

Új szulfoszalán ligandumok és átmenetifém komplexeik előállítása és katalitikus sajátságai

Bunda Szilvia^a, Dr. Lihi Norbert^{b,c}, Dr. Voronova Krisztina^d, Dr. Udvardy Antal^a, Prof. Dr. Joó Ferenc^{a,c},

^aDebreceni Egyetem, Fizikai Kémiai Tanszék, Debrecen

^bDebreceni Egyetem, Szervetlen és Analitikai Kémiai Tanszék, Debrecen

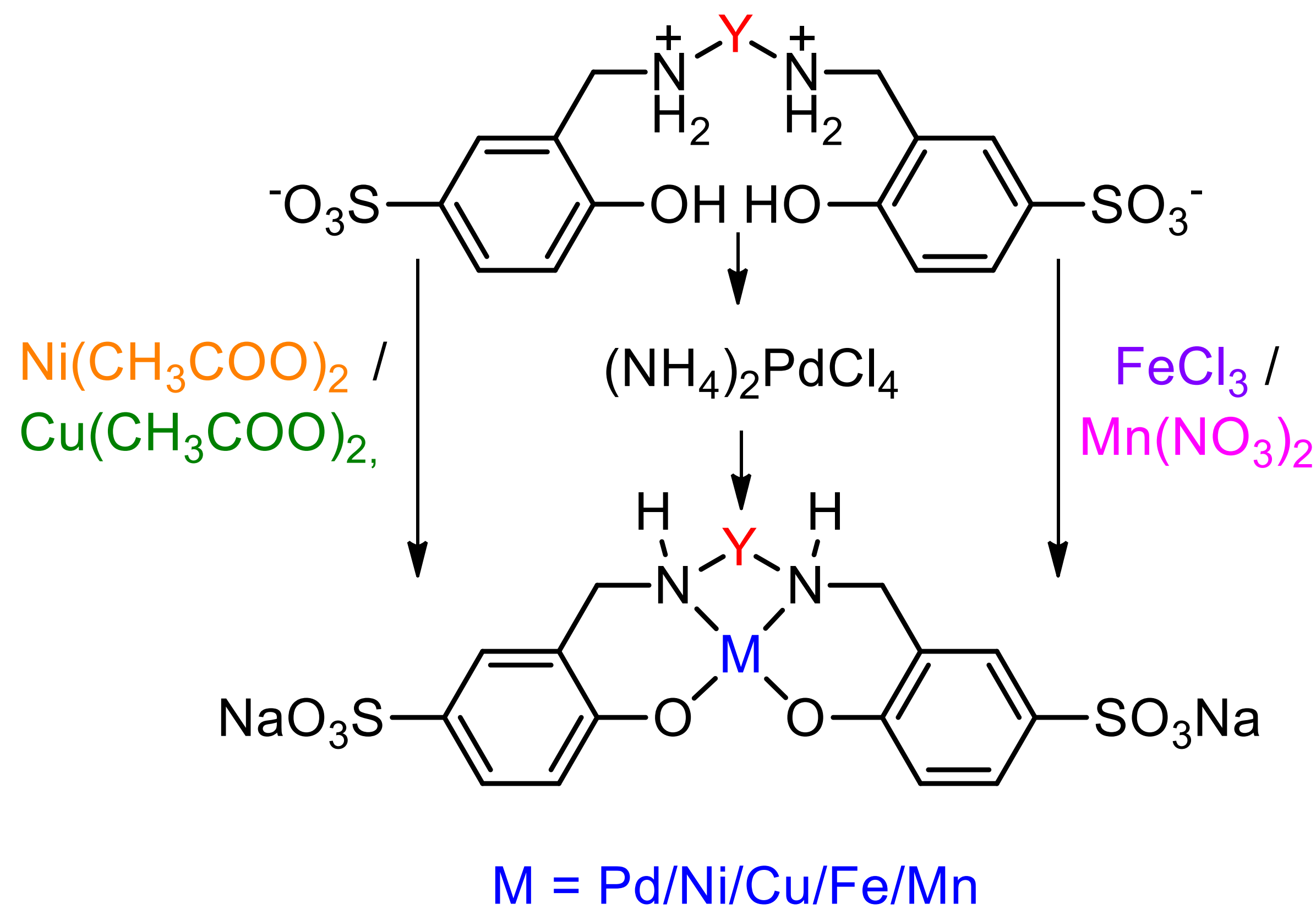
^cMTA-DE Redoxi- és Homogén Katalitikus Reakciók Mechanizmusa Kutatócsoport

