

УДК 541.183:541.241.5

Голуб Н.П., к.х.н., доц.; Голуб Є.О., викл.; Мадяр Н.М., студ.; Гомонай В.І., д.х.н., проф.; Секереш К.Ю., к.х.н., доц.; Баренблат І.О., к.х.н., доц.

## СИНТЕЗ ТА ДОСЛІДЖЕННЯ ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ СКЛАДНОЇ КАТАЛІТИЧНОЇ СИСТЕМИ ТИПУ $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$

ДВНЗ «Ужгородський національний університет», 88000, м. Ужгород,  
вул. Підгірна; 46, e-mail: golubn@bk.ru

На сьогодні н-алкани є найбільшим джерелом сировини для хімічної промисловості і такими залишаються, без сумніву, в майбутньому. В першу чергу це стосується найпростіших вуглеводнів – компонентів природного газу як більш доступного джерела енергоресурсів, який успішно перетворюється з альтернативної на основну вуглеводневу сировину в різних галузях промисловості.

Тому хімія нижчих алканів є одним із найперспективніших напрямків, які зараз інтенсивно розвиваються [1]. В першу чергу, це обумовлено необхідністю в більшій мірі використовувати природний і попутний газ в якості сировини для хімічної промисловості через неминуче скорочення об'ємів видобутку нафти. Другий фактор обумовлений складністю активації високостабільних легких вуглеводнів – метану та етану. Ці завдання вирішуються шляхом оптимізації умов парціального окиснення і підбору каталізаторів з високою активністю, селективністю та стабільністю.

Водночас проблема розробки теорії наукових основ передбачення каталітичної дії контактів теж залишається невирішеною. Тому доцільним є подальший пошук нових підходів для цілеспрямованого регулювання структурних, фізико-хімічних параметрів та створення відповідних умов для формування оптимальних поверхневих комплексів для одержання нових активних, високоселективних і дешевих каталізаторів парціального окиснення н-алканів.

Проте каталітичні параметри гетерогенних каталізаторів та механізм процесу парціального окиснення вуглеводнів залежать від впливу різних факторів та умов

проведення реакції. Важливу і необхідну роль серед них відіграють природа та сила активних центрів поверхні самого каталізатора [2-5].

У змішаних оксидах, до складу яких входить декілька катіонів з різними зарядами, кислотні властивості посилюються, порівняно з окремо взятими простими оксидами [6]. При цьому величина кислотності визначається донорно-акцепторними властивостями катіонів, що входять до складу складного оксиду: чим вища електронно-акцепторна сила катіона, тим більше виражені кислотні властивості поверхні [2, 7].

Тому створення нових каталізаторів із заданими фізико-хімічними і каталітичними властивостями є особливо важливим для ефективного вирішення проблеми наукових основ технології каталізаторів [8] парціального окиснення н-алканів та розробки теорії наукових основ передбачення каталітичної дії контактів.

До гетерогенних каталізаторів, які успішно зарекомендували себе в якості активних каталізаторів селективного окиснення вуглеводнів в цінні продукти (олефіни, спирти, альдегіди, карбонові кислоти тощо) належать фосфати d-металів. Встановлено, що особливостями групи каталізаторів типу  $m\text{Me}_x\text{O}_y \cdot n\text{P}_2\text{O}_5$  є сталість їх хімічного складу, широкий спектр зміни кислотних властивостей поверхні, мала рухливість кисню кристалічної ґратки [2-5].

Тому метою даної роботи було синтезувати нові складні оксидні каталітичні системи типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$ , які володіють кислотними властивостями поверхні та дослідити їх фізико-хімічні

параметри для розробки нового високо-продуктивного каталізатора з оптимальними структурними, фізико-хімічними та каталітичними властивостями процесу парціального окиснення *n*-алканів.

### Методика експерименту

Складні оксидні фосфатні каталітичні системи на основі фосфату алюмінію, шляхом модифікації його йонами  $\text{Co}^{2+}$  типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  синтезували згідно розробленої методики [3, 5] методом співосадження з відповідних нітратних солей. рН осаження становило 5. Вміст названих фосфатів варіювали в процентному співвідношенні від 0,5 мас.% до 99,5 мас.%. Після відмивання, висушування на повітрі та термообробки при відповідних температурах (від 383 К до 873 К) зразки піддавали хімічному та фізико-хімічному аналізу до і після термообробки з метою вивчення їх стійкості та впливу процесу термообробки на процес формування структури твердих фаз.

