

ОТЗЫВ

на автореферат диссертационной работы Савельевой А. С. «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

В настоящее время повышенное внимание уделяется разработке и реализации химических процессов получения ценных органических продуктов. Решение этой задачи требует поиска новых каталитических систем и носителей, удовлетворяющих целому комплексу требований, среди которых можно выделить следующие: прочностные характеристики, химическая стойкость, теплопроводность материалов, а также наличие функциональных групп и структурные особенности поверхности. В связи с этим диссертационная работа Савельевой А. С., посвященная разработке и изучению серебросодержащих катализаторов, нанесенных на кремнийсодержащие носители, для получения ацетальдегида путем дегидрирования этанола, является весьма актуальной.

В работе разработан способ получения носителя нитрида кремния методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза и нанесенных Ag-Fe катализаторов на основе этого носителя. Установлено, что материалы на основе нитрида кремния проявляют высокую активность и селективность по ацетальдегиду в реакции дегидрирования и окислительного дегидрирования этанола.

Поскольку контролировать химический состав поверхности нитрида кремния было невозможно, автором были приготовлены модельные Ag-Fe-содержащие катализаторы на основе оксида кремния, который моделирует частично окисленную поверхность Si_3N_4 . Показано, что двухкомпонентные катализаторы Fe-Ag/SiO₂ являются высокоселективными катализаторами реакций дегидрирования и окислительного дегидрирования этанола.

На основании характера зависимостей конверсий этанола и селективности по ацетальдегиду от температуры для AgFeO₂ и Fe-Ag/SiO₂ катализаторов сделан вывод об участии феррита серебра в качестве активной фазы в составе катализаторов Fe-Ag/SiO₂.

При чтении автореферата возникают следующие вопросы и замечания:

1. Температура реакции дегидрирования не превышает 400°C, а в основном используется 250-300°C. В связи с этим осталось неясным, с какой целью исследовалось воздействие высокотемпературной среды каталитической реакции окисления этиленгликоля?
2. Представляется целесообразным пояснить на основании каких данных сделан вывод о формировании однородных по размеру частиц активного компонента при нанесении Ag на поверхность Si₃N₄-носителей методом Т? Для подтверждения этого вывода необходимо приводить распределение частиц по размерам из данных ПЭМ. Также в тексте автореферата говорится о частицах 7-8 нм, а в выводе 2 - о закреплении частиц серебра размером 70 нм. Хотелось бы, чтобы автор прокомментировала данное противоречие.
3. Селективность по ацетальдегиду для модельного катализатора, содержащего 10% Fe, значительно выше, чем для катализатора, содержащего 1% Fe при 250°C, в то время как для катализаторов на основе нитрида кремния наблюдается небольшое снижение как активности, так и селективности с увеличением содержания железа. С чем связано наблюдаемое изменение каталитических свойств? Хотелось бы обратить внимание, что рисунки для катализаторов на основе нитрида кремния приведены в виде гистограммы, а для модельных систем – в виде графиков конверсии от температуры, причем температурный диапазон для всех графиков разный. Это значительно затрудняет восприятие и сопоставление результатов.
4. С точки зрения корректности использования терминов необходимо отметить, что термин "реакционная способность" применяется при использовании ТПР с помощью

- реагентов, в данном случае с помощью этанола, а ТПВ водородом применяется для исследования прочности связи кислорода катализатора.
5. На основании каких данных сделан вывод об эффекте «кооперативного действия», если сопоставление Ag-Fe/SiO₂ катализаторов с катализаторами без железа не проводилось? Будет ли катализатор Ag/SiO₂ проявлять активность в дегидрировании этанола и селективность по ацетальдегиду?
 6. Как изменится схема реакции для катализатора, не содержащего серебра?

Сделанные замечания носят частный характер и не снижают общей положительной оценки работы.

По актуальности темы, объему выполненных исследований, совокупности использованных методов, новизне и практической значимости представленная диссертация является научно-квалификационной работой, соответствующей требованиям п.9 "Положения о присуждении ученых степеней" ВАК РФ, предъявляемым к кандидатским диссертациям, а ее автор - Савельева Анна Сергеевна - заслуживает присуждения ученой степени кандидата химических наук по специальности 02.00.04 - физическая химия.

Кандидат химических наук, научный сотрудник лаборатории нестационарных каталитических методов очистки газов, федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт катализа им. Г.К. Борескова Сибирского отделения Российской академии наук  Елена Марковна Славинская

Адрес: 630090, г. Новосибирск, пр. Академика Лаврентьева, 5.

Тел.: (383) 3269790

e-mail: lesla@catalysis.ru

Подпись заверяю,
Ученый секретарь ИК СО РАН им. Г.К. Борескова, к.х.н.



А.А. Ведягин

12.01.2015