

**N E W S**

OF THE NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES OF THE REPUBLIC OF KAZAKHSTAN  
SERIES CHEMISTRY AND TECHNOLOGY

ISSN 2224-5286

Volume 5, Number 419 (2016), 186 – 193

UDC 541.128, 547.261, 665.612.3, 662.767, 66.023:088.8, 66.093.673

**L.R. Sassykova<sup>1,2</sup>, A. Nalibayeva<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> JCC «D.V.Sokol'skii Institute of Fuels, Catalysis & Electrochemistry»;

<sup>2</sup> al-Farabi Kazakh National University

e-mail: [larissa.rav@mail.ru](mailto:larissa.rav@mail.ru)

**DEVELOPMENT OF CATALYTIC SYSTEMS  
ON METAL BLOCK CARRIERS FOR OXIDATION OF  
HYDROCARBONS AND REDUCTION OF NITROGEN OXIDE**

**Abstract.** The aim of work was preparation of catalytic systems on the basis of Fe, Ni, Pt, Pd, with additives of Cu, Mo, Re on metal block carriers and research of their activity at the complete oxidation of NO<sub>x</sub>, CO, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> and reaction NO<sub>x</sub>+C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>+O<sub>2</sub>. Comparative data on change of degree of transformation of NO and CO, hydrocarbons depending on structure of the secondary carrier and the active phase are presented. For one-component catalysts on the basis of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> supported on zeolites of various type, the greatest degree of transformation of NO<sub>x</sub> (100% at 773 K) is reached on the carrier with an additive of H-form of NaY zeolite. The most stable throughout the temperature range during the test for 50 hours was Ni/HY catalyst, at 673 K degree of transformation of NO was equal to 67.0 %, of propylene - 100%. Pd-containing catalysts, promoted with molybdenum are prepared, and molybdenum was supported for the different samples from the different compounds of molybdenum: from ammonium, sodium salts, as well as phosphorus-molybdenum, silicon, molybdenum, potassium-silicon-molybdenum acids were used. The greatest activity at reduction of NO, in comparison with the samples obtained from the salts with other anions possessed the catalysts with Mo additive from an ammonium salt. It is found that introduction of titania into the secondary carrier significantly increases the degree of reduction of nitrogen oxides by propylene. By the TPD method of ammonia it is revealed that the total concentration of the acid centers Pt-and Pd-catalysts promoted by oxides of nickel and manganese, is higher than in the initial alumino-platinum and palladium catalysts.

**Keywords:** catalyst, nitrogen oxide, hydrocarbons, exhaust gases, motor transport, metal block carriers

УДК 541.128, 547.261, 665.612.3, 662.767, 66.023:088.8, 66.093.673

**Л.Р.Сасыкова<sup>1,2</sup>, А.М. Налибаева<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> АО «Институт топлива, катализа и электрохимии им. Д.В. Сокольского»;

<sup>2</sup> Казахский Национальный Университет им. аль-Фараби

**РАЗРАБОТКА КАТАЛИТИЧЕСКИХ СИСТЕМ  
НА МЕТАЛЛИЧЕСКИХ БЛОЧНЫХ НОСИТЕЛЯХ ДЛЯ ОКИСЛЕНИЯ  
УГЛЕВОДОРОДОВ И ВОССТАНОВЛЕНИЯ ОКСИДА АЗОТА**

**Аннотация.** Цель работы- приготовление каталитических систем на основе Fe, Ni, Pt, Pd, с добавками Cu, Mo, Re на металлических блочных носителях и исследование их активности при полном окислении NO<sub>x</sub>, CO, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> и реакции NO<sub>x</sub>+C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>+O<sub>2</sub>. Приводятся сравнительные данные по изменению степени превращения NO и CO, углеводородов в зависимости от состава вторичного носителя и активной фазы. Для одно-компонентных катализаторов на основе Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, нанесенного на цеолиты различного типа, наибольшая степень превращения NO<sub>x</sub> (100% при 773 К) достигается на носителе с добавкой H-формы цеолита NaY. Наиболее стабильный во всем интервале температур при испытании в течение 50 ч. - катализатор Ni/HY, при

673 К степень превращения NO-67,0%, пропилена – 100%. Приготовлены Pd-содержащие катализаторы, промотированные молибденом, причем молибден наносили для разных образцов из разных соединений молибдена: аммониевой, натриевой солей, а также использовали фосфорно-молибденовую, кремне-молибденовую, калий-кремнемолибденовую кислоты. Наибольшей активностью при восстановлении NO, по сравнению с образцами, полученными из солей с другими анионами, обладали катализаторы с добавкой Mo из аммониевой соли. Установлено, что введение во вторичный носитель оксида титана значительно увеличивает степень восстановления оксидов азота с помощью пропилена. Методом ТПД аммиака установлено, что суммарная концентрация кислотных центров Pt- и Pd-катализаторов, промотированных оксидами никеля и марганца, выше, чем в исходных алюмо-платиновых и палладиевых катализаторах.

