

Autor rozprawy doktorskiej: mgr Justyna Jędraszko
Promotor: prof. dr hab. Marcin Wojciech Opalło
Promotor pomocniczy: dr inż. Wojciech Adamiak

Wytwarzanie nadtlenu wodoru i wodoru na granicy faz ciecz|ciecz z wykorzystaniem metalocenów jako donorów elektronów

Celem niniejszej pracy było lepsze zrozumienie mechanizmów reakcji i znalezienie nowych układów do wytwarzania H_2 i H_2O_2 na granicy dwóch niemieszających się cieczy z wykorzystaniem metalocenów jako donorów elektronów. Fazą organiczną był roztwór dekametyloferrocenu lub dekametylorutenocenu. Jako fazę wodną wykorzystano roztwór kwasu chlorowego (VII). W przypadku wytwarzania H_2 , faza wodna zawierała dodatkowo tetrakis(pentafluorofenylo)boran litu. Sól ta ułatwia przeniesienie protonów z fazy wodnej, do fazy organicznej.

Proces wytwarzania H_2 prowadzono w układach 1,2-dichloroetan|woda oraz α,α,α -trifluorotoluen|woda. Wytwarzanie H_2 prowadzono w warunkach beztlenowych po przeniesieniu protonów z fazy wodnej do fazy organicznej. Następnie, w fazie organicznej protony zredukowane były do H_2 przez dekametyloferrocen bądź dekametylorutenocen. W drugim przypadku, proces zachodził pod wpływem światła białego.

Wytwarzanie H_2O_2 badano w układach: 1,2-dichloroetan|woda, α,α,α -trifluorotoluen|woda, eter 2-nitrofenylooktylowy|woda czy ciecz jonowa|woda. Wytwarzanie H_2O_2 zachodzi, analogicznie do wytwarzania H_2 , homogenicznie w fazie organicznej po wcześniejszym przeniesieniu protonów, jak również heterogenicznie na granicy faz ciecz|ciecz. Proces prowadzono z wykorzystaniem dekametyloferrocenu jako donora elektronów w obecności O_2 .

W celu określenia mechanizmów wytwarzania H_2 i H_2O_2 , prowadzono także badania przeniesienia jonów przez granicę faz ciecz|ciecz. Podczas redukcji protonów i tlenu metaloceny utleniają się jednoelektronowo, a tym samym w fazie organicznej wytwarzany jest ładunek dodatni, który musi być zubożony poprzez przeniesienie jonów przez granicę faz ciecz|ciecz. W układach z rozpuszczalnikami molekularnymi zachodziło przeniesienie anionów z fazy wodnej do organicznej. W przypadku cieczy jonowych, obserwowano również przeniesienie ich kationów do fazy wodnej. Kationy metalocenów pozostawały natomiast w fazie organicznej. W celu poprawienia wydajności i zapewnienia ciągłości procesów wytwarzania H_2 i H_2O_2 , w wybranych układach dwufazowych, prowadzono elektrochemiczną regenerację metalocenów.

W pracy wykorzystano techniki woltamperometryczne, potencjometryczne, skaningową mikroskopię elektrochemiczną, mikroskopię fluorescencyjną oraz spektroskopię UV-Vis. Otrzymane wyniki badań poszerzają wiedzę na temat wytwarzania H_2 i H_2O_2 w układach dwufazowych ciecz|ciecz, pozostając w zakresie badań podstawowych. W przyszłości mogą być wykorzystane w badaniach stosowanych.

Data opracowania: 2.10.2017