

УДК 66.02.539.215.9:621.929

## ПОВЫШЕНИЕ ЭФФЕКТИВНОСТИ КАТАЛИТИЧЕСКИХ ГАЗОФАЗНЫХ ПРОЦЕССОВ

Ревенко С.А., Галабурда Н.И., Карпюк Л.В., Табунщиков В.Г.

## IMPROVING EFFECTIVENESS OF CATALYTIC GAS-PHASE OF PROCESSES

Revenko S.A., Galaburda N.I., Karpyuk L.V., Tabunschikov V.G.

*В статье рассмотрены пути повышения эффективности каталитических процессов. На примерах глубокого окисления уксусной кислоты и метанола кислородом воздуха в условиях аэрозольного катализа показана целесообразность организации псевдооживления зернистого инертного материала за счет импульсного выпуска реакционных газов из реактора.*

**Ключевые слова:** аэрозольный катализ, псевдооживление, инертный материал, газофазные процессы, окисление, катализатор.

**1. Введение.** Существует ряд химических процессов, протекание которых более эффективно осуществляется в присутствии катализаторов. В этой связи интерес представляют системы псевдооживленного слоя зернистого инертного материала, с движущимся сквозь него снизу вверх мелкодисперсным катализатором [1].

### **2. Изложение основного материала.**

Применение катализаторов без носителей в виде аэрозолей позволяет повысить их эффективность за счет исключения внутридиффузионных стадий катализа, обеспечения равнодоступности активной поверхности, возможности управления концентрацией катализатора в реакционном объеме в процессе синтеза. В каталитических реакторах пылевидный катализатор подается в нижнюю часть псевдооживленного слоя инертного материала и покрывает поверхность его зерен. Использование псевдооживленного слоя зернистого материала исключает агломерацию пылевидного катализатора и позволяет осуществлять механохимическую активацию его частиц за счет его измельчения в результате трения и многократного соударения более крупных частиц инерта. Переход от макрочастиц к микро- и наноразмерам катализатора приводит к изменению многих важных для него физико-химических свойств поверхности, в результате чего катализатор в слое инерта практически остается химически активным [2, 3].

Эффективность газофазных процессов в таких системах во многом зависит от однородности псевдооживления инерта. При этом стремятся, чтобы реагенты находились в слое инерта как можно дольше, чему способствует снижение расхода газа, проходящего через аппарат. При проведении термокаталитических процессов снижение расхода газа является также экономически целесообразным. Время контакта реагентов увеличивается также с увеличением слоя инерта в реакторе, однако однородное псевдооживление сыпучего материала возможно обеспечить только при соотношении высоты стационарного слоя  $h_c$  к диаметру аппарата  $d$  в пределах от 2 до 5. При соотношениях  $h_c/d > 5$  псевдооживление переходит в поршневой режим, для которого характерно образование по высоте слоя газовых пробок, чередующихся с поршнями сыпучего материала. В газовых пробках практически отсутствует катализатор, это естественно снижает эффективность каталитических процессов.

Целью настоящей работы является предложение решений, позволяющих улучшить однородность псевдооживления зернистого инертного материала при соотношении  $h_c/d > 5$ , а также снизить расход сжижающего газа и повысить эффективность использования катализатора. Поставленная цель достигается путем формирования однородного псевдооживленного слоя зернистого инертного материала за счет импульсного выпуска газа из реактора.

Основываясь на вышеизложенном, были проведены экспериментальные работы по окислению 80% водного раствора уксусной кислоты, а также метанола кислородом воздуха в условиях аэрозольного катализа. Схема установки представлена на рис. 1.

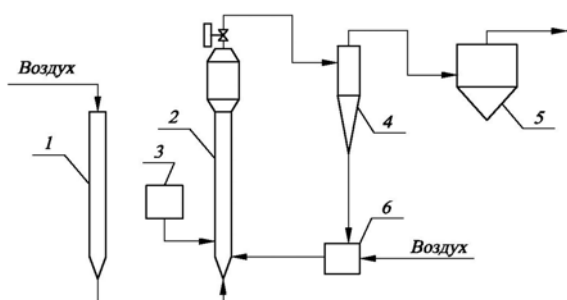


Рис. 1. Схема экспериментальной установки:

1 – воздухоподогреватель; 2 – реактор; 3 – дозатор окисляемого вещества; 4 – циклон; 5 – фильтр; 6 – дозатор мелкодисперсного катализатора; 7 – электромагнитный клапан; 8 – генератор частоты импульсов

Основным аппаратом является реактор аэрозольного катализа (рис. 2).