**Ключевые слова:** катализатор, оксид азота, углеводороды, выхлопные газы, автотранспорт, металлические блочные носители.

### Введение

Автомобильным транспортом осуществляется перевозка около 70% всех пассажиров и свыше 80% перевозок грузов. При сгорании топлива в цилиндрах двигателя автомобиля образуются нетоксичные (водяной пар, углекислый газ) и токсичные вещества, являющиеся продуктами неполного сгорания. Образующиеся вредные вещества с атмосферными осадками попадают на землю и являются источниками загрязнения рек, водоемов, зеленых насаждений и почвы. В сравнении с другими видами транспорта, автомобильный развивается опережающими темпами, что, в свою очередь, может привести к экологическим бедствиям [1-7]. Загрязнение атмосферы выхлопными газами, содержащими оксиды азота ( $\text{NO}_x$ , NO,  $\text{NO}_2$ ) в настоящее время - глобальная проблема. Оксиды азота чрезвычайно ядовиты. По силе воздействия на человеческий организм это наиболее токсичные компоненты выхлопных газов, по этой причине обезвреживание оксидов азота путем каталитического разложения или восстановления приобретает особенное значение [8-14].

Целью работы являлось приготовление одно- и двухкомпонентных каталитических систем на основе Fe, Ni, Pt, Pd, с добавками Cu, Mo, Re на металлических блочных носителях и исследование их активности при полном окислении  $\text{NO}_x$ , CO,  $\text{C}_3\text{H}_8$  и реакции  $\text{NO}_x + \text{C}_3\text{H}_6 + \text{O}_2$ .

### Экспериментальная часть

Для изучения процессов обезвреживания выхлопных газов автотранспорта в работе синтезированы одно- и двух-компонентные каталитические системы на основе соединений Fe, Ni, Pt, Pd, с добавками, нанесенных на металлические блочные носители с сотовой структурой канала (рис.1). Методика приготовления катализаторов разработана ранее авторами статьи и описана в [15-20].



а



б

Рисунок 1 – Катализаторы на металлических блочных носителях: а - общий вид образцов для лабораторных испытаний, б - полноразмерные образцы для испытаний в реальных условиях эксплуатации

Образцы катализаторов готовили на основе цеолитов ZSM-5 с модулем 30 и NaY с модулем 5,1. В качестве связующего использовали влажный гидрогель гидроксида алюминия (влажность-80%). Нанесение активного компонента проводили с использованием метода пропитки по

влагоемкости. Катализаторы готовили путем введения в суспензию вторичного носителя определенного количества солей необходимого металла. Суспензию, содержащую соли металла, тщательно перемешивали, разбавляли до необходимой вязкости, затем блочный металлический каркас с сотовой структурой погружали в суспензию. Избыток суспензии из каналов удалялся встряхиванием, и блоки помещались в кассеты центрифуги, где происходило удаление избытка суспензии из каналов блока и ее равномерное распределение по поверхности. Сушка блоков после центрифугирования проводилась в сушильном шкафу при температуре 473-523К в течение 1 ч. Просушенные блоки с нанесенным вторичным носителем прокаливались в электрической печи при температуре 873-923 К в течение 2-х часов.

### Результаты и их обсуждение

Приготовленные никель и железосодержащие катализаторы испытывались в реакции окисления углеводородов и восстановления оксида азота. Независимо от природы введенного цеолита, заметное превращение NO начиналось при температуре выше 473 К, постепенно увеличивалось с ростом температуры и достигало наибольшей величины при T=773 К. В случае Fe-содержащих блочных катализаторов наибольшей активностью при восстановлении NO пропиленом обладает катализатор, модифицированный цеолитом NaY. Катализатор с этим же составом оказался самым активным и при окислении C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>. При 473 К степень превращения C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> на этом катализаторе составляет 35,8%, а полное превращение наблюдается при 573 К.

Степень превращения C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> при 573 К на катализаторах этой серии снижалась в ряду: Fe/NaY>Fe/ZSM-5>Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Для однокомпонентных катализаторов на основе Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, нанесенного на цеолиты разного вида, наибольшая степень превращения NO<sub>x</sub> (100% при 773 К) достигается на носителе с добавкой H-формы цеолита NaY.

