

## **Streszczenie w języku polskim:**

Rozprawa doktorska wpisuje się w światowe trendy zmierzające do opracowania nowych i doskonalenia już istniejących katalizatorów procesów utleniania poprzez szczegółową analizę mechanizmów reakcji katalitycznych, a także dokładne badanie roli poszczególnych składników kontaktów w reakcjach utleniania.

Celem pracy doktorskiej była synteza i charakterystyka nowych katalizatorów wieloskładnikowych zawierających Au, Cu, Zn i Nb oraz określenie czynników determinujących ich aktywność i selektywność w procesach utleniania wybranych związków organicznych (metanolu, rodaminy B i błękitu metylenowego), ze szczególnym uwzględnieniem zbadania wpływu roli oddziaływania pomiędzy składnikami katalizatorów na ich efektywność w procesach katalitycznego utleniania oraz sposobu oddziaływania katalizatora z utleniaczami.

Rozprawa obejmuje cykl 5 publikacji szczegółowo opisujących syntezę i charakterystykę kontaktów z wykorzystaniem różnorodnych i wzajemnie uzupełniających się metod, a także testy aktywności katalitycznej otrzymanych materiałów w procesach utleniania tlenem, jak i w wybranych zaawansowanych procesach utleniania, tj. procesach utleniania z użyciem nadtlenu wodoru oraz procesach fotokatalitycznych. Testy katalityczne obejmowały zarówno reakcje przeprowadzane w fazie gazowej (utlenianie metanolu), jak i w fazie ciekłej (degradacja barwników organicznych – rodaminy B i błękitu metylenowego).

Publikacje [II, III] dotyczyły zastosowania katalizatorów złotych osadzonych na wybranych tlenkach metali przejściowych ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$  i  $\text{ZnNb}_2\text{O}_6$ ) oraz mezoporowatych piankach komórkowych MCF modyfikowanych tlenkami tych metali (Nb/MCF i NbZn/MCF) w reakcjach utleniania metanolu w fazie gazowej. W pracach tych wykazano, że powierzchnia katalizatorów złotych jest niezwykle dynamiczna i ulega cyklicznym przemianom podczas reakcji katalitycznej. Udokumentowano również, że właściwości elektronowe złota determinują mechanizm aktywacji tlenu na powierzchni katalizatorów oraz wpływają na selektywność reakcji. Dokładna charakterystyka i analiza właściwości otrzymanych kontaktów umożliwiła również określenie wpływu wzajemnego oddziaływania pomiędzy poszczególnymi składnikami katalizatorów na ich aktywność i selektywność. Wykazano, że stosowanie układów wieloskładnikowych umożliwia nie tylko zwiększenie stabilności nanocząstek złota na powierzchni kontaktów, ale również znacząco modyfikuje ich właściwości elektronowe przyczyniając się do zwiększenia aktywności katalitycznej układów.

Prace [IV, V] dotyczyły zastosowania wybranych tlenków metali przejściowych ( $\text{Nb}_2\text{O}_5$  i  $\text{ZnNb}_2\text{O}_6$ ) oraz katalizatora złotowego osadzonego na komercyjnym tlenku cynku w reakcji utleniania błękitu metylenowego nadtlaniem wodoru. Wykonane badania umożliwiły m.in. określenie czynników wpływających na efektywność katalitycznego generowania reaktywnych form tlenu (ROS) oraz aktywność kontaktów w procesach utleniania. Szczegółowa analiza ROS wytworzonych na powierzchni katalizatorów podczas oddziaływania z nadtlaniem wodoru oraz identyfikacja produktów pośrednich reakcji utleniania pozwoliła wskazać drogi degradacji błękitu metylenowego oraz wykazać, która z form ROS uczestniczy w degradacji barwnika. Znaczącym elementem nowości przeprowadzonych badań było zastosowanie katalizatora złotowego osadzonego na tlenku cynku w procesie hybrydowym będącym połączeniem procesu utleniania nadtlaniem wodoru oraz procesu fotokatalitycznego.

W ostatniej pracy [I] zawartej w rozprawie doktorskiej zsyntezowano i dokładnie scharakteryzowano 7 tlenków cynku o różnych właściwościach, tj. o różnym stopniu krystaliczności, powierzchni właściwej, rozmiarze cząstek, a także rodzaju i ilości defektów w strukturze  $\text{ZnO}$ , w celu określenia, który z wyżej wymienionych czynników jest najważniejszy dla uzyskania wysokiej aktywności fotokatalitycznej. Na podstawie przeprowadzonych eksperymentów wykazano, że kluczowym czynnikiem determinującym aktywność fotokatalityczną  $\text{ZnO}$  jest stopień jego krystaliczności, ale w uzyskaniu wysokiej efektywności procesu utleniania istotną rolę odgrywa również wielkość powierzchni właściwej fotokatalizatora.

Wyniki opisane w ramach rozprawy doktorskiej jednoznacznie dowiodły, że katalizatory zawierające Au, Cu, Nb i Zn cechują się wysoką aktywnością w procesach utleniania związków organicznych z wykorzystaniem zarówno tlenu, nadtlenu wodoru, jak i światła. Udokumentowana w niniejszej rozprawie doktorskiej uniwersalność opisanych powyżej katalizatorów pozwala przypuszczać, że kontakty te mogą odegrać istotną rolę w rozwoju nowej, przyjaznej środowisku generacji procesów katalitycznych, tj. procesów hybrydowych.