



МЕТАННИ ОКСИДЛАНИШЛИ КОНДЕНСАЦИЯЛАШ РЕАКЦИЯСИНИНГ ТЕРМОДИНАМИК ШАРОИТЛАРИНИ ЎРГАНИШ

Турсунова Наргиза Самаритдиновна,

Самарқанд давлат университети ассистенти

Абилкасимова Гулноза,

Самарқанд давлат университети ассистенти

Ражабова Рухшона Самаритдиновна,

Самарқанд давлат университети мустақил тадқиқотчиси

Нарзикулов С.М.,

Самарқанд давлат университети

Шукуров С.С,

Самарқанд давлат университети

***Аннотация.** Ушбу ишда метанни оксиконденсатлаш реакциясининг тезлигига таъсир этувчи омиллар, реакциянинг кинетик қонуниятлари оқимли дифференциал реакторда ўрганилган. Метаннинг конверсиясига ва маҳсулотлар селективлигига метаннинг оксидланишли конденсацияланишида параллел ва кетма-кет кечувчи реакцияларнинг турли ҳароратлар оралигидаги қийматлари, оксидланишли конденсацияланиш реакцияси компонентларининг турли ҳароратлардаги мувозанат таркиби ўрганилди.*

***Калит сўзлар.** метан, этан, этилен, ацетилен, катализатор, ҳажмий нисбат, реактор, конверсия, контакт вақти, димерлаш.*

***Аннотация.** В данной работе исследованы факторы, влияющие на скорость реакции оксиконденсации метана, кинетические закономерности реакции в проточном дифференциальном реакторе. Исследованы величины параллельных и последовательных реакций окислительной конденсации метана при различных температурах, равновесный состав компонентов реакции окислительной конденсации при различных температурах конверсии метана и селективность продуктов.*

***Ключевые слова.** метан, этан, этилен, ацетилен, катализатор, объемная доля, реактор, конверсия, время контакта, димеризация.*

***Annotation.** In this work, factors affecting the rate of methane oxycondensation reaction, kinetic laws of the reaction were studied in a flow differential reactor. The values of parallel and sequential reactions in the oxidative condensation of methane at different temperatures, the equilibrium composition of the components of the oxidative condensation reaction at different temperatures were studied for the conversion of methane and the selectivity of products.*

***Keywords.** methane, ethane, ethylene, acetylene, catalyst, volume ratio, reactor, conversion, contact time, dimerization.*

Ҳозирги вақтда ишлаб чиқарилаётган табиий газнинг асосий қисми халқ хўжалигининг турли тармоқларида ёқилғи сифатида ишлатилмоқда, хомашё сифатида экспорт қилинмоқда. Ҳозирги вақтда қазиб олинаётган табиий газнинг 1,5-2,0 % гинаси кимёвий қайта ишланмоқда. Шу билан бир қаторда нефть захираларининг камайиши табиий газдан ёқилғилар олишни талаб этмоқда. Метандан бир босқичда C_2 -углеводородлари олиш бўйича қатор ишлар бажарилган, улар ўзининг иқтисодий самарадорлиги билан ажралиб туради. Шунга қарамадан, бу борадаги ишлар ҳали етарли эмас. Уларни жараён учун катализаторлар танлаш, жараённинг бориш қонуниятларини ўрганиш, жараённи моделлаштириш ва мақбуллаштириш соҳасида замон талабларидан келиб чиққан ҳолда ўтказиш Ўзбекистон Республикаси учун долзарб муаммолардандир. Каталитик жараёнлар механизмини ўрганиш, унинг математик моделларини яратиш, моделлар адекватлигини баҳолаган ҳолда мақбуллаштириш, кинетик жараёнларнинг автоматлаштирилган бошқариш тизимини яратиш нуқтаи назаридан муҳимдир. Бу борада бажариладиган ишларнинг муваффақияти каталитик жараён учун самарали ва специфик катализатор танлаш ва уларнинг қўлланилиш имкониятларини текширишга кўп жиҳатдан боғлиқ.