Окисление пропилена на Ni-содержащих цеолитах происходило, по сравнению с Fe-содержащими блочными катализаторами, с более низкими степенями превращения: 100%-ное превращение C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> наблюдалось на Ni/HY образце только при 773 К. Другие образцы катализаторов на основе Ni были менее активными и степень превращения C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> на них мало изменялась в зависимости от природы цеолита. В зависимости от природы модифицирующего цеолита активность Ni-содержащих цеолитов в реакции восстановления NO при 573 К уменьшалась в ряду: Ni/HY>Ni/NaY>Ni/ZSM-5.

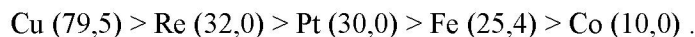
Таблица 1 – Влияние промотирующих добавок на степень восстановления оксида азота пропиленом в присутствии кислорода -350-600 ppm. Объемная скорость – 25·10<sup>3</sup>ч<sup>-1</sup>, концентрация NO-220-400 ppm, концентрация C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>-500-700 ppm

Катализатор	Содержание O <sub>2</sub> , % об.	Степень превращения при T,К								Концентрация CO, ppm при T,К			
		NO, %				C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> , %							
		473	573	673	773	473	573	673	773	473	573	673	773
Fe/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1	11,4	18,6	58,1	100	36,0	54,0	73,0	100	0,01	0,00	0,00	0,00
	3	2,0	19,5	24,7	19,0	2,0	12,0	100	100	0,2	0,01	0,00	0,00
	5	2,0	10,0	16,6	23,8	10,0	20,0	100	100	0,2	0,01	0,00	0,00
Fe/ZSM-5	3	3,0	5,7	12,8	18,5	15,0	14,5	100	100	0,03	0,02	0,01	0,01
	5	0,0	5,0	14,0	13,6	20,0	41,0	100	100	0,02	0,02	0,01	0,01
Fe/NaY	3	10,0	27,9	59,3	57,3	35,8	100	100	100	0,03	0,02	0,01	0,00
Ni/NaY	3	15,7	28,7	100	100	20,0	62,0	67,0	70,0	0,03	0,04	0,09	0,27
Ni+Pt/NaY	5	0	19,2	72,5	100	14,0	54,0	59,7	66	0,05	0,11	0,18	0,27
	10	-	10,2	25,0	100	-	100	100	100	0,01	0,01	0,00	0,00
Ni/HY	3	16,5	58,1	100	100	40,5	70,3	89,2	100	0,01	0,04	0,02	0,04
Ni+Pt/HY	5	-	27,8	100	100	25,0	40,6	100	100	0,00	0,01	0,00	0,00
Ni/ZSM-5	3	0	9,2	30,0	100	42,0	50,8	66,6	70,0	0,04	0,06	0,09	0,09
Ni+Pt/ZSM-5	3	-	32,4	100	80,5	-	100	100	100	-	-	-	-
Fe+Pt/NaY	3	3,5	22,0	32,1	37,6	20,0	66,1	98	100	0,01	0,00	0,00	0,00
Fe+Pt/ZSM-5	3	0	17,3	30,0	100	-	49,2	68	88	0,01	0,01	0,01	0,00

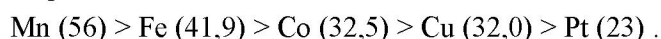
Из двухкомпонентных систем в реакции восстановления оксида азота пропиленом в присутствии кислорода изучены Ni+Pt, Fe+Pt- катализаторы (Табл.1). Для Ni+Pt/HY катализатора максимальная степень превращения NO достигалась при 673 К, для образца с добавкой NaY полное превращение NO наблюдалось только при 773 К. При окислении пропилена все Ni-Pt катализаторы проявляли высокую активность (100% при 673 К). В случае с Fe+Pt- катализаторами цеолитные добавки не оказывают значительного влияния на активность катализаторов как в реакции восстановления NO, так и при окислении пропилена. В реакции окисления пропилена катализаторы этой серии проявляют низкую активность.

Приготовленные никель и железосодержащие цеолитные блочные катализаторы были исследованы на термостабильность при T=973 К в течение 50 ч. в рабочей газовой среде. На Fe-содержащем катализаторе наблюдается незначительное снижение активности при низких температурах (473 К). Степень полного окисления пропилена уменьшается от 35,0 до 17,0%. При более высоких температурах снижение активности не наблюдается. Наиболее стабильным во всем интервале температур оказался катализатор Ni/HY, при 673 К степень превращения NO-67,0%, пропилен – 100%.

