

ГРАНУЛИРОВАННЫЙ ИЕРАРХИЧЕСКИЙ ЦЕОЛИТ Y_h В СИНТЕЗЕ N-ГЕТЕРОЦИКЛОВ

Артемяева А.С., Филиппова Н.А., Григорьева Н.Г., Кутепов Б.И.

Институт нефтехимии и катализа УФИЦ РАН

450075, г. Уфа, пр. Октября, д. 141

Производные N-гетероциклов служат сырьем для производства лекарственных препаратов, сорбентов, латексов, ингибиторов коррозии, катализаторов реакции сшивки эпоксидов, а также в качестве растворителей.

В данной работе приведены результаты исследования каталитических свойств гранулированных цеолитов $Na-Y_h$ и $H-Y_h$ с иерархической (микро-мезо-макропористой) структурой, модифицированных оксидами металлов (CuO , ZnO) в синтезе: 1) 3,5-диметилпиридина реакцией пропанола с формальдегидом и аммиаком; 2) алкилхинолинов реакцией пропанола с анилинов.

Синтез пиридинов осуществляли реакцией пропанола и формальдегида с аммиаком при $400\text{ }^\circ\text{C}$, 7 ч^{-1} , $C_3H_7OH : CH_2O : NH_3 = 1,0 : 0,8 : 3$ моль/моль. Синтез хинолинов осуществляли реакцией пропанола с анилином при $480\text{ }^\circ\text{C}$, $0,5\text{ ч}^{-1}$, $C_3H_7OH : C_6H_5NH_2 = 2 : 1$ моль/моль.

Установлено, что в реакции пропанола с формальдегидом и аммиаком наиболее активен образец $H-Y_h$ на котором конверсия пропанола составляет 38 %. Образец $Na-Y_h$ не проявляет активность в указанной реакции. В составе продуктов реакции пропанола с формальдегидом и аммиаком на цеолите преобладает 3,5-лутидин (63 %). Кроме того, образуются 3,4-диалкил- и 2,3,5-триалкилпиридины с суммарной селективностью 29 %, незначительное количество 3-метилпиридина (4 %) и аминов (3 %).

На образце $CuO/H-Y_h$ селективность образования 3,5-лутидин остается равной 63%, при этом в составе алкилпиридинов на 10% возрастает селективность по 3-пиколину, селективность ди- и триалкилпиридинов снижается.

В реакции анилина с пропанолом цеолиты $Na-Y_h$ и $H-Y_h$ проявили низкую активность (конверсия анилина 15 и 30 % соответственно). Основные продукты реакции на цеолите в Na -форме – алкиланилины (90 %), в H -форме – алкиланилины (57 %) и продукты превращения пропанола (43 %).

Введение оксидов в цеолит $Na-Y_h$ привело к росту конверсии анилина и образованию алкилхинолинов. Максимальная конверсия анилина (49 %) и селективность по хинолинам (63 %) достигнута на образце $ZnO/Na-Y_h$.

Работа выполнена в рамках государственного задания Института нефтехимии и катализа УФИЦ РАН (тема № FMRS-2022-0080). Структурные исследования проведены в Региональном центре коллективного пользования «Агидель» УФИЦ РАН, в рамках выполнения государственного задания Института нефтехимии и катализа УФИЦ РАН (тема № FMRS-2022-0081).