تصميم وتحضير حفازات متناهية الصغر من المعادن ومعادن ثنائية للحفز الضوئي والتحولات العضوية إعداد

طالب: اكرام احمد

مشرف :أ. د. عبدالله محمد عسيري

المستخلص

المحفزات النانوية، أصبحت واحده من أهم المكونات في بعض التفاعلات الكيميائية، والتي يتم فقدانها نتيجة لسوء التعامل في عملية الإسترداد. وبما أن معظم المواد النانوية الحفازة على أساس المواد النانوية المعدنية النبيلة هي باهظة الثمن، فكان لابد من إعادة إستخدامها لضبط إرتفاع قيمة تكلفتها. الهدف الرئيسي من هذا العمل البحثي هو تقديم محفزات جديدة مع إمكانية أعادة إستردادها من أنظمة التفاعل. في هذا الصدد، تم إستخدام ركائز بوليمرية بمساحة عالية لتجميد المحفزات. هذا البحث أوضح أن التخليق، البنية التركيبية، وخواص الشكل الظاهري للمعدن الإنتقالي او المعدن الأرضي النادر في المستوى النانوي وتطبيقاتها المحتملة في التخليق العضوي، التحويل العضوي و التكسير الضوئي للملوثات العضوية في المياه. لتحقيق أهداف البحث، تم تحضير مواد نانوية من اللانثنام والقصدير، سلينيد الزنك-سلينيد الحديد، والفضة والنحاس في الحالة المعدنية بواسطة طريقة السول-جل وفرن المايكرويف. تم تحديد الخصائص للمواد التي تم تحضيرها بواسطة المجهر الألكتروني، مجهر المسح الإلكتروني، ومسحوق بلورات الأشعة السينية، طيف الأشعة السينية الإلكتروني الضوئي، بروناور-ايميت-تيلر، طيف الأشعة تحت الحمراء بإستخدان تحويل فورير، والتحليل الوزني الحراري. بالإضافة إلى ذلك، تم تحديد السايكلوهكسان المتبلور وغير المتبلور المتكون من التخليق العضوي للإلدهيد الأروماتي و الأيثيل أسيتواستيت الأشعة السينية للبلورة المفردة و أشعة الرنين المغنطيسي النووي على التوالي. لمعالجة مسألة إستعادة العامل الحفاز ، أستخدمت ورقة ترشيح واتمان المحتوية على السليلوز النقى، خلات السليلوز ، أو الألياف و فليم بكتريا السليلوز كمواد داعمة. تم إستخدام اللانثانم-قصدير في تخليق السايكلو هكسان، بينما تم إستخدام الفضة-النحاس المعدنيين النانويين في التحويل العضوي للنايتروفينول إلى أمينوفينول بواسطة بوروهيدرات الصوديوم كعامل مختزل، تم تطبيق سلينيد الزنك سلينيد الحديد كمحفز ضوئي في تكسير أصباغ الأكردين البرتقالي، الكارمين النيلي, والميثلين الأزرق. تم تقييم تأثير المحفزات النانوية الداعمة وغير الداعمة في الحركيات، عائد مركبات التحسين الحيوية والصحية، وتم تقييم التحولات العضوية والتكسير بإستخدام الحفز الضوئي، وتم إستخدام الطيف المرئي في تقييم حركية التحول العضوي ونشاطية تكسير الحفز الضوئي للمواد النانوية. وقد لوحظت نتائج واعدة من المواد النانوية المخلقة مع الأخذ في الإعتبار تطبيقاتها النوعية، وأيضاً تم توصيف الإستعادة وإمكانية الإستخدام للعوامل الحفازة بواسطة تكرار التفاعلات تحت نفس الظروف. وأيضاً كان من الملاحظ أن المواد الحفازة الداعمة يمكن أن تؤدي وبكفاءة في المذيبات التي تحتوي على هيدرجين قابل المنح والغير قابلة للمنح والتي تنسب للمقاومة الكيميائية الطبيعية للسليلوز، بكتريا السليلوز وخلات السليلوز تجاه تلك المذيبات التي تجعلها ذات جدوى إقتصادية، متوفرة في الطبيعة ولها خواص تمكنها من أن تكون مفضلة للإستخدام في مجال المحفزات النانوية.

Design and Synthesis of Metallic and Bimetallic Nano-catalysts for Photodegradation and

Organic Transformations

Student Name: Ikram Ahmad

Supervisor Name: Prof. Dr. Abdullah Muhammad Asiri

Abstract

Nano-catalysts, being important components in certain chemical reactions, are lost due to

improper handling in the recovery process. Since most of the catalysts are based on noble metal

nanoparticles which are quite expensive, they must be re-used to adjust their high cost. The main

aim of this research work was to introduce new catalysts as well as their efficient recovery from

the reaction systems. In this regard, high surface area polymeric substrates for immobilization of

the catalysts have been utilized. This investigation demonstrates the synthesis, structural and

morphological characterization of transition or rare-earth metal based nanomaterials and their

potential application in organic synthesis, organic transformations and photocatalytic water

decontamination while degrading organic contaminants. To achieve the objectives, lanthanum-

tin (La-Sn), Zinc selenide-iron selenide (ZnSe-FeSe), zerovalent silver (Ag) and copper (Cu)

nanomaterials were prepared by sol-gel and microwave oven methods. The synthesized materials

were characterized by transmission electron microscopy, scanning electron microscopy, powder

x-ray crystallography, x-ray photoelectron spectroscopy, brunauer-emmet-teller, fourier

transform infra-red spectroscopy, and thermogravimetric analysis. In addition, crystalline and

amorphous cyclohexanones formed in the organic synthesis of aromatic aldehydes and ethyl

acetoacetate were confirmed by single crystal x-ray crystallography and nuclear magnetic

resonance spectroscopy, respectively. To address the issue of catalyst retrievability, whatman filter paper composed of pure cellulose, cellulose acetate sheets or fibers and bacterial cellulose films were used as supporting materials. La-Sn was used in the synthesis of cyclohexanones, whereas, Ag and Cu zerovalent nanoparticles were used for organic transformations of nitrophenols into aminophenols by using sodium borohydride as a reducing agent and ZnSe-FeSe was applied as a photocatalyst for the degradation of dyes namely; acridine orange, indigo carmine and methylene blue. The effects of supported and unsupported nanocatalysts on the kinetics and yield of vital and health improving compounds, organic transformations and photocatalytic degradation were also evaluated and UV-visible spectroscopy was used to assess the organic transformation, kinetics and photocatalytic activity of nanomaterials. The promising results were observed by the synthesized nanomaterials with respect to their specific applications, moreover, the recovery and reusability of catalysts were described by repeating the reactions under similar conditions. It was also observable that these supported catalysts can perform efficiently in protic and aprotic solvents, which was attributed to the chemical resistant nature of cellulose, bacterial cellulose and cellulose acetate towards these solvents that makes them economically feasible, naturally abundant and potential candidates in the field of nanocatalysis.