Приготовлены и испытаны катализаторы с различным составом активной фазы на носителе с добавкой H - формы цеолита NaY. В зависимости от природы металла (Fe, Co, Cu, Pt, Re) катализаторы этой серии по степени превращения NO ( $\alpha_{NO}$ , %) при O<sub>2</sub> - 3 % об. при 623 К можно расположить в ряд :



В аналогичных условиях активность тех же металлов ( $\alpha_{NO}$ , %), нанесенных на носитель Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, снижалась в следующем порядке :



Полученные результаты показывают, что каталитическая активность изученных металлов в этой реакции не является простой функцией кислотности носителя.

В табл.2 представлены сравнительные результаты по активности катализаторов, отличающихся как содержанием активной фазы, так и составом носителя.

Таблица 2- Степень восстановления NO (%) пропиленом на двухкомпонентных системах при 623 К

Носитель	Состав активной фазы				
	Pt - Fe	Pt - Cu	Pt - Re	Pt - Co	Pt
ZSM - 5	25,4	88,1	12,0	15,7	18,6
NaY	40,3	48,8	31,2	-	30,0
HY	-	52,8	-	-	-

В этих катализаторах содержание платины в составе активной фазы было уменьшено с одновременным внесением металлов других групп (Cu, Re, Co, Fe). Видно, что активность смешанных катализаторов в большей степени зависит от природы металла, чем от природы цеолита, что свидетельствует о том, что наряду с кислотными свойствами при восстановлении NO пропиленом важное значение имеют также окислительно- восстановительные свойства металлов. Те металлы, у которых больше способность способны восстанавливаться или окисляться, являются активными в этой реакции.

Исследован ряд платина-содержащих катализаторов с добавками Cu-Co и Co-Mn с различным соотношением компонентов. Содержание суммы оксидов варьировали в пределах 0,0-3,0 % вес. Активность определялась при концентрации кислорода 3 и 5 % об. и температурах от 473 до 773 К. Установлено, что степень превращения NO увеличивается линейно с ростом содержания суммы оксидов в катализаторе. Катализаторы, которые не содержат Pt, при 5% - ном содержании O<sub>2</sub> в газовой среде при восстановлении NO не проявляли видимой активности (13,7 % при 773 К и 6,0% при 573 К). Степень превращения C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> оставалась высокой при всех температурах и составляла при 473 К- 41,6 %, при 773 К - 100 % .

При варьировании содержания кобальта и марганца в составах катализатора наибольшая степень превращения NO (29,0-32,0%) достигалась на образцах соотношением Co:Mn=2:1. Степень превращения C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> была высокая на всех образцах этой серии и достигала 100 % уже начиная с 473 К.

Изучено влияние исходных соединений на образцах Pd-содержащих катализаторов, промотированных молибденом. Молибден наносили из аммониевой, натриевой солей, а также были использованы фосфорно-молибденовая, кремне-молибденовая, калий-кремнемолибденовая кислоты. Установлено, что наибольшей активностью при восстановлении NO, по сравнению с образцами, полученными из солей с другими анионами, обладали катализаторы с добавкой Mo из аммониевой соли. При температуре максимальной активности (773 К) степень превращения NO при содержании кислорода в газовой смеси 5 и 10 % об. была в пределах 22,0-24,0 % ,

На Pt- и Pd-содержащих катализаторах с добавкой оксида железа при высоких содержаниях O<sub>2</sub> очень четко проявлялась экстремальная зависимость степени превращения NO от температуры и составляла в точке максимума (573 К) 19,0- 23,0 % .

На Pd-катализаторе изучена зависимость степени восстановления NO от содержания в газовой среде кислорода, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> и NO. При увеличении концентрации O<sub>2</sub> от 0,5 до 3% об (α<sub>NO</sub>) при 623 К сначала возрастала от 20,0 до 40,0 %, при 3,0 и 5,0% O<sub>2</sub> была примерно постоянной. При содержании O<sub>2</sub> 10 % об. степень превращения оксида азота хотя и уменьшалась, но все же оставалась выше, чем в отсутствие кислорода. При варьировании концентрации C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> (от 0 до 1000 ppm) степень превращения NO линейно возрастала с ростом содержания C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> от 0 до 500 - 600 ppm, а выше этой концентрации только слабо увеличивалась.

