

ВСТАНОВЛЕННЯ КАТАЛІТИЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ НАНЕСЕНОГО ВІДНОВЛЕНОГО ОКСИДУ ГРАФЕНУ НА ОКСИД МАГНІЮ В РЕАКЦІЇ ГІДРОГЕНІЗАЦІЇ ЕТЕНУ

Носач В. В.^{1,2}, Бичко І. Б.¹

¹Інститут фізичної хімії ім. Л. В. Писаржевського НАН України, м. Київ, Україна

²Національний університет «Києво-Могилянська академія», Київ, Україна
victorynosach@gmail.com

На основі експериментів з гідрогензацією ненасичених вуглеводнів, було виявлено, що вуглецеві наноматеріали можуть демонструвати каталітичну активність у реакціях гідрогенізації з використанням молекулярного водню. З огляду на властивості, такі як висока кристалічність та велика поверхня, відновлений оксид графену (ВОГ) та його композити стають об'єктом інтересу як новий перспективний клас каталізаторів. Дане дослідження спрямоване на вивчення каталітичних властивостей ВОГ, нанесеного на оксид магнію у реакції гідрогенізації етену.

Методом просочення було створено серію зразків нанокомпозитів, що містять ВОГ, нанесений на оксид магнію, з різним вмістом: 0,025 мг/г, 0,1 мг/г, 0,25 мг/г, 0,5 мг/г та 1 мг/г. Одержані зразки було піддано аналізу за допомогою методів Раманівської та Інфрачервоної (ІЧ) спектроскопії, рентгенофазового аналізу (РФА), сканувальної електронної мікроскопії (СЕМ) та адсорбції-десорбції азоту. Каталітична активність зразків була визначена у реакції гідрогенізації етену, яка проводилася в проточному трубчатому реакторі з хроматографічним контролем продуктів реакції. Процес вивчали в діапазоні температур 50–400 °С, при складі реакційної суміші: 90 % Н₂ та 10 % С₂Н₄.

Встановлено, що оксид графену (ОГ) розташовується головним чином на поверхні носія і не покриває його повністю, утворюючи шари. Аналіз Раманівських спектрів показав, що дефектність нанесеного ВОГ аналогічна дефектності початкового ОГ. На ІЧ спектрах зразків з нанесеним ВОГ на MgO зафіксовано зменшення смуги 1450 см⁻¹, що вказує на зменшення кількості Н-С-Н зв'язків після відновлення. Смуги поглинання 1600 та 3650 см⁻¹ після процесу відновлення збільшилися, що вказує на збільшення кількості зв'язків С-С та О-Н груп у структурі нанокомпозиту. Методом РФА, зафіксовано, що нанесення ОГ з водної суспензії на MgO частково супроводжується утворенням Mg(OH)₂. У подальшому відновлення ОГ до ВОГ воднем за високих температур призводить до розкладу Mg(OH)₂ і часткового руйнування структури нанесеного графену. Методом рентгенофазового аналізу визначено розмір частинок нанокомпозитів за рівняння Шеррера. За результатами аналізу ізотерм адсорбції та десорбції питома поверхня зразка з ОГ, нанесеним на MgO, значно менша, ніж у випадку початкового MgO та ВОГ, який був нанесений на MgO.

Аналіз результатів тестування каталітичної активності зразків з нанесеним ВОГ на оксид магнію, було виявлено, що найбільша каталітична активність при температурі 150 °С спостерігається у зразка з ВОГ, нанесеним на MgO, з концентрацією 0,1 мг/г. Швидкість реакції за його участі складає $1,6 \times 10^{-6}$ моль/(с×г) та $6,5 \times 10^{-2}$ моль/(с×Г_{вог}) у перерахунку на нанесений ВОГ. Зразок нанокомпозиту MgO/ВОГ з концентрацією 1 мг/г проявив найменшу активність, яка становила $1,22 \cdot 10^{-7}$ моль/(с×г) та $1,22 \times 10^{-4}$ моль/(с×Г_{вог}). Найвища швидкість утворення етану зафіксована при участі зразка нанокомпозиту MgO/ВОГ з концентрацією 0,025 мг/г за температури 300 °С і складає відповідно $8,13 \times 10^{-5}$ моль/(с×г) та $0,33 \times 10^{-1}$ моль/(с×Г_{вог}). Активність зразків з нанесеним ВОГ на MgO приблизно на 2 порядки нижча за активність зразків з нанесеним ВОГ на Al₂O₃. Така різниця в активності є наслідком часткового перетворення MgO у Mg(OH)₂ під час нанесення оксиду графену та хімічної взаємодії Mg(OH)₂ з ВОГ, що призводить до часткового руйнування структури нанесеного оксиду графену.