

УДК 665.55:538.56

**СТИМУЛИРОВАННОЕ МИКРОВОЛНОВЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ АЦИЛИРОВАНИЕ
ДИЭТИЛАМИНА М-ТОЛУИЛОВОЙ КИСЛОТОЙ В ПРИСУТСТВИИ
Zn-B-P/Al₂O₃/Al—КАТАЛИЗАТОРА****П.А.Мурадова, *В.Ф.Третьяков, *Р.М.Тальшинский, С.М.Зульфугарова
Н.В.Шакунова, Ю.Н.Литвишков***Институт Катализа и Неорганической химии им. акад. М.Ф.Нагиева
Национальной АН Азербайджана**AZ 1143 Баку, пр.Г.Джавида, 113; e-mail: yuriylit@rambler.ru***Институт Нефтехимического синтеза им.им А.В. Топчиева РАН
119991, Россия, Москва, Ленинский пр., 29*

Реакция ацилирования диэтиламина м-толуиловой кислотой с целью получения диэтилтолуамида (ДЭТА) – репеллента, используемого как в виде индивидуальных препаратов, так и в сочетании с синергетическими компонентами, является эндотермической, а затраты тепла на нагрев сырья и разогрев каталитической шихты до температуры 380-400⁰С характеризуют процесс как высокоэнергоемкий. Последнее требует для его интенсификации привлечения новых, более эффективных способов энергообмена, например таких, как микроволновый нагрев, при котором отсутствует необходимость предварительного разогрева сырья, и требуемая температура реакции достигается за счет трансформации поглощенной каталитической шихтой энергии электромагнитного поля в теплоту. В данной работе исследована реакция ацилирования диэтиламина под воздействием электромагнитного излучения СВЧ-диапазона в присутствии активно поглощающего микроволновое излучение Zn-B-P/Al₂O₃/Al – катализатора.

Ключевые слова: ацилирование, диэтиламин, м-толуиловая кислота, микроволновой нагрев, цинк-борофосфатный катализатор.

ВВЕДЕНИЕ

Среди профилактических методов борьбы с кровососущими насекомыми, а также чешуекрылыми и членистоногими разрушителями изделий из природных и искусственных материалов первостепенное значение имеет применение репеллентов избирательного действия [1]. К репеллентам бытового назначения, наряду с наличием ярко выраженных свойств отпугивания вредных насекомых, предъявляется целый ряд экологических требований, прежде всего, отсутствие токсикологического воздействия на теплокровные организмы [2].

Этим требованиям отвечает N,N-диэтиламин м-толуиловой кислоты (ДЭТА), который можно причислить к репеллентам

нового поколения, используемым как в виде индивидуальных препаратов, так и в сочетании с синергетическими компонентами [3].

Существующий, распространенный в практике метод получения ДЭТА ацилированием диэтиламина хлорангидридом м-толуиловой кислоты, имеет ряд общих недостатков, таких, как использование высокотоксичных продуктов галоидирования, синтезируемых в свою очередь галоидированием м-толуиловой кислоты тионилхлоридом, фосгеном, либо хлоридами фосфора, а также периодичность и низкие технико-экономические показатели процессов (выход ДЭТА не превышает 75-80% на взятую кислоту) [4-6].

Ранее нами, а также рядом других авторов, был разработан более эффективный способ получения *N*-ацилзамещенных диэтиламина прямым ацилированием диэтиламина бензойной и *m*-толуиловой кислотами в присутствии гетерогенных катализаторов [7-12]

В частности, нами установлено, что в присутствии модифицированного оксидом цинка борофосфатсодержащего катализатора ($Zn-B-P/Al_2O_3$) взаимодействие *m*-толуиловой кислоты и диэтиламина протекает с приемлемым для практической реализации выходом целевого диэтилтолуамида (85-90% на взятое сырье) [9].

Следует также отметить, что несмотря на очевидные преимущества упомянутого способа, реакция ацилирования диэтиламина является эндотермической, а затраты тепла на нагрев сырья и разогрев каталитической шихты до температуры 380-400⁰С характеризуют процесс как высокоэнергоемкий.

Последнее требует для его интенсификации привлечения новых, более эффективных способов энергообмена, например таких, как микроволновый нагрев, при котором отсутствует необходимость предварительного разогрева сырья, и требуемая температура реакции достигается за счет трансформации поглощенной каталитической шихтой энергии электро- магнитного поля в теплоту [13].

