

جسيمات الفضة النانوية المنتشرة على مواد ثنائية وثلاثية الأبعاد لإزالة ملوثات المياه

إعداد

سلوى ذياب شعيب المعلوي

إشراف

د. نارسيمها راو كاتيبثيني

د. عبد المحسن علي الشهري

تم تحضير عينات من الفضة ومركباتها كمواد متناهية الصغر بنجاح وباستخدام ظروف تحضير مختلفة لفهم تأثير ظروف التحضير على الخصائص الفيزيائية والكيميائية والتحفيزية الضوئية لهذه المواد. أظهرت العينات (Ag-1 و Ag-2) التي تم تحضيرها باستخدام نترات الفضة $AgNO_3$ وبيكربونات الصوديوم ($NaHCO_3$) ومركب بولي فاينيل بيروليدون (PVP) معدن الفضة النقي متناهي الصغر وكان أحدهما على شكل قضبان والأخر على شكل جسيمات، لقد وجد أن شكل معدن الفضة قد تأثر بالمعالجة المائية الحرارية. وقد أظهرت عينة Ag-3 المحضرة بدون قالب PVP مع التكليل عند ٢٥٠ درجة مئوية وجود طور أكسيد الفضة (Ag_2O) النقي ومع ذلك أظهرت نفس العينة بدون التكليل وجود طور كربونات الفضة Ag_2CO_3 النقي (Ag-4)، ومن المثير للاهتمام أن تعريض العينة للمعالجة المائية الحرارية فقط (Ag-5) لم ينتج عنه أي تغيير في التركيب البلوري ولكن تم زيادة حجم الجسيمات، تم استخدام جميع العينات المحضرة كمحفزات ضوئية لتدهور مركب ٤-نيتروفينول تحت إشعاع الضوء المرئي. أظهرت عينة Ag_2CO_3 (Ag-4) النقية مع حجم بلوري صغير نشاط تحفيزي ضوئي مرتفع وصلت كفاءته إلى ٨٦.24٪ عند الأس الهيدروجيني ٧ لتركيز ١٦ مجم/لتر من مركب ٤-نيتروفينول خلال ١٢٠ دقيقة وباستخدام كتلة حفاز تساوي ١٠٠ مجم. وبسبب ضعف استقرار Ag_2CO_3 الذي لوحظ في عملية التحفيز الضوئي تم تحضير متراكبات من مركب كربونات الفضة المحملة على مركب الزيوليت (H-ZSM-5) وعلى (H-magadiite) وذلك بنسب مختلفة من كربونات الفضة ٥٪ و ١٠٪ و ١٥٪ وقد تم استخدامها لإزالة مركب ٤-نيتروفينول تحت إشعاع الضوء المرئي. زادت كفاءة التحلل الضوئي للمركب ٤-نيتروفينول بزيادة كمية Ag_2CO_3 من ٥٪ إلى ١٠٪، ثم انخفضت عند ١٥٪. حدثت أقصى كفاءة تحلل ضوئي (٩٨،٢٦٪) في المحلول المحتوي على ١٦ مجم/لتر من مركب ٤-نيتروفينول عند استخدام ١٠٠ مجم من الحفاز (10% Ag_2CO_3 /H-ZSM-5) عند الأس الهيدروجيني ٧. وعند استخدام مركبات Ag_2CO_3 /H-magadiite وجد أن كفاءة التحلل الضوئي للمركب ٤-نيتروفينول زادت بزيادة كمية Ag_2CO_3 من ٥٪ إلى ١٥٪. وقد حدثت أقصى كفاءة تحلل ضوئي (١٠٠٪) في المحلول المحتوي على ١٦ مجم/لتر من مركب ٤-نيتروفينول عند استخدام ١٠٠ مجم من الحفاز (Ag_2CO_3 /H-magadiite) (10% عند الأس الهيدروجيني ٧. وهذا يعني أن وجود H-ZSM-5 و H-magadiite أدى إلى تعزيز نشاط واستقرار Ag_2CO_3 في نفس الوقت.

الكلمات المفتاحية: الحفاز الضوئي، الفضة، النيتروفينول، H-ZSM-5

Silver Based 2D and 3D Nanomaterials for Removal of Water Pollutants

By

Salwa Deyab Shoaib Al-Malwi

Supervised By

Prof. Dr. Katabathini Narasimharao

Prof. Dr. Abdulmohsen Ali Alshehri

Silver (Ag) containing nanomaterials was successfully prepared by varying synthesis conditions to understand the influence of preparation conditions on the physicochemical and photocatalytic properties of these materials. The samples (Ag-1 and Ag-2) prepared using AgNO_3 , NaHCO_3 , and polyvinylpyrrolidone (PVP) template exhibited pure Ag metal nanorods and nanoparticles. The Ag-3 sample prepared without PVP template and calcined at 250 °C showed the presence of a pure Ag_2O phase. However, the same sample dried at 50 °C (Ag-4) showed the presence of a pure Ag_2CO_3 phase. Interestingly subjecting the sample to hydrothermal treatment (Ag-5) has not resulted in any change in the crystal structure, but particle size was increased. All the synthesized Ag-containing nanomaterials were used as photocatalysts for *p*-nitrophenol (*p*-NP) degradation under visible light irradiation. The Ag-4 sample (pure Ag_2CO_3) exhibited high photocatalytic activity (86.24% efficiency at pH 7, *p*-NP concentration of 16 mgL^{-1} , 120 min, and catalyst mass of 100 mg) compared to the other synthesized Ag-containing nanomaterials. To overcome drawback of the poor stability of Ag_2CO_3 in the photocatalytic process, it was deposited on synthesized nanosized H-ZSM-5 (3D) and H-magadiite (2D) supports. $\text{Ag}_2\text{CO}_3/\text{H-ZSM-5}$ and $\text{Ag}_2\text{CO}_3/\text{H-magadiite}$ composites with different Ag_2CO_3 loadings (5 wt.%, 10 wt.%, and 15 wt.%) are prepared and utilized to remove *p*-NP under visible light irradiation. The *p*-NP photocatalytic degradation efficiency increased with the increase of Ag_2CO_3 loading from 5 wt.% to 10 wt.%, then decreased when loading increased to 15 wt.%. The maximum photocatalytic degradation efficiency (98.26%) occurred in the solution containing 16 mgL^{-1} *p*-NP by 100 mgL^{-1} dosage of 10% $\text{Ag}_2\text{CO}_3/\text{H-ZSM-5}$ at pH7 during 100 min under visible light irradiation. The *p*-NP photocatalytic degradation efficiency increased with the increase of Ag_2CO_3 loading from 5 wt.% to 15 wt.%. The maximum photocatalytic degradation efficiency (100%) occurred in the solution containing 16 mgL^{-1} *p*-NP by 100 mgL^{-1} dosage of 15% $\text{Ag}_2\text{CO}_3/\text{H-magadiite}$ at pH 7. The enhanced activity and stability of Ag_2CO_3 is due to hybridization of Ag_2CO_3 with H-ZSM-5, and H-magadiite supports.

Keywords: Silver nanomaterials, H-ZSM-5, H-magadiite, Water purification, Photocatalyst, *p*-Nitrophenol, Degradation