются мезопористостью с гексагональным расположением пор. Кроме того, мезопористые алюмосиликаты (высококремнеземные цеолиты) сохраняют свою структуру после обжига при 600°C для удаления шаблона. Однако в случае с YuKS-20, где использовался изопропоксид алюминия как источник алюминия, несмотря на высокий специфический поверхностный участок, наблюдается уменьшение пористости и разрушение мезоструктуры.

Кислотно-щелочные центры в составе алюмосиликатов (высококремнеземных цеолитов) оказывают сильное влияние на качество и количественный состав продуктов реакции. В связи с этим изучение кислотных свойств катализаторов, выбранных для проведения процесса с высокой каталитической активностью и производительностью, имеет важное значение для понимания природы их активных центров, а также для повышения избирательности через регулирование кислотности. Это также важно с точки зрения создания новых эффективных процессов и катализаторов с высокой каталитической активностью и производительностью.

Кислотные характеристики синтезированных алюмосиликатов (высококремнеземных цеолитов) были изучены методом аммиачной десорбции при программируемой температуре, и результаты приведены в 1-й таблице.

Концентрация кислотных центров и прочность синтезированного мезопористого алюмосиликата (высококремнеземистого цеолита)

№	Образец	Количество кислотных центров (количество поглощенного NH ₃ , мкмоль/г)			Общие величины
		слабая T _{max} < 300°C	средняя T _{max} = 300-500°C	сильная T _{max} > 500°C	
1	YuKS-20	1876	-	-	1876
2	YuKS-30	1144	27	-	1171

Для определения количества кислотных центров Брёстеда и Льюиса на поверхности мезопористых алюмосиликатов (высококремнеземных цеолитов) была проведена диффузионная отражающая инфракрасная спектроскопия с использованием адсорбированного пиридина. ИК спектры для адсорбированного пиридина на мезопористых алюмосиликатах (высококремнеземных цеолитах) приведены на 6-ом рисунке.

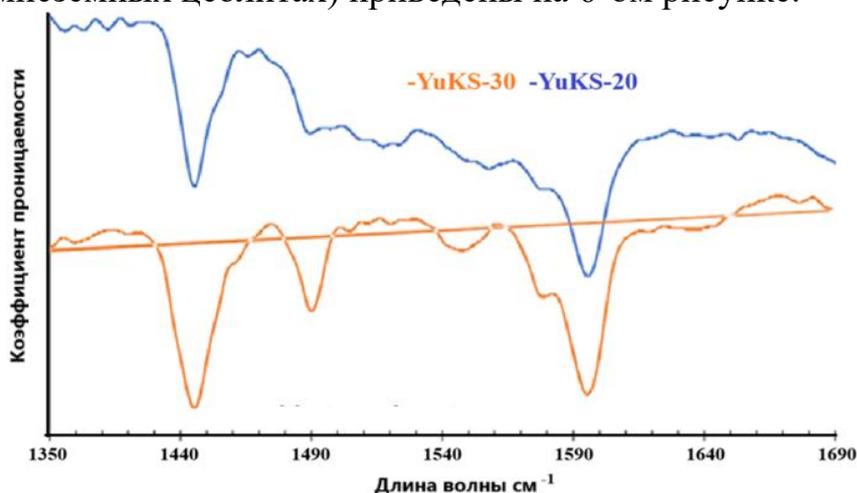


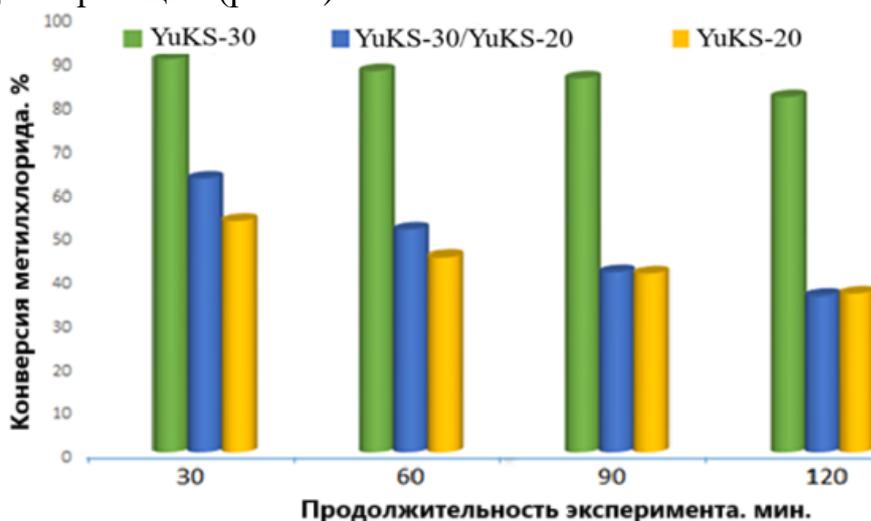
Рис.3. ИК-спектры мезопористых алюмосиликатов ЮКС-20 и ЮКС-30 (высококремнеземных цеолитов).

Как видно из данных 3-его рисунка, исследуемые образцы показывают поглощающие зоны на 1445-1446 см⁻¹, 1490 см⁻¹ и 1595 см⁻¹. Линии, наблюдающиеся на 1445-1446 см⁻¹ и 1595 см⁻¹, объясняются присутствием пиридина, связанного с водородом, адсорбированным на центрах кислоты Льюиса. Линия, наблюдаемая примерно на 1490 см⁻¹, связана с адсорбцией пиридина на центрах кислоты Льюиса и Брёстеда. Следует отметить, что эта поглощающая зона отсутствует в ИК-спектре пиридина, адсорбированного на YuKS-20.

