

Федеральное государственное бюджетное учреждение
«Федеральный исследовательский центр
«Институт катализа им. Г.К. Борескова Сибирского отделения Российской академии наук»

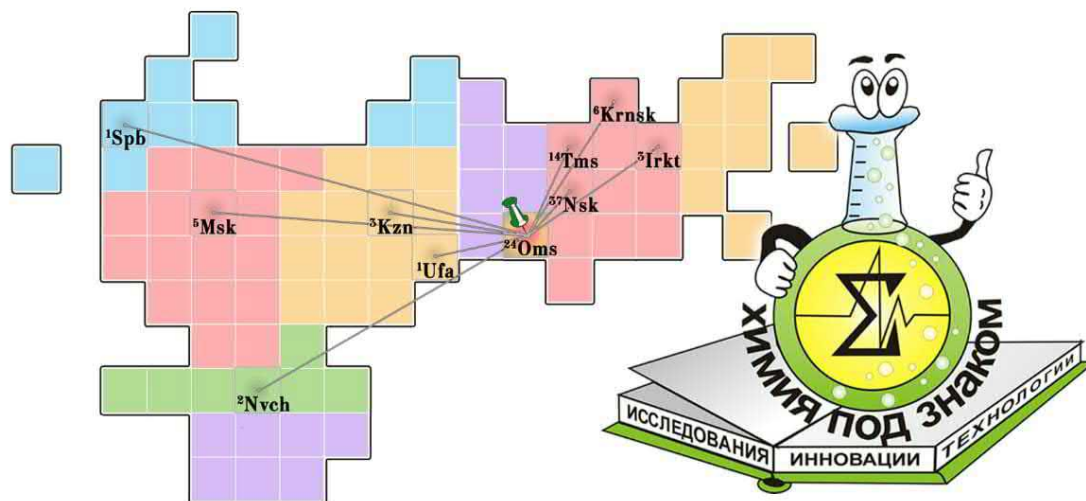
Центр новых химических технологий
Федерального государственного бюджетного учреждения науки
«Федеральный исследовательский центр
«Институт катализа им. Г.К. Борескова Сибирского отделения Российской академии наук»
(Омский филиал)

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
«Омский государственный технический университет»

Министерство промышленности, связи, цифрового и научно-технического развития
Омской области

СБОРНИК ТЕЗИСОВ ДОКЛАДОВ

VI Всероссийская научная молодежная школа-конференция
«Химия под знаком СИГМА: исследования, инновации, технологии»



18 - 20 мая 2020 года / г. Омск

Новосибирск 2020

ИММОБИЛИЗАЦИЯ СЕРЕБРОСОДЕРЖАЩИХ НАНОЧАСТИЦ В ПОРАХ МЕТАЛЛООРГАНИЧЕСКОГО КООРДИНАЦИОННОГО ПОЛИМЕРА UiO-66

Тен С., Тимофеев К.Л., Водянкина О.В., Курманбаева К., Красников А.А., Тараненко С.

*Национальный исследовательский Томский государственный университет,
пр. Ленина, 36, Томск, Россия*

За последние два десятилетия процессы каталитической конверсии биовозобновляемого сырья в ценные продукты привлекают все больше внимание исследователей. Для осуществления подобных превращений необходимы катализаторы с активными центрами различной природы.Metalлоорганические координационные полимеры (МОКП) являются перспективными носителями для создания подобных катализаторов ввиду их большой удельной поверхности, контролируемого размера пор, наличию у них металл-кислородных центров одинаковой архитектуры и возможности дальнейшей модификации привитыми функциональными группами. Среди многочисленных типов МОКП, синтезированных в настоящее время, материал UiO-66 [1], представляющий собой пористый терефталат циркония с общей формулой $Zr_6O_6(1,4\text{-бензолдикарбоксилат})_6$, обладающий высокой термической стабильностью, устойчивостью к воздействию различных растворителей, кислот и щелочей, является наиболее привлекательным для разработки многофункциональных каталитических систем. Имобилизация наночастиц каталитически активных благородных металлов (серебро, золото, палладий и др.) внутри пористого пространства UiO-66 необходима для достижения активности такого типа катализаторов в окислительных процессах. В настоящей работе катализаторы, содержащие Ag и AgPd наночастицы, были синтезированы методом пропитки по влагоемкости растворами солей металлов в воде (IWI_H-2) и ацетонитриле (MeCN_H2), с последующим восстановлением в токе H₂, а также методом пропитки из двух растворителей с последующим восстановлением водным раствором гидразина (DS_N2H2). Целью работы является исследование влияния метода приготовления иммобилизованных Ag(Pd)@UiO-66 катализаторов на их каталитические свойства в реакции окислительной конверсии пропиленгликоля в молочную кислоту.

Анализ изотерм адсорбции Ag@UiO-66 показал значительное снижение площади удельной поверхности при использовании метода пропитки из двух растворителей (Рис.1.), так же обнаружено резкое уменьшение объема пор и небольшое снижение их диаметра, что позволяет сделать вывод о локализации серебряных кластеров/наночастиц внутри пористого пространства UiO-66.

На ЭСДО спектре для образца Ag@UiO-66-DS_N2H-2 (Рис.2.) наблюдается полоса поглощения при 380 нм, связанная с наличием малых кластеров Ag_n внутри пористого пространства носителя, а также полосы плазмонного поглощения (ППП) наночастиц серебра при 420 нм. Наличие ППП, смещенной в область 500-550 нм, для образцов, приготовленных методами IWI_H-2 и MeCN_H2, свидетельствует о формировании НЧ Ag с размерами >10 нм [2], что говорит об их локализации на внешней поверхности UiO-66, т.к. размер пор полимера намного ниже 10 нм. Анализ рентгенограмм образцов Ag@UiO-66 показал наличие рефлекса Ag (111) для образцов, приготовленных методом пропитки по влагоемкости. Для образца Ag@UiO-66_DS_N2H4 рефлекс Ag (111) в области $2\theta = 38.2^\circ$ отсутствует, что связано с формированием низкоразмерных (< 3нм) кластеров Ag.

В данной работе исследовано влияние добавки палладия на формирование биметаллических частиц внутри пористого пространства UiO-66, а также влияние соотношения Ag/Pd на каталитическую активность бифункциональных катализаторов в реакции окислительной конверсии пропиленгликоля в молочную кислоту в нейтральной среде с использованием молекулярного кислорода в качестве окислителя при варьировании температуры, давления O₂. Детализирован механизм протекающих превращений пропиленгликоля.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского Научного Фонда (номер проекта 19-73-30026).

Литература

1. J. H. Savka et al., *JACS* 2008, **130**, 13850-13851.
2. K. Lee et al., *Surf.Coat.Technol* 2008, **22-23**, 5339-5342.