Фізико-хімічні параметри каталізаторів вивчали за допомогою рентгенофазового, диференційно-термічного, ІЧ-спектроскопічного та хімічного методів аналізу [9-20].

Вимірювання величини питомої поверхні і кислотності зразків здійснювали при відповідних температурах прожарювання.

З метою диференціації поверхневих кислотних центрів паралельно знімали ІЧ-спектри бінарних модифікованих алюмофосфатів методом адсорбції аміаку. Величину питомої поверхні зразків визначали низькотемпературною адсорбцією азоту методом БЕТ. Сумарну кислотність поверхні (бренстедівську та льюїсівську) каталізаторів визначали методом Джонсона [20] в присутності індикаторів Гаммета. Точність визначення становила  $\pm 0,001$  ммоль/г. Питому концентрацію кислотних центрів (ммоль/м<sup>2</sup>) визначали із врахуванням величини поверхні відповідних зразків.

### Одержані результати та їх обговорення

Одержані експериментальні дані свідчать, що всі 7 синтезованих фосфатних каталізаторів є твердими фазами. Позначення та склад одержаної серії складних каталітичних систем типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  приведені в табл. 1.

**Таблиця 1.** Назва та склад одержаних складних алюміній-кобальт-фосфатних каталітичних систем типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$

№ п/п	Зразок	Склад каталізатору, мас. %
1	К - 1	99,5% $\text{AlPO}_4 \cdot 0,5\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
2	К - 2	99,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 1,0\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
3	К - 3	60,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 40,0\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
4	К - 4	50,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 50,0\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
5	К - 5	40,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 60,0\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
6	К - 6	1,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 99,0\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$
7	К - 7	0,5% $\text{AlPO}_4 \cdot 99,5\%$ $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$

Встановлено, що умови синтезу складних каталітичних систем типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  суттєво впливають як на їх фізико-хімічні, так і каталітичні властивості. Вміст названих фосфатів та температура їх

термообробки обумовлюють навіть відповідне власне забарвлення кожного зразка. Одержані результати приведені в табл. 2.

**Таблиця 2.** Вплив складу та температури термічної обробки на забарвлення твердої фази каталізаторів складної оксидної системи типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$ 

№ п/п	Шифр кат	Склад каталізатора	Забарвлення твердої фази каталізатора		
			Повітряно-сухий зразок	Після термообробки	
				при 383 К	при 873 К
1	К-1	99,5% $\text{AlPO}_4 \cdot 0,5\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Фіолетово-білий	Біло-бузковий	Світло-синій
2	К-2	99,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 1,0\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Біло-рожевий	Біло-рожевий	Бузковий
3	К-3	60,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 40,0\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Фіолетово-білий	Світло-фіолетовий	Темно-фіолетовий
4	К-4	50,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 50,0\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Фіолетово-рожевий	Фіолетово-рожевий	Темно-фіолетовий
5	К-5	40,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 60,0\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Темно-фіолетовий	Ніжно-бузковий	Фіолетово-синій
6	К-6	1,0% $\text{AlPO}_4 \cdot 99,0\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Темно-рожевий	Брудно-рожевий	Фіолетовий
7	К-7	0,5% $\text{AlPO}_4 \cdot 99,5\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$	Темно-рожевий	Брудно-рожевий	Фіолетовий

Результати рентгенофазового аналізу синтезованих каталізаторів методом порошкової дифрактографії засвідчили, що всі як повітряно-сухі, так і прожарені при кінцевій температурі термообробки (873 К) синтезовані каталізатори є рентгеноаморфними.

Аналіз експериментальних даних дифракційно-термічного аналізу підтвердив, що всі синтезовані алюмофосфати, промотовані йонами кобальту, мають криві ДТГ і ДТА, які відрізняються, порівняно з чистими фосфатами кобальту та алюмінію. Водночас для синтезованої серії складних каталітичних систем  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  встановлені різні форми води, які входять до їх складу: адсорбована, кристалізаційна тощо. Виділення ж їх зі структури зразків супроводжується різними наслідками.