^dDepartment of Chemistry, University of Nevada, Reno, NV 89557, USA

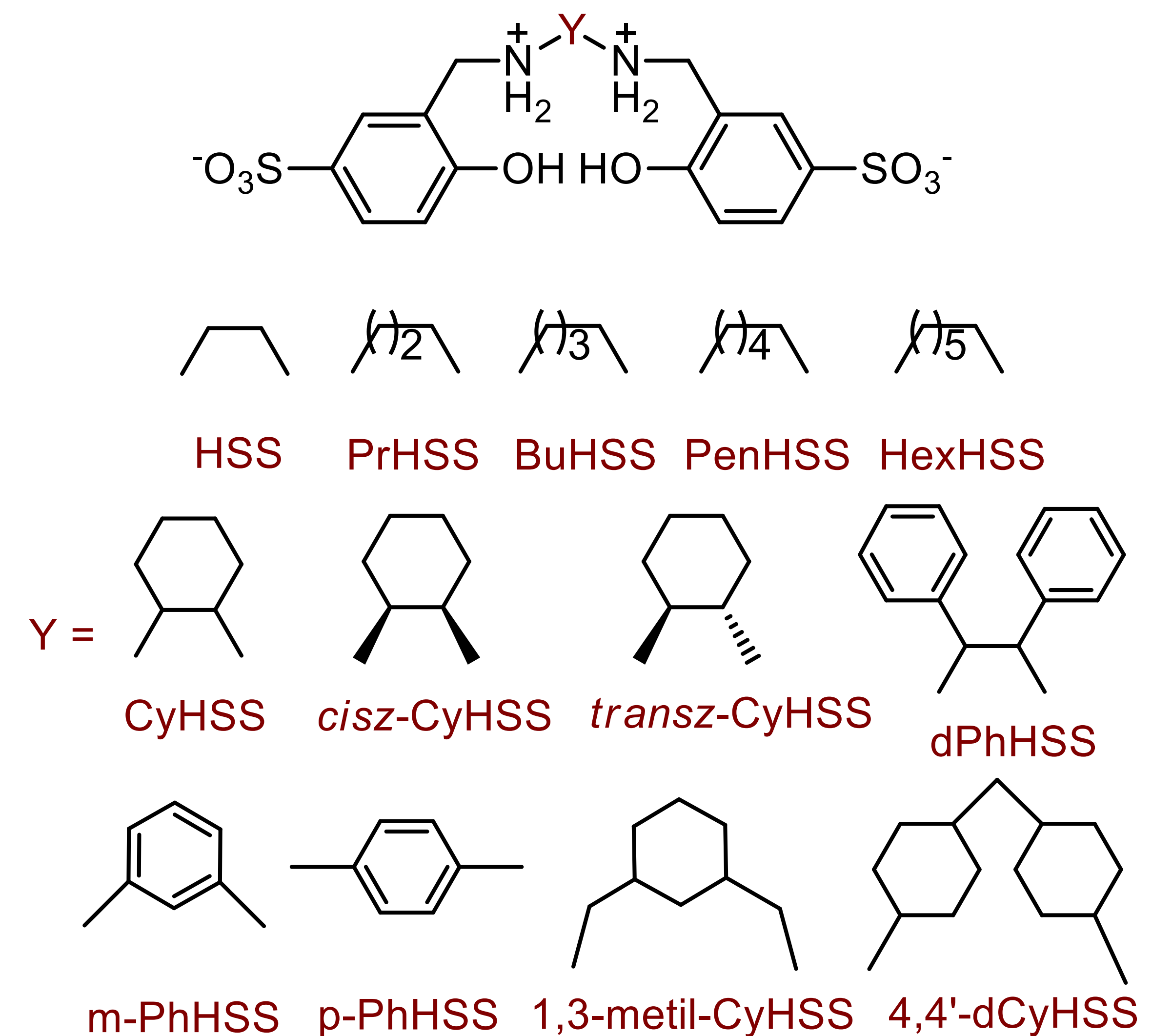
✓ Bevezetés

A homogén katalízis vizsgálata során rendkívül fontos új, hatékony fémkomplexeik fejlesztése, hiszen általuk iparilag jelentős folyamatokat lehet egyszerűbbé és környezetbarátabbá tenni. E cél érdekében terveztük új vízoldható N₂O₂ donor-ligandumok (szulfoszalánok), valamint palládium és más, olcsóbb átmenetifém komplexeik előállítását, és ezek oldategyensúlyi vizsgálatát. A szulfoszalán ligandumok és fémkomplexeik igen változatos koordinációs kémiával jellemezhetőek, a komplexek szerkezetét a fémion minősége jelentősen befolyásolja. A kapott eredményeket homogén katalitikus reakciók kidolgozásában, valamint az elvégzett reakciók mechanizmusának felderítésében kívánjuk felhasználni. Fontos a párhuzamosan végzett komplexképződési és katalitikus vizsgálat, hiszen az új katalizátorok előállítása összetett megközelítést igényel. Tehát munkánk legfontosabb újdonsága a fémkomplexeik stabilitásának pH-potenciometriás meghatározása, a vizes oldatok pH-ja függvényében mutatott eloszlásuk számítása, és a katalitikus aktivitásuk pH-függésének összevetése – röviden: a koordinációs kémia és a homogén katalízis összekapcsolása.

