

используемых в народном хозяйстве [1,2]. Республика Казахстан традиционно считается экспортером сырья, в первую очередь - нефти и газа. Чтобы изменить ситуацию, необходим ряд решений в разных сферах, в частности, в технологической. В Казахстане ощущается острый дефицит в аминах различного строения. Разработанная в нашей стране реакция окислительного аммонолиза открывает широкие возможности для синтеза нитрилов различного строения [3]. Перспективным и доступным методом синтеза алифатических и ароматических моно-, диаминов является гидрогенизация соответствующих моно-, динитрилов [1, 2, 4-7], для этой цели в качестве основного вида сырья могут быть использованы продукты глубокой переработки нефти и угля [2,4]. Исследование кинетики и механизма гидрирования нитрилов представляет значительный теоретический и практический интерес в связи с постоянно возрастающим использованием аминов в промышленности. Эта реакция считается одной из наиболее сложных и изучается многими исследователями в странах СНГ и дальнего зарубежья.

Цель работы заключается в разработке эффективного способа получения ароматических моно-, диаминов путем гидрирования соответствующих моно-, динитрилов на промотированных никелевых катализаторах.

Экспериментальная часть

С целью интенсификации процесса каталитического синтеза бензиламина, м-, п-ксилилендиаминов из бензонитрила, изофтало-, терефталонитрилов были проведены исследования в присутствии различных сплавных катализаторов на основе Ni-Ренея. Каталитическое гидрирование бензонитрила, изофтало-, терефталонитрилов проводилось в жидкой фазе в изобарно-изотермическом режиме на кинетической установке высокого давления (КУВД), позволяющей контролировать расход водорода в единицу времени [8]. Реактор представляет собой каталитическую "утку" из нержавеющей стали. Объем реакционного сосуда - 0,15 л, число односторонних качаний 600-700 в мин. Растворитель – спирт + NH₃. Гидрирование осуществляют до прекращения поглощения водорода из газовой фазы. Для анализа продуктов гидрирования были применены потенциометрическое титрование, ИКС, Фурье-спектроскопия и элементный анализ. Аппаратура и методика эксперимента описана нами ранее [9], катализаторы готовились по известной методике [6].

Обсуждение результатов

При исследовании каталитического гидрирования бензонитрила, терефтало-, изофталонитрилов мы целенаправленно пытались подобрать такие условия проведения процесса – катализатор, растворитель, температура, давление водорода и соотношение аммиак:динитрил, которые могли бы обеспечить высокий выход и качество целевого продукта при сокращении продолжительности эксперимента.

Ранее нами показано, что при гидрировании бензонитрила и терефталонитрила значительное влияние на данный процесс оказывает природа растворителя, причем лучшие результаты достигаются в случае использования спиртов в присутствии аммиака [1, 10, 11]. Мы в своих исследованиях при гидрировании ароматических моно-, динитрилов (бензонитрила и терефталонитрила) на катализаторе Ni-Nb_{ск} в жидкой фазе под давлением водорода в изобарно-изотермическом режиме (3,0 МПаН₂, при 333 К) использовали в качестве растворителей метанол, этанол, бутанол (рис. 1), предварительно насыщенного аммиаком при охлаждении (нитрил : аммиак = 1:1, соотношение в г).

Из рис. 1 видно, что при гидрировании бензонитрил в метаноле начальная скорость гидрирования составляет 328 см³/мин (рис. 1, кр.1), а в этанол и бутанол 300 и 250 см³/мин, соответственно (рис. 1, кр. 2 и кр. 3). В идентичных условиях начальная скорость гидрирования бензонитрил в 1,5-2 раза выше начальной скорости гидрирования терефталонитрил.

Установлено, что на катализаторе и Ni-Nb_{ск} гидрирование бензонитрила протекает с монотонно убывающей во времени скоростью, поглощается рассчитанное количество водорода. На всех изученных растворителях характер кинетических кривых не меняется (отмечено более резкое снижение скорости в начале опыта).