

Streszczenie rozprawy doktorskiej pt.

Repliki węglowe typu CMK-3: synteza oraz modyfikacje powierzchniowe w kierunku wygenerowania aktywności katalitycznej w utleniającej dehydrogenacji etylobenzenu

Eksperymenty przeprowadzone na potrzeby przygotowania dysertacji doktorskiej wpisują się w nurt badań nad syntezą oraz powierzchniową modyfikacją mezoporowatych replik węglowych typu CMK-3. Aspekt użytkowy przedsięwziętych prac zogniskowany był na przygotowaniu mezoporowatego materiału węglowego zmodyfikowanego w sposób umożliwiający zastosowanie takiego układu jako wysokosprawnego i stabilnego katalizatora procesu utleniającej dehydrogenacji etylobenzenu do styrenu. Do najważniejszych etapów prac eksperymentalnych należały: (i) opracowanie nowatorskiej, uproszczonej metody syntezy repliki węglowej CMK-3 przy użyciu twardego templaty krzemionkowego SBA-15, (ii) modyfikacja zsyntetyzowanych materiałów na drodze kontrolowanego utleniania powierzchniowego i częściowej grafityzacji, (iii) charakteryzacja fizykochemiczna zsyntetyzowanych replik węglowych oraz (iv) zaawansowane badania nad aktywnością katalityczną oraz stabilnością materiału w procesie utleniającej dehydrogenacji etylobenzenu do styrenu.

W toku przeprowadzonych badań opracowano autorską ścieżkę syntezy repliki węglowej CMK-3. Metoda oparta jest na jednoetapowej depozycji poli(alkoholu furfurylowego) w kanałach porowatej matrycy krzemionkowej typu SBA-15 na drodze polikondensacji rozpuszczalnikowo-strąceniowej, prowadzonej w wodnej zawieszynie twardego templaty w obecności kwasu chlorowodorowego jako katalizatora polikondensacji. Opracowana pionierska metoda syntezy CMK-3 objęta jest obecnie ochroną patentową w Polsce, Unii Europejskiej i Stanach Zjednoczonych. Dokonano kompleksowej charakterystyki fizykochemicznej materiału na każdym etapie syntezy. Porównano wpływ zastosowania wybranych prekursorów węgla (poli(alkoholu furfurylowego) - PFA i poliakrylonitrylu - PAN) na możliwość otrzymania repliki węglowej na drodze polireakcji rozpuszczalnikowo-strąceniowej i stabilność wynikowej struktury. Przeprowadzono analizę wpływu ścieżki syntetycznej na właściwości fizykochemiczne materiałów. Omówiono dobór optymalnych parametrów syntezy tj. temperatura obróbki termicznej kompozytów, warunki usuwania matrycy krzemionkowej oraz możliwość powiększenia skali syntezy templaty SBA-15 w kontekście kształtowania właściwości finalnego materiału węglowego. Synteza szerokoporowatego SBA-15 umożliwiła dokładniejsze prześledzenie wpływu metody depozycji PFA na parametry struktury i tekstury karbonizatów oraz wynikowych replik.

Kompleksowo scharakteryzowano i omówiono powierzchniowy skład chemiczny replik węglowych zsyntetyzowanych na bazie PFA i sacharozy. Przeprowadzono eksperymenty, które umożliwiły określenie genezy ugrupowań tlenowych obecnych na powierzchni repliki węglowej CMK-3.

Otrzymany materiał CMK-3 poddano modyfikacjom w kierunku wygenerowania powierzchniowych ugrupowań tlenowych oraz częściowej grafityzacji. Scharakteryzowano wpływ modyfikacji na stabilność struktury wyjściowego materiału oraz jego skład powierzchniowy. Zasadniczym etapem przeprowadzonych prac były testy katalityczne w procesie utleniającej dehydrogenacji etylobenzenu do styrenu wobec wyjściowych i modyfikowanych replik jako katalizatorów. Zoptymalizowano warunki pomiarów ODH (temperatura procesu i stosunek molowy etylobenzen/czynnik utleniający (O_2)). Wyniki aktywności katalitycznej przedyskutowano w odniesieniu do zmian właściwości fizykochemicznych i składu powierzchniowego replik węglowych spowodowanych przeprowadzonymi modyfikacjami.