В работе также изучен ряд оксидных катализаторов на блочном носителе, различающемся составом вторичного носителя (γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+TiO<sub>2</sub>) и составом активного вещества (Co+Mn, Fe+Mn), промотированного и не промотированного платиной. Установлено, что введение во вторичный носитель оксида титана значительно увеличивает степень восстановления оксидов азота с помощью пропилена на обоих составах оксидных катализаторов во всем интервале исследуемых температур (от 423 до 773 К) и составляет при 423 К на Co-Mn-катализаторе 34,0%, на Fe-Mn - 29,0%, при 773 К -33,0% и 55,0%, соответственно. Промотирование платиной улучшает восстановительную способность кобальт-марганцевого катализатора на Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> только при высокой температуре. На титан-содержащем образце в присутствии платины степень превращения NO снижается.

С использованием метода ТПД аммиака изучены кислотные свойства приготовленных платиновых и палладиевых катализаторов. На рис.2 представлены сравнительные диаграммы для катализаторов с различной концентрацией кислотных центров разной силы. Видно, что катализаторы на основе Pt/Ni-Mn/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> характеризуются наибольшей концентрацией сильных кислотных центров (280 мкмоль/г), у Pd/Ni-Mn/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> катализатора наибольшая концентрация слабых кислотных центров - 250 мкмоль/г. В Таблице 3 приведены характеристики катализаторов на основе Pt и Pd, полученные с использованием метода ТПД NH<sub>3</sub>. Суммарная концентрация кислотных центров Pt- и Pd-катализаторов, промотированных оксидами никеля и марганца, выше, чем в исходных алюмо-платиновых и палладиевых катализаторах.

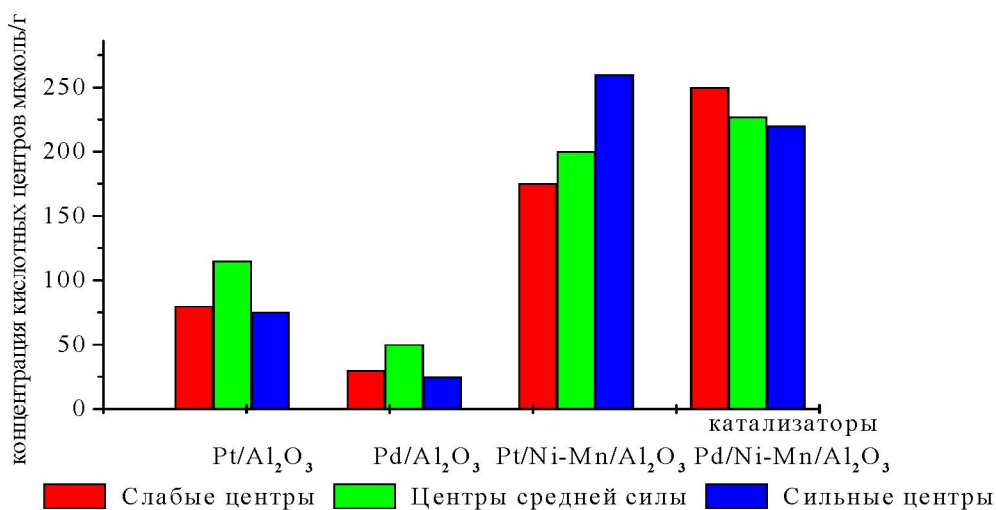


Рисунок 3-Влияние химического состава нейтрализаторов на распределение кислотных центров различной силы

Таблица 3 - Пористая структура и кислотные свойства Pt- и Pd-катализаторов

Образец катализатора	Характеристика пористой структуры		Суммарная концентрация кислотных центров по адсорбции NH <sub>3</sub> , мкмоль/г
	Удельная площадь поверхности, м <sup>2</sup> /г	Объем пор, см <sup>3</sup> /г	
1 Pt/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	200	0,348	240
2 Pd/ Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	205	0,356	110
3 Pd/Ni-Mn/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	350	0,274	620
4 Pt/ Ni-Mn/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	370	0,290	660

Таким образом, Pt- и Pd-содержащие катализаторы при близких значениях общей концентрации кислотных центров 660-620 мкмоль/г характеризуются отличающимся соотношением центров разной силы, что, по-видимому, определяет различия в их каталитических свойствах.