Таким образом, с использованием различных методов были синтезированы мезопористые алюмосиликаты YuKS-20 и YuKS-30. Синтезированные образцы были исследованы с помощью различных физико-химических методов анализа. Наличие мезопористой структуры в синтезированных алюмосиликатах было подтверждено данными по низкотемпературной азотной адсорбции/десорбции, SEM, рентгеновской

дифракции и ИК-спектроскопии. Согласно данным FTIR диффузионной отражательной спектроскопии и анализа TPD-NH₃, на поверхности синтезированных материалов, в основном, присутствуют слабые кислотные центры. На основе полученных данных мезопористый алюмосиликат (высококремнеземный цеолит), синтезированный с использованием алюминиевого вторичного бутаоксида в качестве источника алюминия, был выбран как перспективный катализатор с высокой каталитической активностью и производительностью для проведения двухфункционального процесса. Третий раздел диссертации под названием «**Результаты процесса получения углеводородов этиленового ряда из монохлорметана и их обсуждение**» посвящен изучению кинетических закономерностей процессов и выбору оптимальных условий реакции.

Кристаллическая структура YuKS-20 с крупными кристаллами приводит к снижению начальной конверсии монохлорметана до 52%. В отличие от этого, кристаллы YuKS-30, имеющие размеры, сопоставимые с кристаллическими размерами, показывают промежуточное значение конверсии монохлорметана для структуры YuKS-20/YuKS-30. Исследуемые образцы силика-алюминиевых фосфатов, такие как YuKS-20 и YuKS-20/YuKS-30, характеризуются резким снижением активности, достигающим 35% в процессе реакции (рис.4.).



Температура 430°C, объемная скорость – 500 ч⁻¹.

Рис.4. Данные по конверсии монохлорметана на силикоалюмомагниефосфатах (ЮКС-20, ЮКС-20/ЮКС-30, ЮКС-30).

Селективность образования этилена, а также селективность C₂₊ не зависят существенно от типа структуры кристаллической решетки. Для всех трех образцов значения были близкими, с селективностью для этилена в диапазоне 25-31 мол. % и для C₂₊ в диапазоне 27-35 мол. % в начале эксперимента, и эти значения изменялись после 500 минут реакции. Селективность по пропилену для образцов YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-20 была заметно ниже, чем для YuKS-30. Таким образом, после 500 минут эксплуатации селективность по пропилену составила 32 мол. % и 36 мол. % для YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-20 соответственно, в то время как для YuKS-30 этот показатель был равен 45 мол. %. В образцах YuKS-20 и YuKS-

20/YuKS-30 селективность по общему образованию этилена и пропилена среди C_2 - C_3 углеводородов (низкомолекулярных ненасыщенных углеводородов) не превышала 64 мол. %, в то время как для YuKS-30 этот показатель составлял 71 мол. %. Кроме того, образование метана в образцах YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-20 было в два раза выше, чем в образце YuKS-30 (табл.2).

Таблица 2.

Селективность образования продуктов термического разложения монохлорметана в бескислородной среде при высокой температуре на основе силикоалюмомагниефосфатов.

(Температура 430°C, объемная скорость 500 ч⁻¹)

	Время эксперимента, мин.	YuKS-30	YuKS-20/ YuKS-30	YuKS-20
CH ₄	30	2,68	2,79	2,81
	60	2,01	3,42	3,11
	90	1,60	3,86	3,33
	500	1,44	3,96	4,02
C ₂ H ₄	30	10,58	18,24	20,69
	60	16,66	22,79	24,56
	90	22,04	25,66	26,69
	500	26,18	25,64	31,22
C ₃ H ₆	30	22,29	32,47	34,38
	60	32,84	36,29	36,89
	90	39,45	37,53	38,23
	500	44,88	35,82	32,17
$\sum C_{2=} - C_{3=}$	30	32,86	50,68	55,07
	60	49,49	59,09	61,44
	90	61,48	63,19	64,92
	500	71,06	61,45	62,39
$\sum C_{2+}$	30	64,51	46,56	42,18
	60	48,53	37,55	35,49
	90	36,96	32,99	31,83
	500	27,51	34,65	32,66

На рисунке 5 приведены результаты определения температурной зависимости конверсии монохлорметана и селективности образования низкомолекулярных ненасыщенных углеводородов (этилена и пропилена).

