

DETERMINAÇÃO DA ACTIVIDADE CATALÍTICA DE MATERIAIS MESOPOROSOS POR CROMATOGRAPHIA GÁS-LÍQUIDO

C. Galacho, I.P.P. Cansado, M.M.L. Ribeiro Carrott e P.J.M. Carrott
Universidade de Évora, Colégio Luís António Verney, 7000-671 Évora,
pcg@uevora.pt, ippc@uevora.pt, manrc@uevora.pt, peter@uevora.pt

Resumo

Na presente comunicação apresentam-se os resultados de actividade catalítica oxidativa de materiais mesoporosos Ti-MCM-41, obtidos segundo um novo método de síntese realizado à temperatura ambiente e por incorporação conjunta dos precursores moleculares de silício e titânio, usando como sistema modelo a reacção de epoxidação do ciclo-hexeno (CH) e o hidropéroxido de *tert*-butilo (TBHP) como agente oxidante, e, como técnica de análise, a cromatografia gás-líquido (CGL).

Introdução

A utilização de sólidos mesoestruturados do tipo Ti-MCM-41 em catálise redox abriu novas perspectivas para a realização de reacções com elevado interesse tecnológico, envolvendo moléculas de maiores dimensões, preenchendo, assim, a lacuna existente entre os materiais cristalinos com estrutura microporosa uniforme e os materiais amorfos com estrutura mesoporosa pouco regular.

Os principais objectivos deste trabalho dizem respeito à preparação de materiais com estrutura hexagonal regular, contendo diferentes teores de titânio, e à avaliação da sua actividade catalítica oxidativa.

O produto da reacção de epoxidação do CH que se pretende obter é o óxido de ciclo-hexeno (E) sendo, o 1,2-ciclo-hexanodiol (D), 2-ciclo-hexeno-1-ol (A) e a 2-ciclo-hexeno-1-ona (C) os potenciais produtos de reacção secundários.

Parte Experimental

As amostras de Ti-MCM-41 com diferentes teores de titânio incorporado na estrutura foram sintetizadas de acordo com o procedimento descrito em [1].

A caracterização estrutural foi efectuada por adsorção de azoto a 77K (Sorptomatic 1990), difracção de raios X (Bruker AXS, modelo D8 Advance) e espectroscopia de UV-Vis DR (Varian Cary, modelo 5-E). A composição química, razão molar Si/Ti, foi determinada por AAC e ICP.

Nos ensaios de avaliação da actividade catalítica foram usadas as seguintes condições experimentais:

28,0 mmol CH : 7,0 mmol TBHP : 0,1500 g catalisador, T = 333K, t = 5h

A identificação e quantificação dos produtos resultantes da reacção de epoxidação do CH, do substrato e do agente oxidante não convertidos foi efectuada por CGL (cromatógrafo Hewlett Packard, modelo HP 6890, equipado com coluna capilar HP-5 e um detector FID).

Resultados

Na tabela apresentam-se os parâmetros estruturais obtidos a partir da análise dos difractogramas de raios X e das isotérmicas de adsorção de azoto, a 77K, a composição química e os parâmetros da avaliação da actividade catalítica das amostras Ti-MCM-41 estudadas.

Amostra	Si/Ti	DRX		Método α_s		$r_p(H)$ /nm	CCH / %	S / %
	Exp.	a_0/nm	A_T/m^2g^{-1}	A_{ext}/m^2g^{-1}	V_p/cm^3g^{-1}			
TiEp16-100	99,1	4,43	1071	28	0,83	1,59	70	100
TiEp16-50	48,7	4,45	1033	33	0,81	1,61	72	100
TiEp16-30	30,3	4,39	1028	26	0,78	1,55	78	100
TiEp16-10	9,72	4,42	921	100	0,64	1,56	55	100
TiEp16-5	5,09	4,48	797	100	0,55	1,58	47	<100
TiEp16-3.3	3,30	4,57	715	121	0,47	1,58	45	<100
TiEp16-2	1,77	4,51	535	212	0,29	1,48	34	<100

Conclusões

A síntese à temperatura ambiente revelou ser um novo método de incorporação do titânio na estrutura, rápido e simples, que conduz à obtenção de materiais com estrutura mesoporosa ordenada e boa actividade catalítica.

Referências

- [1] T.N. Silva, J.M. Lopes, F.R. Ribeiro, M.R. Carrott, P.C. Galacho, M.J. Sousa e P. Carrott, *React. Kinetic. Catal. Lett.*, 77 (2002) 83.