### Выводы

Таким образом, синтезированы каталитические системы на основе Fe, Ni, Pt, Pd, с добавками Cu, Mo, Re, нанесенных на металлические блочные носители с сотовой структурой канала. Выявлено, что в случае одно-компонентных катализаторов на основе Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, нанесенного на цеолиты разного вида, наибольшая степень превращения NO<sub>x</sub> (100% при 773 К) достигается на носителе с добавкой H-формы цеолита NaY. Катализаторы на основе Ni оказались менее активными, и степень превращения C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> на них мало изменялась в зависимости от природы цеолита. При испытании на термостабильность установлено, что наиболее стабильным во всем интервале температур в течение 50 ч. оказался катализатор Ni/HY, при 673 К степень превращения NO-67,0%, пропилен – 100%. Выявлено, что активность смешанных катализаторов в большей степени зависит от природы металла, чем от природы цеолита, что свидетельствует о том, что наряду с кислотными свойствами при восстановлении NO пропиленом важное значение имеют также окислительно-восстановительные свойства металлов. Приготовлены Pd-содержащие катализаторы, промотированные молибденом, причем молибден наносили для разных образцов из разных соединений молибдена: аммониевой, натриевой солей, а также использовали фосфорно-молибденовую, кремне-молибденовую, калий-кремнемолибденовую кислоты. Наибольшей активностью при восстановлении NO, по сравнению с образцами, полученными из солей с другими анионами, обладали катализаторы с добавкой Mo из аммониевой соли. Установлено, что введение во вторичный носитель оксида титана значительно увеличивает степень восстановления оксидов азота с помощью пропилена. С помощью ТПД аммиака выявлено, что суммарная концентрация кислотных центров Pt- и Pd-катализаторов, промотированных оксидами никеля и марганца, выше, чем в исходных алюмо-платиновых и палладиевых катализаторах.

### ЛИТЕРАТУРА

- [1] Lucena P., Vadillo J.M., Joseana J.J. Compositional mapping of poisoning elements in automobile three-way catalytic converters by using laser-induced breakdown spectrometry // J.Appl.Spectrosc., 2001, V.55, №3, P.267-272.
- [2] Haggin I. Catalyst cuts nitrogen oxides using methane // Chem. &Eng.News.-1993.-Vol.71, No.15. -P. 34-36.
- [3] Крылов О.В., Третьяков В.Ф. Каталитическая очистка выхлопных газов автомобильного транспорта // Катализ в промышленности.-2007.-№4.- С.44-54.
- [4] Кароль И.Л., Киселев А.А. Оценка ущерба "здоровью" атмосферы // Природа.- 2003.- №6.- С.18-21.
- [5] Колбановский Ю.А. Некоторые вопросы создания экологически чистых топлив для карбюраторных двигателей // Нефтехимия.-2002.-Т.42.-№2.-С.154-159.
- [6] Global change of climate. Kazakhstan: the steps to the Kyoto protocol. Project 70-242 TASIC. Astana, 2006.
- [7] Ахатов А. Г. Экология и международное право. Ecology &International Law.- М.: АСТ-ПРЕСС, 1996. - 512 с.
- [8] Выстробец Е.А. Международное сотрудничество в области охраны окружающей среды и природных ресурсов. М.: Изв-во МНЭПУ, 2000.- 112с.
- [9] Inventory of U.S. Greenhouse Gas Emissions and Sinks: 1990-1999. U.S. Environmental Protection Agency, 8 April 15, 2001, Washington, DC, USA.
- [10] Trimm D.H. Catalytic Combustion (Review) //Appl.Catalysis.- 7.-1983.- P.249-282.
- [11] Иноземцев В.Л. Кризис Киотских соглашений и проблема глобального потепления климата // Природа.-2001.- №1.- С.20-29.

