**МОСКОВСКАЯ ГОСУДАРСТВЕННАЯ АКА/ЦМИЯ ТОНКОЙ
ХИМИЧЕСКОЙ ТЕХНОЛОГИИ им. М.В. ЛОМОНОСОВА**

**На правах рукописи**

**Котарева Ирина Алексеевна**

**Нанесенные металлокомплексные катализаторы
низкотемпературного окисления оксида углерода (II)**

**в воздухе
специальность 02.00.04. Физическая химия
Диссертация**

**на соискание ученой степени кандидата химических наук**

**Научный руководитель доктор химических наук, профессор Брук Лев Григорьевич**

**Москва 2007**

**Введение 6**

[**Литературный обзор 7**](#bookmark4)

***Глава 1.* Классификация и характеристики катализаторов окисления монооксида углерода 7**

1. [**Оксидные катализаторы 7**](#bookmark5)
2. [**Нанесенные металлические катализаторы 12**](#bookmark6)
3. [**Оксидно-металлические катализаторы 20**](#bookmark7)
4. [**Растворенные металлокомплексные катализаторы 23**](#bookmark8)
5. [**Нанесенные металлокомплексные катализаторы 26**](#bookmark10)

[***Гпава 2.* Механизмы окисления монооксида углерода 30**](#bookmark16)

1. [**Гомогенное окисление 30**](#bookmark17)
2. [**Гетерогенное окисление 36**](#bookmark18)

[**Постановка задач 42**](#bookmark19)

***Глава 3.* Экспериментальная часть 43**

1. **Схема и описание установки 43**
2. **Методика проведения испытаний активности катализаторов окисления**

[**монооксида углерода 44**](#bookmark9)

1. [**Методика проведения кинетических исследований 45**](#bookmark22)
2. [**Методика получения монооксида углерода 46**](#bookmark23)
3. [**Методика получения диоксида серы 46**](#bookmark24)
4. [**Методика получения сероводорода 47**](#bookmark25)
5. [**Методика хроматографического анализа 47**](#bookmark26)
6. [**Методика обработки результатов эксперимента 48**](#bookmark27)
7. [**Статистическая обработка 50**](#bookmark29)

***Гпава 4.* Результаты и их обсуждение 52**

1. **Результаты предварительных экспериментов по выбору**

**качественного состава катализатора 52**

1. **Выбор основных компонентов катализатора - благородного металла и**

**сокатализаторов 52**

1. [**Выбор носителя 58**](#bookmark34)
2. [**Влияние объемной скорости подачи ГВС 72**](#bookmark37)
3. [**Оптимизация состава катализатора 73**](#bookmark38)
4. [**Влияние содержания бромида лития на активность катализатора 73**](#bookmark39)
5. **Оптимизация содержания меди в каталитической композиции**

**PdCl2-CuCI2/AI203 75**

1. **Выбор содержания палладия в каталитической композиции**

**PdCI2-CuCI2/AI203 81**

1. **Исследование влияния добавок ванадия и фосфора на активность**

**катализатора окисления СО 84**

1. **Влияние температуры на работу каталитической**

**композиции PdCI2-CuCI2/AI203 86**

1. **Влияние природы аниона 87**
2. **Влияние возможных примесей в воздухе, очищаемом от СО, на активность**

**катализаторов 89**

1. **Влияние присутствия углеводородов на свойства**

[**катализаторов окисления монооксида углерода 89**](#bookmark21)

1. **Влияние S02 на активность катализаторов окисления**

**монооксида углерода 90**

1. **Влияние добавок сероводорода на работу катализаторов окисления**

**монооксида углерода 95**

**з**

1. **Влияние серосодержащих соединений на работу катализаторов**

**при низкой концентрации монооксида углерода 98**

* 1. **Проведение испытаний на длительность работы**

**каталитической композиции 100**

* 1. **Проверка возможности использования электронной микроскопии и метода**

**ЭПР для изучения катализатора 104**

* 1. **Изучение кинетики и механизма окисления оксида углерода(И)**
		1. [**Выдвижение гипотез о механизме окисления СО 109**](#bookmark47)
		2. **Дискриминация гипотез 112**

[**Выводы 126**](#bookmark54)

**Список литературы 127**

**Приложения 142**

выводы

* Показано, что лучшим носителем для системы PdCh-CuCb является Y-AI2O3 (структура дефектной шпинели), обеспечивающий получение методом холодной пропитки активного и стабильного катализатора окисления оксида углерода(Н) в воздухе. Получаемый катализатор стабилен в течение не менее 200 часов при содержании СО в воздухе 100-120 мг/м3, нагрузке 12000ч'1, относительной влажности ~50% и устойчив к появлению в воздухе примесей углеводородов (до 0,1%), H2S до 10 мг/м3, SO2 до 10 мг/м3, обеспечивая очистку воздуха до содержания СО ниже уровня ПДК для рабочей зоны (20 мг/м3).
* Разработана адекватная кинетическая модель процесса, позволяющая описать влияние парциальных давлений оксида углерсда(П), кислорода и воды на скорость окисления СО в мягких условиях.

Установлено, что кинетические закономерности процесса могут быть согласованы с механизмами двух типов с различной ролью воды и кислорода. В случае первой группы кислород является окислителем восстановленных форм катализатора, во второй группе кислород и вода совместно участвуют в стадиях образования диоксида углерода.