В данной работе предпринята попытка осуществления реакции ацилирования диэтиламина под воздействием электромагнитного излучения СВЧ-диапазона в присутствии активно поглощающего микроволновое излучение $Zn-B-P/Al_2O_3/Al$ – катализатора с компонентным составом активной массы, качественно аналогичным ранее апробированному в [8].

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Синтез трегерных цинк-борофосфатных образцов поглощающих СВЧ-излучение, осуществлялся пропиткой (по влагоемкости) $\gamma-Al_2O_3/Al$ – носителя водными растворами борной, фосфорной кислот и нитрата цинка соответствующих концентраций, и после декантирования избытка пропиточного раствора, последовательно подвергался сушке, термолизу и прокалке в поле СВЧ. Массивные образцы $Zn-B-P$ –оксидных катализаторов готовились упариванием (при воздействии микроволнового излучения) водных растворов азотнокислого цинка, борной и фосфорной кислот с последующей термической обработкой сухого остатка.

Эксперименты по превращению *m*-толуиловой кислоты и диэтиламина проводились в проточном реакторе на установке, сконструированной на базе многомодульной микроволновой печи марки EM-G5593V (Panasonic) с объемом резонатора 23л. Конструкционные детали установки приведены в [14]. Рабочая частота генератора излучения –

магнетрона составляла 2450 МГц, при максимальной входной мощности 1200 Вт. Температура в реакционной зоне измерялась с помощью дистанционного бесконтактного инфракрасного пирометра марки VA6520 с диапазоном измерения -50 ÷ 600⁰С. Во избежание неожиданного перегрева реакционного устройства в резонаторе печи устанавливалась шунтирующая емкость с циркулирующей дистиллированной водой. Исходные компоненты в виде насыщенного водного раствора *m*-толуиловой кислоты и диэтиламина подавались с помощью калиброванного шприцевого дозатора в головную часть реактора, где испарялись за счет микроволнового разогрева слоя катализатора и теплоты, выделяемой эффективно поглощающей СВЧ-излучение водой.

Анализ компонентного состава жидкой фазы проводился газохроматографически (прибор ЛХМ-80 МД, 3-я модель, детектор пламенно-ионизационный колонка $l = 2.4m$, $d = 3.0mm$, разделяющая фаза – ПЭГА,

10% на динохроме N). Компоненты газовой фазы разделялись и количественно опреде-

лялись с использованием неподвижной фазы – “Porapak QS”.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Известно, что эффективное осуществление гетерогенно-каталитических реакций в СВЧ-поле, наряду с каталитическими свойствами, проявляемыми твердотельными контактами, в значительной мере определяется достаточным для протекания процесса количеством тепла, выделяемого при трансформации СВЧ-энергии поглощаемой реакционной системой. При этом максимально достижимая диссипация СВЧ-энергии в объеме каталитической шихты является необходимым условием эффективного энергопотребления при проведении процессов [15].

На рис. 1. приведена зависимость измеренной по описанной в работе [16] методике способности синтезированных в условиях термообработки в поле СВЧ катализаторов к поглощению энергии микроволнового излучения и глубины его проникновения от компонентного состава образцов. При этом температура каталитической шихты наряду с прямым измерением может быть рассчитана из определяемой экспериментально величины поглощенной мощности микроволнового излучения:

$$\Delta T = \frac{P_{уд} \cdot \tau}{c \cdot d} \quad (1)$$

где: $P_{уд}$ – мощность излучения, поглощенного единицей объема образца (Дж/см³·с); τ –время воздействия излучения (с); c – теплоемкость образца (Дж/град·г); d –удельный вес образца (г/см³).

Видно, что уровень поглощения микроволнового излучения борфосфатсодержащими образцами, нанесенными на поверхность γ -Al₂O₃/Al–носителя и глубина проникновения излучения в их массу практически не отличаются от таковых, для армированного микрокристаллическим алюминием алюмооксидного носителя.

Модифицирование ВР₄/Al₂O₃/Al образцов оксидом цинка в исследованных пределах его содержания (2.0 – 5.0 % масс.) приводит к росту количества поглощаемой энергии СВЧ излучения и трансформации ее в теплоту, достаточную для поддержания температурного режима стационарного протекания реакции (320-420⁰С) при мощности магнетрона 400-800 ватт.