Результати ІЧ-спектроскопічного методу аналізу синтезованих зразків до та після термообробки при 873 К підтверджують, що для всіх алюміній-кобальт-фосфатних зразків в процесі термообробки відбувається процес поступового зневоднення утворених кристалогідратів та зменшення області й інтенсивності смуг поглинання, характерних для валентного коливання води. Аналіз ІЧ-спектрів синтезованих повітряно-сухих та прожарених при

кінцевій температурі термообробки (873 К) складних каталізаторів дає можливість виявити ряд особливостей.

Зокрема, ІЧ-спектри всіх синтезованих повітряно-сухих алюміній-кобальт-фосфатних каталізаторів характеризуються інтенсивним поглинанням в області валентних ( $3460\text{--}3020 \text{ см}^{-1}$ ) та деформаційних ( $2360\text{--}1400 \text{ см}^{-1}$ ) коливань ОН-груп молекул води. Валентні та деформаційні коливання фосфат-іону найбільш проявляються в продуктах дегідратації у вигляді чітких смуг в області  $1110\text{--}350 \text{ см}^{-1}$ .

Характерними проявами водневого зв'язку в коливальному спектрі води є низькочастотний зсув, зростання інтенсивності та розширення смуги валентних коливань О–Н-груп. Ці зміни в спектрі води служать своєрідним критерієм участі її молекул в утворенні водневого зв'язку. Наявність п'яти смуг поглинання ( $3450, 3200, 3050, 2580$  та  $2105 \text{ см}^{-1}$ ) свідчить про те, що молекули води, які входять до складу вихідної твердої фази, енергетично нерівноцінні [15, 16]. Можна припустити існування в структурі даних зразків трьох видів молекул кристалогідратної води, які характеризуються різними енергіями водневого зв'язку [17, 18].

**Таблиця 3.** Віднесення, частоти та інтенсивність смуг поглинання ІЧ-спектрів каталізатора К-5 (40%  $\text{AlPO}_4 \cdot 60\% \text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$ )

Віднесення смуг поглинання	Частоти ( $\text{cm}^{-1}$ ) та інтенсивність смуг поглинання	Віднесення смуг поглинання	Частоти ( $\text{cm}^{-1}$ ) та інтенсивність смуг поглинання
	Вихідний продукт		Продукт термообробки при 873 К
$\nu(\text{O-H}(\text{H}_2\text{O}))$ $\nu(\text{OH})$	3450 сер. 3200 сер. ш. 3050 сер. ш. 2580 сл. 2105 сл.	$\nu(\text{O-H}(\text{H}_2\text{O}))$ $\nu(\text{OH})$ $\delta(\text{POH})$ $\nu_{\text{as}}(\text{PO}_3)$	3400 сл. ш. 2180 сл. 1620 сл. ш. 1050 с. ш.
$\delta(\text{POH})$	1620 сл. ш. 1408 сл. ш. 1380 сл.	$\gamma(\text{POH})$ $\delta_{\text{as}}(\text{PO}_4)(\nu_4)$ $\delta_{\text{s}}(\text{PO}_4)(\nu_2)$	840 сер. ш. 510 с. 485 сл. ш. 460 с. ш.
$\nu_{\text{as}}(\text{PO}_3)$ $\nu_{\text{s}}(\text{PO}_4)(\nu_1)$ $\gamma(\text{POH})$ $\delta_{\text{as}}(\text{PO}_4)(\nu_4)$	1050 с. ш. 940 сл. ш. 850 с. ш. 567 сл. 550 сл. 540 сл. 518 сл. 508 сер.	$\delta(\text{O}_3\text{PO}')$  $\delta(\text{O}_2\text{PO}'_2)$  $\delta_{\text{s}}(\text{PO}_4)(\nu_2)$	432 с. ш. 405 сл. ш. 350 сл. ш. 320 сл. 300 сл. ш. 270 сл. ш. 248 сл. ш. 212 сл. ш.
$\delta_{\text{s}}(\text{PO}_4)(\nu_2)$	490 сер. 485 с. 478 сер. 470 сер. 462 сер. 460 сер. 456 сер. 450 сер. 443 сер. 435 сер. 430 сер. 425 сер.		195 сл. 172 сл. ш. 110 с. ш.
$\delta(\text{O}_3\text{PO}')$	415 сер. 400 с. 395 с. 378 сл. 360 сер.		
$\delta(\text{O}_2\text{PO}'_2)$	350 сл. 340 сер. 332 сер. 325 сер. 315 с. 304 с.		