- [12] Луканин В.Н., Трофименко Ю.В. Промышленно-транспортная экология. – М.: Высшая школа, 2001. – 273 с.
- [13] Silva R., Cataluña R., Martínez-Arias A. Selective catalytic reduction of NO<sub>x</sub> using propene and ethanol over catalysts of Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> prepared by microemulsion and promotional effect of hydrogen // *Catalysis Today*.-2009.-Vol.-143, No.3-4.-P. 242-246.
- [14] Третьяков В.Ф., Бурдейная Т.Н., Матышак В.А., Глебов Л.С. Экологический катализ: достижения и перспективы // 17 Менд.съезд по общей и прикладной химии, Казань, 21-26 сент., 2003:Тезисы докл., Казань: Типогр. «Центр операт.печ.», 2003.-С.469.
- [15] Gilmundinov Sh.A., Sassykova L.R., Nalibayeva A.M. The catalyst' creation for the cleaning of the exhaust gases of the motor transport working with methane// III Международная конференция «Catalysis:Fundamentals and Application» Novosibirsk, 4–8 july, 2007, Book of Abstracts, V.II.- P.532-534.
- [16] Sassykova L.R., Massenova A.T., Gilmundinov Sh.A., Bunin V.N., Rakhmetova K.S.// *Selective Oxidation and Functionalization: Classical and Alternative Routes and Sources*. Berlin, Germany. Preprints of the Conference, 2014,181-187.
- [17] Sassykova L.R., Ussenov A., Massenova A.T., Gil'mundinov Sh.A., Rakhmetova K.S., Bunin V.N., Basheva Zh.T. and Kalykberdiyev M.K.. Creation of high effective nanostructured catalysts on base of Pt, Pd for neutralization of motor transport exhaust // *Int. J. Chem. Sci.*: 14(1), 2016, 206-212.
- [18] Sassykova L.R., Massenova A.T., Gil'mundinov Sh., Tel'baeva M.M., Bunin V.N., Komashko L.V.// 15th International Congress on catalysis ICC15, Germany, Munich, **2012**, Abstract, PP-03, 456. (In Eng.)
- [19] Gilmundinov Sh.A., Sassykova L.R., Nalibayeva A.M. The Nanostructured Catalysts of Neutralization of Motor Transport Exhaust // International Symposium on Metastable and Nano Materials, ISMANAM August 2007, Greece.-Corfu,2007.- P.168-169.
- [20] Sassykova L.R., Massenova A.T., Sharifkanova G.N. The catalysts for synthesis of dimethyl ether - new ecologically pure fuel // **The Sixth Asia-Pacific Congress on Catalysis (APCAT-6)**, Taipei, Taiwan, **October 13-17, 2013**, **P2-177, Abstracts P. 255.**

#### REFERENCES

- [1] Lucena P., Vadillo J.M., Joseña J.J., *J.Appl.Spectrosc.*, **2001**, Vol.55, 3, P.267-272. (In Eng.)
- [2] Haggin I., *Chem. &Eng.News.*, **1993**, Vol.71, 15, P. 34-36. (In Eng.)
- [3] Krylov O.V., Tretyakov V.Ph., *Catalysis in Industry*, 4, **2007**, P.44-54. (In Russ.)
- [4] Karol I.L., Kisselev A.A. Assessment of damage to "health" of the atmosphere, . *Priroda*, 6, **2003**, p.18-21. (In Russ.)
- [5] Kolbanovskii Y. A. Some questions of creation of environmentally friendly fuels for gasoline engines, *Petrochemistry*, **2002**, 42, 2, P.154-159. (In Russ.)
- [6] Global change of climate. Kazakhstan: the steps to the Kyoto protocol. Project 70-242 *TASIS*. Astana, 2006. (In Russ.)
- [7] Akhatov A.G. Ecology and International law. M.: *AST-PRESS*, **1996**, 512 (In Russ.)
- [8] Vystrobets E.A. International cooperation in the field of environment and natural resources. M.: *Izdatelstvo MNEPU*, **2000**, 112 (In Russ.)
- [9] Inventory of U.S. Greenhouse Gas Emissions and Sinks: 1990-1999. U.S. *Environmental Protection Agency*, 8 April 15, **2001**, Washington, DC, USA. (In Eng.)
- [10] Trimm D.H. Catalytic Combustion (Review), *Appl.Catalysis*, 7, **1983**, 249-282. (In Eng.)
- [11] Inozemtsev V.L. *Priroda*, **2001**, 1, 20-29 (InRuss.)
- [12] Lukanin V.N., Trofimenko Y.V. Industrial and transport ecology. M.: Visshay shkola, 2001, 273 p. (In Rus)
- [13] Silva R., Cataluña R., Martínez-Arias A., *Catalysis Today*, **2009**, Vol., 143, 3-4, P. 242-246. (In Eng.)
- [14] Tretyakov V. Ph., Burdeynaya T.N., Matyshak V.A., Glebov L.S. *Environmental catalysis: Achievements and Prospects*, 17 Mendeleevskii congress on General and Applied Chemistry, Kazan, September 21-26, 2003. Abstracts, Kazan. **2003**-P.469. (In Russ.)
- [15] Gilmundinov Sh.A., Sassykova L.R., Nalibayeva A.M., "*Catalysis: Fundamentals and Application*", Novosibirsk, **2007**, Book of Abstracts, Vol.II., P.532-534. (In Eng.)
- [16] Sassykova L.R., Massenova A.T., Gilmundinov Sh.A., Bunin V.N., Rakhmetova K.S. *Selective Oxidation and Functionalization: Classical and Alternative Routes and Sources*, Berlin, Germany, Preprints of the Conference, **2014**,181-187. (In Eng.)
- [17] Sassykova L.R., Ussenov A., Massenova A.T., Gil'mundinov Sh.A., Rakhmetova K.S., Bunin V.N., Basheva Zh.T.and Kalykberdiyev M.K., *Int. J. Chem. Sci.*, Vol.14, 1, **2016**, 206-212. (In Eng.)
- [18] Sassykova L.R., Massenova A.T., Gil'mundinov Sh., Tel'baeva M.M., Bunin V.N., Komashko L.V., *15th International Congress on catalysis ICC15*, Germany, Munich, **2012**, Abstract, PP-03, 456. (In Eng.)
- [19] Gilmundinov Sh.A., Sassykova L.R., Nalibayeva A.M. , *International Symposium on Metastable and Nano Materials, ISMANAM* , Greece, Corfu, **2007**, P.168-169. (In Eng.)