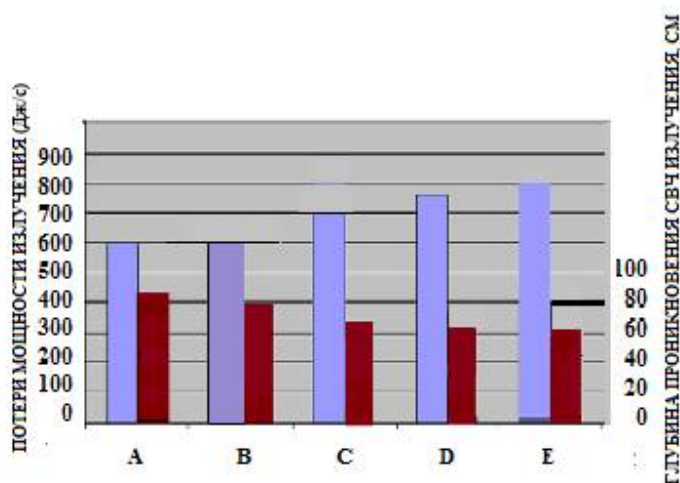
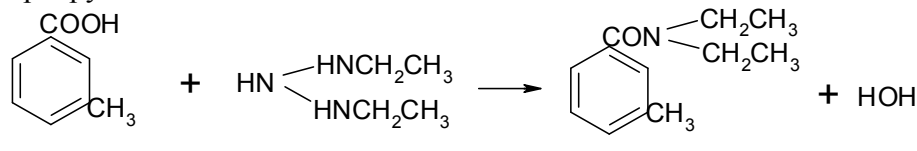


Рис.1. Зависимость термотрансформационных свойств Zn-B-P/Al₂O₃/Al – катализаторов и глубины проникновения СВЧ излучения в массу образцов (навеска 50г.) от их состава. А– Al₂O₃/Al-носитель; В–ВР₄/Al₂O₃/Al; С– ZnO· ВР₄/Al₂O₃/Al (ZnO 2.0%); D - ZnO·ВР₄/Al₂O₃/Al (ZnO 3.0%); E - ZnO· ВР₄/Al₂O₃/Al (ZnO 5.0%).

Условия: $P_{вх}$ магнетрона = 800 вт., время экспозиции 2.5 мин.

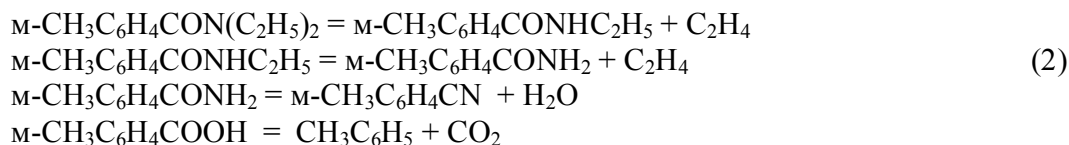
С целью корректировки количественного состава Zn-B-P/Al₂O₃/Al – катализаторов проведена оценка их активности в условиях микроволнового нагрева реакционной системы (табл.1). Видно, что в присутствии синтезированных в условиях микроволнового воздействия образцов катализаторов, в диапазоне варьируемого состава активной



побочных реакций консеквативного элиминирования этилена от молекул диэтилтолуамида и дегидратации толуамида, а также декар

массы, наблюдается высокая конверсия м-толуиловой кислоты, и основным продуктом реакции является ДЭТА.

Наличие в составе катализата моноэтилтолуамида, м-толуамида, м-толуонитрила и толуола свидетельствует о протекании наряду с целевой реакцией ацилирования диэтиламина:



боксилитирования м-толуиловой кислоты, описываемых следующими стехиометрическими уравнениями:

О приведенной последовательности образования побочных продуктов свидетельствует наличие в составе газообразной части

катализата этилена и диоксида углерода, фиксируемое хроматографически [14].