При цьому водневий зв'язок дуже впливає на стан води в кристалогідратах, оскільки в утворених гідратах молекули води приймають участь в утворенні водне-

вого зв'язку або з аніоном солі, або з молекулами води. Участь в утворенні водневого зв'язку з аніоном призводить до зменшення силової сталої О-Н-зв'язку,

поляризує дію на воду мають також і катіони.

В процесі термообробки (табл. 3) відбувається поступове зменшення інтенсивності смуг поглинання в області валентних та деформаційних коливань молекул води, навіть до їх зникнення в продуктах термообробки. Прожарювання каталізаторів вище  $T=873\text{ K}$  веде до повної дегідратації та виникненню спектра, типового для безводних фосфатів.

Складний характер спектру і наявність кількох максимумів поглинання, що відносяться до валентних вироджених коливань ортофосфату, зумовлений, очевидно, перекичуванням структури тетраедру за рахунок сильних водневих зв'язків. Ускладнення спектру фосфат-іону, пов'язане із викривленням тетраедру в реальних кристалах та зниженням його симетрії, можливе внаслідок однієї із слідуєчих причин: низькою симетрією оточення; збуренням фосфат-іону молекулами води внаслідок утворення міжмолекулярних водневих зв'язків; координацією фосфат-іону із катіонами  $\text{Al}^{3+}$  та  $\text{Co}^{2+}$ . Енергія водневого зв'язку, що утворюється між молекулою води та аніоном солі, збільшується з посиленням протонно-акцепторної здатності аніону і для іону  $\text{PO}_4^{3-}$  складає  $\sim 37,6\text{ кДж/моль}$ .

Фосфат-іон  $\text{PO}_4^{3-}$  (симетрія  $T_d$ ) має чотири фундаментальні коливання: симетричні – валентне  $\nu_1(A_1) = \nu_s$  та деформаційне, двічі вироджене,  $\nu_2(E) = \delta_s$ ; антисиметричні – валентне, тричі вироджене,  $\nu_3(F_2) = \nu_{as}$  та деформаційне, тричі вироджене,  $\nu_4(F_2) = \delta_{as}$  [15].

Таким чином, тетраедричний ортофосфат-аніон  $\text{PO}_4^{3-}$  володіє значною протонно-акцепторною здатністю, і в гідратованих фосфатах можливе утворення досить міцних водневих зв'язків, особливо при наявності в структурі гідрату координованих молекул води, оскільки взаємодія катіону і аніону може взаємно підсилювати один одного.

Значна величина розщеплення частот вироджених типів коливань і велика інтенсивність заборонених по симетрії смуг оксоаніону можуть служити вказівкою на утворення координаційних зв'язків, так як

відхилення від ідеальної геометрії ліганду в полі центрального атому при координації повинно бути більшим, ніж у випадку ненаправленого кристалічного поля чи воднево-місткового зв'язування.

Не виключено й те, що значне розширення смуг поглинання  $\nu_3$  та  $\nu_4$   $\text{PO}_4^{3-}$ -іону можна пояснити як наслідок прояву водневих зв'язків між адсорбованими молекулами води та атаками Оксигену  $\text{PO}_4^{3-}$ -іону.

На основі одержаних даних можна зробити припущення, що при введенні в фосфат алюмінію йонів кобальту утворюються поверхневі структури, які мають відмінну будову від інших систем. Це підтверджується і результатами ДТА і ДТГ-спектрів. Утворення таких поверхневих структур в складних оксидах сприяє збільшенню кислотності поверхні і зміні каталітичної активності.

