Egy kétdimenziós spirál flow reaktor fejlesztése hatékony fotokatalitikus C-alkilezési reakciókhoz

A flat-spiral flow reactor for efficient photocatalytic C-alkylation

GÉMES Gergő, HANGYA Kinga Imola, RICHTER Dóra, Dr. habil. KUPAI József

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem, Vegyészmérnöki és Biomérnöki Kar,
Szerves Kémia és Technológia Tanszék
1111 Budapest, Műegyetem rkp. 3.
kupai.jozsef@vbk.bme.hu

ABSTRACT

A simple, easy-to-construct flat-spiral flow photoreactor was developed for photocatalytic reactions that use high-power LED light sources. The reactor is based on commercially available PFA tubing arranged in a flat-spiral geometry enabling efficient use of planar light sources. It features double-sided irradiation to maximize light penetration. The high volume to surface area ratio also provides better temperature control. The performance of the reactor was evaluated using the C-alkylation of CH-acidic substrates with 1,1-diphenylethylene. The flat-spiral design enabled shorter residence times and higher reaction concentrations. Optimization afforded a 93% yield at a concentration of 0.27 M and a residence time of 2 h, while the use of 1/16” PFA tubing enabled almost quantitative yields. The new setup was applied to several CH-acidic substrates. The residence time was reduced from 5 to 1 h, which led to substantially higher productivity, providing space time yields up to 98 mmol h^{-1} L^{-1}. A power-normalized modification of the energy economy factor was also introduced, which can be used to quantify the influence of process parameters on energy consumption. Finally, controlled oxygenation experiments showed that oxygen promotes benzophenone formation from 1,1-diphenylethylene.

Keywords: photocatalysis; flow chemistry; C-alkylation; visible light; flat spiral reactor

ÖSSZEFOGLALÓ

Kifejlesztettünk egy könnyen összeállítható, lapos spirál elrendezésű áramlású fotoreaktort nagy teljesítményű LED-es fényforrásokkal végzett fotokatalitikus reakciókhoz. A reaktor kereskedelmi forgalomban kapható PFA-csövekből épül fel, amelyek lapos spirál alakzatba vannak rendezve. A lehető legnagyobb fénybesugárzás érdekében a reaktort mindkét oldaláról meg lehet világítani. A nagy fajlagos felület jobb hőmérséklet-szabályozást is lehetővé teszi. A reaktor teljesítményét CH-savas szubsztrátok 1,1-difeniletilénnel történő C-alkilezésével értékeltük. A reaktor kialakítása lehetővé tette a tartózkodási idő csökkentését és a töményebb reakcióelegyek alkalmazását, ezzel magasabb termelést és termelékenységet eredményezve. Az optimalizálás eredményeként 0,27 M koncentráció és 2 órás tartózkodási idő mellett 93%-os termelést értünk el, míg az 1/16 colos PFA csövek használata szinte kvantitatív termelést tett lehetővé. Az új berendezést több további CH-savas szubsztrát esetében is alkalmaztuk. A tartózkodási időt 5 óráról 1 órára csökkentettük, ami lényegesen magasabb termelékenységet eredményezett, akár 98 mmol h^{-1} L^{-1} térfogati termelékenységet. Bevezettük az energiahatékonysági tényező teljesítménnyel normalizált módosítását is, ezzel a folyamatparaméterek energiafelhasználásra gyakorolt hatását lehet számszerűsíteni. Végül egy oxigénbevezetéssel végzett kísérlettel megmutattuk, hogy a reakcióelegyben jelenlévő oxigén hatására az 1,1-difeniletilénből benzofenon keletkezik.

Kulcsszavak: fotokatalízis, áramlásos kémia, C-alkilezés, látható fény, spirális fotoreaktor

A kutatás az OTKA (FK138037), valamint a Varga József Alapítvány támogatásával jött létre. Doktoranduszi Kiválósági Ösztöndíj Program (DKÖP_M-01-1-BME-20) által támogatott projekt a Tudományos és Technológiai Minisztérium Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Alapból nyújtott, valamint a Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem támogatása alapján valósult meg.