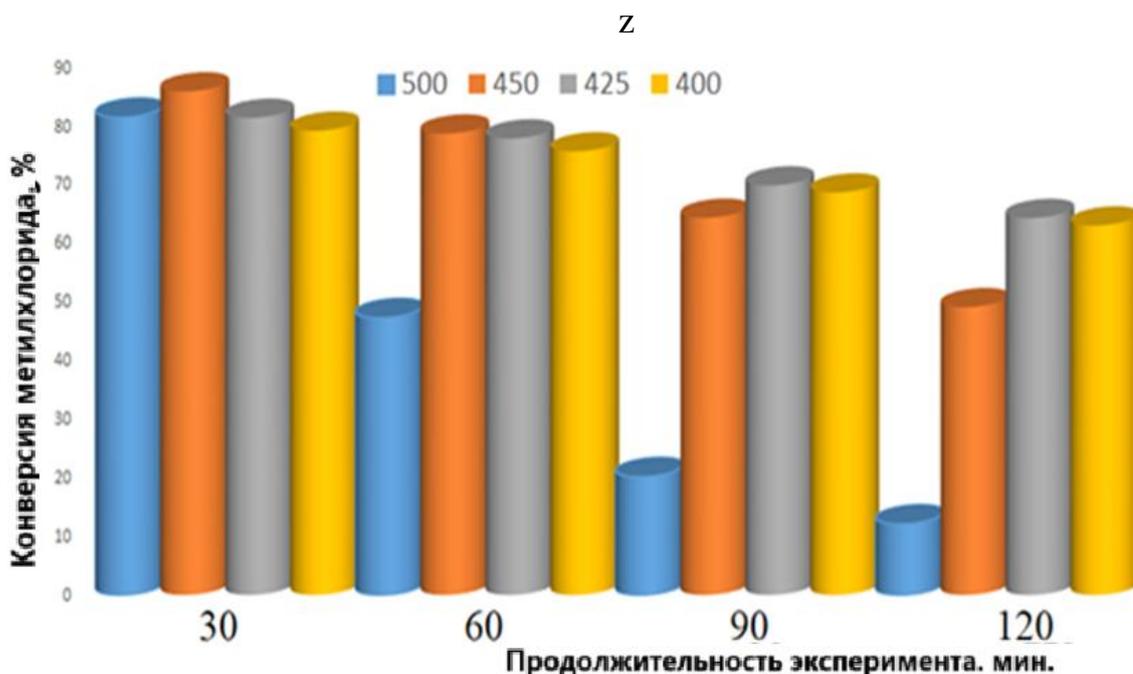


Рис.5. Динамика изменения конверсии CH_3Cl в зависимости от продолжительности эксперимента при различных температурах на силикалюминиевомагниево фосфате YuKS-30. (Объемная скорость – 1500 ч^{-1} .)

Общая селективность по низкомолекулярным ненасыщенным углеводородам этиленового ряда, таким как этилен и пропилен, сохраняется на уровне 81 мол.% при температуре в интервале $400\text{-}450^\circ\text{C}$, а с увеличением температуры реакции до 500°C наблюдается резкое снижение этого показателя до 28 мол.%.

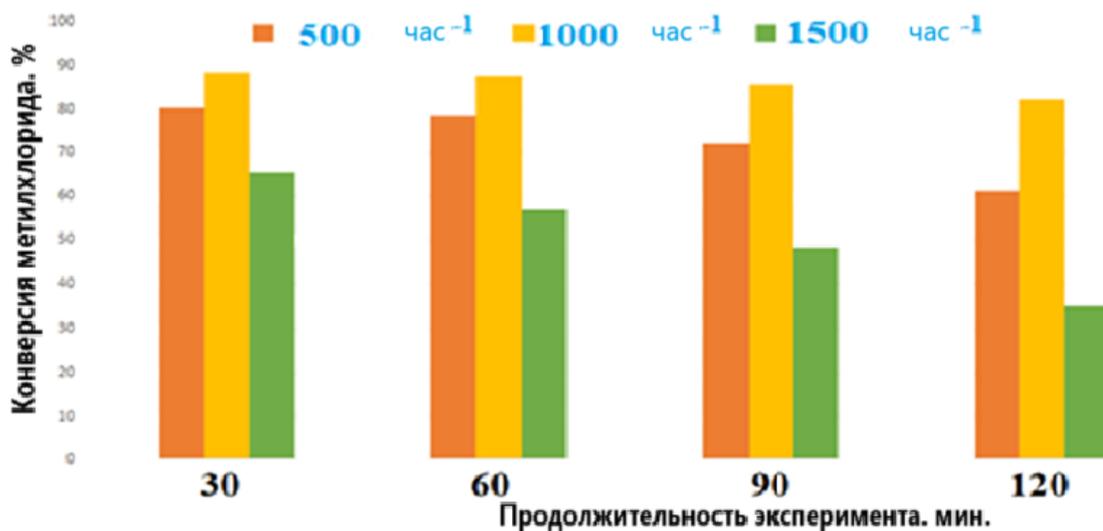


Рис.6. Динамика изменения конверсии монохлорметана на YuKS-30 при различных объемных скоростях реагентов в зависимости от продолжительности эксперимента.

Для стр 8 проведения недвижимого прочесса конверсии монохлорметана с объемной скоростью 1000 ч^{-1} и температуре 430°C использовали реактор с рядом выбранного с высокой каталитической активностью катализатором. Сведения лабораторных опытов предетавлень в таблитсе 3 и на рис. 7