Таким чином, проведені ІЧ-спектроскопічні дослідження синтезованих складних фосфатних систем показали, що у спектрах всіх синтезованих каталізаторів виявлені смуги, виникнення яких пов'язане з водою, яка проявляється у вигляді  $\nu(\text{OH}\dots\text{O})$  і  $\delta(\text{НОН})$  груп. Можна припустити, що саме наявність цих груп зумовлюватиме більш високу каталітичну активність синтезованих складних каталітичних систем типу  $\text{xAlPO}_4 \cdot \text{yCo}_3(\text{PO}_4)_2$ , порівняно з індивідуальними кристалічними структурами фосфатів та одержаними при  $T=1173\text{ K}$ .

Водночас встановлено, що всі складні бінарні алюміній-кобальт-фосфатні каталізатори, одержані в м'яких умовах і прожарені лише до  $T=873\text{ K}$  мають більшу кислотність поверхні завдяки вказаній взаємодії води з активними центрами і утворенням бренстедівських кислотних центрів.

Узагальнюючі результати впливу модифікування алюміній-фосфатного зразка іонами кобальту на кислотні властивості поверхні свідчать, що внаслідок зростання вмісту  $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  в структурі  $\text{AlPO}_4$  спостерігається підвищення кислотності поверхні.

Для зразків К-4 – К-7, внаслідок модифікування, одержана оптимальна кислотність, характер формування якої є практично ідентичним. При цьому на всіх складних зразках величина загальної

кислотності є вищою, порівняно з чистими фосфатами  $\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  і  $\text{AlPO}_4$ .

Аналіз експериментальних даних підтверджує наявність синергетичного ефекту обох вказаних фосфатів щодо величини кислотності в структурі синтезованих складних каталітичних систем.

Таким чином встановлена залежність кислотності поверхні складних фосфатних каталізаторів від температури прожарювання, а значить і від вмісту в них хімічно зв'язаної води, дає підстави вважати, що в процесі дегідратації в іонів металів, які утворюють фосфати, з'являються вільні орбіталі. Ці вакантні орбіталі та зв'язана з ними спорідненість до електронної пари і є причиною поверхневої кислотності одержаних фосфатних каталітичних систем.

Отже, наявність всіх необхідних параметрів: великої термічної та хімічної стійкості, розвинутої питомої поверхні, кислотності, активних центрів на поверхні [2-6, 21-24] дає змогу використати одержані нові складні модифіковані алюміній-кобальт-фосфатні каталітичні системи типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  в каталітичних процесах в якості ефективних каталізаторів парціального окиснення вуглеводнів в цінні продукти.

### Висновки

Одержані експериментальні дані свідчать, що:

1. Синтезовано 7 нових складних оксидних каталітичних систем (К-1 – К-7) на основі фосфату алюмінію шляхом модифікації його йонами кобальту типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  з різним вмістом фосфатів, які володіють кислотними властивостями поверхні.
2. Досліджено склад, структуру та фізико-хімічні параметри зразків.
3. Встановлено, що особливостями групи каталізаторів типу  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$ , є сталість їх хімічного складу, широкий спектр зміни кислотних властивостей поверхні, синергетичний ефект модифікації, розвинута питома поверхня, мала рухливість кисню кристалічної ґратки.
4. Встановлений взаємозв'язок між способом приготування, складом одержаних оксидних каталізаторів та їх фізико-хімічними параметрами.

