

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования



«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ
ТОМСКИЙ ПОЛИТЕХНИЧЕСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ»

Направление подготовки/профиль 04.06.01 Химические науки /02.00.04 Физическая химия
Школа Исследовательская школа химических и биомедицинских технологий

Научный доклад об основных результатах подготовленной
научно-квалификационной работы

Тема научного доклада
Формирование активной поверхности золотосодержащих катализаторов жидкофазного окисления бетулина

УДК 661.859.097.3:661.7.094.3:633.878.43

Аспирант

Группа	ФИО	Подпись	Дата
A8-18	Григорьева Анна Романовна		20.05.2022

Руководитель профиля подготовки

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Профессор ОХИ	Колпакова Нина Александровна	д.х.н., профессор		23.05.2022

Руководитель отделения

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Директор ИШХБМТ	Трусова Марина Евгеньевна	д.х.н., профессор		23.05.2022

Научный руководитель

Должность	ФИО	Ученая степень, звание	Подпись	Дата
Профессор ИШХБМТ	Пестряков Алексей Николаевич	д.х.н., профессор		23.05.2022

Бетулин и его оксопроизводные (бетулон, бетулиновый и бетулоновый альдегиды, бетулиновая и бетулоновая кислоты) обладают широким спектром биологической активности, продемонстрированной в доклинических исследованиях. На основе данных производных могут быть разработаны лекарственные препараты с противовирусными, противомикробными или противоопухолевыми свойствами. Основным способом получения оксопроизводных бетулина является окисление с использованием систем, содержащих токсичные хром-, марганец- или хлорсодержащие окислители. Такие методы характеризуются значительным спектром недостатков, в том числе связанных с трудностью утилизации токсичных соединений. Таким образом, необходимо найти альтернативные способы получения оксопроизводных бетулина. Разработка гетерогенно-каталитических методов – перспективное альтернативное направление. В частности катализаторы на основе наночастиц золота позволяют проводить процесс в мягких условиях (относительно невысокие температуры 100 - 140 °С при атмосферном давлении) с использованием доступного и дешевого окислителя – воздуха.

Целью данного исследования является разработка эффективных каталитических систем на основе золота для жидкофазного селективного окисления бетулина до его ценных оксопроизводных и выявление природы активной поверхности данных катализаторов.

В данной работе синтезировались золотосодержащие каталитические системы на различных оксидных носителях (гидротальцит, ZrO_2 , ZnO , MgO , CeO_2 , La_2O_3 , SiO_2 , Al_2O_3) и бемитах ($AlOOH$) с последующим исследованием особенностей формирования наночастиц золота на поверхности носителей с различными физико-химическими свойствами. Изучались каталитические свойства систем на основе наночастиц золота в реакции жидкофазного окисления бетулина. И путем сопоставления результатов физико-химических и каталитических исследований изучаемых систем определяли природу активной поверхности катализатора в реакции окисления бетулина. Также были проведены кинетические исследования катализатора на основе наночастиц золота для определения порядка реакции и влияния условий на его каталитическое поведение. Была осуществлена подборка оптимальных условий для высокоселективного получения конкретного оксопроизводного бетулина (бетулоне, бетулинового и бетулонового альдегидов, бетулиновой кислоты).

По результатам проделанных исследований были сделаны следующие выводы:

1. Природа носителя играет решающую роль в окислении бетулина на золотосодержащих каталитических системах;

2. Гамма оксид алюминия и бемит – наиболее подходящие носители для синтеза катализаторов жидкофазного окисления бетулина в связи с узким распределением на его поверхности наночастиц золота и включения в процесс окисления поверхностных форм кислорода носителя;
3. Максимальный общий выход продуктов (69 %) среди исследованных катализаторов с самым высоким закрытием массового баланса (91 %) был получен для Au/AlOOH_C;
4. Расхождение между уровнем конверсии и выходом продуктов объясняется протеканием побочных реакций на поверхности катализатора, что приводит к снижению его активности из-за адсорбции побочных продуктов\субстрата;
5. Реакция окисления бетулина является структурно-чувствительной, требующей определенного размера наночастиц золота, а именно 3,3 нм;
6. Определены условия, благоприятные для получения специфического оксопроизводного бетулина с более высокой селективностью.

Продукты реакции	Начальная концентрация бетулина (ммоль/л)	Температура (°C)	Загрузка катализатора (г)	Концентрация кислорода (%)
Бетулон	1,13	140	0,4	Не влияет
Бетулиновый альдегид	1,13	100-120	0,05	100
Бетулоновый альдегид	9,02	140	0,05	0
Бетулиновая кислота	4,52	140	0,2	12-20

По теме работы опубликовано 2 статьи в высокорейтинговых журналах Catalysis Today и Nanomaterials и тезисы 11 докладов на всероссийских и международных конференциях.