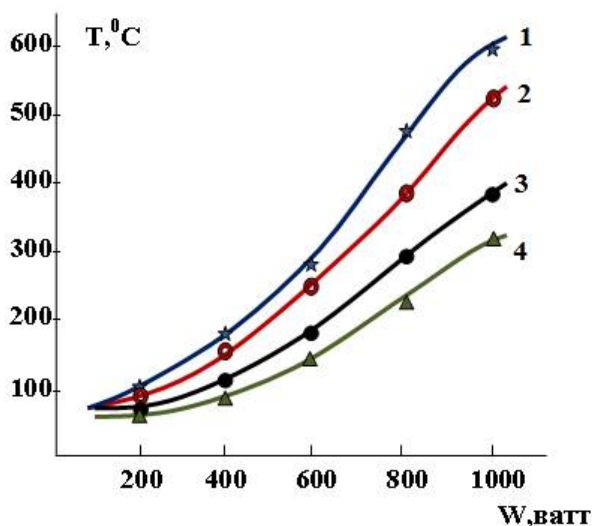


Рис.2. Зависимость температуры в установившемся стационарном режиме протекания реакции от мощности воздействующего на реакционную систему СВЧ излучения при варьировании условного времени контакта. 1 – τ = 10с; 2 – τ = 7с; 3 – τ = 5с; 4 – τ = 2с., мольное отношение $\text{m-CH}_3\text{C}_6\text{H}_4\text{COOH}:\text{HN}(\text{C}_2\text{H}_5)_2:\text{H}_2\text{O} = 1:2:4$.

На рис. 2 приведена зависимость температуры в контактной зоне реактора, в установившемся стационарном состоянии реакционной системы, от мощности микроволнового излучения при различных значе-

ниях условного времени контакта (отношения объема каталитической шихты к объему подаваемой смеси реагентов).

Видно, что с увеличением условного времени контакта, при сопоставимых значениях мощности магнетрона, достигается бо-

лее высокая температура в контактной зоне реактора. При этом время установления стационарного (по температуре) состояния существенно сокращается.

Введение в состав наносимой на поверхность Al_2O_3/Al - носителя активной массы оксида цинка приводит к росту избирательности по ДЭТА, за счет снижения скорости консекутивных его превращений в моноэтилтолуамид, толуамид и толунитрил. Наблюдается также снижение скорости декарбокислирования м-толуиловой кислоты в толуол.

Установлено, что введение в состав активной массы оксида цинка в количестве, превышающем 3.0 % масс. при фиксированном мольном отношении оксидов бора и фосфора не приводит к заметному повышению конверсии м-толуамида и избирательности по ДЭТА, и по этой причине нецелесообразно.

На рис.3 приведена зависимость степени превращения м-толуиловой кислоты и избирательности по целевому и побочным продуктам ацилирования N,N-диэтиламина от температуры в контактной зоне, фикси-

рованные значения которой обеспечивались как путем варьирования мощности микроволнового излучения в диапазоне 400-800 ватт, так и теплопотерь в объеме резонатора за счет изменения объемной скорости подачи реакционной смеси. Постоянство условного времени контакта при этом сохранялось постоянным, и компенсировалось соответствующим объемом загружаемого катализатора

Установлено, что с повышением температуры реакции в исследованном диапазоне 320-400 $^{\circ}C$, при непрерывном росте конверсии м-толуиловой кислоты имеет место спад избирательности по целевому продукту – диэтилтолуамиду, обусловленный интенсификацией последовательности упомянутых выше реакций (2). При возрастании температуры реакции свыше 370 $^{\circ}C$ наблюдается более интенсивное снижение избирательности по ДЭТА, что с точки зрения выхода целевого продукта не компенсируется ростом конверсии м-толуиловой кислоты.

Аналогично наблюдается спад избирательности по диэтилтолуамиду при увеличении условного времени контакта свыше 7с. (рис.4).

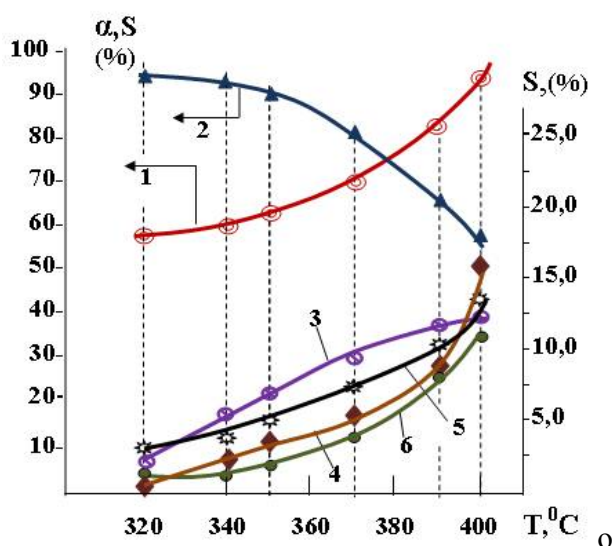


Рис.3. Зависимость степени превращения м-толуиловой кислоты и избирательности по продуктам ацилирования диэтиламина в присутствии $Zn-B-P/Al_2O_3/Al$ – катализатора от температуры реакции. 1 – конверсия м-толуиловой кислоты. Избирательность по N,N-диэтилтолуамиду – 2; по моноэтилтолуамиду – 3; по толуамиду – 4; по толуолу – 5; по толунитрилу – 6.

