

КАТАЛИТИЧЕСКОЕ ГИДРИРОВАНИЕ ПАРАВОДОРОДОМ

Коптюг И.В., Ковтунов К.В.

*Международный томографический центр СО РАН, ул. Институтская 3А, Новосибирск, 630090,
e-mail: koptyug@tomo.nsc.ru*

Гидрирование непредельных соединений молекулярным водородом может приводить к значительному усилению сигнала в ЯМР и МРТ, если вместо обычного H_2 использовать параводород. Это дает важную информацию о наличии и о природе активных каталитических центров, на которых происходит парное присоединение H_2 к субстрату. Установленный нами факт наличия центров парного присоединения H_2 у нанесенных металлических катализаторов оказался неожиданным, поскольку такой механизм реакции обычно ассоциируется с гомогенным гидрированием через образование дигидридного комплекса металла. Парное присоединение H_2 показано нами и для других типов гетерогенных катализаторов, включая оксиды металлов, их сульфиды, карбиды и др.

С целью направленного создания катализаторов с центрами парного присоединения водорода к субстрату нами использованы изолированные структуры на основе металлов на поверхности носителя, такие как одноцентровые/одноатомные катализаторы¹. Примерами таких систем, для которых нам удалось наблюдать парное присоединение водорода, являются изолированные центры $Co(II),O$ на SiO_2 , $Cr(III),O$ на $SiO_2-Al_2O_3$, оксованадиевый комплекс на SiO_2 и др. Наибольшую активность в парном присоединении водорода показали, в частности, биметаллические катализаторы. К ним относятся катализаторы со структурой наночастиц $Au_{shell}-Pd_{core}$, нанесенные на пиролитический графит, а также катализаторы $Pd-In/Al_2O_3$ - одноцентровые системы, в которых атом активного металла изолирован группой атомов неактивного в реакции элемента.

Усиление сигнала ЯМР/МРТ при использовании параводорода в реакциях каталитического гидрирования помимо важной механистической информации о данных процессах позволяет выполнять МРТ исследования работающих реакторов, что показано на примере модельных систем с наночастицами Rh на слое TiO_2 , нанесенном на стеклянные трубки или пластины. Этот подход позволил нам визуализировать каталитически активные области реактора во время гидрирования пропена².

Литература

1. Kovtunov K.V., Burueva D.B., Kovtunova L.M., Bukhtiyarov V.I., Koptyug I.V. Chem. Eur. J., 2018, 25, 1420.
2. Kovtunov K.V., Lebedev D., Svyatova A. et al., ChemCatChem, 2018, 11, 969.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (№17-54-33037 и №19-53-12013).