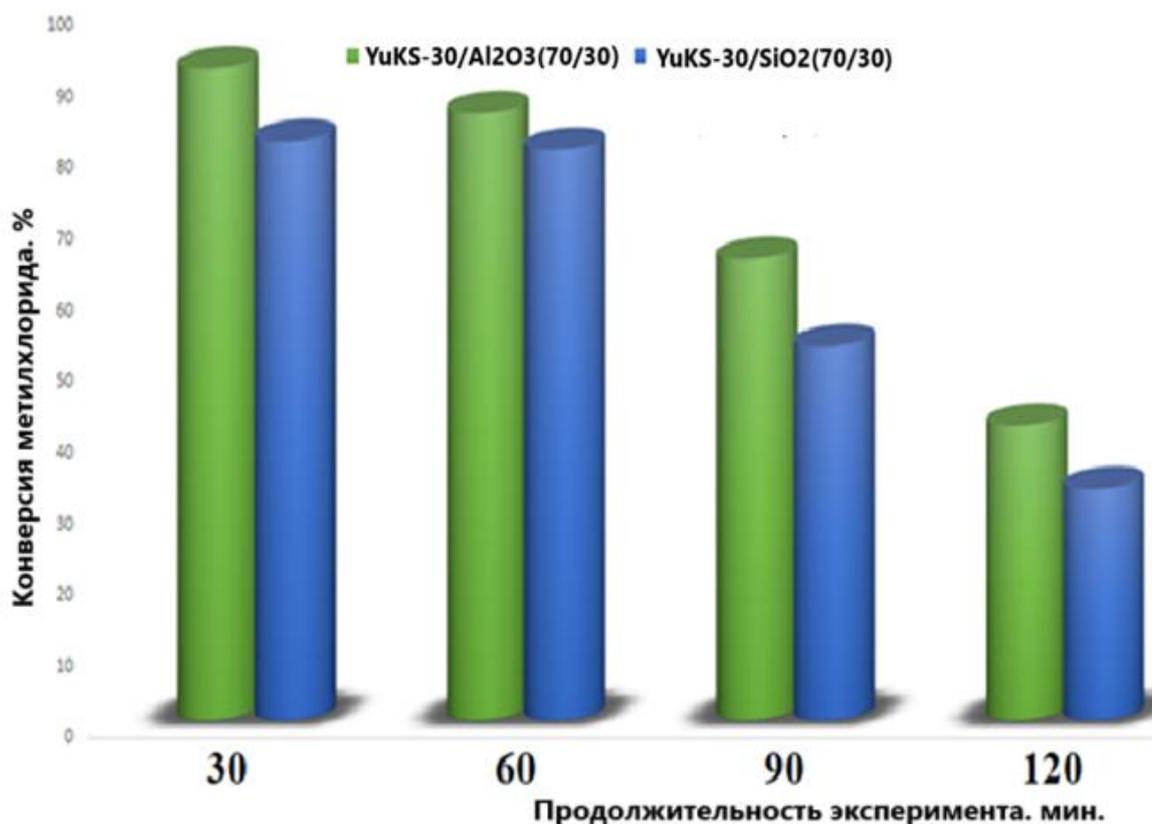


Рис.7. Динамика изменения конверсии CH_3Cl в зависимости от продолжительности эксперимента. Температуре 430°C и объёмной скорости 1000 ч^{-1} .

В образце $\text{YuKS-30/Al}_2\text{O}_3$ начальная конверсия монхлорметана составила 66%. В обоих синтезированных образцах наблюдается снижение активности катализатора с увеличением времени его работы. В эксперименте с $\text{YuKS-30/Al}_2\text{O}_3$ через 500 минут конверсия монхлорметана снизилась до 42%, а с YuKS-30/SiO_2 — до 36%.

В образцах $\text{YuKS-30/Al}_2\text{O}_3$ и YuKS-30/SiO_2 была высокая каталитическая активность, а также общая селективность в отношении низкомолекулярных насыщенных углеводородов, таких как этилен и пропилен, при селективном катализе. Через 500 минут работы катализаторов, селективность составила 82 мол.% и 75 мол.% соответственно.

Для получения высокоактивных катализаторов с высокой селективностью рекомендуется использовать Al_2O_3 в качестве связующего компонента для катализатора, если процесс протекает в условиях высокой температуры и в отсутствии кислорода.

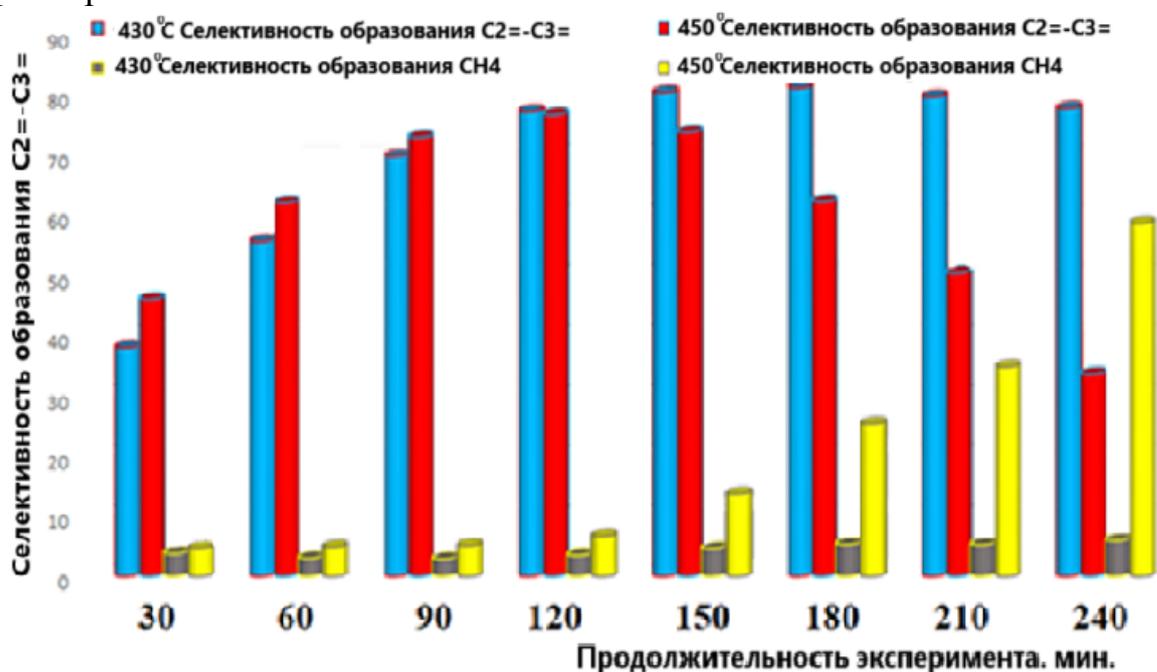
При объёмной скорости 1000 ч^{-1} и температуре 430°C , а также при линейной скорости 1,0-7,0 см/мин, конверсия монхлорметана не изменяется, и сохраняется высокая селективность разложения при заданных условиях.

Селективность образования продуктов реакции для силикоалюмомагнезифосфатных катализаторов: YuKS-30/Al₂O₃ и YuKS-30/SiO₂.