Условия: мощность магнетрона в диапазоне 400-800 ватт, мольное соотношение $m-CH_3C_6H_4COOH:HN(C_2H_5)_2:H_2O = 1 : 2 : 4$, условное время контакта – 5с.

Табл. 1. Результаты оценки активности образцов Zn-B-P/Al₂O₃/Al – катализаторов в стимулированной микроволновым излучением реакции ацилирования диэтиламина м-толуиловой кислотой. Условия: входная мощность магнетрона 800 ватт, T=360±10⁰С, мольное соотношение м-СН₃С₆Н₄СООН : (С₂Н₅)₂NH : Н₂O = 1:2:4, условное время контакта 7с.

№ Пп	Состав образцов катализаторов, %				Конверсия, α, %	WΣ, моль м ² , час	Избирательность по продуктам реакции S, %				
	Al ₂ O ₃ /Al	B ₂ O ₃	P ₂ O ₅	ZnO			Диэтил- толу- амид	Моно- этил- толу- амид	Толу- амид	Толу- нитрил	Толу- ол
1	90,0	5,0	5,0	-	54,7	2,06	67,6	8,2	8,7	7,3	8,2
2	88,0	5,0	5,0	2,0	64,3	3,08	81,8	6,7	4,2	4,8	2,5
3	87,0	5,0	5,0	3,0	70,6	3,42	83,6	5,8	3,8	4,5	2,3
4	85,0	5,0	5,0	5,0	72,8	3,53	83,2	5,6	4,2	5,4	1,6
5	85,0	5,0	7,0	3,0	70,4	3,38	77,3	8,5	4,7	6,3	3,2
6	85,0	7,0	5,0	3,0	66,6	3,12	72,5	9,2	7,3	6,6	4,4
7	89,0	5,0	3,0	3,0	67,2	3,26	73,2	9,3	6,5	7,6	1,9
8	89,0	3,0	5,0	3,0	68,4	3,30	70,8	8,4	5,7	4,3	3,4

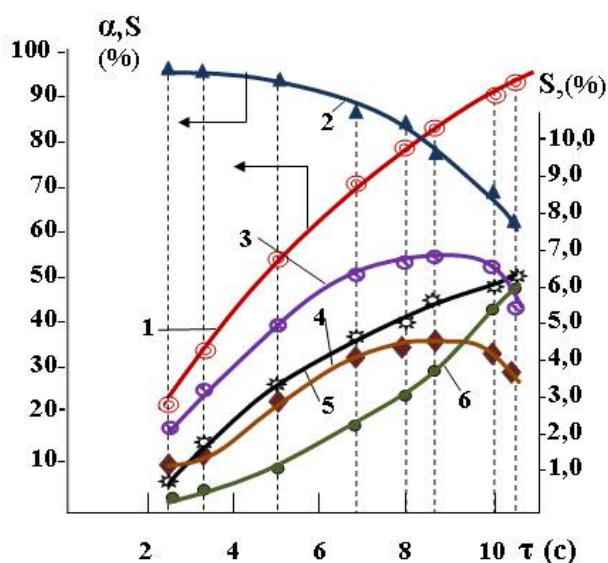


Рис.4. Зависимость степени превращения м-толуиловой кислоты и избирательности по продуктам ацилирования диэтиламина в присутствии $Zn-B-P/Al_2O_3/Al$ – катализатора от времени контакта. 1 – конверсия м-толуиловой кислоты. Избирательность по N,N-диэтилтолуамиду – 2; по моноэтилтолуамиду – 3; по толуамиду – 4; по толуолу – 5; по толунитрилу – 6. Условия: мощность магнетрона 800 ватт, температура реакции в стационарном режиме $360 \pm 10^\circ C$, мольное соотношение м- $CH_3C_6H_4COOH$: $HN(C_2H_5)_2:H_2O = 1 : 2 : 4$.