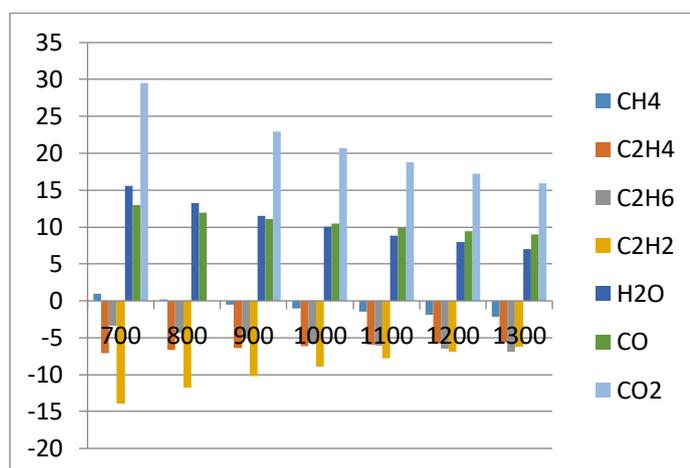
Метанни оксидланишли конденсациялаш реакцияси учун катализаторлар танлаш, адабиётлар қисмида келтирилган маълумотларга асосланиб, қуйидаги параметрлар билан характерланадиган стандарт шароитларда олиб борилди: реакцияни ўтказиш ҳарорати 1023 К, метан:ҳаво ҳажмий нисбатлари 1:2, ҳажмий тезлик қиймати 1200 соат^{-1} . Катализаторлар тегишли d-элементлар ацетат ёки нитратларининг тўйинган сувли эритмаларини турли нисбатлардаги аралашмаларини, маҳаллий хомашё – керамзитга шимдириш орқали тайёрланди. Бундан ташқари катализатор тайёрлашда цирконий гидроксиднинг тўйинган сувли эритмасидан ҳам фойдаланилди. Керамзит гранулаларига эритмалар аралашмаси 13 соат мобайнида шимдирилгандан сўнг, вакуум қурилмаси ёрдамида эритма таркибидаги сув тўлиғича ҳайдалди ва 3 соат давомида 413 К да қурилди. Катализаторни ишлатишдан олдин 15 минут мобайнида 1023-1073 К да ҳаво оқимида куйдирилди. Бунда метал ацетатлари ва нитратлари оксидларгача парчаланди.

Кинетик текширишларни амалга оширишдан олдин метаннинг оксидланишли конденсацияланишида ҳосил бўладиган моддалар аралашмасининг мувозанат ҳолатидаги таркиби ҳақидаги маълумотларни олиш мақсадга мувофиқ. Бундай маълумотлар реакцияларнинг бориш босқичини аниқлаш ва кинетик қонуниятларини изоҳлаш учун жуда фойдали бўлади. Метан иштирокида борадиган баъзи техник жиҳатдан муҳим реакцияларнинг термодинамик анализи қатор олимлар томонидан амалга оширилган. Бу тадқиқотлар асосан метаннинг дегидрогенланиши, оксидланиши ва хлорланиши каби реакцияларга тегишлидир. Бу тадқиқотларда фақатгина юқорида қайд этилган реакциялар учун Гиббс энергияларининг

қийматлари турли ҳароратларда ҳисобланган. Уларда реакцияларнинг тўлиқ термодинамик таҳлили амалга оширилмаган. Метаннинг молекуляр кислород билан таъсирлашишида ҳосил бўладиган олефинларнинг мувозанат ҳолатдаги унумлари ҳақида илмий адабиётларда умуман ҳеч қандай маълумот учрамайди. Бу ҳол дастлабки модда сифатида қўлланилган метаннинг реакцияларда бошқа моддаларга айланиши мумкин бўлган кўринишларини ҳатто тахминан баҳолашга ҳам имкон бермайди. Шу боис метаннинг оксидланишли конденсацияланиш реакцияси маҳсулотларининг мувозанат ҳолатидаги таркибини ўрганиш зарурати пайдо бўлди. Адабиётлардаги маълумотларни таҳлил қилиш метаннинг оксидланишли конденсацияланиш реакцияси қуйидаги кимёвий ўзгаришлар орқали ўтишини кўрсатади:

- 1) $2\text{CH}_4 + \text{O}_2 = \text{C}_2\text{H}_4 + 2\text{H}_2\text{O}$
- 2) $2\text{CH}_4 + \text{O}_2 = \text{C}_2\text{H}_2 + 2\text{H}_2\text{O} + \text{H}_2$
- 3) $2\text{CH}_4 + 1/2\text{O}_2 = \text{C}_2\text{H}_6 + \text{H}_2\text{O}$
- 4) $\text{C}_2\text{H}_6 + \text{O}_2 = \text{C}_2\text{H}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$
- 5) $\text{CH}_4 = \text{C} + 2\text{H}_2$
- 6) $\text{CH}_4 + 2\text{O}_2 = \text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$
- 7) $\text{CH}_4 + 1/2\text{O}_2 = \text{CO} + 2\text{H}_2$

Берилган реакциялардаги моддаларнинг мувозанат ҳолатидаги таркибларини аниқлаш учун биз компонентларнинг адабиётларда келтирилган $\lg K_m$ қийматларидан фойдаландик. $\lg K_m$ қийматлари 1100, 1200 ва 1300 К ҳароратлар учун экстраполяция усули ёрдамида ҳисобланди. Натижалар 1-расмда келтирилган.