Температура 430°C, объемная скорость – 1500 ч⁻¹.

Образцы катализаторов	Время эксперимента, мин.	Селективность образования, мол.%				
		CH ₄	C ₂ H ₄	C ₃ H ₆	$\sum C_2 - C_3$	C ₂₊
YuKS-30/ Al ₂ O ₃ (70/30)	30	2,25	18,59	32,35	50,86	47,06
	60	2,26	27,78	42,99	70,79	27,13
	90	2,59	35,31	42,94	78,27	19,29
	500	4,11	40,01	40,88	81,87	14,11
YuKS-30/ SiO ₂ (70/30)	30	2,18	17,06	31,07	48,08	49,94
	60	2,21	25,96	40,03	65,66	32,23
	90	2,46	30,98	40,44	71,35	26,29
	500	3,03	37,63	37,46	75,12	21,07

Конверсия монохлорметана и общая селективность образования низкомолекулярных насыщенных углеводородов, таких как этилен и пропилен, имеют промышленное значение. Молекулярные показатели конверсии монохлорметана в процессе катализаторного разложения в условиях высокой температуры и без кислорода в диапазоне температур 430-450°C при объемной скорости подачи монохлорметана 1000 ч⁻¹ были зафиксированы.



YuKS-30/Al₂O₃-микросфера, объемная скорость – 1000 ч⁻¹.

Рис.8. Динамика изменения селективности образования C₂-C₃ углеводородов и метана (CH₄) в зависимости от времени работы выбранного катализатора с высокой каталитической активностью при различных температурах.

Анализ смеси продуктов реакции показывает, что в первые 500 минут работы выбранного высокоактивного и селективного катализатора селективность образования ненасыщенных углеводородов, таких как этилен и пропилен, в интервале температур 430-450°C составляет 77-79 мол.%. При продолжительной эксплуатации катализатора в течение 240 минут при температуре 430°C селективность образования этилена и пропилена сохраняется на уровне 79-80%. Однако при продолжительности эксперимента 240 минут при 450°C наблюдается снижение селективности образования этилена и пропилена с 79 мол.% до 32 мол.% для низкомолекулярных углеводородов.

Рекомендуется проводить процесс разложения монхлорметана при высоких температурах 430-450°C и объемной скорости подачи монхлорметана 1000-900 ч⁻¹.

В выбранных условиях активный рабочий период катализатора YuKS-30/Al₂O₃-микросфера составляет 500 минут, что обеспечивает конверсию монхлорметана более 65% в процессе разложения при высоких температурах в условиях без кислорода, а также позволяет достичь общеге селективности 79% в образовании ненасыщенных углеводородов, таких как этилен и пропилен.

В четвертой главе диссертации, озаглавленной "Технология производства углеводородов этиленового ряда из монохлорметана", рассматриваются технологии получения углеводородов этиленового ряда с использованием каталитического пиролиза монхлорметана.

На основе полученных научных и экспериментальных данных была разработана основная технологическая схема получения этилена и пропилена из ненасыщенных углеводородов этиленового ряда, таких как этилен и пропилен, с использованием каталитического разложения монхлорметана при высоких температурах и в бескислородной среде (см. рисунок 13). Монхлорметан, полученный из природного газа, предварительно нагревается в рекуперативном теплообменнике, затем, вместе с переработкой монхлорметана, который не участвует в реакции в ректификационной колонне (5), направляется на каталитическое преобразование в этилен и пропилен, в соответствии с требуемыми экспериментальными условиями. Процесс получения этилена и пропилена из ненасыщенных углеводородов этиленового ряда осуществляется при давлении 3 атм и температуре 425-450 °C с использованием катализа высокой активности и избирательности. Этот процесс проводится на катализаторе YuKS-30 с использованием жидкостного слоя с силикоалюминомагниевым фосфатом. Тепловой эффект реакции очень незначителен, и в зависимости от избирательности процесса, он может быть как положительным, так и отрицательным для метана и этилена.

Для обеспечения постоянной активности выбранного катализатора с высокой каталитической активностью и избирательностью для получения этилена и пропилена из ненасыщенных углеводородов этиленового ряда монхлорметана, в процессе используется регенератор. В регенератор регулярно подается часть катализатора, на котором накопился углерод, для

восстановления его активности. Углеродные отложения на поверхности катализатора сжигаются с помощью воздуха. После регенерации катализатор с восстановленной активностью возвращается обратно в процесс. Тепло, выделяющееся в ходе регенерации, отводится через установленный теплообменник, в результате чего образуются парообразные вещества. Воздух, подаваемый для регенерации, после процесса регенерации подогревается в рекуперативном теплообменнике с использованием отработанного воздуха.

Метан, как источник водорода, используется для реакций соединения с водородом серосодержащих соединений, для чего он предварительно смешивается с природным газом и направляется обратно в процесс получения метана для требуемых экспериментальных условий. Жидкость из нижней части колонны (2) поступает в этиленовую колонну (3) в качестве сырья. Из верхней части этой колонны выделяется готовый этилен, а также, вместе с этаном, выделяется хлороводород, точки кипения которых различаются приблизительно на 3,5 °С. Полное отделение хлороводорода от этилена не требуется, так как выделенный этилен используется для получения винилхлорида и дальнейшего получения дихлорэтана через окислительное хлорирование. Хлороводород, содержащий до 1% этана, используется для окислительного хлорирования метана с образованием монохлорметана. Полученные хлорэтаны при нагревании в безвоздушном пространстве высокими температурами образуют, в основном, ненасыщенные углеводороды этиленового ряда, включая этилен и пропилен.

