

## Streszczenie popularnonaukowe

Konwersja tlenku węgla z parą wodną (Water Gas Shift - WGS) jest jednym z podstawowych procesów otrzymywania wodoru. Mimo, że proces ten realizowany jest przy produkcji chemikaliów o dużym znaczeniu gospodarczym, aspekt katalityczny tej reakcji jest nadal przedmiotem intensywnych prac badawczych o charakterze podstawowym. Znane katalizatory WGS oparte na formule Fe-Ce-Cu mają szereg istotnych wad m.in. obecność w składzie niebezpiecznego dla środowiska  $Cr^{6+}$  o kancerogennych i mutagennych właściwościach, jak również konieczność prowadzenia procesu parowego reformingu (poprzedzającego proces WGS) przy minimalnym stosunku para/gaz nie mniejszym niż 2,8. Obniżenie tej wartości wiąże się z ryzykiem powstawania węglika żelaza katalizującego reakcje uboczne (reakcje Fischera Tropscha), w wyniku których konsumowany jest wodór co wywołuje szereg niekorzystnych konsekwencji i w efekcie prowadzi do obniżenia efektywności procesu. Dodatkowo układy oparte na promotowanych niestechiometrycznym układach magnetytowych  $Fe_xO_y$  stopniowo dezaktywują się poprzez rekryształizację tlenku żelaza wywołaną działaniem czynnika temperaturowego oraz pary wodnej.

We wnioskowanym projekcie planujemy podjąć badania nad zupełnie inną klasą katalizatorów WGS tj. układami opartymi na mieszanych tlenkach  $ZnO-Al_2O_3$  z dominującym udziałem fazy spinelowej  $Zn_xAl_yO_z$  promotowanych litowcami. Ponadto istnieją uzasadnione przesłanki, że modyfikacja mieszanych tlenków  $ZnO-Al_2O_3$  tlenkami Cu i/lub La może prowadzić do wzrostu stabilności i poprawy efektu katalitycznego. Nasze dotychczasowe badania rozpoznawcze wskazują na możliwość zastąpienia powszechnie stosowanych układów katalizatorami nowej generacji o odmiennej formule, które niwelują wady konwencjonalnych katalizatorów WGS.

Opracowanie nowej formuły i sposobu otrzymywania wysoce-aktywnego, stabilnego i odpornego na dezaktywację i zawęglanie katalizatora parowej konwersji CO pozwoli na dalszy rozwój nowatorskich technik pozyskiwania wodoru warunkujących dalszą miniaturyzację źródeł energii (np. ogniwa paliwowe) i elastyczność surowcową procesów generowania wodoru.

Pierwszym etapem prac będzie opracowanie metody preparatyki modelowych materiałów  $ZnO-Al_2O_3$ . Do celów porównawczych zastosowane zostaną różne dostępne techniki syntezy tj. współstrącania, współstrącania z dodatkiem surfaktantów, odwróconej mikroemulsji (także z zastosowaniem homogenizacji ciśnieniowej), osadzania nanometrycznych ziaren wytworzonej fazy spinelowej na różnych nośnikach. Przy odpowiednio dobranych parametrach syntezy otrzymane katalizatory powinny wykazywać korzystne właściwości strukturalne i teksturalne (tj. nanorozmiarowość ziaren  $Zn_xAl_yO_z$ , mezoporowatość, wysoko rozwiniętą powierzchnią właściwą) - co może czynić je atrakcyjnymi w różnorodnych zastosowaniach katalitycznych, nie tylko w opisywanej reakcji WGS.

Dalszym, aspektem przedkładanego projektu będzie dobór odpowiednich ścieżek modyfikacji modelowych układów  $ZnO-Al_2O_3$  solami litowców oraz związkami Cu i/lub La.

Otrzymane preparaty poddane zostaną kompleksowej ocenie właściwości fizykochemicznych wykorzystując szerokie spektrum technik eksperymentalnych: sorpcji azotu, porozymetrii rtęciowej, fluorescencji rentgenowskiej, ICP-OES, dyfrakcji promieniowania rentgenowskiego, spektroskopii fotoelektronów, spektroskopii UV-Vis-DR, termogravimetrii oraz skaningowej i wysokorozdzielczej transmisyjnej mikroskopii elektronowej. Badania te pozwolą na określenie wpływu metody oraz warunków preparatyki modyfikowanych i niemodyfikowanych materiałów Zn-Al na ich morfologię, skład chemiczny, właściwości strukturalne i tekstualno-powierzchniowe.

Ocena aktywności i stabilności katalizatorów w procesie parowej konwersji CO w reżimie kinetycznym prowadzona będzie w bezgradientowych i różniczkowych reaktorach przy małych prędkościach reagentów. Uzupełniającym elementem badań będą próby określenia odporności na dezaktywację termiczną i chemiczną, jak również odporności na zawęglanie katalizatorów podczas prowadzenia procesu WGS przy zmniejszonym stosunku para/gaz.

Realizacja proponowanego projektu pozwoli na poszerzenie wiedzy podstawowej w zakresie promowanych i niepromowanych materiałów opartych na mieszanych tlenkach  $ZnO-Al_2O_3$  z dominującym udziałem fazy spinelowej  $Zn_xAl_yO_z$  jako katalizatorów do procesu parowej konwersji CO. Liczymy również, że uzyskane wyniki pozwolą na głębsze wyjaśnienie roli struktury spinelowej oraz działania promotorów jako czynników determinujących aktywność w reakcji parowej konwersji CO. Korelacja wyników badań kinetycznych i fizykochemicznych stwarza szansę zaprojektowania materiału katalitycznego o pożądanych cechach dedykowanych danemu procesowi.