Rozprawa doktorska

„Katalizatory kobaltowo-molibdenowe syntezy amoniaku"

Mgr inż. Paweł Adamski

Promotor pracy doktorskiej: dr hab. inż. Dariusz Moszyński, prof. ZUT

Streszczenie w języku polskim

Prace badawcze prowadzone w ramach rozprawy doktorskiej dotyczyły katalizatorów syntezy amoniaku, których fazą aktywną są azotki kobaltu i molibdenu. Katalizatory otrzymano przez strącenie prekursorów z roztworów wodnych soli kobaltu i molibdenu, a następnie poddaniu ich procesowi aktywacji w reakcji z gazowym amoniakiem.

Określono strukturę krystalograficzną prekursorów strąconych z roztworów o odczynie w zakresie pH od 5,5 do 7,5. Prekursory strącone w środowisku kwaśnym składają się z hydratu molibdenianu(VI) kobaltu(II) $CoMoO_4 \cdot 0{,}9H_2O$, natomiast te strącone w środowisku zasadowym składają się z akwa bismolibdenianu(VI) wodorotlenku amonu i dikobaltu $NH_4Co_2OH(MoO_4)_2 \cdot H_2O$. Określono wielkości komórek elementarnych oraz numery grup przestrzennych obydwu prekursorów. W przypadku prekursora otrzymanego w środowisku zasadowym ustalono pozycje atomów w jego sieci.

Badano przebieg procesu aktywacji prekursorów prowadzący do powstania azotków kobaltu i molibdenu. Określono mechanizm, według którego zachodzi przemiana tlenkowego prekursora do fazy aktywnej. We wstępnym etapie kalcynacji zachodzi proces usuwania wody z fazy $CoMoO_4 \cdot 0{,}9H_2O$ lub wody i amoniaku z fazy $NH_4Co_2OH(MoO_4)_2 \cdot H_2O$. W obu przypadkach powstaje molibdenian(VI) kobaltu(II) $CoMoO_4$. Następnie postępuje rozkład fazy $CoMoO_4$ z utworzeniem tlenku bimetalicznego $Co_2Mo_3O_8$ oraz tlenku kobaltu(II) CoO. W atmosferze amoniaku dochodzi do redukcji dwóch wspomnianych powyżej faz tlenkowych do fazy związku międzymetalicznego Co_3Mo i metalicznego kobaltu, jako związków pośrednich. Następnie fazy te ulegają azotowaniu z utworzeniem azotków kobaltu i molibdenu Co_3Mo_3N oraz Co_2Mo_3N.

Katalizator otrzymany z prekursora strąconego w środowisku kwaśnym składał się z azotków Co_3Mo_3N i Co_2Mo_3N, a katalizator uzyskany z prekursora strąconego w środowisku zasadowym zawierał dodatkowo związek międzymetaliczny Co_3Mo.

Zbadano aktywność tych katalizatorów w procesie syntezy amoniaku. Katalizator otrzymany z prekursora strąconego w środowisku zasadowym był najbardziej aktywny. Obydwa katalizatory są bardziej aktywne od przemysłowego katalizatora żelazowego. Wskazano, że występowanie w katalizatorze fazy międzymetalicznej Co_3Mo wpływa korzystnie na aktywność tych materiałów w procesie syntezy amoniaku.

Paweł Adamski

Szczecin, 20.05.2022

20.05.22 Paweł Adamski