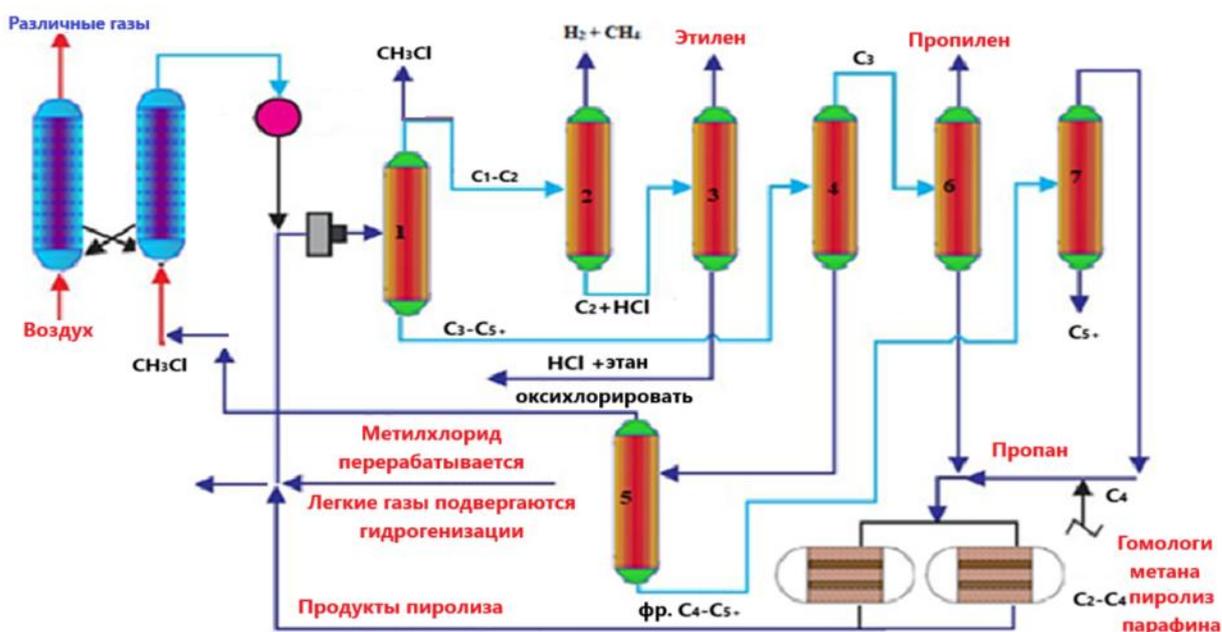


Рис.9. Технологическая схема процесса получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда: этилена и пропилена из монохлорметана.

Жидкость из нижней части колонны (4) возвращается в колонну, где происходит разделение реактивных компонентов, включая не вступивший в

реакцию монохлорметан (5) и C₄-C₅ фракции. Из колонны (5) C₄-C₅ фракции направляются в колонну (7), где они разделяются на C₄ фракцию (в виде дистиллята) и C₅₊ фракцию (в виде нижнего слоя). C₅₊ фракция может использоваться как жидкое топливо, а C₄ фракция либо возвращается для переработки в ненасыщенные углеводороды этиленового ряда, либо используется как сжиженный газ.

Фракция пропан-пропилен из нижней части колонны (4) поступает через насос в пропиленовую колонну (6), где товарный пропилен получается из верхней части колонны, а пропановая фракция из нижней части либо возвращается для переработки, либо используется как сжиженный газ.

ВЫВОДЫ

В результате проведенных исследований по диссертационной работе доктора философии (PhD) на тему «Технология получения низкомолекулярных углеводородов этиленового ряда из метил хлорида» сделаны следующие выводы, имеющие теоретическую и практическую значимость:

1. Подобран оптимальный состав микросферического катализатора на основе местного сырья, включающего силикоалюмомагниефосфаты YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30, которые характеризуются высокой активностью, термической устойчивостью, производительностью и избирательностью.

2. Методами физико-химического анализа (рентгеноструктурный, электронно-микроскопический, хроматографический анализ, сканирующая электронная микроскопия и ИК-спектроскопия). Изучены структура и состав катализатора, а также выявлено влияние структуры катализаторов, полученных из местного сырья, на их каталитическую активность.

3. Установлены в периодическом режиме кинетические закономерности реакций получения низших ненасыщенных углеводородов (с двойной связью) из монохлорметана на катализаторах YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30 и YuKS-30, а также на основе изучения кинетических закономерностей бкли вкбвебрани разработаны кинетические модели реакций и оценена энергия активации.

4. Изучен впервые исследован процесс регенерации микросферических катализаторов на основе силикоалюмомагниефосфата, и изучена возможность объединения процесса каталитического разложения монохлорметана при нагреве и регенерации катализатора в реакторном блоке, предназначенном для регенерации.

5. Разработаны научные основы получения этилена и пропиленов из монохлорметана, а также создана технология производства углеводородов этиленового ряда.

**SCIENTIFIC COUNCIL ON AWARDING OF SCIENTIFIC DEGREE
DSc.17/7.06.2024.K/T.06.03 AT THE NAVOI STATE UNIVERSITY OF
MINING AND TECHNOLOGIES**

SAMARKAND STATE UNIVERSITY

JAVKHAROV JONIBEK

**TECHNOLOGY FOR OBTAINING LOW MOLECULAR WEIGHT
ETHYLENE SERIES HYDROCARBONS FROM METHYL CHLORIDE**

02.00.14-Technology of organic substances and materials based on them

DISSERTATION ABSTRACT

of the doctor of philosophy (PhD) on technical sciences

The theme of dissertation for Doctor of Philosophy (PhD) degree was registered at the Supreme Attestation Commission at the Ministry of Higher Education, Science, and Innovations of the Republic of Uzbekistan under the number № B2024.3.PhD/T4839.