Обозначенное время контакта с реакционной средой при мольном соотношении реагентов м- $CH_3C_6H_4COOH : HN(C_2H_5)_2 = 1:2$ и температуре $365-370^\circ C$, достигаемой поглощением микроволнового излучения мощностью 600-800 ватт, по-видимому, являются оптимальными условиями проведения реакции в присутствии $Zn-B-P/Al_2O_3/Al$ – катализатора, синтезированного термической обработкой в поле СВЧ, с достижением приемлемой для практической цели избирательности по ДЭТА ~84% и конверсии м-толуиловой кислоты 70-72%.

Таким образом, полученные результа-

ты демонстрируют возможность реализации процесса ацилирования диэтиламина м-толуиловой кислотой в термическом режиме, формирующемся в реакционной зоне за счет трансформации катализаторной шихтой энергии СВЧ-электромагнитного излучения.

Разрабатываемый способ осуществления реакции, в условиях воздействия СВЧ-излучения также выгодно отличается от существующих, проводимых в условиях традиционного термического воздействия, отсутствием необходимости предварительного разогрева сырья перед подачей в контактную зону.

ЛИТЕРАТУРА

1. Мельников Н.Н. Пестициды. Химия, технология, применение. – М.: Химия, 1987. 712.
2. Методические указания по контролю содержания вредных веществ на кожных покровах и спецодежде. Вып. 1. М.: Парог, 1992. С. 30–31.
3. Хайрулина Х.Х., Тимофеевская Л.А., Говорченков В.И. Клинические изучения репеллентов, полученных из ДЭТА/В сб.: Совершенствование производства товаров бытовой химии. М.: 1984. С. 95-99.
4. Pat. 3825596 US, 1974, МКИ³с 07 с 103/22. Process for Preparation of N, N-DialkylToluamide/N. Taketosi, I. Masatome//РЖХим. 1975. 130422П.
5. Pat. 4133833 US, 1979, МКИ³с 07 с 103/76. Production of N,N-di(ethyl)-meta-toluamide from meta-toluic acid by liquid phase catalytic reaction with diethylamine/Е.Н.Hull//РЖХим. 1979. 18 0 393.

6. Synthesis of substituted amides for repellency against mosquitoes. Kalyanasundaram M., Amalroy D., Paily K.P., OpeorgeNisha, Sujatha C.H. "Curr.8 ci" (India), 1986, 55, №5, p.266-268.
7. Литвишков Ю.Н., Эфендиев М.Р. Кулиева Х.Я. Ацилирование алкиламинов ароматическими кислотами в присутствии модифицированных борофосфатных катализаторов. //Азербайджанский химический журнал. 2000, №3, с. 23-28.
8. Литвишков Ю.Н., Эфендиев М.Р., Кулиева Х.Я. Способ получения N, N-замещенных амидов карбоновых кислот. Патент Азерб. Респ.№ Р 980068 от 21.10.1998 г.
9. Литвишков Ю.Н., Ризаев Р.Г., Эфендиев М.Р., Кулиева Х.Я. Способ получения N,N-диалкилбензамидов. А.С. 1365663 (СССР) от 08.09.1987 г.
10. Pat. 4133833 US, 1979, МКИ³с 07 с 103/76. Production of N,N-di(ethyl)-meta-toluamide from meta-toluic acid by liquid phase catalytic reaction with diethylamine/Е.Н.Hull//РЖХим. 1979. 18 0 393.
11. Мозжухина Т.Н., де Векки А.В., Кульчицкая Т.Ю. Одностадийное амидирование мета-толуиловой кислоты в N,N-диэтилтолуамид. //Тез. Докл. 3-й Республ. Конф. По интенсификации нефтехимических процессов "Нефтехимия-94". – Нижнекамск, 1994, № 7, с. 64-65.
12. Кульчицкая Т.Ю., де Векки А.В., Мозжухина Т.Н. Перспективные методы получения N,N-диэтилтолуамида. //Нефте- переработка и нефтехимия. 1994, №7, с. 46-49.
13. Бердоносков С.С., Бердоносков Д.Г., Знаменская И.В. Микроволновое излучение в химической практике. // Хим. технология. 2000, № 3, с. 2-8.
14. Мурадова П.А., Эфендиев М.Р., Гусейнова Э.М., Нагдалиева Ю.Р., Литвишков Ю.Н. Стимулированное СВЧ- излучением ацилирование диэтиламина м-толуиловой кислотой в присутствии Zn-B-P/Al₂O₃/Al катализатора. Материалы Республиканской конференции посвященной 90-летию юбилею академика Т.Н. Шахтахтинского. Баку, 2015, 22 октябрь, с.26.
15. Бикбулатов И.Х., Даминев Р.Р., Шулаев Н.С., Кусакин И.А. Особенности проведения гетерогенно-каталитических процессов под действием микроволн. Башкирский химический журнал. 2006, том 13, № 3, с. 19-21.
16. Литвишков Ю.Н., Гасангулиева Н.М., Зулфугарова С.М., Мурадова П.А., Шакунова Н.В., Кашкай А.М., Марданова Н.М. Исследование характеристических параметров СВЧ-поглощающих носителей активной массы катализаторов для реакций, стимулируемых микроволновым излучением. //«Нефтепереработка и нефтехимия», Москва. 2015, № 4. с.33-37.

