

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
«Федеральный исследовательский центр «Институт катализа им. Г.К. Борескова
Сибирского отделения Российской академии наук»
Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего
профессионального образования
«Казанский (Приволжский) федеральный университет»
Федеральное государственное бюджетное образовательное
учреждение высшего образования
«Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова»
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт органической химии им. Н.Д. Зелинского Российской академии наук
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Ордена Трудового Красного Знамени
Институт нефтехимического синтеза им. А.В.Топчиева Российской академии наук
Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
«Федеральный исследовательский центр
«Казанский научный центр Российской академии наук»
Общественная организация
«Республиканское химическое общество им. Д.И. Менделеева Татарстана»
Научный совет по катализу Отделения химии и наук о материалах РАН

IV Российский конгресс по катализу

«РОСКАТАЛИЗ»

20 - 25 сентября 2021 г.

Казань

СБОРНИК ТЕЗИСОВ

<http://conf.nsc.ru/RusCat-2021/ru>

Гибридные AgAu@UiO-66 катализаторы для селективного окисления пропиленгликоля в молочную кислоту

Тен С., Торбина В.В., Светличный В.А., Водянкина О.В.

Лаборатория каталитических исследований НИ ТГУ, Томск, Россия

Rip_richard@mail.ru

Валоризация биовозобновляемого сырья является дорожной картой современной химии. Сырьем для производства ценных химических соединений может выступать биопропиленгликоль, получаемый при переработке глицерина. Каталитическое жидкофазное окисление пропиленгликоля (ПГ) является перспективным способом синтеза молочной кислоты, потребление которой в косметической и пищевой промышленности, в производстве биоразлагаемых и биосовместимых материалов растёт с каждым годом. Жидкофазное окисление ПГ в молочную кислоту реализуется посредством двух параллельных процессов. Первый начинается с окисления первичной гидроксильной группы ПГ с образованием лактальдегида, который быстро окисляется до молочной кислоты. Вторым начинается с окисления вторичной гидроксильной группы с образованием гидроксиацетона с последующим окислением его до пирувальдегида, который быстро превращается в молочную кислоту посредством внутримолекулярной реакции Канницарро. Окислительные стадии могут протекать на поверхности благородных металлов, а внутримолекулярная реакция Канницарро катализируется кислотными центрами Льюисовского типа.

Наночастицы (НЧ) Au показывают высокую активность в реакции окисления пропиленгликоля в молочную кислоту в щелочной среде, однако в нейтральной среде резко теряют свою активность [1]. Известным методом увеличения активности НЧ Au является добавление другого металла, например, серебра. Металлоорганический координационный полимер UiO-66 (пористый терефталат циркония) обладает высокой площадью удельной поверхности и объемом пор, а также большим количеством доступных кислотных центров Льюиса. Использование UiO-66 в качестве носителя НЧ металлов позволяет создать активный катализатор, содержащий активные центры двух типов – редокс и кислотно-основные, что позволяет осуществить окислительную конверсию ПГ в молочную кислоту в нейтральной среде.

В настоящей работе исследовано влияние способа приготовления гибридных биметаллических катализаторов на их каталитические свойства в реакции селективного окисления пропиленгликоля в молочную кислоту. Образцы AgAu@UiO-66 были синтезированы методом пропитки из двух растворителей [2]. Прекурсоры наночастиц Au и Ag наносились последовательно в прямом и обратном порядке при варьировании атомного соотношения. На рис. 1 представлены ЭСДО спектры AgAu@UiO-66 образцов с прямым и обратным порядком нанесения металлов, а также монометаллических образцов. Образцы с порядком нанесения AuAg имеют характеристические полосы поглощения обоих металлов, что говорит о формировании монометаллических частиц. Образцы с порядком нанесения

УД-II-10

AgAu имеют только одну полосу поглощения (характерную для НЧ Au), что говорит о формировании структуры типа «ядро-оболочка».

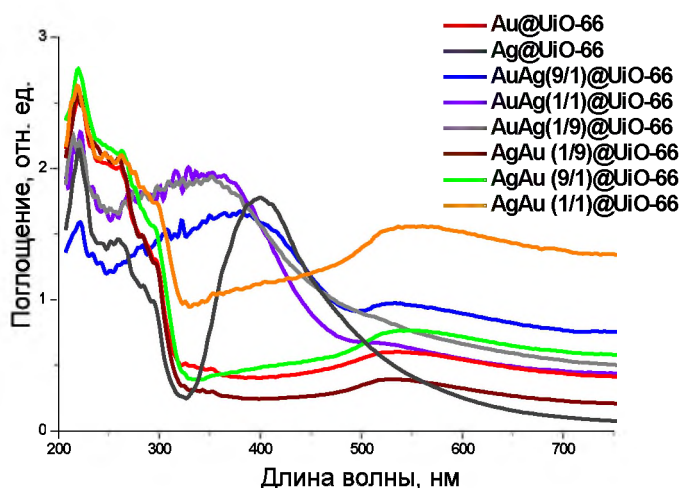


Рис. 1. УФ-вид. ЭСДО спектры катализаторов AgAu@UiO-66 с прямым и обратным порядком нанесения металлов

Дифрактограммы синтезированных катализаторов представлены на рис. 2. Рефлекс в области 2θ при $38,2^\circ$ лежит между характеристическими рефлексами Ag (111) и Au (111), что связано с взаимодействием между частицами Au и Ag.

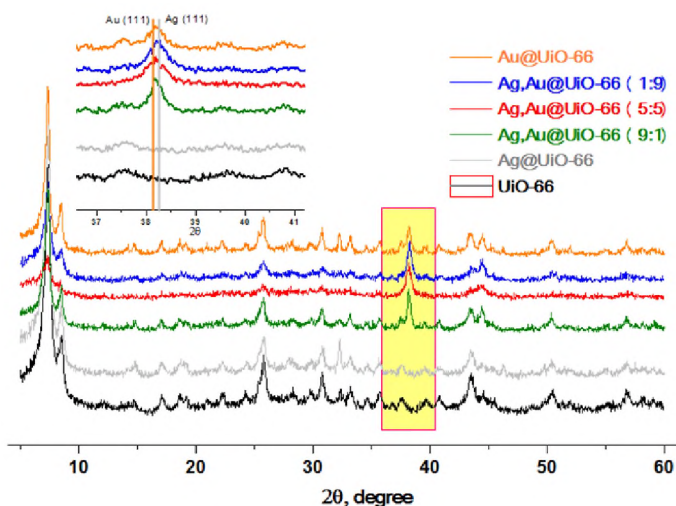


Рис. 2. Дифрактограммы РФА катализаторов AgAu@UiO-66 с прямым порядком нанесения металлов

AgAu@UiO-66 катализатор показал высокую селективность по отношению к молочной кислоте (до 80 %). В настоящей работе проведено сравнение активности AgAu@UiO-66 с биметаллическими AgAu НЧ, полученными методом лазерной абляции, в реакции окисления ПГ в щелочной и нейтральной средах, исследовано влияние соотношения Ag/Au, температуры реакции и давления O_2 на активность полученных катализаторов.

Благодарности: Работа выполнена при финансовой поддержке РФФ, проект № 19-73-30026.

Литература:

- [1] Timofeev K.L., Vodyankina O.V. // React. Chem. Engin. 2021. DOI : 10.1039/D0RE00352B
- [2] Ten S. et al. // Materials. 2020. V. 13 (23), p. 5471