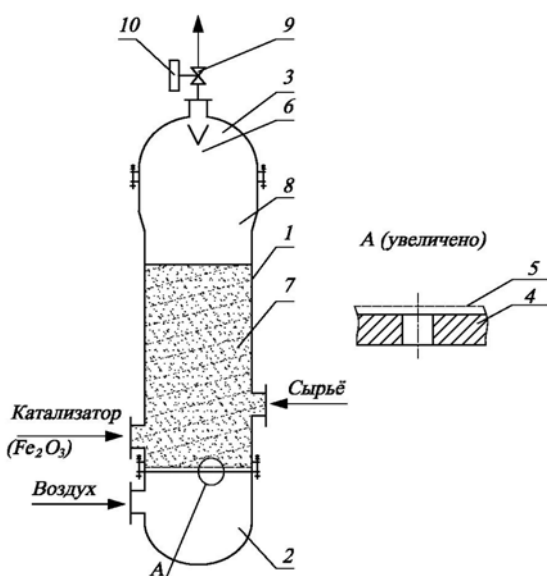


Рис. 2. Схема реактора:

1 – реакционная камера; 2 – камера сжижающего газа; 3 – крышка; 4 – распределительная решетка; 5 – сетка; 6 – отбойник; 7 – инертный зернистый материал; 8 – надслоевое пространство; 9 – электромагнитный клапан; 10 – генератор частоты импульсов

Инертным материалом, который выполняет еще и функции тепло- и массопереноса, являлись стеклянные шарики с эквивалентным диаметром 0,8-1,0 мм. Диаметр аппарата  $d=50$  мм, а высота стационарного слоя инерта  $h_c=795$  мм. Температура в зоне катализа составляла  $600\pm 20^\circ C$ . Под газораспределительную решетку подавался предварительно подогретый воздух с таким расходом, при котором линейная его скорость прохождения через слой инерта соответствует предельному режиму фильтрации. На выходе из реактора газовый поток перекрывался. В результате этого происходил рост давления внутри аппарата до величины 0,15-0,2 МПа, позволяющий при открытии клапана обеспечить оптимальную

линейную скорость псевдоожижения. Частота импульсного режима клапана составляла 8 Гц. Таким образом обеспечивалось однородное псевдоожижение при соотношении  $h_c/d=16$ . Предварительно однородность псевдоожижения оценивалась визуально на прозрачной модели реактора.

Катализатором в процессе служил оксид железа  $Fe_2O_3$  с исходным размером частиц 100÷200 мкм. Катализатор и исходное сырье подавались в предварительно оживенный инерт. Температура в зоне катализа поддерживалась с помощью электрообогрева. Окисляющим компонентом служил кислород воздуха, используемого для оживления инерта.

**3. Результаты исследований.** Результаты экспериментов представлены в таблице. Для сравнения также приведены данные аналогичных исследований процесса глубокого окисления при традиционном способе псевдоожижения инертного материала [1].

Таблица

**Результаты исследования эффективности окисления органического сырья кислородом воздуха в условиях аэрозольного катализа**

№ п/п	Режим выпуска реакционных газов из реактора	Расход воздуха, $nm^3/час$	Расход сырья, г/час	Расход катализатора, г/час	Степень окисления, %	Нагрузка на катализатор, $\Gamma_{оп}/\Gamma_{кат}$ час	Увеличение предельной нагрузки на катализатор при импульсном режиме выпуска реакционных газов
80% водный раствор уксусной кислоты							
1.	импульсный	2,15	96,4	17,4	100	4,432	
2.	импульсный	2,15	143,3	15,9	100	7,208	
3.	импульсный	2,15	185,1	18,2	100	8,136	
4.	импульсный	2,15	198,0	18,0	100	8,800	
5.	импульсный	2,15	211,7	22,3	100	7,592	

Продолжение табл.

1	2	3	4	5	6	7	8
6.	импульс-ный	2,15	243,5	17,4	100	11,195*	на 25,3 %
7.	импульс-ный	2,15	250,2	20,1	98,1	9,768	
8.	постоян-ный	3,29	95,6	18,7	100	4,098	
9.	постоян-ный	3,29	133,3	17,6	100	6,059	
10.	постоян-ный	3,29	192,1	17,2	100	8,934*	
11.	постоян-ный	3,29	230,2	23,3	95,2	7,524	
метиловый спирт							
12.	импульс-ный	2,15	54,9	17,5	100	3,137	на 26,1%
13.	импульс-ный	2,15	78,1	15,9	100	4,912	
14.	импульс-ный	2,15	92,2	18,1	100	9,094	
15.	импульс-ный	2,15	107,0	18,8	100	5,691	
16.	импульс-ный	2,15	116,5	20,1	100	5,796	
17.	импульс-ный	2,15	127,2	20,3	100	6,266*	
18.	импульс-ный	2,15	129,4	21,7	97,6	5,820	
19.	постоян-ный	3,29	52,2	17,2	100	3,035	
20.	постоян-ный	3,29	74,5	15,6	100	4,776	

Продолжение табл.