REFERENCES

1. Melnikov N.N. *Pesticidy. Himija, tehnologija, primenenie* [Pesticides. Chemistry, technology, application]. Moscow, Himiya Puble, 1987, 712p.
2. *Metodicheskie ukazaniya po kontrolju sodержaniya vrednyh veshhestv na kozhnyh pokrovah i spetsodezhde* [Methodological instructions to control harmful substances on skin and overalls]. Moscow, 1992, pp. 30–31.
3. Hajrulina H.H., Timofeevskaja L.A., Govorchenkov V.I. *Klinicheskie izuchenija repellentov, poluchennyh iz DETA. V sb.: Sovershenstvovanie proizvodstva tovarov bytovoj himii* [Clinic research into repellents obtained from ДЭТА. In: Improvement of household chemicals production]. Moscow, 1984, pp. 95-99.
4. Pat. 3825596 US, 1974, МКИ³с 07 с 103/22. Process for Preparation of N, N-DialkylToluamide/N. Taketosi, I. Masatome//РЖХим. 1975. 130422П.

5. Pat. 4133833 US, 1979, МКИ³с 07 с 103/76. Production of N,N-di(ethyl)-meta-toluamide from meta-toluic acid by liquid phase catalytic reaction with diethylamine. РЖХИМ. 1979. 18 0 393.
6. Kalyanasundaram M., Amalroy D., Paily K.P., OpeorgeNisha, Sujatha C.H. Synthesis of substituted amides for repellency against mosquitoes. "Curr.8 ci" (India), 1986, vol.55, no.5, pp.266-268.
7. Litvishkov Ju.N., Efendiev M.R. Kulieva H.Ja. Acidulating of alkylamines by aromatic acids in the presence of modified boron-phosphate catalysts. *Azerb.Kimya journali-Azerb.Chem.Journal*. 2000, no.3, pp. 23-28. (In Azerbaijan).
8. Litvishkov Ju.N., Efendiev M.R. Kulieva H.Ja. Production of N, N-substituted amides of carboxylic acids. Pat P 980068, 21.10.1998. Azerbaijan.
9. Litvishkov Ju.N., Rizaev R.G., Efendiev M.R., Kulieva H.Ja. Production of N,N-dialkylbenzamides. Pat. 1365663 (USSR), 08.09.1987.
10. Pat. 4133833 US, 1979, МКИ³с 07 с 103/76. Production of N,N-di(ethyl)-meta-toluamide from meta-toluic acid by liquid phase catalytic reaction with diethylamine/E.H.Hull//РЖХИМ. 1979. 18 0 393.
11. Mozzuhina T.N., de Vekki A.V., Kul'chickaja T.Ju. One-phase amidation of meta-toluamide acid into N,N-diethylamide. //Theses of 3-rd Republican conference on intensification of petrochemical processes "Petrochemistry-94". Nijnekamsk, 1994, no. 7, pp. 64-65. (In Russian).
12. Kul'chickaja T.Ju., de Vekki A.V., Mozzuhina T.N. Perspective methods of N,N-diethyltoluamide production. *Neftepererabotka i neftehimija - Oil Processing and Petrochemistry* 1994, no.7, pp. 46-49.
13. Berdonosov S.S., Berdonosova D.G., Znamenskaja I.V. Microwave radiation in chemical practice. *Himicheskaya Tehnologiya -Chemical Technology*. 2000, no. 3, pp. 2-8.
14. Muradova P.A., Efendiev M.R., Gusejnova Je.M., Nagdalieva Ju.R., Litvishkov Ju.N. Acidulating of microwave radiation-stimulated diethylamide of m-toluamide acid in the presence of Zn-B-P/Al₂O₃/Al catalyst. Proceedings of the Republican conference devoted to the 90-anniversary of Acad. T.N. Shahtatinsky. Baku, 2015, p.26. (In Azerbaijan).
15. Bikbulatov I.H., Daminev R.R., Shulaev N.S., Kusakin I.A. Features of heterogenic-catalyst processes under the effect of microwaves. *Bashkirskii Khimicheskii Zhurnal - Bashkir Chemical Journal*- 2006, vol.13, no. 3, pp. 19-21.(In Russian).
16. Litvishkov Ju.N., Gasangulieva N.M., Zul'fugarova S.M., Muradova P.A., Shakunova N.V., Kashkaj A.M., Mardanova N.M. Research into characteristic parameters of microwave -absorbing carriers of active mass of catalysts for reactions as stimulated by microwave radiation. *Neftepererabotka i neftehimija - Oil Processing and Petrochemistry*. 2015, no.4. pp.33-37. (In Russian).