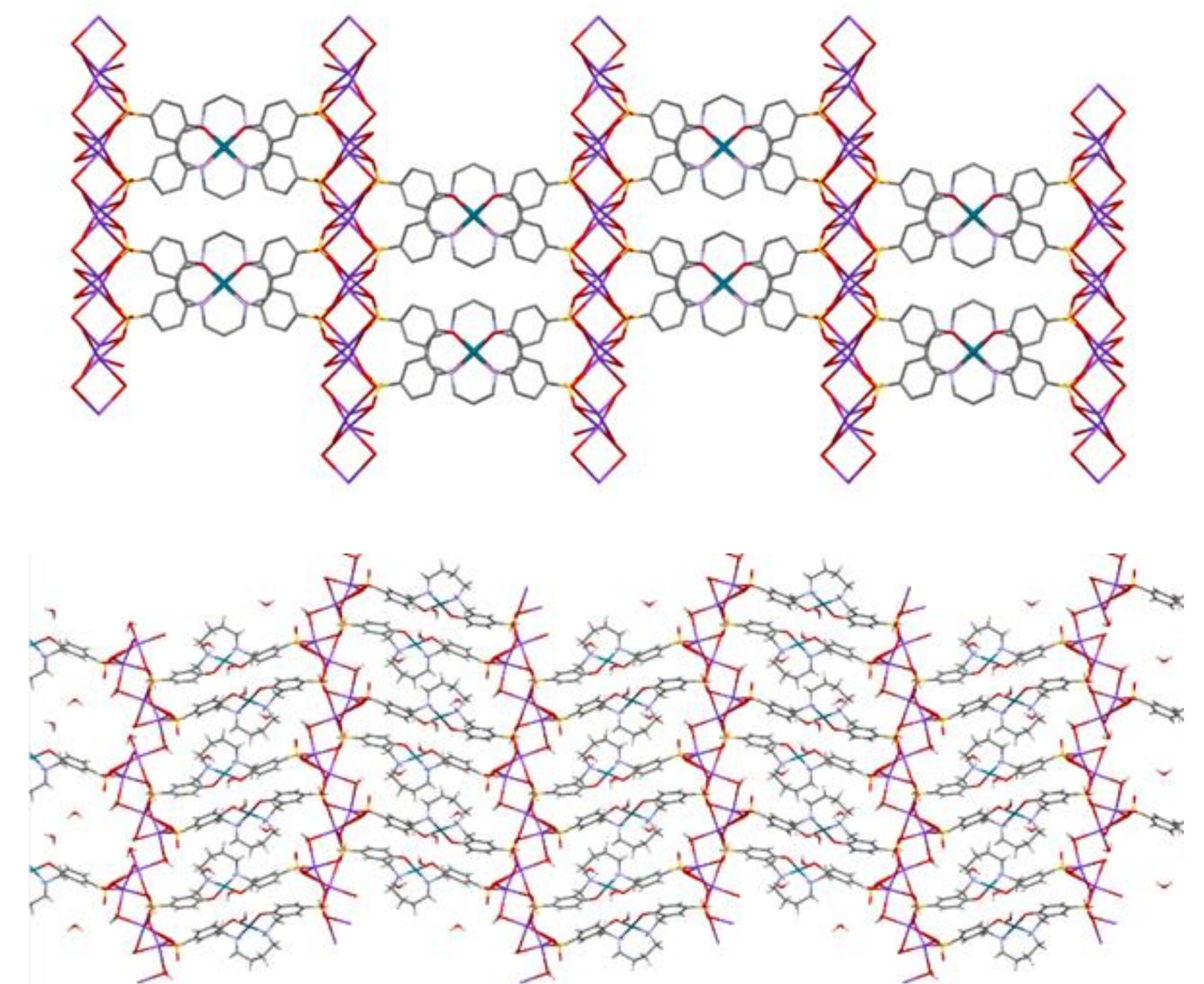
✓ Átmenetifém komplexek előállítása



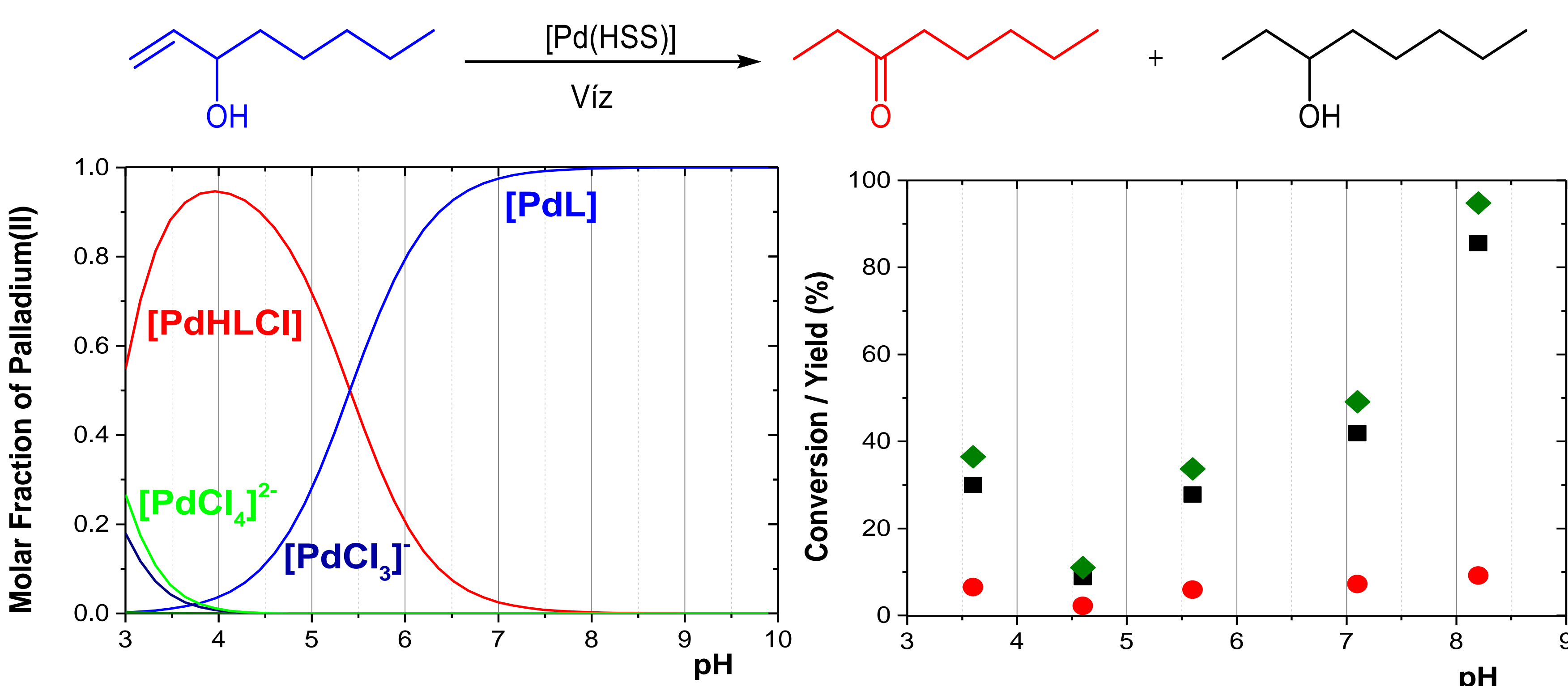
✓ Új szulfonált szalán ligandumok szintézise



✓ A [Pd(PrHSS)]²⁻ és a [Pd(BuHSS)]²⁻ komplexek molekulaserkezete és elrendeződésük a kristályrácsban



✓ pH-függő hidrogénezés és „egy új alternatíva” (Palládium vs. Nikkel)



