

Szczecin, 14.06.2016 r.

**Streszczenie pracy doktorskiej mgr inż. Edyty Makuch:
pt. "EPOKSYDACJA ZWIĄZKÓW ALLILOWYCH NA KATALIZATORZE
Ti-SBA-15"**

W pierwszym etapie niniejszej pracy opracowano metodę syntezy mezoporowatego katalizatora tytanowo-silikatowego Ti-SBA-15 o różnym stosunku molowym Si/Ti. Uzyskany materiał charakteryzował się strukturą typu SBA-15 oraz posiadał odpowiednie właściwości fizykochemiczne. Ponadto opracowana metoda syntezy tego mezoporowatego materiału charakteryzowała się powtarzalnością syntez. Pełną charakterystykę otrzymanego katalizatora Ti-SBA-15 (o różnym stosunku molowym Si/Ti) uzyskano po wykonaniu następujących badań instrumentalnych: XRD, UV-Vis, IR, SEM, mikroanaliza rentgenowska oraz badania sorpcyjne.

W kolejnym etapie wybrano próbkę katalizatora Ti-SBA-15 (charakteryzującą się najkorzystniejszymi właściwościami fizykochemicznymi oraz posiadającą właściwą strukturę) do badań wpływu parametrów technologicznych na proces epoksydacji związków allilowych: alkoholu allilowego, alkoholu metallilowego, alkoholu krotylowego i 1-buten-3-olu, metodą pod ciśnieniem atmosferycznym. Podczas badań nad tym procesem szczegółowo zbadano wpływ takich parametrów technologicznych, jak: temperatura, stosunek molowy odpowiedniego związku allilowego do nadtlenu wodoru, stężenie rozpuszczalnika, rodzaj rozpuszczalnika - polarny rozpuszczalnik protonowy (metanol, etanol) i aprotonowy (aceton i acetonitryl), zawartość katalizatora Ti-SBA-15, czas reakcji oraz intensywności mieszania. Ponadto proces prowadzono także bez dodawania rozpuszczalnika. Wielkościami opisującymi przebieg procesu były: selektywność przemiany do związku epoksydowego w odniesieniu do przereagowanego związku allilowego, konwersja związku allilowego i nadtlenu wodoru oraz selektywność przemiany do związków organicznych w odniesieniu do przereagowanego nadtlenu wodoru. Szczególną uwagę poświęcono ustaleniu parametrów procesu, przy których uzyskiwano związek epoksydowy z najwyższą selektywnością, przy jednocześnie wysokiej konwersji użytego substratu. Wszystkie produkty otrzymane w procesie epoksydacji związków allilowych identyfikowano za pomocą

spektrometrii masowej, sprzężonej z chromatografią gazową (GC-MS), natomiast skład ilościowy mieszanin poreakcyjnych określano po przeprowadzeniu oznaczeń następującymi metodami: metodą chromatografii gazowej, metodą jodometrycznego oznaczania stężenia nieprzereagowanego nadtlenu wodoru oraz potencjometryczną metodą oznaczania gliceryny (tylko dla epoksydacji alkoholu allilowego).

W następnym etapie badań przeprowadzono optymalizację procesu epoksydacji alkoholu allilowego na katalizatorze Ti-SBA-15 (w środowisku wodnym oraz z dodatkiem polarnego rozpuszczalnika protonowego - metanolu), w oparciu o matematyczną metodę planowania doświadczeń (według planu rotacyjno-uniformalnego). Proces przebiegający w środowisku wodnym optymalizowano z użyciem czterech zmiennych: temperatury, stosunku molowego alkoholu allilowego do nadtlenu wodoru, zawartości katalizatora Ti-SBA-15 i czasu prowadzenia reakcji. Natomiast proces przebiegający z zastosowaniem metanolu jako rozpuszczalnika optymalizowano z użyciem czterech czynników niezależnych (wymienionych wyżej), plus piąty - stężenie rozpuszczalnika.

Kolejny etap badań polegał na przeprowadzeniu wyodrębniania związku epoksydowego (glicydolu) z mieszanin poreakcyjnych metodą destylacji cienkowarstwowej. W wyniku przeprowadzonych destylacji cienkowarstwowych udało się uzyskać epoksyd z wysoką czystością - około 95,8%.

Następnie przeprowadzono regenerację katalizatora tytanowo-silikatowego Ti-SBA-15 po procesie epoksydacji alkoholu allilowego za pomocą 30-proc. nadtlenu wodoru oraz w metanolu jako rozpuszczalniku. Badania prowadzono w warunkach najkorzystniejszych do prowadzenia tego procesu. Przeprowadzone badania wykazały, że katalizator Ti-SBA-15 charakteryzował się aktywnością w V cyklach badań (w 30 etapach epoksydacji AA).

Ponadto w celach porównawczych przeprowadzono regenerację katalizatora tytanowo-silikatowego "starszej generacji" - Ti-MCM-41. Porównanie pokazało, że Ti-MCM-41 charakteryzuje się dużo mniejszą trwałością niż Ti-SBA-15.

Edyta Makuch

14. 06. 2016 r.