The dissertation was completed at the Samarkand State University named after Sharof Rashidov. The abstract of the dissertation is posted in three languages (Uzbek, Russian, English (summary)) on the web page of the scientific council www.nsumt.uz and on the Information and Educational Portal "Ziyonet" (www.ziyonet.uz)

Research supervisors:	Fayzullaev Normurot Doctor of technical sciences, Professor
Official opponents:	Vapoev Khusnitdin Doctor of technical sciences, Professor Adilov Ravshan Doctor of technical sciences, Professor
Leading organization:	Termez State University

The defense of the dissertation will take place on «31» 05 2025 at 15-00 hours at a meeting of the scientific council DSc.17/7.06.2024.K/T.06.03 at the Navoi State University of Mining and Technologies at the address: 210100, Navoi, ave. Galaba Shokh, 76v. Conference hall of the Navoi State University of Mining and Technologies Tel.: 0 (436) 223-23-32; fax: 0 (436) 223-49-66; (e-mail: info@nsumt.uz).

The dissertation can be found at the Information Resource Center of the Navoi State University of Mining and Technologies (registered under the number 199). Address: 210100, Navoi, ave. Galaba Shokh, 76v. Conference hall Navoi State University of Mining and Technologies Tel.: 0 (436) 223-23-32; fax: 0 (436) 223-49-66; (e-mail: info@nsumt.uz).

Abstract of the dissertation is distributed on "13" 05 2025 y.
(protocol at the register No. 7 dated "13" 05 2025 y.)



B. Mukhiddinov
Chairman of the Scientific Council for
awarding the scientific degrees,
Doctor of Chemical Sciences, Professor

S. Sharipov
Scientific Secretary of the Scientific Council for
awarding the scientific degrees,
PhD, associate professor

H. Vapoev
Chairman of the Scientific Seminar at the Scientific
Council for the award of the scientific degrees,
Doctor of Technical Sciences, Professor

INTRODUCTION(abstract of the PhD dissertation)

The aim of the research work is to develop a technology for obtaining ethylene and propylene from monochloromethane.

The objects of research work were ethylene, propylene, methyl chloride, and a catalyst.

The scientific novelty of the research work is as follows:

catalysts composed of silicoaluminomagnesium phosphates — YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30, and YuKS-30 — which enable the process to be carried out using local raw materials, have been developed, and a range of hydrocarbons including ethylene and propylene have been synthesized from monochloromethane using these catalysts;

the structure, textural characteristics, and composition of the YUKS-20, YUKS-20/YUKS-30, and YUKS-30 catalysts have been investigated using physicochemical methods, and the relationship between their structure and activity has been established;

the kinetic laws of the reaction for obtaining low-molecular-weight unsaturated hydrocarbons from monochloromethane on YUKS-20, YUKS-20/YUKS-30, and YUKS-30 catalysts in a periodic mode have been determined, and the activation energy has been evaluated;

the regeneration process of microspherical catalysts based on silica-alumino-magnesium phosphates has been studied for the first time, and the optimal regeneration conditions have been selected;

a technology for producing ethylene series hydrocarbons from monochloromethane has been developed using YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30, and YuKS-30 catalysts prepared from local raw materials.

Implementation of research results. Based on the scientific results obtained in the development of technology for producing low-molecular ethylene hydrocarbons from methyl chloride:

The technology for producing catalysts composed of silicoaluminomagnesium phosphates - YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30, and YuKS-30 - selected for ethylene synthesis through the decomposition of monochloromethane, has been implemented in practice at the “Muborak Gas Processing Plant” JSC (according to reference No. 765/GK-08 dated August 20, 2024, issued by “Muborak Gas Processing Plant” JSC). As a result, the use of these catalysts has made it possible to achieve economic efficiency compared to imported catalysts.

The technology for producing low-molecular-weight hydrocarbons of the ethylene series from monochloromethane using YuKS-20, YuKS-20/YuKS-30, and YuKS-30 catalysts has been successfully introduced at the “Muborak Gas Processing Plant” JSC. As a result, it was possible to achieve 71% conversion of monochloromethane and an overall selectivity of ethylene and propylene formation at the level of 82%.

The structure and scope of the thesis. The dissertation consists of introduction, four chapters, conclusion, list of used literature, applications. The thesis consists of 107 pages.

E'LON QILINGAN ILMIY ISHLAR RO'YXATI
СПИСОК ОПУБЛИКОВАННЫХ РАБОТ
LIST OF PUBLISHED WORKS

I bo'lim (I часть; part 1)

1. Файзуллаев Н.И. Жавхаров Ж.Ж. Determination of the quantity of the binding component of the selected catalyst for the process of heating monochloromethane at a high temperature. Universum: Химия и биология 2024. С. 74-78 DOI - 10.32743/UniChem.2024.115.1.16614 (02.00.00. №2)

2. Fayzullayev N.I., Javxarov J.J., Iskandarov A.I. Monoxlormetanning piroliz reaksiya tezligini turli bosim va turli haroratlarda o'rganish. NamDU ilmiy axborotnomasi–2024-yil_3-son ISSN: 2181-0427 С. 134-139 (02.00.00 №18)

3. Fayzullayev N.I., Javxarov J.J., Ergashev N.Z. Etilen qatori uglevodorodlarini monoxlormetandan sintez qilish: O'zbekiston milliy universiteti xabarлари, 2024, [3/1]ISSN 2181-7324 (02.00.00 №12)

4. Javxarov J.J. Methodology of catalyst recovery used for decomposition of monochloromethane. Universum: Технические науки. 2024-iyul. DOI: 10.32743/UniTech.2024.124.7.17951 (02.00.00 №1)

