

Jednym z największych wyzwań dla środowiska naukowego, zdefiniowanych m.in. przez Konferencję Stron Ramowej Konwencji Narodów Zjednoczonych w sprawie Zmian Klimatu (Porozumienie Paryskie, 12.12.2015), jest ochrona środowiska przed daleko posuniętą i nieodwracalną zmianą klimatu. Dynamiczna urbanizacja, uprzemysłowienie oraz narastająca ingerencja człowieka w środowisko skutkują zatrważająco wysokim poziomem emisji szkodliwych gazów do atmosfery (m.in. CO₂, N₂O, CH₄). Wywołują one szereg obserwowanych zjawisk związanych z degradacją środowiska naturalnego, np. rozkład warstwy ozonowej czy opady kwaśnych deszczy. Podtlenek azotu klasyfikowany jest jako jeden z najgroźniejszych gazów cieplarnianych. Jego czas życia w atmosferze sięga 114 lat, a współczynnik globalnego ocieplenia jest aż 265 razy większy niż w przypadku CO₂. Niemal 20% całkowitej emisji N₂O powodowane jest przez przemysł chemiczny (produkt uboczny w instalacji produkującej kwas azotowy), energetyczny (produkt uboczny przy spalaniu surowców energetycznych w powietrzu) oraz infrastrukturę publiczną (głównie wentylacyjne instalacje szpitali stosujących N₂O jako anestetyk). Źródła te jako stacjonarne można kontrolować, jednak konieczne jest opracowanie bardziej efektywnych technologii usuwania tlenku azotu(I). Jednym z najbardziej preferowanych rozwiązań jest katalityczny rozkład N₂O, którego produktami są składniki powietrza (azot i tlen). Ponadto spinel kobaltowy (Co₃O₄) jest uważany w literaturze za jedną z najaktywniejszych faz deN₂O. Jednakże ze względu na wysoką cenę kobaltu zaprojektowanie katalizatora przemysłowego wyłącznie na bazie spinelu wydaje się nierentowne. Rozwiązaniem pozwalającym na obniżenie ceny katalizatora jest rozproszenie spinelowej fazy aktywnej na powierzchni nośnika.

Głównym celem badań prowadzonych w ramach pracy doktorskiej jest opracowanie strukturalnego katalizatora do rozkładu tlenku azotu(I), w kontekście jego usuwania z instalacji szpitalnianych i instalacji produkcyjnych kwasu azotowego. Opracowany katalizator powinien charakteryzować się wysoką aktywnością katalityczną, odpornością chemiczną na inhibitory obecne w gazach odlotowych instalacji (dla instalacji HNO₃: głównie NO_x, dla gazów szpitalnianych głównie H₂O i O₂) oraz stabilnością termiczną i wytrzymałością mechaniczną w warunkach procesów. Ponadto założenia przyjęte do opracowania katalizatora uwzględniają również istotne aspekty praktyczne, jak niski koszt komponentów układu, prosta i powtarzalna metoda wytwarzania katalizatora oraz możliwość jego regeneracji.

Strategia badawcza rozprawy obejmuje optymalizację poszczególnych elementów katalizatora w zakresie selekcji materiałów i ich stężeń oraz modyfikacji morfologii poprzez dobór metody i warunków preparatyki. Zaproponowano, by strukturalny katalizator, dedykowany reakcji deN₂O, zawierał cztery odpowiednio dobrane komponenty: makroskopowy nośnik w postaci monolitu, mikrometryczną warstwę fazy pośredniej (*washcoat*), nanokrystaliny spinelowej fazy aktywnej oraz jej promotory w skali atomowej (strukturalny i/lub powierzchniowy).

Dzięki badaniom przeprowadzonym w ramach projektu Preludium (2016/23/N/ST8/01512) opracowano strukturalny katalizator kordieryt| α -Al₂O₃|Co_{3-x}M_x|A. Wybrano monolityczny nośnik (kordieryt), zoptymalizowano skład i metodę nakładania fazy pośredniej (α -Al₂O₃), opracowano metodę depozycji nanokrystalicznej fazy spinelowej a także określono ilościowo i jakościowo poziom jej promocji: cynkiem (promotor strukturalny) i potasem (promotor powierzchniowy). Jednakże zastosowane promotory działają wyłącznie w wąskim zakresie stężeń. Ponadto ewentualne przegrzanie układu mogłoby doprowadzić do termicznej, bezpowrotnej desorpcji potasu i w konsekwencji do dezaktywacji katalizatora.

Podczas optymalizacji promocji fazy aktywnej odkryto spektakularny efekt promocji dwoma nowymi domieszkami. Wynik jest najwyższym z dotychczas obserwowanych, zarówno w obrębie układów deN₂O badanych w pracy doktorskiej, jak i opisywanych w literaturze. Jednakże trudno jest ustalić stan walencyjny i lokalizację nowych dodatków, a w konsekwencji naturę wywołanego efektu. Natomiast, aby racjonalnie zoptymalizować docelowy układ katalityczny, niezbędne jest ustalenie roli każdego elementu układu, także zwłaszcza promotorów nowej generacji. Tak postawiony problem wymaga poszerzenia dotychczasowego warsztatu o zaawansowane techniki badawcze. Dzięki konsultacjom naukowym ze specjalistami ze Stockholm University, zaproponowano wykonanie serii eksperymentów z wykorzystaniem wysokorozdzielczej transmisyjnej mikroskopii elektronowej (TEM), sprzężonej ze spektroskopią EELS i EDS. Obrazowanie promowanych faz aktywnych i ich analiza jakościowa w skali atomowej umożliwi określenie lokalizacji domieszek spinelu kobaltowego, ich stanu walencyjnego a w rezultacie zdefiniowanie natury efektu promocyjnego. W dalszej perspektywie, uzyskane wyniki pozwolą na opracowanie nowatorskiego, strukturalnego katalizatora deN₂O na bazie pojedynczo promowanego spinelu kobaltowego.