

Streszczenie

Selektywne utlenianie węglowodorów w fazie ciekłej z wykorzystaniem tlenu ma kluczowe znaczenie przemysłowe, jednak osiągnięcie wysokiej konwersji i selektywności wciąż pozostaje wyzwaniem. Procesy te wymagają rozerwania silnych wiązań C–H poprzez mechanizm łańcuchowy rodnikowy, ścisłej kontroli niepożądanych reakcji następczego utleniania oraz ograniczania ryzyka wynikającego z obecności wodoronadtlenków i czynnika utleniającego. Oprócz zalet powietrza i tlenu jako ekologicznych, powszechnie dostępnych i efektywnych utleniaczy, zrównoważone wdrożenie procesów z ich udziałem wymaga opracowania możliwych do odzysku i zawrotu stabilnych układów katalitycznych, przy równoczesnym ograniczeniu ilości rozpuszczalników oraz odpadów i unikaniu toksycznych lub rzadkich chemikaliów. Zgodnie z 12. Celem Zrównoważonego Rozwoju ONZ: Odpowiedzialna konsumpcja i produkcja oraz koncepcją “3R” (reduce, reuse, recycle), w niniejszej rozprawie opracowano układy katalityczne możliwe do kilkukrotnego zastosowania oparte na wielościennych nanorurkach węglowych (MWCNTs) do bezropuszczalnikowego utleniania węglowodorów tlenem w fazie ciekłej. Wszystkie reakcje prowadzono w łagodnych warunkach (80 °C, 0,1 MPa, 6 h) z wykorzystaniem etylobenzenu (EB) jako modelowego węglowodoru i tlenu jako zielonego utleniacza. Aktywność katalityczną MWCNTs oraz modyfikowanych metalami MWCNTs określano wobec dodatku *N*-hydroksyftalimidu (NHPI). NHPI jest ekonomicznym i efektywnym organokatalizatorem, jednak jego zastosowanie ogranicza niska rozpuszczalność w apolarnych węglowodorach oraz trudności związane z jego odzyskiem i zawrotem. W celu przezwyciężenia tych ograniczeń opracowano układy katalityczne oparte na MWCNTs oraz modyfikowanych metalami MWCNTs pokrytych cienką warstwą cieczy jonowej (IL) zawierającą rozpuszczony NHPI. IL może wpływać na polarność układu, stabilność i dostępność NHPI oraz transport tlenu. Ponadto otrzymano układy, w których NHPI kowalencyjnie związano z różnymi rodzajami MWCNTs w celu zwiększenia efektywności procesu oraz odzysku katalizatora. Możliwość ponownego wykorzystania wszystkich opracowanych układów katalitycznych została zbadana.