

СТАНОВИЩЕ

от доц. д-р Силвия Тодорова, Институт по катализ - БАН

за дисертационния труд на Ангелина Веселинова Михайлова
на тема: **“Двустепенно обезвреждане на азотни оксиди посредством акумулиращо-редукционен катализ и адсорбция на остатъчния NO”**,
с ръководители: проф. д-р Пламен Стефанов, проф. д-р Антон Найденов
и консултант доц. д-р Михаил Михайлов

Представеният дисертационен труд съдържа 102 страници, включени са 46 фигури и 9 таблици. Библиографията обхваща 205 литературни източника. По обем, структура и оформяне, дисертационната работа, съответства напълно на за образователна и научна степен “доктор”.

Дисертационният труд на Ангелина Михайлова е насочен към един от най-актуалните и сериозни екологични проблеми, а именно намаляване на вредните емисии от азотни оксиди. Един от основните източници на NOx, това е транспорта. Според сега действащите директиви на Европейския съюз емисиите на NOx от различните транспортни средства трябва да бъдат ограничени под 0.06 g/km за бензиновите леки автомобили и под 0.18 g/km за дизеловите коли (Euro 5).

Целта на дисертацията е формулирана ясно и точно, а именно: разработване на нови материали за двустепенно пълно очистване на NOx, включващо обезвреждане на основното количество NOx посредством акумулиращо-редукционен катализ и последващо фино очистване чрез адсорбция на остатъчния NO. За постигане на тази цел, докторантката се е насочила към фундаментално изучаване на природата и механизма на процесите протичащи на повърхността на тези материали.

В литературния обзор е направен подробен преглед на каталитичните методи за обезвреждане на NOx, посочени са предимствата и недостатъците на различните видове катализатори. Особено внимание е обърнато на т. нар. акумулиращи катализатори за редуция на азотни оксиди, като едни от най-перспективните типове катализатори за обезвреждане на NOx в излишък на кислород. Проследени са факторите, водещи до дезактивиране на катализаторите, като температура, наличие на водни пари, CO₂ и SO₂ в газовата смес. Основният извод, който следва от литературния обзор е, че независимо от множеството проведени изследвания, към момента все още не са намерени достатъчно ефективни начини за подобряване на стабилността на акумулиращо-редукционните катализатори спрямо съдържащите се в горивата серни съединения. Имайки предвид, че катализатори от типа Ag/Al₂O₃ проявяват висока активност в селективната каталитична редуция на NOx, като същевременно притежава и висока толерантност по отношение на SO₂, в дисертацията се предлага много оригиналната и иновативна идея за използване на среброто, като алтернатива на Pt с цел разработване на нови и евтини акумулиращи катализатори. Поради това, че нито една от разработените до сега технологии не осигурява пълно очистване от азотни оксиди (винаги съществуват остатъчни концентрации от порядъка на ppm), а екологичните изисквания се повишават все повече, в дисертацията е предложен и втори етап за последващо фино очистване на азотните оксиди посредством адсорбция. Направеният преглед на съществуващата литература показва, че потенциално най-добри кандидати са Со-съдържащи зеолити. Основните предимства на тези материали са: стабилно валентно състояние на преходния метален катион (Co²⁺), възможност за образуване на термично стабилни динитрозилни комплекси, резистентност на тези нитрозили по отношение на кислород и водни пари, ниска цена на адсорбента и лесен синтез. Може да се обобщи, че в дисертационният труд на Ангелина

Михайлова се предлага един цялостен технологичен процес за пълно почистване на NO_x, като се използват нови акумулиращо-редукционните катализатори и адсорбенти.

За синтез на катализаторите и адсорбентите, докторантката се е насочила към използване на традиционни, но осигуряващи добра възпроизводимост методи, като импрегниране с воден разтвор на съответните соли или йонообмен. Получените нови материали са охарактеризирани със съвременни и модерни физикохимични методи, преди и след каталитичен тест, като по този начин е получена информация за настъпилите промени в обемните и повърхностните свойства на катализаторите и адсорбентите, в резултат на реакционните условия. Каталитичните изпитания са проведени в условия максимално близки до реалното поведение на двигатели, работещи с бедни горивни смеси. Проследен е ефекта на серния диоксид върху активността. Подбраните методи на синтез, охарактеризиране и каталитични изпитания позволяват постигането на поставените цели и получаването на оригинални научни резултати.

Основните приноси на дисертацията са:

- Получен е устойчив по отношение на отравяне със SO₂ и евтин Ag/Ba/Al₂O₃ катализатор, което го прави привлекателен за практическо приложение. Високата сяроустойчивост на катализатора се обяснява с образуването на малки количества BaSO₄, като резултат от ниската активност на среброто в окислението на SO₂. С помощта на ИЧ спектроскопия на молекули сонди-NO_x, е получена информация относно процесите на акумулиране и редукция на NO_x върху Ag/Ba/Al₂O₃. В случая молекулата на азотния оксид е както реагент, така и молекула-проба и това прави ИЧС уникален метод, даващ едновременно информация за състоянието на повърхността на катализатора и механизма на реакцията при реални условия на работа.
- Предложен е перспективен адсорбент на основата на кобалт модифициран SiBEA за фино почистване на азотни оксиди. Адсорбционният капацитет на CoSiBEA е висок, поради формирането на Co²⁺ центрове, които адсорбират по две молекули NO.

Общия брой публикации на докторанта е 6. Дисертацията съдържа резултати от 3 научни публикации, две от които с импакт фактор над 3, което е важен показател за стойността на получените резултати. По темата на дисертационния труд е докладвано на 8 научни форума. В публикациите Ангелина Михайлова е първи автор, което явно показва, че нейният принос в разработването на научните изследвания е значителен. Забелязани са 17 цитата върху публикациите, включени в дисертацията. По-голяма част от цитиранията са от чужди автори в престижни международни списания и поредици. Тези наукометрични показатели многократно надхвърлят изискванията, необходими за придобиване на образователна и научната степен „доктор“.

В хода на работата по дисертацията Ангелина Михайлова е усвоила практически основните съвременни техники и методи за синтез и анализ на катализатори и адсорбенти. Смятам, че е постигната висока образователна степен на докторантурата, тъй като докторантката е почерпила опит и знания в лаборатории с високо научно ниво.

Въз основа на изложеното до тук препоръчвам на членовете на научното жури да гласуват за присъждането на образователната и научна степен “доктор” на Ангелина Веселинова Михайлова по професионално направление 4.2 „Химически науки“, научна специалност „Химична кинетика и катализ“.