

ВСТАНОВЛЕННЯ КАТАЛІТИЧНОЇ АКТИВНОСТІ НАНОКОМПОЗИТІВ З ГРАФЕНОМ НАНЕСЕНИМ НА ОКСИДНІ НОСІЇ В РЕАКЦІЇ ГІДРОГЕНІЗАЦІЇ ЕТЕНУ

Носач В.В.^{1,2}, Бичко І.Б.²

¹ Національний університет «Києво-Могилянська академія»
04655, Київ, вул. Григорія Сковороди, 2; ykd@ukma.edu.ua

² Інститут фізичної хімії ім. Л. В. Писаржевського НАН України, 03028, Київ, пр. Науки, 31.
admini@inphyschem-nas.kiev.ua

Ламелярна структура відновленого оксиду графена (ВОГ) дозволяє створювати наноккомпозити з високою питомою поверхнею у комбінації з низьким вмістом ВОГ, а також можливістю варіювання типу та концентрації поверхневих функціональних груп у структурі нанесеного ВОГ. Можливість нанесення ВОГ на широкий діапазон носіїв робить привабливим використання таких наноккомпозитів у гетерогенному каталізі. Дана робота присвячена встановленню впливу концентрації ВОГ та природи носія на каталітичну активність композитів з нанесеним ВОГ на оксидні носії та активоване вугілля у реакції гідрування етилену.

Наноккомпозити з нанесеним ВОГ на оксиди алюмінію, магнію, кремнію та активоване вугілля було приготовано методом просочення носіїв колоїдним розчином оксиду графену (ОГ) з подальшим відновленням воднем. Масова частка ВОГ у зразках становила 0,025 мг/г та 0,1 мг/г. Умовні позначення для кожного зразка були сформовані наступним чином: назва носія, масова частка ВОГ у наноккомпозиті, мг/г. Суспензію ОГ отримували шляхом окиснення графіту за модифікованим методом Хаммерса. Серію зразків нанесених на оксидні носії було позначено наступним чином ВОГ/тип носія та вміст ВОГ у наноккомпозиті у мг/г.

Каталітичну активність композитів було встановлено у реакції гідрування етилену з використанням проточного трубчатого реактора з хроматографічним аналізом продуктів. Реакцію досліджували в температурному діапазоні 50-400 °С, склад реакційної суміші 90% H₂ та 10% C₂H₄.

Аналіз результатів тестування каталітичної активності зразків з нанесеним ВОГ показав, що найбільшою швидкістю утворення етану за температури 300 °С, в перерахунку на нанесений ВОГ, характеризується зразок 0.025 ВОГ/Al₂O₃ – 2,02 моль·с⁻¹·Г_{ВОГ}⁻¹, а найменшою наноккомпозити ВОГ/SiO₂ – 5,79*10⁻⁶ моль·с⁻¹·Г_{ВОГ}⁻¹ та ВОГ/активоване вугілля – 1,08*10⁻⁶ моль·с⁻¹·Г⁻¹. Найбільшу каталітичну активність проявляє зразок 0.1 ВОГ/Al₂O₃ – 3,86*10⁻³ моль·с⁻¹·Г_{ВОГ}⁻¹, а найменшу зразок 0.1 ВОГ/SiO₂ – 2,02*10⁻⁷ моль·с⁻¹·Г_{ВОГ}⁻¹.

Активність зразків з нанесеним ВОГ на MgO на 2 порядки нижча за активність зразків з нанесеним ВОГ на Al₂O₃ за однакової концентрації ВОГ. Каталітична активність зразків з нанесеним ВОГ на SiO₂ та активоване вугілля на 6-7 порядків нижча за активність зразків з нанесеним ВОГ на Al₂O₃.

Виходячи отриманих результатів каталітичної активності та структурних характеристик отриманих наноккомпозитів можна зробити наступне припущення. Суттєву роль в даних системах відіграє явище спілловеру водню з нанесеного ВОГ на носій. Швидкість та відстань поверхневої міграції водню зменшується в ряду: Al₂O₃>MgO>SiO₂>C_{акт}. Низька каталітична активність ВОГ/MgO, у порівнянні з ВОГ/Al₂O₃, обумовлена частковим перетворенням MgO у Mg(OH)₂ при нанесенні ОГ та хімічної взаємодією Mg(OH)₂ з ОГ, що приводить до часткового руйнування структури нанесеного графена. Зразки з нанесеним ВОГ на оксид алюмінію характеризуються суттєво більшою каталітичною активністю ніж зразки, які були нанесені на інші оксидні носії.