

AZƏRBAYCAN MİLLİ ELMLƏR AKADEMİYASI
akad. M.NAĞİYEV adına KATALİZ və QEYRİ-ÜZVİ
KİMYA İNSTİTUTU

Əlyazma hüququnda

FƏRQANƏ ÇİNGİZ QIZI HƏSƏNOVA

NİKEL TƏRKİBLİ BİNAR KATALİZATORLAR
ÜZƏRİNDƏ QLIŞERİNİN HİDROGENƏ
BUXAR FAZALI KONVERSİYASI

İxtisas: 2316.01 – “Kimyəvi kinetika və kataliz”

Kimya üzrə fəlsəfə doktoru elmi dərəcəsi
almaq üçün təqdim edilmiş
dissertasiyanın

AVTOREFERATI

Bakı –2016

Dissertasiya işi Azərbaycan Dövlət Neft və Sənaye Universitetində yerinə yetirilmişdir.

Elmi rəhbər:

k.e.d., professor

V.L. Bağiyev

Rəsmi opponətlər:

k.e.d., professor

A.C.Əfəndi

k.e.d., b.e.i.

S.Ə.Məmmədخانova

Aparıcı təşkilat:

Bakı Dövlət Universiteti,
«Fiziki və kolloid kimya» kafedrası

Dissertasiya işinin müdafiəsi “_07_” oktyabr 2016-cı ildə saat “_”-da AMEA-nın akad. M.Nağıyev adına “Kataliz və Qeyri-üzvi kimya” institutunun nəzdində fəaliyyət göstərən D.01.021 Dissertasiya Şurasında keçiriləcəkdir.

Ünvan: AZ-1143, Bakı, H.Cavid prospekti 113,
e-mail: kqki@kqki.science.az

Dissertasiya ilə AMEA-nın akad. M.Nağıyev adına “Kataliz və Qeyri-üzvi kimya” institutunun kitabxanasında tanış olmaq olar.

Avtoreferat “_”_ 2016-cı ildə paylanmışdır.

D.01.021 Dissertasiya

Şurasının elmi katibi:

Kimya üzrə fəlsəfə doktoru, b.e.i.

S.Ə.Əliyeva

İŞİN ÜMUMİ XARAKTERİSTİKASI

İşin aktuallığı. Məlumdur ki, son illər alternativ enerji mənbələrindən biri də hidrogen hesab edilir. Alimlərin fikrinə görə hidrogen gələcəyin yanacağı və zaman keçdikcə onun əsas enerji mənbəyi olacağı şübhə doğurmur. Bu, bir sıra amillərlə əlaqədardır. Birincisi, faydalı qazıntıların sürətlə tükənməsi və bunun nəticəsində mədən resurslarının enerji tələbatını təmin etmək üçün kifayət etməməsidir. İkincisi, yer səthinin əsas kütləsini təşkil edən suyun tərkibində hidrogenin ehtiyatlarının praktiki olaraq tükənməz olmasıdır. Üçüncüsü, faydalı qazıntıların həm yanacaq, həm də kimyəvi məhsullar istehsalı üçün xammal kimi istifadəsi zamanı ətraf mühitin güclü çirklənməsi baş verir ki, bu da qlobal iqlim dəyişikliyinə gətirib çıxarır. Hidrogenin yanacaq kimi istifadəsi isə ətraf mühitin çirklənməsinə səbəb olmur, belə ki, onun yanması nəticəsində yalnız su əmələ gəlir. Beləliklə, yanacaq kimi hidrogendən istifadə olunması bəşəriyyət qarşısında duran bir çox ekoloji problemləri həll edə bilər. Bunun üçün hidrogenin bir yanacaq kimi çoxsahəli istifadə olunmasının texniki təminatı qısa bir zamanda həyata keçirilə bilər.

Dövrü ədəbiyyatda hidrogenin alınmasının müxtəlif üsulları təklif edilir:

- metanın hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyası. Bu üsulla ABŞ-da istehsal edilən hidrogenin 95%-i alınır;
- bərpa olunan elektrik cərəyanı mənbələrinin istifadəsi ilə suyun elektrolizi;
- mədən kömürü və biokütlənin qazlaşdırılması;
- müxtəlif üzvi birləşmələrin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyası.

Hidrogen istehsalının alternativ alınma üsullarından biri də qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyası hesab olunur. Hidrogenin alınması üçün digər xammal mənbələri ilə müqayisədə qliserin bəzi üstünlüklərə malikdir. Bərpa olunan xammallardan onun alınması mühüm hesab edilir. Bitki yağlarından biodizelin sintezi zamanı və biokütlənin şəkərə qıcqırması ilə etanol istehsalı prosesində aralıq məhsul kimi çoxlu miqdarda qliserin alınır. Dövrü ədəbiyyatdan məlumdur ki, qliserinin hidrogenə buxar fazalı

konversiya reaksiyasında nikel, sirkonium, kobalt və onların oksidləri əsasında hazırlanmış müxtəlif katalizatorlar yüksək aktivlik göstərilir. Həmçinin elementlərin müəyyən kütlə nisbəti ilə ayrı-ayrı katalizatorlar barədə məlumatlar vardır. Lakin ədəbiyyatda qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında məhz belə tərkibli katalizatorların hansı səbəbdən yüksək aktivlik nümayiş etdirməsi barədə izahı olmayan, elementlərin müəyyən nisbətində hazırlanmış ayrı-ayrı katalizatorlar barədə məlumatlar verilir. Bununla əlaqədar olaraq qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyası üçün katalizatorun tərkibinin onun katalitik aktivliyinə təsirinin öyrənilməsi ilə yeni katalitik sistemlərin axtarışı olduqca aktualdır.