1	2	3	4	5	6	7	8
21.	постоян-ный	3,29	99,5	19,9	99,4	4,970*	
22.	постоян-ный	3,29	112,0	22,3	96,8	4,862	

Примечание: \* - предельная нагрузка на катализатор, т.е. максимальное количество вещества, при окислении которого обеспечивается экологическая эффективность процесса.

**4. Выводы.** Таким образом, предложенное техническое решение позволило обеспечить однородное псевдооживление зернистого инертного материала в реакторе при соотношении  $h_c/d=16$  и сниженном в 1,5 раза расходе оживающего газа, исключить агломерацию мелкодисперсного катализатора и обеспечить его регенерацию непосредственно в зоне катализа за счет механохимической активации, что способствовало увеличению примерно на 25% предельной нагрузки на него.

**Л и т е р а т у р а**

1. Гликин М. А. Аэрозольный катализ // Теоретические основы химической технологии. – 1996. - Т. 30, № 4. - С. 430-434.
2. Аэрозольный катализ. Возможности, проблемы, решения / М. А. Гликин, Д. А. Кутакова, Е. М. Принь, Е. В. Фурсов // Химическая промышленность. - 1999. - № 3. - С.15 -21.
3. Активация минералов при измельчении / [Молчанов В. И. и др.] . - М. : Недра, 1988. – 208 с.

**R e f e r e n c e s**

1. Glikin M. A. Ajerazol'nyj kataliz // Teoreticheskie osnovy himicheskoy tehnologii. – 1996. - T. 30, - № 4. - S. 430-434.
2. Ajerazol'nyj kataliz. Vozmozhnosti, problemy, reshenija / M. A. Glikin, D. A. Kutakova, E. M. Prin', E. V. Fursov // Himicheskaja promyshlennost'. - 1999. - № 3. - S. 15 - 21.
3. Aktivacija mineralov pri izmel'chenii / [Molchanov V. I. i dr.] . - M. : Nedra, 1988. – 208 s.

**Ревенко С. А., Галабурда Н.І., Карпюк Л. В., Табунціков В. Г. Підвищення ефективності каталітичних газофазних процесів**

*У статті розглянуті шляхи підвищення ефективності каталітичних газофазних процесів. На прикладах глибокого окислення оцтової кислоти та метанолу киснем повітря в умовах аерозольного каталізу показана доцільність організації псевдооживлення зернистого інертного матеріалу за умови імпульсного впуску реакційних газів із реактору.*

**Ключові слова:** аерозольний катализ, псевдооживлення, інертний матеріал, газофазні процеси, окислювання, катализатор.

**Revenko S. A., Galaburda N.I., Karpyuk L. V., Tabunshhikov V. G. Improving effectiveness of catalytic gas-phase of processes.**

*The article discusses ways of increasing efficiency of catalytic processes. On examples deep oxidation of acetic acids and of methanol by oxygen in conditions aerosol catalysis is shown the feasibility of organizing fluidization grainy an inert material at the expense pulsed release of the reaction gases from the reactor.*

**Key words:** aerosol catalysis, fluidization, inert material, gas-phase process, oxidation, catalyst.

**Ревенко Станіслав Антонович**, к.т.н., с.н.с., доцент кафедри обладнання хімічних підприємств, СХУ імені В. Даля Технологічний інститут (м.Северодонецьк)

**Галабурда Наталя Іллівна**, старший викладач кафедри обладнання хімічних підприємств СХУ ім. В. Даля.

**Карпюк Людмила Вікторівна**, старший викладач кафедри обладнання хімічних підприємств, СХУ імені В. Даля Технологічний інститут (м.Северодонецьк)

**Табунціков Володимир Георгійович**, старший викладач кафедри обладнання хімічних підприємств, СХУ імені В. Даля Технологічний інститут (м.Северодонецьк)

*Рецензент:* **Суворін О.В.** – д.т.н., доцент.

*Стаття подана 4.01.2015*