



Oponentský posudek k disertační práci

Jméno doktoranda: Ing. Anna Klegova

Název práce: Supported shaped catalysts based on cobalt mixed oxides for N₂O decomposition

Předložená disertační práce se zabývá problematikou nízkoteplotního rozkladu N₂O z výroby kyseliny dusičné. Za jeden směr disertační práce považuji výzkum katalyzátorů na bázi kobaltu, kde je pozornost soustředěna na přípravu různých typů Co-katalyzátorů, jejich charakterizaci a porovnání aktivity. Za druhý významný směr disertační práce považuji studium vybraných typů katalyzátorů s výhledem na průmyslovou aplikaci, kdy autorka disertační práce zaměřila svou pozornost na získání matematického modelu a přechod laboratorně získaných experimentálních výsledků do většího měřítka.

K předložené disertační práci mám následující poznámky, případně podněty k diskuzi:

1. Předložený matematický model vychází z rovnic uvedených v Tabulce 1. Jaké jsou limity získaného matematického modelu vzhledem k extrapolaci dat mimo oblast, pro kterou byl matematický model experimentálně získán.
2. Disertační práce využívá k charakterizaci katalyzátorů na bázi kobaltu celou řadu technik. Existuje další technika, která by mohla zásadním způsobem přispět k objasnění vztahu mezi vlastnostmi studovaných katalyzátorů a jejich chováním v přímém rozkladu N₂O?
3. V úvodu disertační práce autorka zmínila skutečnost, že katalyzátory na bázi kobaltu jsou hojně studované systémy pro přímý rozklad N₂O. V čem spatřuje autorka práce hlavní přínos disertační práce při srovnání s ostatními publikacemi zmíněnými v jejím úvodu.
4. Obr. 8A ukazuje konverzi N₂O při různé hodnotě průtoku reakční směsi, avšak stejném zatížení katalyzátoru. Při pohledu na graf je zřejmé, že zatímco hodnoty konverze pro krajní hodnoty průtoku reakční směsi jsou prakticky stejné, pro dvě hodnoty průtoku uvnitř studovaného intervalu průtoků reakční směsi jsou hodnoty konverze N₂O systematicky nižší, a to při všech teplotách. Jak si toto autorka práce vysvětluje. Tato skutečnost by měla být, dle mého názoru, v textu zmíněna, obzvláště pokud data získaná pro krajní hodnoty průtoků (130 a 1500 ml/min) jsou brána v rámci Obr. 7 jako stěžejní pro diskuzi vlivu vnější difuze.
5. Obr. 9 a obr. 10 ukazuje výsledky matematického modelu. Ačkoli chápu, že vstupní údaje jsou z disertační práce zřejmé, k lepší orientaci by, dle mého názoru, přispělo explicitní uvedení vstupních údajů do použitých rovnic uvedených v Tabulce 1. V tomto případě jde pouze o subjektivní poznámku oponenta, přičemž akceptuji, že na danou skutečnost je možné mít odlišný názor.
6. V disertační práci byla velmi často použita technika H₂-TPR. Za hlavní výsledek autorka práce označuje to, že jednotlivé katalyzátory obsahují částice redukovatelné při odlišné teplotě. Zajímalo by mě jaká je průměrná změna oxidačního stavu během teplotně programované redukce (H₂-TPR) materiálů na bázi Co (např. obr. 20 a obr. 26). V práci je popisována existence částic Co₃O₄ částic a změna oxidačního stavu z Co³⁺ na Co²⁺ a následně z Co²⁺ na




Co^0 . Byla v rámci teplotně programované redukce pozorována změna oxidačního stavu 3 anebo lze předpokládat, že část Co-částic se na katalyzátoru nachází ve formě Co^{2+} .

7. Na několika místech autorka vztahuje získanou konverzi N_2O k množství Co (rovnice 34), respektive k množství aktivní fáze (rovnice 38). Tato úvaha je však správná pouze za předpokladu, že veškeré částice Co (respektive veškerá aktivní fáze) jsou dostupné pro výchozí látku k uskutečnění chemické reakce. Jakým způsobem byla tato skutečnost ověřena?

8. Disertační práce se zabývá katalyzátory využívajícími jako promotor K respektive Cs. Jaký je rozdíl ve vlivu obou těchto promotorů na výslednou aktivitu studovaných katalyzátorů?

Závěrem je možné konstatovat, že předložená disertační práce je na vysoké úrovni, obsahuje velmi cenná data, která byla publikována v rámci 6 impaktovaných článků. Je potřeba vyzdvihnout, že ve čtyřech případech je doktorandka na prvním místě mezi autory dané publikace. Čtyři publikace jsou pak prezentované v prestižních časopisech z oblasti katalýzy. Velmi pozitivně hodnotím široký záběr doktorandky, a to od výzkumu aktivních částic studovaných katalyzátorů, přes velmi kvalitní matematický model umožňující převod experimentálních dat do většího měřítka, až po srovnání získaných dat s reálným procesem rozkladu N_2O při výrobě kyseliny dusičné. **Disertační práci jednoznačně doporučuji k obhajobě.**

V Pardubicích dne 7.12.2017.


prof. Ing. Libor Čapek, Ph.D.