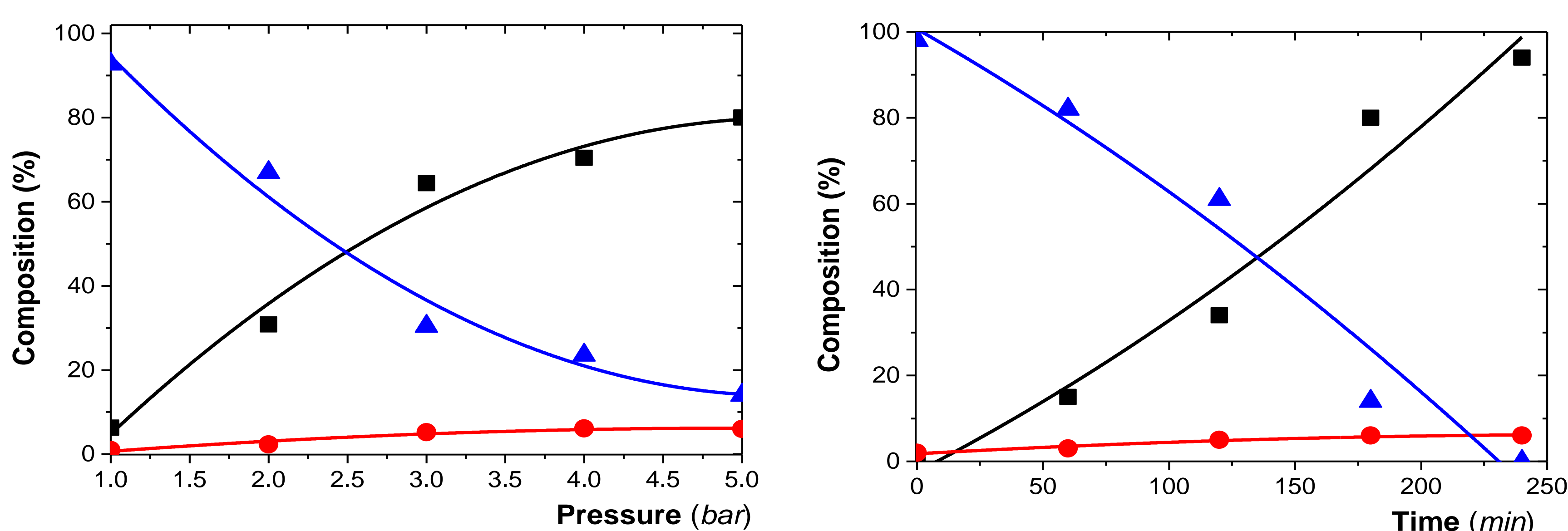
Reakciókörülmények:

2,50 · 10⁻⁷ mol [Pd(HSS)], 2,5 · 10⁻⁴ mol okt-1-én-3-ol, 3 mL acetát-puffer, I=0,2 M KCl, 1 bar H₂, 30 perc, 40 °C;

◆ - okt-1-én-3-ol
■ - oktan-3-ol
● - oktan-3-on

Az okt-1-én-3-ol esetében a konverziót, az oktan-3-ol és az oktan-3-on esetében a hozamot mutatja az ábra.

N. Lihi, S. Bunda, A. Udvardy, F. Joó : *J. Inorg. Biochem.* 203 1-7, 2020



Reakciókörülmények:

1,07 · 10⁻⁴ mol [Ni(HSS)], 2,5 · 10⁻⁴ mol okt-1-én-3-ol, 3 mL víz, 1-5 bar H₂, 3 óra, 80 °C;

▲ - okt-1-én-3-ol
■ - oktan-3-ol
● - oktan-3-on

Reakciókörülmények:

1,07 · 10⁻⁴ mol [Ni(HSS)], 2,5 · 10⁻⁴ mol okt-1-én-3-ol, 3 mL víz, 5 bar H₂, 1-4 óra, 80 °C;

✓ Összefoglaló

Munkánk során új, vízoldható szulfonált szalán ligandumok és átmenetifém komplexeik tervezésével és szintézisével foglalkoztunk. Koordinációs kémiai módszerekkel megvizsgáltuk a ligandumok és átmenetifém-komplexeik oldategyensúlyi viszonyait. Elvégeztük a ligandumok Cu(II)-, Ni(II)-, Pd(II)-komplexeinek pH-potenciometriás titrálását, valamint az oldatban jelen lévő részecskék eloszlásának teljes feltérképezését és jellemzését is. Ezen vizsgálatok nagyban elősegítik katalitikus tulajdonságaik megértését, valamint a reakciók mechanizmusának vizsgálatát (pl. pH függő hidrogénezés, redox izomerizáció, C-C keresztkapcsolás).

✓ Köszönetnyilvánítás

A kutatás a GINOP-2.3.2.-15-2016-00008 számú projekt keretében, az Európai Unió támogatásával, az Európai Regionális Fejlesztési Alap társfinanszírozásával valósult meg. A szerzők köszönik a támogatást a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs alaphoz (NKFI-FK128333) és a Technológiai Minisztérium ED_18-1-2019-0028, Járműipari fejlesztési programjának is.

