حفازات قاعدية صلبة نانونية الحجم ومتوسطة المسام لتفاعل هنري

مقدمة من

بدور فضل علي الحاشدي

رسالة مقدمة لنيل درجة الماجستير في العلوم

[كيمياء فيزيائية]

تحت إشراف

أ.د. محمد مختار محمد

د. هبه عباس كشميري

المستخلص

تم تحضير عدة حفازات من النظام الثلاثي الحفزي من أكاسيد النحاس/الماغنسيا/الومينا بنسب مختلفة من النحاس/الماغنسيوم/الألومنيوم بالتسخين الحراري للمواد ثنائي الهيدروكسيل الطبقية عند ٥٠٠ درجة مئوية لمدة ٨ ساعات. لقد تم عمل توصيف لجميع الحفازات باستخدام تقنيات متعددة مثل الأشعة السينية الفلورنسينية، التحليل الحراري التفاضلي، حيود الأشعة السينية، الأشعة السينية الطيف ضوئية، الميكروسكوب الألكتروني الماسح وجهاز قياس المساحة السطحية. تم قياس الكفاءة الحفزية للعينات المحضرة بتفاعل هنري باستخدام النيتروميثان وعدة مشتقات من الألديهيدات المختلفة وذلك تحت ظروف تشغيل تقليدية وأخرى باستخدام طريقة التشعيع بالأشعة فوق الصوتية. لقد أظهرت النتائج أن جميع الحفازات لها كفاءة حفزية عالية لتحضير النيتروكحوليات كناتج وحيد بكميات مقبولة. أدى استخدام تقنية الأشعة فوق الصوتية الى انجاز التفاعلات في فترة زمنية قصيرة جدا وأنتاج عالي بالمقارنة بالطريقة التقليدية. أظهر الحفاز المكون من نسب ١:١:١ من النحاس/الماغنسيوم/الومنيوم كفاءة حفزية فائقة في تحضير العديد من المركبات في زمن قياسي وبأنتاجية عالية جدا. لقد تم أستخدام الحفاز حوالي ست مرات بعد اعادة فصله لاجراء التفاعل مرة اخرى حيث أظهر ثباتا ومقاومة عالية لنقص الكفاءة نظرا لكبر المساحة السطحية وصغر حجم الحبيبات والمسام المتوسطه التي يتمتع بها هذا الحفاز. يعد هذا السيناريو من تحضير المركبات العضوية بطرق محفزة والتشعيع بواسطة الموجات فوق الصوتية نموذجا لتحضير الكحوليات في تفاعل هنري.

Mesoporous Nano-sized Solid Base Catalysts for Henry Reaction

by

Budoor Fadhl Ali Alhashedi

A thesis submitted for the requirements of the degree of Master of Science

[Physical Chemistry]

Supervised By

Prof. Dr. Mohamed Mokhtar Mohamed Mostafa
Dr. Heba Abbas Kashmery

Abstract

A ternary system of mesoporous nanosized $CuO/MgO/Al_2O_3$ catalysts with different nominal compositions for Cu/Mg/Al mol ratios were synthesized form CuMgAl-layered double hydroxide calcined at 500^oC for 8h. All the synthesized catalysts were characterized by XRF, TGA, XRD, SEM, XPS, CO_2-TPD and BET-surface area gas analyzer. A catalytic test of Henry reaction utilizing nitromethane and various aldehyde derivates was carried out under conventional and ultrasonic irradiation methods. The obtained results revealed that all the synthesized catalysts showed catalytic efficiency towards the formation of only nitro-alcohol products in acceptable yield. Utilizing ultrasonic irradiation derived to achieve the reaction in very short reaction time with better %yield in comparison to the conventional classical method. $CuO/MgO/Al_2O_3$ catalyst (Cu/Mg/Al~ 1:1:1) was the superior active and selective candidate that provides high % yield and TOF for all the synthesized alcohols in short reaction time (few minutes). The re-use of the catalysts over six periods of time showed a robust nature that resist, deactivation thanks to its large surface area, nanosized active species and its mesoporous nature. The present scenario of ultrasonic assisted catalyzed organic synthesis could be a new trend for stereoselective Henry reactions.