ФОРМИРОВАНИЕ И СТАБИЛИЗАЦИЯ КАТАЛИТИЧЕСКИ АКТИВНЫХ НАНОЧАСТИЦ МЕТАЛЛОВ НА ПОВЕРХНОСТИ УЛЬТРАДИСПЕРСНОГО АЛМАЗА

Е.В. Голубина, Е.С. Локтева, В.В. Лунин

Химический факультет МГУ имени М.В. Ломоносова, г. Москва, 119991, Ленинские горы, д. 1, стр. 3 e-mail: golubina@kge.msu.ru

В гетерогенном катализе описан широкий круг структурно-чувствительных реакций, протекание которых существенно зависит от размера и электронного состояния каталитического центра. Поскольку наибольшую активность проявляют частицы оптимального размера, в нанометровом диапазоне на первый план выходит проблема подбора носителя, способного обеспечить стабильность и необходимую структуру активного центра. В данной работе впервые в качестве носителя использовали детонационный ультрадисперсный алмаз (УДА). Он химически устойчив и обладает высокой удельной поверхностью, на которой имеются кислородсодержащие функциональные группы, а также большое количество валентно-ненасыщенных атомов вследствие высокой дефектности поверхности.

В работе исследованы Рd и Au содержащие катализаторы, нанесенные на ультрадисперсный алмаз. Нанесение Pd проводили методом пропитки, а золота методом осаждения аммиаком из раствора HAuCl₄. Содержание металлов составляло от 0,05 до 5 %масс. Методами ПЭМ, РФА и ИК-спектроскопии адсорбированного СО установлено, что во всех случаях на поверхности формируются частицы металла размером до 12 нм. Такое распределение частиц по размерам, скорее всего, достигается вследствие стабилизации металла за счет присутствия на поверхности большого количества функциональных групп. Установлено, что формирование нанесенного металла происходит на кристаллических участках поверхности УДА, что, в свою очередь способствует формированию необходимого электронного состояния металла $M(\delta +)$, наряду с M(0). Присутствие на поверхности катализатора активных центров с электронным состоянием обеспечивает высокую каталитическую активность как в восстановительных превращениях полихлорированных органических соединений, так и в окислении оксида углерода (II). Так, 0,5% Рd/УДА способен переработать около 1500 моль трихлорбензола в расчете на 1 моль Pd. Методом импульсного микрокаталитического окисления СО установлено, что нанесенные на УДА частицы золота участвуют в активации кислорода при совместной адсорбции СО и О₂ и проявляют активность в окислении СО уже при 200°С.

Работа ведется при поддержке Министерства науки и образования (Государственный контракт № 02.740.11.0026 от «15» июня 2009 г.), РФФИ (№07-03-01017)