

دراسة و اختبار فلزات قلوية ومعادن انتقالية كمعضدات لحافز كيميائي من نترات المولبديوم لإنتاج الهيدروجين بتحلل الأمونيا

لطيف اكوريدي جولأوشو

أ.د. عبدالرحيم أحمد الزهراني

د.شريف فخور زمان

المستخلص

أثبتت الدراسات أنه من الممكن من الناحية العملية والديناميكية الحرارية تحقيق التحلل / التفكك الحفزي الحراري للأمونيا (النشادر) لأغراض توليد الهيدروجين في خلايا الوقود وذلك عند درجة حرارة قدرها (400) درجة مئوية، كما يمكن التحويل بصورة كبيرة في وجود عوامل الحفز التي تعتمد على عنصر الروثينيوم الكيميائي عند درجة حرارة قدرها (450) درجة مئوية، إلا أن تكلفة وتوافر عنصر الروثينيوم الكيميائي يجعله يفتقر إلى الجدوى الاقتصادية من الناحية الصناعية والاستخدام التجاري. ومن ثم دعت الحاجة إلى ضرورة تقديم أحد الحلول لهذه المشكلة.

ووفقاً لأهداف الدراسة، فقد تم استكشاف تفاعل واستجابة القلويات وعوامل حفز الفلزات الانتقالية النيتريدية. كما أن الهدف الوحيد من هذه الدراسة هو إعداد وتطوير وتصميم أحد عوامل الحفز البالغة النشاط اعتماداً على المعادن غير الثمينة بغرض تحلل وتفكك الأمونيا (النشادر) عند درجات حرارة منخفضة (600 <) درجة مئوية بحيث تكون مناسبة وملائمة لتطبيقات خلايا الوقود المستخدمة في سيارات ومركبات النقل. ومن بين كافة عوامل الحفز الفلزية القلوية التي خضعت للاختبار، فقد تبين أن (K-Mo₂N) هو أكثر عوامل الحفز من حيث النشاط الحفزي في كلا مما يلي: (K-Mo₂N > Mo₂N > Cs-Mo₂N > Li-Mo₂N). ويرجع التأثير الرئيسي للتعزير إلى تعديل سطح عامل الحفز من الناحية الالكترونية ومن الناحية البنائية – أي الوصول إلى الحد الأمثل لقاعدية عامل الحفز، والتثنت الجيد لمواقع المواد النشطة، وبصورة أساسية القيام برفع وتقوية دور الهيدروجين في تسميم المواقع النشطة أو تعزير وتحسين عملية التهجين في حالة ما إذا كانت ذرة النيتروجين موجودة في الموقع النشط.

كما أوضحت كافة عوامل الحفز التي يتم تعزيزها من خلال الفلزات الانتقالية أنها تتميز بأنشطة أفضل عند مقارنتها بنظيرتها من الفلزات القلوية ، حيث يكون اتجاه النشاط لعوامل الحفز المعززة بالفلزات الانتقالية على النحو التالي:- ($Ni_2Mo_3N > Co_3Mo_3N > Fe_3Mo_3N > = Mo_3N$). أما بالنسبة لهذه المجموعة من عوامل الحفز ، فإن عامل الحفز (Ni_2Mo_3N) يعتبر أفضل عوامل الحفز من حيث النشاط ، كما أنه يعتبر أيضا من أفضل عوامل الحفز التي خضعت للاختبار حيث سجل تحويل بنسبة قدرها ($97\% >$) في درجة حرارة منخفضة بلغت (525) درجة مئوية. كما أن كلا من عملي الحفز (Ni_2Mo_3N) ، (Co_3Mo_3N) قد تمكنوا من تحقيق التحويل الكامل في درجة حرارة تقارب (550) درجة مئوية.

Investigation of Alkali and Transition Metals Promoted Mo₂N Catalysts for Hydrogen Production by Ammonia Decomposition

Jolaoso, Lateef Akorede

Prof Abdulraheem A Alzahrani

Dr. Shareef Fakhoor Zaman

ABSTRACT

Thermal catalytic decomposition of ammonia for onboard generation of hydrogen for fuel cell application has been proven to be thermodynamically feasible at a temperature of 400°C and with ruthenium based catalysts a very high conversion was achieved at 450°C. The cost and availability of ruthenium made it industrially incompatible for commercial use, in proffering solution to this problem lead us to this work.

In conformity with the objective of this thesis, the reactivity of alkali and transition metal nitride catalysts was explored. The sole objective is to develop and design a very active catalyst based on non-precious metals for ammonia decomposition at lower temperature (< 600 °C) suitable for Fuel Cell application in transportation vehicles. The results obtained revealed that of all the tested alkali metal promoted catalysts, K- Mo₂N shows the highest catalytic activity following the trend K- Mo₂N > Mo₂N > Cs- Mo₂N > Li- Mo₂N. The main promoting effect is due to surface modification of the catalyst both electronically and structurally i.e. optimized catalyst basicity and well dispersion of active material sites and mainly elevating the role of hydrogen poisoning the active sites or enhancing the recombination of nitrogen atom on the active site.

All the transition metal promoted catalysts showed better activities when compared to their alkali metal counterparts. The activity trend for the bimetallic nitride catalysts is as follows Ni₂Mo₃N > Co₃Mo₃N > Fe₃Mo₃N ≥ Mo₂N. For this set of catalysts, Ni₂Mo₃N catalyst showed the best activity which is also the best of all the tested catalysts which gave > 97%

conversion at a temperature as low as 525°C. Both $\text{Ni}_2\text{Mo}_3\text{N}$ and $\text{Co}_3\text{Mo}_3\text{N}$ showed complete conversion at temperature $\approx 550^\circ\text{C}$.