

Abstrakt

Hydrogenačné reakcie patria k najdôležitejším reakciám v chemickom priemysle. Sú potrebné pre spracovanie ropy, výrobu farmaceutík, polymerov, chemických špecialít a pod. Nosičové katalyzátory so vzácnymi kovmi sú bežne používané priemyselné katalyzátory vďaka ich vysokej aktivite a selektivitě. Avšak vysoké náklady na ich výrobu a regeneráciu sú jednou z nevýhod ich používania. Šetrnejšiu alternatívu k životnému prostrediu od aktuálne používaných katalyzátorov predstavuje aplikácia katalyzátorov s prechodnými kovmi. V tejto práci sme skúmali katalytickú aktivitu kov@zeolit kompozitných katalyzátorov obsahujúcich CuFe a CuZn bimetalické nanočastice, pripravených reduktívnou demetaláciou v hydrogenácii $-\text{NO}_2$, $-\text{C}\equiv\text{C}-$, $-\text{C}=\text{C}-$ a $-\text{C}=\text{O}$ skupín. Reduktívna demetalácia je nová metóda na syntézu bimetalických nanočastíc uzavretých vnútri pórov zeolitu.

Katalytická aktivita kov@zeolit kompozitov pripravených reduktívnou demetaláciou bola porovnaná s analógmi syntetizovanými impregnáciou a iónovou výmenou v hydrogenáciach p-nitrotoluénu, 3-ethynylanisolu a cinnamaldehydu. Kov@zeolite katalyzátory syntetizované reduktívnou demetaláciou boli aktívne v hydrogenáciach všetkých spomenutých skupín: $-\text{NO}_2$, $-\text{C}\equiv\text{C}-$, $-\text{C}=\text{C}-$ a $-\text{C}=\text{O}$. V hydrogenácii p-nitrotoluénu poskytol najvyššiu konverziu CuZn@VET (56 % po 6 h). Reduktívne demetalované katalyzátory tiež poskytli vyššiu selektivitu než Pd-referenčné katalyzátory v hydrogenácii $-\text{C}\equiv\text{C}-$ na $-\text{C}=\text{C}-$ s použitím 3-ethynylanisolu ako substrátu. Najvyššiu konverziu 3-ethynylanisolu (30 % po 3 h) poskytol CuZn@MFI pripravený reduktívnou demetaláciou, a jeho selektivita k 3-vinylanisolu, obsahujúceho $-\text{C}=\text{C}-$, bola 93 % pri 15% konverzii. Kov@zeolit kompozity poskytli výhody selektivity v systéme konkurujúcich hydrogenácii (obsahujúceho $-\text{C}=\text{C}-$ a $-\text{C}=\text{O}$) v hydrogenácii cinnamaldehydu. Najvyššiu konverziu cinnamaldehydu (98 % po 70 h) poskytol CuFe@MFI a mierne preferoval hydrogenáciu karbonylovej skupiny. Na druhej strane, Pd/Al₂O₃SiO₂ referencia preferenčne hydrogenovala $-\text{C}=\text{C}-$.