1-расм. Метаннинг оксидланишли конденсацияланиш реакциясида иштирок этаётган моддаларнинг турли ҳароратлар оралиғидаги $\lg K_m$ қийматлари

Адабиётлар:

1. Dedov A.G., Nipan G.D., Loktev A.S., Tyunaev A.A., Ketsko V.A., Parkhomenko K.V., Moiseev I.I. Oxidative coupling of methane: influence of the phase composition of silica-based catalysts // *Appl. Catal., A*. 2011. Vol. 406.P.1-12.
2. Pak S., Qiu P., Lunsford J.H. Elementary reactions in the oxidative coupling of methane over Mn/Na₂WO₄/SiO₂ and Mn/Na₂WO₄/MgO Catalysts // *J. Catal.* 1998. Vol. 179. P. 222-230.
3. Ji S., Xiao T., Li Sh., Chou L., Zhang B., Xu Ch., Hou R., York A.P.E., and Green M.L.H. Surface WO₄ tetrahedron: these sence of the oxidative coupling of methane over M–W–Mn/SiO₂ catalysts // *Journal of Catalysis*. 2003. Vol. 220. P. 47-56.
4. Farsi A., Moradi A., Ghader S., Shadravan V., Manan Z.A., Kinetics Investigation of Direct Natural Gas Conversion by Oxidative Coupling of Methane, *J. Nat. Gas Sci. and Eng.*, 2, p. 270 (2010).
5. Zhang H.B., Lin G.D., Wan H.L., Liu Y.D., Weng W.Z., Cai J.X., Shen Y.F., Tsai K.R. // *Catal. Lett.* 2001. V. 73. № 2–4. P. 141.
6. Alexiadis V.I., Thybaut J.W., Kechagiopoulos P.N., Chaar M., Van Veen A.C., Muhler M., Marin G.B. // *Appl. Catal. B. Environ.* 2014. V. 150–151. P. 496.
7. Shi J., Yao L., Hu C. // *J. Energy Chem.* 2015. V. 24. № 4. P. 324
8. Lomonosov V., Gordienko Yu., Sinev M. // *Top. Catal.* 2013. V. 56. № 18. P. 1858
9. Liu K.; Zhao J.; Zhu D.; Meng F.; Kong F.; Tang Y. Oxidative coupling of methane in solid oxide fuel cell tubular membrane reactor with high ethylene yield. *Catal. Commun.* 2017, 96, 23–27. 10.1016/j.catcom.2017.03.010. [CrossRef] [Google Scholar].
10. Fayzullaev, N.I, Bobomurodova, S.Y, Xolmuminova, D.A Physico-chemical and texture characteristics of Zn-Zr/VKTS catalyst//*Journal of Critical Reviews*, 2020, 7(7), стр. 917–920
11. Mamadoliev, I.I., Fayzullaev, N.I., Khalikov, K.M. Synthesis of high silicon of zeolites and their sorption properties//*International Journal of Control and Automation*, 2020, 13(2), стр. 703–709.
12. Mamadoliev, I.I., Fayzullaev, N.I. Optimization of the activation conditions of high silicon zeolite//*International Journal of Advanced Science and Technology*, 2020, 29(3), стр. 6807–6813
13. F N Temirov, J Kh Khamroyev, N I Fayzullayev, G Sh Haydarov and M Kh Jalilov. Hydrothermal synthesis of zeolite HSZ-30 based on kaolin //*IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. – IOP Publishing, 2021. – T. 839. – №. 4. – C. 042099.
14. Khamroyev, J.K., Akmalaiuly, K., Fayzullayev, N. Mechanical activation of Navbahorsk bentonite and its textural and adsorption characteristics//*News of the National Academy of Sciences of the Republic of Kazakhstan, Series of Geology and Technical Sciences*, 2022, 1(451), стр. 167–174.
15. Buronov F., Fayzullayev N. Synthesis and application of high silicon zeolites from natural sources //*AIP Conference Proceedings*. – AIP Publishing LLC, 2022. – T. 2432. – №. 1. – C. 050004.

16. Tursunova, N.S., Fayzullaev, N.I. Kinetics of the reaction of oxidative dimerization of methane//International Journal of Control and Automation, 2020, 13(2), стр. 440–446.
17. Fajzullaev, N.I., Fajzullaev, O.O. Kinetic regularities in reaction of the oxidizing condensation of methane on applied oxide catalysts//Khimicheskaya Promyshlennost', 2004, (4), стр. 204–207
18. Muradov, K.M., Fajzullaev, N.I. Technology for producing the ethylene using the reaction of the oxidizing condensation of methane//Khimicheskaya Promyshlennost', 2003, (6), стр. 3–7