[20] Sassykova L.R., Massenova A.T., Sharifkanova G.N., *The Sixth Asia-Pacific Congress on Catalysis (APCAT-6)*, Taipei, Taiwan, 2013, P2-177, 255 (In Eng.)

Л.Р. Сасыкова<sup>1,2</sup>, А. Налибаева<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Д.В.Сокольский атындағы жанармай, катализ және электрохимия институты АҚ, Алматы, Қазақстан;

<sup>2</sup> әл-Фараби атындағы Қазақ Ұлттық Университеті, Алматы, Қазақстан

### КӨМІРСУТЕКТЕРДІ ТОТЫҚТЫРУҒА ЖӘНЕ АЗОТ ОКСИДІН ТОТЫҚСЫЗДАНДЫРУҒА АРНАЛҒАН МЕТАЛЛ БЛОКТЫҚ ТАСЫМАЛДАУЫШТАРДАҒЫ КАТАЛИТИКАЛЫҚ ЖҮЙЕЛЕРДІҢ ЗЕРТТЕМЕЛЕРІ

**Аннотация.** Жұмыстың мақсаты – Fe, Ni, Pt, Pd металдарына Cu, Mo, Re қоспасының негізіндегі металл блоктық тасымалдаушыдағы каталитикалық жүйелерді дайындау және олардың NO<sub>x</sub>, CO, C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> толық тотығу кезінде және NO<sub>x</sub>+C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>+O<sub>2</sub> реакциясындағы белсенділігін зерттеу. NO, CO және көмірсутектердің айналу дәреже өзгерісінің екінші реттік тасымалдауыш пен активтік фазаның құрамына тәуелділігі жайлы салыстырмалы мәліметтер келтірілген. Цеолиттің әр түрлі типтері түсірілген, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> негізіндегі бір компонентті катализаторлар үшін NO<sub>x</sub> (100%, 773 К кезінде) ең жоғары айналу дәрежесі H-формалы NaY цеолиттің қоспасының тасымалдағышында қол жеткізілді. 50 сағ. зерттеулер кезіндегі барлық температуралық интервалдардағы ең тұрақтысы – катализатор Ni/HY, 673 К кезінде NO-ның айналу дәрежесі 57%, пропилендікі – 100%. Pd-құрамдас катализаторлар дайындалып, оларды кейіннен молибденмен (айта кететіні, әр түрлі үлгілерге әр түрлі молибденнің қосылыстары түсірілді), аммоний және натрий тұздарымен промуоутерлендірілді және де фосфорлық-молибдендік, кремне-молибдендік және калий-кремнемолибдендік қышқылдар қолданылды. Анионы басқа тұздардан алынған үлгілерге қарағанда, аммоний тұзындағы Mo қоспасы негізіндегі катализаторлар NO тотықсыздануы кезінде ең жоғары белсенділікті көрсетті. Титан оксидінің екінші реттік тасымалдауышға енгізілуі азот оксидінің пропиленнің көмегімен тотықсыздану дәрежесін едәуір арттырды. Аммиактың ТПД әдісі бойынша, никель және марганец оксидтерімен промуоутерленген Pt- и Pd-катализаторларының қышқылдық орталықтырының жалпы концентрациясы, алюмо-платиндік және палладиялық катализаторларға қарағанда жоғары екендігі анықталды.

**Түйін сөздері:** катализатор, азот оксиді, көмірсутектер, бөлінетін газдар, автокөлік, металл блокты тасымалдаушылар.