Streszczenie rozprawy doktorskiej

# „Badania struktury krystalicznej oraz składu powierzchni kobaltowych katalizatorów syntezy amoniaku”

mgr Adam Sarnecki

promotor: dr hab. inż. Dariusz Moszyński, prof. ZUT

Proces syntezy amoniaku z azotu i wodoru jest jednym z najbardziej energochłonnych procesów przemysłowych – zużywa średnio 1% światowej produkcji energii. Z tego powodu prace nad wydajnymi katalizatorami tego procesu stanowią ważny temat we współczesnej technologii chemicznej. Katalizatory kobaltowe, ze względu na prostotę preparatyki i dużą dostępność surowców stanowią grupę materiałów, które mogą być stosowane w przemyśle.

W ramach pracy doktorskiej badano katalizatory kobaltowe syntezy amoniaku, osadzone na mieszanym tlenku magnezowo-lantanowym. W pierwszym etapie prac zbadano katalizatory zawierające 10% mas. kobaltu, różniące się sposobem wprowadzania tego pierwiastka na nośnik. Wprowadzano go poprzez osadzanie i strącanie (DP – *deposition-precipitation*), osadzanie i strącanie w obecności mocznika (DPU – *deposition-precipitation with urea*), współstrącanie (CP – *co-precipitation*) i impregnację mokrą (WI – *wet impregnation*). Określono strukturę krystalograficzną prekursorów i katalizatorów po procesie aktywacji. Potwierdzono występowanie w prekursorach regularnej fazy tlenku magnezu oraz dwóch faz: heksagonalnej i jednoskośnej węglanu tlenku lantanu(III), nie zaobserwowano jednak żadnych faz zawierających kobalt. Proces aktywacji wodorem wywołał zmianę składu fazowego. Zidentyfikowano regularną fazę tlenku magnezu, heksagonalną i regularną fazę tlenku lantanu(III). Metaliczny kobalt o strukturze regularnej zidentyfikowano jedynie w katalizatorach otrzymanych metodami współstrącania (CP) i mokrej impregnacji (WI). Wykonano badania składu powierzchni metodą spektroskopii fotoelektronów (XPS). Potwierdziły one, że stosunek liczby atomów kobaltu metalicznego do całkowitej liczby atomów kobaltu na powierzchni katalizatorów rośnie dla kolejnych metod preparatyki w następującym szeregu: DP < DPU < CP < WI. Badania właściwości katalitycznych potwierdziły, że największą aktywność w procesie syntezy amoniaku

obserwuje się dla katalizatora, w którym kobalt wprowadzony był metodą impregnacji mokrej (WI).

W drugiej części zbadano układy zawierające 10, 20, 30, 40 oraz 50% mas. kobaltu, wprowadzonego na nośnik magnezowo-lantanowy metodą impregnacji mokrej. We wszystkich katalizatorach, po procesie aktywacji, zidentyfikowano wyłącznie trzy fazy krystalograficzne: regularną tlenku magnezu, heksagonalną tlenku lantanu(III) i regularną kobaltu metalicznego. Badania składu powierzchni metodą spektroskopii fotoelektronów wykazały, że podczas aktywacji, dla katalizatorów zawierających 20-50% kobaltu, następuje całkowita redukcja związków kobaltu do jego postaci metalicznej. Badania aktywności katalitycznej wskazały, że największą aktywność spośród tej grupy katalizatorów wykazuje układ zawierający 40% mas. kobaltu.

Sposób preparacji katalizatora ma wpływ na jego aktywność w procesie syntezy amoniaku. Podczas procesu aktywacji zachodzą znaczące zmiany struktury katalizatora, prowadzące do powstania nowych faz krystalicznych, w szczególności kobaltu metalicznego. Dzięki wykonanym badaniom wskazano na układy o najbardziej obiecujących właściwościach pod kątem zastosowania jako przemysłowe katalizatory syntezy amoniaku.