**STIMULATION OF MICROWAVE RADIATION. ACIDULATING OF DIETHYLAMINE
BY TOLUYLENE ACID IN THE PRESENCE OF Zn-B-P/Al₂O₃/Al-CATALYST**

**P.A.Muradova, V.F.Tretyakov, R.M.Talyshinskiy, S.M.Zulfugarova,
N.V.Shakunova, Y.N.Litvishkov**

*Acad. M.Nagiyev Institute of Catalysis and Inorganic Chemistry
National Academy of Sciences of Azerbaijan
AZ 1143Baku, H. Javid Ave. 113; e-mail:yuriylit@rambler.ru*

**A.V. Topchiyev Institute of Petrochemical Synthesis of the Russian Academy of Sciences
Lenin Ave., 29, 119991, Moscow, Russia*

Reaction of acidulating diethylamine of m-toluylene acid with a view of obtaining diethyltoluamide (DETA) – a repellent used as individual preparations and in combination with synergetic components – is endothermic while heat consumption to warm raw material and heat catalytic delft up to 380-400⁰C is highly energy-intensive process. To intensify the process, it is essential to attract new and more effective means of energy exchange, for instance, microwave heating where there is no need in preliminary warming of raw material and the temperature required is achieved at the expense of transformation of the energy of electromagnetic field absorbed by catalytic delft into heat..The paper examines the reaction of acidulating of diethylamine under the effect of electromagnetic radiation at СВЧ-range in the presence of actively absorbing Zn-B-P/Al₂O₃/Al – catalyst microwave radiation.

Keywords: acidulating, diethylamine, m-toluamide acid, microwave heating, boron-phosphate zinc, catalyst.

**Zn-B-P/Al₂O₃/Al—KATALİZATORUN İŞTİRAKINDA
MİKRODALĞALI ŞÜALANMA İLƏ STİMULLAŞDIRILAN DİETİLAMİNİN
m-TOLUİL TURŞUSU İLƏ ASİLLƏŞMƏSİ**

**P.A.Muradova, *V.F.Tretyakov, *P.M.R.M.Talışinski, S.M.Zülfüqarova,
N.V.Şakunova, Yu.N.Litvişkov**

*AMEA-nın akad. M.Nağıyev adına Kataliz və Qeyri-üzvi Kimya İnstitutu
AZ 1143, Bakı, H.Cavid pr., 113; e-mail: itpcht@lan.ab.az*

**REA A.V.Topçiyev adına Neftkimya Sintezi İnstitutu
119991, Rusiya, Moskva, Lenin pr., 29*

Repellent kimi istifadə olunan dietiltoluamidin (DETA) alınması üçün katalizatorun iştirakında aparılan dietilaminin m-toluil turşusu ilə asilləşmə reaksiyası endotermikdir. Proses 380-400⁰ C temperaturda aparılır. Bu işdə ənənəvi termiki qızdırılmadan fərqli olaraq, mikrodalğalı elektromaqnit şüalanmadan istifadə olunub. Bunun üçün dietilaminin m-toluil turşusu ilə asilləşmə reaksiyası mikrodalğalı şüalanmanı udan və onu istiliyə çevirən Zn-B-P/Al₂O₃/Al katalizatorun iştirakı ilə aparılıb.

Açar sözlər: asilləşmə, dietilamin, m-toluil turşusu, mikrodalğalı şüalanma, katalizator.

Поступила в редакцию 26.03.2016.