

О Т З Ы В

на автореферат диссертации **Савельевой Анны Сергеевны**
«Структура и каталитические свойства двухкомпонентных Ag-Fe катализаторов, нанесенных на кремнийсодержащие носители», представленной на соискание ученой степени кандидата химических наук по специальности 02.00.04 – Физическая химия

Для получения важных продуктов промышленного синтеза по реакции окисления процесс осуществляют в присутствии серебряных катализаторов с нанесением серебра на подходящий, чаще всего кремнийсодержащий, сорбент. Теория создания эффективных каталитических систем и их участия в процессе превращения требует постоянного совершенствования с экспериментальной апробацией. Работа Савельевой А. С. актуальна и посвящена изучению катализаторов, активные компоненты которых (серебро и оксиды железа), распределены на поверхности нитрида или оксида кремния, характера их влияния на реакцию дегидрирования и окислительного дегидрирования этанола.

Очевидной новизной работы является изучение влияния остаточного железа на каталитические свойства катализаторов, полученных на основе нитрида кремния, синтезированного из дисилицида железа. Предложен также способ нанесения серебра, позволяющий получать серебряный катализатор с высокой дисперсностью активного компонента с более равномерным распределением частиц на носителе. Разработан способ получения, исследованы свойства двухкомпонентных (Ag-Fe)-катализаторов с основой из силикагеля, совместное влияние серебра и железа на изучаемую реакцию окисления этанола.

В автореферате показано влияние полученных катализаторов на степень конверсии этанола и селективность по целевому продукту – ацетальдегиду. При использовании катализаторов на основе нитрида кремния селективность достаточно высока для всех исследованных катализаторов, однако степень конверсии этанола возрастает существенно в присутствии серебра, если проводится окислительное дегидрирование этанола. Эти показатели заметно ниже в реакции дегидрирования этанола. К сожалению, диаграммы приведены в каждом случае для одной температуры, причем значения их разные для двух процессов, что затрудняет адекватное сопоставление результатов.

В работе отмечено, что присутствие серебра в катализаторах на основе диоксида кремния снижает температуру восстановления железоксидного слоя. Отмечается также, что пик на ТПВ профилях (110-120 °С), обусловленный восстановлением серебра, выше при наличии большего количества железа (см. рис 8г) по сравнению с пиком на рис. 8в, относящемся к катализатору с содержанием железа в 10 раз меньшим. Однако, такой вывод не столь очевиден, поскольку «пики» сопряжены с широкими полосами, простирающимися в более высокотемпературную область. Видно, что максимум на рис.

8в более обособлен и по площади «пика» воспринимается более значимым, чем на рис. 8г. Если принять это во внимание, то вывод этого абзаца может измениться.

Результаты работы с катализаторами на диоксиде кремния как носители свидетельствуют, что под действием нанесенных железа и серебра в реакциях окисления этанола степень его конверсии и селективность по ацетальдегиду достигаются совместно, причем в процессе окислительного дегидрирования при достаточно низких температурах. В изученных процессах окисления этанола обоих типов присутствие серебра обуславливает максимальную селективность по альдегиду при росте температуры до технологически эффективной. Увеличение количества железа в составе катализатора повышает степень конверсии этанола.

Схема превращения на стр. 18, возможно, требует корректирования. Увеличение степени конверсии этанола с ростом количества железа говорит о том, что взаимодействие молекулы спирта с поверхностью катализатора осуществляется через атомы железа, способные поляризовать кислород гидроксильной группы молекулы этанола. В результате этого атом водорода становится более подвижным и способным к отщеплению в виде протона, что, в свою очередь, облегчает отщепление от атома углерода гидрид-иона, образующего с протоном молекулу водорода, легко растворяющегося в металлическом серебре. Согласно литературным данным, образование гидрида серебра в температурных условиях изучаемых процессов маловероятно.

В целом, работа очень содержательная, автором выполнен большой объем экспериментальной работы. Интерпретация результатов потребовала проработки и применения большого количества первичных источников. Автор прекрасно владеет профессиональной терминологией. Автореферат легко читается, однако для лучшего восприятия обозначения на рисунках хотелось бы видеть более крупными.

Результаты исследования Савельевой Анны Сергеевны вносят существенный вклад в развитие теории и практики каталитических процессов в органической химии. Предъявленная к защите работа соответствует всем требованиям, предъявляемым к кандидатским диссертациям на соискание ученой степени кандидата химических наук по специальности 02.00.04 – Физическая химия. Автор работы, Савельева А. С., заслуживает присуждения искомой ученой степени.

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования Северо-Восточный федеральный университет им. М.К. Аммосова

Профессор кафедры высокомолекулярных соединений и органической химии
Института естественных наук

Северо-Восточного федерального университета, д. х. н. Федосеева В. И.

(Валентина Ивановна Федосеева)

адрес: 677000, г. Якутск, ул. Белинского, д.58; тел. (4112) 49-69-63;

e-mail: vi.fedoseeva@s-vfu.ru

Подпись Федосеевой В. И.
Заведующий кафедрой Аммосов М. К.

