

Zhodnocení vlivu přípravy V-alumina a V-SBA-15 katalyzátorů na distribuci VOx částic a jejich aktivitu a selektivitu v oxidativní dehydrogenaci etanu

V předkládané diplomové práci se diplomant zabýval charakterizací celkového obsahu oxo-částic vanadu, studiem dispergace VOx částic na dvou různých nosičích (alumina a SBA-15) a jejich vlivu na reakci C2-ODH. Za nejzajímavější prvek v práci považuji snahu o zavedení nového postupu přípravy katalyzátorů a to metodou molekulární disperze a porovnání takto připravených katalyzátorů s jejich ekvivalenty připravenými klasickou impregnační metodou.

Práce je rozčleněna do osmi kapitol vč. přílohové části. V teoretické části je nejprve shrnuta dobře zpracovaná literární rešerše na dané téma. Další kapitola se týká motivace pro dané téma vycházející z předchozího výzkumu na pracovišti diplomanta a metod přípravy a charakterizace nanosených VOx-katalyzátorů.

V kapitole „Výsledky a diskuze“ jsou na 32 stranách (rozděleno do šesti logicky řazených podkapitol) podrobně popsány získané výsledky. Hlavním závěry práce jsou i) minimální rozdíl mezi katalyzátory připravenými metodou molekulární disperze a impregnační a ii) prokázání vyšší katalytické aktivity dispergovaných VOx částic v porovnání s polymerními VOx a krystalickými V₂O₅ částicemi.

Práce je přehledně a jasně napsána, s minimem překlepů. Diplomant navíc prokázal zvládnutí potřebných experimentálních technik (jmenovitě XRF, UV-Vis, H₂-TPR a aparaturu pro testování katalytické aktivity) a získal tím velké množství experimentálních dat, která dokázal na základě svých znalostí kvalitně a srozumitelně interpretovat.

K diplomové práci mám následující dotazy a komentáře:

1. Proč byla vybrána právě kombinace metody přípravy MMD a testování katalytické aktivity v C2-ODH při teplotě až 600°C? Při takto vysokých reakčních teplotách je minimálně na SiO₂ nosičích prokázána mobilita VOx částic a jejich postupná aglomerace v průběhu reakčních podmínek. Byla testována distribuce VOx částic před samotnou kalcinací na 600°C jako posledním krokem přípravy a po vlastní C2-ODH reakci?

2. Doporučuji příště více konzultovat servisně získané výsledky se zodpovědnou osobou za měření. Příkladem uvádím výsledky z XRF, kde diplomant v předkládané práci uvádí

i) chybné označení „energeticky“ místo „energieově“ disperzního systému XRF;

ii) pokud diplomant uvádí kalibraci (str. 35), je nutné uvést, co znamenají jednotlivé hodnoty. Např. symbol c použitý v kalibraci je pravděpodobně hmotnostní % vztažená na vanad (pouze odhadnuto z kontextu), ale ve zkratkách ji má uvedenou jako koncentraci v $\text{mol}\cdot\text{dm}^{-3}$, což je značně matoucí;

iii) obecnou hodnotu penetrační hloubky použitých fotonů jako 4000 nm (str. 17), ale tato hloubka je velmi citlivá na experimentální podmínky jako nastavení přístroje, chemické složení zkoumaného materiálu a jeho porozita. Takže ji nelze takto globalizovat;

3. Pro možnost porovnání aktivity jednotlivých VOx entit by pro další zpracování převyšující rámec diplomové práce bylo zajímavé více pracovat se získanými daty, např.

i) vypočítat reakční obrat TOF vztažený na jeden průměrný atom vanadu či průměrnou změnu oxidačního stavu vanadu v průběhu H_2 -TPR, zda opravdu jde o redukci mezi oxidačními stavy $\text{V}^{5+} \rightarrow \text{V}^{3+}$ či jak je publikováno v literatuře dochází ke zlomkovým změnám oxidačního stupně;

ii) zvolit podmínky reakce tak, aby se aktivita katalyzátoru posuzovala za reakčních podmínek, kdy nedochází k nedostatku reaktantu (vysoké konverze $X_{\text{O}_2}=88\%$ bylo dosaženo již při nejnižší reakční teplotě 450°C pro katalyzátor V-alumina-MDD-7 Tab. 7). Celkové výsledky jsou pak částečně zkreslené nedostatkem reakční komponenty.

4. Diplomant použil ve své diplomové práci velké množství experimentálních metod. Mohl by okomentovat, která měření sám prováděl a vyhodnocoval?

Předkládaná diplomová práce obsahuje řadu původních výsledků, u nichž lze očekávat, že budou v budoucnosti publikovány na mezinárodní úrovni. Velmi cenné, byť pro tuto aplikaci s minimálním vlivem, je vyzkoušení metody MMD pro přípravu katalyzátorů. Tato komplikovaná, a pro pracoviště netradiční metoda, by mohla pro reakce probíhající za nižších teplot být přínosná díky preferenčnímu vzniku dobře izolovaných monomerních VOx jednotek.

Z těchto důvodů **doporučuji** předloženou práci k obhajobě a hodnotím ji známkou

výborně.

V Pardubicích 24. 5. 2015

Ing. Petr Knotek, PhD,

KOAnCh, Univerzita Pardubice

