

UNIVERSITATEA DIN BUCUREȘTI  
FACULTATEA DE CHIMIE

REZUMAT TEZĂ DE ABILITARE

---

Tailored Layered Materials as  
exciting multifunctional  
heterogeneous catalysts

---

PAVEL DUMITRU-OCTAVIAN

ȘEF LUCRĂRI DR.

# REZUMAT

---

Teza de abilitare sintetizează activitatea de cercetare desfășurată ulterior susținerii tezei de doctorat în anul 2006 (“Catalizatori solizi acido-bazici. Conversia compușilor funcționali pe catalizatori oxizi micști” sub coordonarea Prof. Emerit Emilian ANGELESCU). Aceste cercetări au fost realizate exclusiv în cadrul Laboratorului de Chimie Tehnologică și Cataliză din cadrul Facultății de Chimie a Universității din București.

Teza este structurată în două secțiuni: Secțiunea A, prezentând critic domeniul de cercetare și realizările științifice; și Secțiunea B, prezentând Planul de dezvoltare a carierei academice și de cercetare pentru următoarea perioadă. Secțiunea A este organizată în trei subcapitole analizând cercetările din domeniul materialelor stratificate cu proprietăți bazice.

Clasificarea materialelor stratificate (primul capitol) a considerat drept criterii: tipul de cationi constituenți, influența etapelor și condițiilor de sinteză (atmosferă inert/aer; succesiunea etapelor de calcinare/reconstrucție; prezența și natura unor baze anorganice și a sărurilor cuaternare de amoniu drept agenți de hidroliză netradiționali; efectul metodei mecanochemice, etc.). Urmând această strategie materialele sintetizate au fost clasificate în șapte grupe specifice: *i*) cu structura tipică de hidrotalcit, Mg/Al; *ii*) materiale stratificate în care Mg a fost substituit parțial/total cu cationi divalenți ( $Zn^{2+}$ ,  $Ni^{2+}$ ,  $Co^{2+}$ ,  $Cu^{2+}$ ,  $Mn^{2+}$ ,  $Fe^{2+}$ ); *iii*) materiale în care Al a fost substituit cu cationi trivalenți ( $Ga^{3+}$ ,  $Y^{3+}$ ,  $La^{3+}$ ); *iv*) materiale de tip  $Li^+/Al$ -LDH; *v*)  $Mn^{2+}/Fe^{3+}$ -LDH; *vi*) materiale stratificate conținând cationi  $Ce^{3+}(Ce^{4+})$  și *vii*) materiale stratificate cu cationi ai Mo plasați în spațiul interstrat al LDH sub forma unui anion de compensare. Datele obținute prin diferite tehnici de caracterizare (XRD, DRIFT, DR-UV-Vis, BET, bazicitate, TEM, SEM, XPS etc.) au confirmat structuri pure de tip LDH, în unele cazuri asociate cu faze contaminante.

Asocierea acestor materiale cu o activitate catalitică îmbunătățită s-a datorat unui număr de proprietăți precum: *i*) electronegativitate scăzută a cationilor conducând la o creștere a bazicității materialului stratificat; *ii*) modificarea raportului  $OH^-/CO_3^{2-}$  influențând proprietățile acido-bazice ale materialelor stratificate; *iii*) controlul proprietăților texturale prin adaugare de baze organice cu rol suplimentar de agent de hidroliză, sau de agent de templare; *iv*) un grad diferit de organizare la nivel atomic prin sinteză mecanochemică care poate induce și un efect de

memorie care să permită reconstrucția parțială a structurii stratificate de tip LDH prin hidratarea oxizilor micșți rezultați prin tratamente termice.

Performanțele catalitice ale acestor materiale se corelează cu proprietățile fizico-chimice, fapt demonstrat într-o serie de reacții de sinteze fine, precum cele de adiție (cianoetilare între un alcool și acrilonitril), de condensare (reacție Claisen-Schmidt între benzaldehidă și ciclohexanonă sau autocondensarea ciclohexanonei), oxidare (oxidarea selectivă a stirenului; ciclohexenei și 5-hidroxi-2-metilfurfuralului), sau sinteza 2-metilpirazinei prin reacții de deshidratare-ciclizare.

Al doilea capitol prezintă rezultate în sinteza de compozite hibride precum: *i*) structuri de oxid de grafenă-LDH pentru condensarea Knoevenagel cu formare de chalcone și flavone sau îndepărtarea colorantului indigo carmin din apele uzate; *ii*) Zn-MgAl-LDH modificat cu ftalocianină de Cu drept catalizator pentru îndepărtarea antibioticelor  $\beta$ -lactamice din apele reziduale; și *iii*) structuri curcumină-ZnAl-LDH ca materiale de stocare/eliberare a medicamentului.

Al treilea capitol, a investigat filme de hidrotalcit Mg<sub>2</sub>Al și Mg<sub>3</sub>Al obținute prin tratamente de iradiere laser (PDL și MAPLE) pentru depoluarea apelor poluate cu metale grele printr-un proces cunoscut sub numele de “diadochy” (capacitatea unui atom sau ion de a înlocui complet sau parțial un altul dintr-o rețea cristalină).

Secțiunea B propune un plan de cercetare și dezvoltare a carierei academice. Sunt prezentate câteva teme de cercetare din domeniul „Cataliză în prezența materialelor stratificate” pe care intenționez să le abordez în viitor ca teme pentru teze de doctorat, de master și de licență ale studenților de la Facultatea de Chimie precum și subiectele viitoarelor propuneri de proiect de finanțare, atât la nivel național cât și internațional: utilizarea bazelor organice și a moleculelor template pentru obținerea materialelor de tip LDH folosite în sinteza de chimicale fine; utilizarea metodei mecanochemice pentru sinteza materialelor stratificate predefinite în prezența bazelor anorganice și organice; compozite LDH-polimer ca și adsorbânți/catalizatori pentru oxidarea avansată a coloranților din apele uzate; o nouă generație de fertilizatori nano-încapsulați pentru aplicații agro-food; noi materiale LDH drept fotocatalizatori pentru degradarea antibioticelor; LDH de tip LnMgAl pentru creșterea randamentelor la sinteza biodieselului.

