انتاج الهيدروجين بطريقة الأكسدة الجزئية للميثانول باستخدام حفاز الذهب

أسم الطالب: باقي حبيب الله

المشرف الرئيسي: د. شريف فخور زمان اشراف

المشرف المساعد: أ.د. يحي ابوبكر صالح الحامد

المستخلص

يعتبر انتاج الهيدروجين واحد من المجالات البحثية الهامة نظراً للحاجة لاستخدامه في السيارات المزودة بخلايا الوقود. يمكن انتاج الهيدروجين من مصادر عدة مثل النشادر ، الهيدروكاربونات، الكحولات ....إلخ و لكل مصدر مميزاته و عيوبه. في هذه الرسالة تم بحث أكسدة الميثانول بواسطة العديد من العوامل الحفازة الذهبية و التي تم تحسينها بواسطة فلزات انتقالية مختلفة. تم تحضير العوامل الحفازة بواسطة الغمر و الترسيب و تم توصيفها بطرق ال XRF, XRD, N_2 adsorption H_2-TPR و XPS. اهم نواتج التفاعل كانت الهيدروجين و ثاني اكسيد الكربون. الماء و اول اكسيد الكربون كانا منتجات ثانوية لكل العوامل الحفازة التي تم اختبارها. بعض العوامل الحفازة انتج فورمالديهايد بكميات ضئيلة.

بتحري منمنات الذهب المترسبة علي العديد من المركبات الأكسيدية مثل-CeO_2 ZrO_2, CeO_2-ZrO_2, ZrO_2-TiO_2 أفضل نشاط و إنتقائية للهيدروجين كان للعامل الحفاز Au/CeO_2-ZeO_2. لهذا العامل نسبة تحول الميثانول كانت ٩١% مع انتقائية هيدروجين 75.77% و انتقائية اول اكسيد كربون 24.40% عند 375 درجة مئوية .

فس سلسلة العوامل الحفازة M/CeO_2-ZrO_2 (M= Fe, Co, Ni, Cu, Zn) أظهر العامل الحفاز-Zn/CeO_2 ZrO_2 نتائج واعدة عند ٤٠٠ درجة مئوية و كان له اعل انتقائية هيدروجين 88.80% و أعلي نسبة تحول للميثانول ٩٥,٨% و اقل انتقائية لاول اكسيد الكربون ١٢,٠٣%.

سلسلة العوامل الحفازة Au-M/CeO_2-ZrO_2 اظهرت انتقائية افضل للهيدروجين و انتقائية اقل لاول اكسيد الكربون. كما اظهرت تحول اعلي للميثانول و الاكسجين بالمقارنة بسلسلة ال M/CeO_2-ZrO_2. العامل الحفاز Au-Zn/CeO_2-ZrO_2 اعطي نتائج واعدة لتفاعل ال POM و كانت انتقائية الهيدروجين 64.62% و 6.99% لانتقائية اول اكسيد الكربون عند ٤٠٠ درجة مئوية .

العوامل الحفازة Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 و Au-Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 اظهرت اداء حفزي افضل للتفاعل ال POM كما أظهرت نتقائية اقل لأول أكسيد الكربون مقارنة بالعوامل الحفازة الأخري الذهبية و ذات الفلزات الأنتقائية رغم ان نسبة تحول الميثانول و انتقائية النواتج كانت متشابهة. مما يثير الإهتمام أن إضافة الذهب لم يعطي اي تحسن للتفاعل. لذا فالعامل الحفاز Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 تم افتراضه كعامل حفاز افضل من العوامل المحملة بالذهب و له انتقائية هيدروجين 67.68% و انتقاية أول اكسيد كربون 6.98% عند ٤٠٠ درجة مئوية.

Hydrogen Production via Partial Oxidation of Methanol over Gold Based Catalysts

Student Name: Bake Aibibula

Dr. Sharif F. Zaman

Prof. Yahia A. Alhamed

Abstract

On board generation of clean hydrogen is a contemporary research area for its potential application in fuel cell driven vehicles. Hydrogen can be generated from different sources, i.e. ammonia, hydrocarbons, alcohols etc., and every source have its pro and cons. In this thesis, partial oxidation of methanol is reported for a series of gold based catalyst promoted with different transition metals (Fe, Co, Ni, Cu and Zn). Catalysts were prepared by impregnation and deposition-precipitation (DP) method and characterized by N_2 adsorption, XRF, XRD, H_2-TPR and XPS measurements. Hydrogen and carbon dioxide were the main reaction products. Water and carbon monoxide were by-products for all the catalysts tested in this study. Only trace amount of formaldehyde was observed for some catalysts.

From the investigation of gold nano-particles deposited over different oxidic supports, i.e. ZrO_2, CeO_2-ZrO_2 and CeO_2-ZrO_2-TiO_2, better activity and hydrogen selectivity were observed for Au/CeO_2-ZeO_2 catalyst. For that 91 % of methanol conversion with 75.77% of H_2 selectivity and 24.40% of CO selectivity were attained at 375^{o}C.

In M/CeO_2-ZrO_2 catalyst series, nickel catalyst shows good result with the highest hydrogen selectivity with CO selectivity, and better methanol conversion.

Au-M/CeO_2-ZrO_2 series catalysts exhibited better hydrogen selectivity, lower CO selectivity and higher oxygen and methanol conversion compared to the M/CeO_2-ZrO_2 series catalyst. Among the Au-M/CeO_2-ZrO_2 catalyst group, Au-Zn/CeO_2-ZrO_2 catalyst gives promising result for partial oxidation of methanol reaction showing 64.62% of hydrogen selectivity and 6.99% of CO selectivity at 400^{o}C.

Catalysts Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 and Au-Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 showed similar catalytic performance towards partial oxidation of methanol reaction. Both catalysts has lower CO selectivity compare to other investigated gold and transition metal promoted catalysts. Interestingly the presence of Au in Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 catalyst did not show any catalytic improvement for this reaction. 67.68% of hydrogen selectivity with 6.98% of CO selectivity at 400^{o}C was achieved over Cu-Zn/CeO_2-ZrO_2 catalyst.