

Povzetek

Trenutna proizvodnja adipinske kisline (enega izmed najpomembnejših monomerov polimerne industrije) temelji na skoraj 80 let starem procesu oksidacije cikloheksana, pri čemer nastajajo okolju škodljive NO_x komponente. V predstavljeni doktorski disertaciji sem želela razviti bolj trajnosten proces pridobivanja bioosnovane adipinske kisline iz celuloznih virov. Doktorsko delo je bilo razdeljeno na študijo hidroleoksisenacije modelnih komponent z eno funkcionalno skupino ter na študijo dehidroksilacije aldarnih kislin (mucinske in glukarne kisline) do končnega produkta adipinske kisline (oziroma njenih estrov).

Na podlagi študije hidroleoksisenacije (HDO) modelnih komponent (heksanojske kisline, 1-,2- in 3-heksanola, 2- in 3-heksanona, heksanala, metil heksanoata in diheksil etra), izvajane v trifaznem šaržnem reaktorju in katalizirane preko NiMo/γ-Al₂O₃ katalizatorja, sem razvila mikrokinetični matematični model, ki opisuje dogajanje v vseh treh fazah in na površini katalizatorja. V drugem delu sem na podlagi razvitega matematičnega modela predpostavila reakcijske pogoje za HDO kompleksnejšega sistema, torej HDO aldarne kisline, ki na terminalnih mestih vsebuje karboksilno kislino, na vmesnih C atomih pa po eno hidroksilno skupino. V tem sklopu sem testirala reakcijske pogoje ter kovinske katalizatorje na različnih nosilcih za HDO mucinske kisline v vodnem mediju. Izkazalo se je, da v vodnem mediju mucinska kislina tvori lakton. Poleg tega so bili testirani katalizatorji premalo ali preveč (poleg HDO potekala tudi cepitev C-C vezi) aktivni.

V zadnjem sklopu sem se osredotočila na selektivno odstranjevanje –OH skupin iz aldarne kisline preko homogenih in heterogenih Re katalizatorjev na različnih nosilcih. Izkazalo se je, da homogeni katalizatorji uspešno odstranjujejo hidroksilne skupine, saj je dobitok dehidroksiliranih produktov (z dvema, eno ali nobeno dvojno vezjo) znašal več kot 50 mol%. Reducirani Re/C katalizator se je izkazal kot najbolj učinkovit, saj se je pri temperaturi 175 °C in po 60 urah reakcije v metanolu kot topilu pridobilo kar 98 mol% dehidroksiliranih produktov, kar je najvišji objavljeni dobitok do sedaj. Razviti proces sem uspešno opisala tudi z matematičnim modelom, ki je vključeval raztapljanje aldarne kisline, transportne pojave, adsorpcijo in desorpcijo ter kinetično pretvorbo na površini katalizatorja.

Ključne besede: lignocelulozna biomasa, aldarna kislina, adipinska kislina, katalitska hidroleoksisenacija, dehidroksilacija, matematično modeliranje, reakcijska kinetika.