5. Fayzullayev N.I, Javxarov J.J, Iskandarov A.I. Study of some kinetic laws of methyl monochloride pyrolysis reaction. E3S Web of Conferences 555, 03003 (2024) <https://doi.org/10.1051/e3sconf/202455503003>

6. Fayzullayev N.I, Javxarov J.J, Kinetical laws of catalytic oxychlorination of methanes. Problems in the Textile and Light Industry in the Context of Integration of Science and Industry and Ways to Solve Them. AIP Conference Proceedings 2023-yil. <https://doi.org/10.1063/5.0149606> (02.00.00 №1)

7. Fayzullayev N.I., Javxarov J.J., Ergashev N.Z. Kinetics of the Decomposition of Monochloromethane at High Temperature in a Vacuum Environment with Air Absorption. International Scientific Conference on Modern Problems of Applied Science and Engineering AIP Conf.2024 Proc. 3244, 050004-1–050004-10; <https://doi.org/10.1063/5.0241975> (02.00.00 №1)

II bo'lim (II часть; II part)

8. Искандаров А.И. Ергашев Н.З. Жавхаров Ж.Ж. Монохлорметандан этилен ҳамда пропилен ишлаб чиқариш: Journal of new century innovations <http://www.newjournal.org/> Volume–44_Issue-1_January_2024 С.128-133

9. Искандаров А.И. Ергашев Н.З. Жавхаров Ж.Ж. Монохлорметанни парчалаш учун таййорланган катализатор миқдорини аниқлаш Journal of new century innovations <http://www.newjournal.org/> Volume–43_Issue-2_December_2023 С.149-153

10. Жавхаров Ж.Ж., Яхшибоев Ж.Б., Ҳикматова. Ҳ.И. Монохлорметанни сохта суюлтириш режимида кенг ҳароратлар оралиғида парчаланишини ўрганиш: Namangan muhandislik-texnologiya instituti “fizikaviy va kolloid kimyo fanlarining fundamental va amaliy muammolari hamda ularning innovatsion

yechimlari” mavzusida xalqaro ilmiy-amaliy anjuman materiallari to’plami (2024-yil 9-10-fevral). С.96-101

11. Файзуллаев Н.И., Жавҳаров Ж.Ж., Яҳшибоев Ж.Б. 425⁰С ВА 450⁰С да монохлорметаннинг пиролиз қилиш динамикасини ўрганиш: Namangan muhandislik-texnologiya instituti “fizikaviy va kolloid kimyo fanlarining fundamental va amaliy muammolari hamda ularning innovatsion yechimlari” mavzusida xalqaro ilmiy-amaliy anjuman materiallari to’plami (2024-yil 9-10-fevral).С.109-114

12. Файзуллаев Н.И., Жавҳаров Ж.Ж. Табиий газдан қуйи молекуляр тўйинмаган этилен қатори углеводородларни олиш: О‘zbekiston respublikasi oliy ta’lim, fan va innovatsiyalar vazirligi toshkent kimyo-xnologiya instituti «termoreaktiv oligomerlar, polimerlar saqlovchi chiqindilar, polifunksional birikmalar va ular asosida polimer materiallar yaratishning istiqbollari» 18-19 yanvar 2024-yil.

13. Файзуллаев Н.И., Жавҳаров Ж.Ж. Монохлорметанни пиролизлаш катализаторнинг регенерациясини амалга ошириш. О‘zbekiston respublikasi oliy ta’lim, fan va innovatsiyalar vazirligi toshkent kimyo-xnologiya instituti «termoreaktiv oligomerlar, polimerlar saqlovchi chiqindilar, polifunksional birikmalar va ular asosida polimer materiallar yaratishning istiqbollari» 18-19 yanvar 2024-yil ISBN 978-9943-9543-9-7 С.325-330.

14. Javxarov.J.J Yaxshiboyev J.B Normuminova L.A Metilxloridning sintezi va pirolizi orqali tabiiy gazdan quyi olefinlarni olish. SamDUKF. “Ta’limga raqamli texnologiyalar va zamonaviy usullarni joriy etish muammolari mavzusidagi respublika ilmiy-amaliy konferensiyasi. 18-19 aprel, 2024 y С.785-788

15. Javxarov.J Yaxshiboyev J. Metilxloridni oraliq sintez qilish va uning keyingi katalitik pirolizi orqali tabiiy gazdan etilen va propilen ishlab chiqarish. SamDUKF. “Ta’limga raqamli texnologiyalar va zamonaviy usullarni joriy etish muammolarimavzusidagi respublika ilmiy-amaliy konferensiyasi. 18-19 aprel, 2024 y С.827-831

16. Javxarov J.J. Study of the structure of magnesium and phosphorus storage catalysts containing silicomagnesiumaluminumphosphate. Оглавление всероссийская научная конференция "молодежный научный форум" ©Мипи им.Ломоносова, 2024. – Ноябрь С.27-29

Avtoreferat "O'zbekiston konchilik xabarnomasi" jumali tahririyatida tahrirdan o'tkazilib o'zbek, rus va ingliz tillaridagi matnlar o'zaro muvofiqlashtirildi.



Bosishga ruxsat etildi: 12.05.2025 yil
Bichimi 60x84_{1/16}, "Times New Roman"
garniturada raqamli bosma usulida bosildi.
Shartli bosma tabog'i: 2.75. Adadi 60. Buyurtma № 15.
Tel (93) 955-25-25.

Guvohnoma № 212895
"TEXNO PRINT NAVOI" MCHJ bosmaxonasida chop etildi.
Bosmaxona manzili: Navoiy sh. Guliston - 3 massivi