### Список використаних джерел

1. Ковтун Г.О. Альтернативні моторні палива *Вісн. НАН України*. 2005, 2, 19-26.
2. Гомонай В.И. Физико-химические основы подбора гетерогенных катализаторов парциального окисления n-алканов: *Автореф. дис. ... док. хим. наук: 02.00.04, ИФХ АН УССР, Київ*, 1990.
3. Голуб Н.П. Закономірності каталітичного окиснення етану на кислотних каталізаторах: *Автореф. дис. ... канд. хім. наук: 02.00.04, КНУ ім. Тараса Шевченка, Київ*, 1996.
4. Секереш К.Ю. Вивчення фізико-хімічних властивостей і каталітичної активності фосфатних каталізаторів в реакції окиснення метану: *Автореф. дис. ... канд. хім. наук: 02.00.04, ИФХ АН УРСР, Київ*, 1978.
5. Golub N., Gomonay V., Gomonay P., Szekeresh K. Synthesis and Modification of Catalysts of the Partial Oxidation of n-Alkanes. *Adsorption Science & Technology*. 1999, 17(5), 403-406.
6. Голодец Г.И. Роль кислотных свойств поверхности в реакциях гетерогенного каталитического окисления. *Катализ и катализаторы*. 1980, 18, 66-75.
7. Жермен Дж. Каталитическое превращение углеводородов. М.: *Мир*, 1972. С. 50.
8. Буянов Р.А. Научные основы приготовления и технологии катализаторов. *Катализ и катализаторы*. Новосибирск, 1998, 151-152.
9. Миркин Л.И. Справочник по рентгеноструктурному анализу поликристаллов. Под ред. проф. Уманского Я. М.: *Гос. изд-во физ.-мат. литературы*, 1961. С. 860.
10. Диллер Я.Л. Таблицы межплоскостных расстояний. Т.2. М.: *Недра*, 1966. С. 362.
11. Небола И.И. Расшифровка рентгенограмм порошков. М.: *Металлургия*, 1975. С. 247.
12. Staszczuk P., Danielkiewicz T., Klinowski J. The investigations of the adsorbent layers and heterogeneous properties of the MCM-41 molecular sieve using the special thermal analysis method. *IV Polish-Ukrainian Symposium «Theoretical and experimental studies of interfacial phenomena and their technological applications»*. Lublin, Poland. 1999, P. 51.
13. Берг Л.Г. Введение в термографию. М.: *Наука*, 1969. С. 395.
14. Берг Л.Г., Бурмистрова Н.П., Озерова Н.И., Цуринов Г.Г. Практическое руководство по термографии. Казань: *Изд-во Казанского ун-та*, 1967. С. 219.
15. Накамото К. Инфракрасные спектры неорганических и координационных соединений. М.: *Мир*, 1982. С. 160.
16. Накамото К. Атлас инфракрасных спектров фосфатов. Ортофосфаты. М.: *Наука*, 1981. С. 247.

17. Юхневич Г.В. Инфракрасная спектроскопия воды. М.: Наука, 1973. С. 209.
18. Литтл Л. Инфракрасные спектры адсорбированных молекул. М.: Мир, 1969. С. 35.
19. Рубаник М.Я., Гороховатский Я.Б. Неполное каталитическое окисление олефинов. К.: Техника, 1964. С. 35.
20. Танабе К. Твердые кислоты и основания. М.: Мир. 1973. С. 125.
21. Голодец Г.И. Гетерогенно-каталитические реакции с участием молекулярного кислорода. К.: Наукова думка, 1977. С. 173.
22. Gomonaj V., Golub N., Gomonaj P., Szekeresh K. Mechanism of Ethane transformation on acid catalyts. *IV Polish-Ukrainian Symposium «Theoretical and experimental studies of interfacial phenomena and their technological applications».* Lublin, Poland. 1999, P. 57.
23. Gomonaj V., Barenblat I., Golub N., Szekeresh K. The mechanism formation of ethylene and monooxide of carboneum at heterogenous oxidation of ethane. *VI Ukrainian-Polish Symposium «Theoretical and experimental studies of interfacial phenomena and their technological applications».* Odessa, Ukraine. 2001, P. 73-75.
24. Гомонай В.І. Шляхи парціального перетворення C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub> вуглеводнів. *Науковий вісник Ужгородського університету. Серія «Хімія».* 1997, 2, 81-86.

Стаття надійшла до редакції: 03.12.2015.

## SYNTHESIS AND INVESTIGATION PHYSICOCHEMICAL PROPERTIES OF CATALYTIC COMPLEX SYSTEM TYPE $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$

**Golub N.P., Golub E.O., Madyar N.M., Gomonay V.I., Szekeresh K. Yu., Barenblat I.O.**

7 new synthesized complex oxide catalytic systems based on aluminum phosphate by modifying its cobalt ions such  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  with different content of phosphates which have acidic properties of the surface. Investigated their composition, structure and physico-chemical parameters. Established that the characteristics of such catalyts  $x\text{AlPO}_4 \cdot y\text{Co}_3(\text{PO}_4)_2$  is the constancy of chemical composition, changes in a wide range of acidic surface properties, the synergistic effect of modifications developed specific surface, low mobility of lattice oxygen. The interrelation between the method of preparation, the composition of the obtained complex oxide catalytic binary systems and their physical and chemical parameters.