İşin məqsədi binar nikel tərkibli katalizatorlar üzərində qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasının öyrənilməsi ilə katalizatorların aktivliyinin onların fiziki-kimyəvi xassələrindən və faza tərkibindən asılılığının müəyyən edilməsi hesab edilir.

Bu məsələlərin həll edilməsi üçün aşağıdakı istiqamətlərdə tədqiqatlar aparılmalıdır:

- müxtəlif tərkibli binar Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-Zr-O katalizatorlarının sintezi və qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında onların aktivliyinin öyrənilməsi;
- katalizator nümunələrinin faza tərkibini və fiziki-kimyəvi xassələrini öyrənərək onların aktivliyinə təsirinin müəyyən edilməsi.

Elmi yenilik. Sintez edilmiş müxtəlif tərkibli nikel-sink, nikel-sirkonium və nikel-magnezium oksid katalizatorları nümunələrinin iştirakında aparılmış. termodinamiki tədqiqatlar göstərmişdir ki, qliserinin buxar fazalı konversiyası reaksiyasını 500°C-dən yüksək temperaturlarda aparmaq daha əlverişli hesab edilir. Sintez edilmiş katalizatorların qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında aktivliyinin tədqiqi göstərir ki, aşağı temperaturlarda qliserin əsasən akrolein və digər üzvi birləşmələrə çevrilir, lakin yüksək temperaturlarda reaksiyanın əsas istiqaməti hidrogenin alınmasına yönəlir.

Müəyyən edilmişdir ki, tədqiq edilən katalizator nümunələri iştirakında hidrogenin əmələ gəlməsi prosesində ən yüksək aktivlik 600-700°C temperatur intervalında müşahidə olunur. Müəyyən

edilmişdir ki, nikelin artıqlığı ilə binar nikel-maqnezium oksidləri hidrogenin əmələ gəlməsi reaksiyasında yüksək aktivlik nümayiş etdirir, Ni-Zr-O sistemində isə tərkibində çoxlu miqdarda sirkonium və ya nikel olan katalizatorlar yüksək aktivlik göstərilər. Nikel-sink oksid katalizatorlarının aktivliyi isə katalizatorun tərkibindən az asılıdır.

Rentgenoqrafik tədqiqatlar əsasında müəyyən edilmişdir ki, Mg-Ni-O sistemində üç faza əmələ gəlir: MgO, MgNiO₂ və NiO_{0,97}, Zn-Ni-O sistemində isə əsasən Zn və Ni oksidləri əmələ gəlir. Zr-Ni-O sistemində də üç faza əmələ gəlir: ZrO₂, NiO və Zr₃NiO.

Binar Mg-Ni-O, Zn-Ni-O və Zr-Ni-O katalizatorlarının İQ-spektroskopik tədqiqatları aparılaraq müəyyən edilmişdir ki, reaksiya zamanı katalizatorların səthində alkoholyat və karbonat-karboksilat kompleksləri, həmçinin adsorbsiya olunmuş su mövcuddur.

İşin praktiki əhəmiyyəti kimi, sintez edilmiş nikel-sink, nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid katalizatorlarının qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında yüksək aktivlik və seçicilik nümayiş etdirmələrini göstərmək olar. Hidrogenin ən yüksək 90% çıxımı qliserinin 100%-li konversiyasında əldə edilmişdir. Bütün tədqiqatlar ərzində nikel tərkibli katalizatorlar öz aktivliklərini itirməmişdirlər. Alınmış təcrübə nəticələr nikel tərkibli katalizatorların qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya prosesində pilot sınaqlarında istifadə üçün əsas kimi qəbul edilə bilər.

İşin aprobasiyası. Dissertasiya işinin əsas nəticələri aşağıdakı beynəlxalq və respublika konfranslarında məruzə və müzakirə edilmişdir: Республиканская научная конференция посвященной академику Т.Н.Шахтахтинскому (Баку, 2011), «МЕНДЕЛЕЕВ-2013» VII Всероссийская конференция молодых учёных (Санкт-Петербург, 2013), I Beynəlxalq kimya və kimya mühəndisliyi konfransı (Bakı, 2013), “Azərbaycan 2020: neft-qaz sənayesinin inkişaf perspektivləri” adlı elmi praktiki konfransı (ADNA, Bakı, 2013), Akademik M.F.Nağıyevin 105 illiyinə həsr olunmuş elmi konfransı (Bakı, 2013), Gənc tədqiqatçıların II beynəlxalq elmi konfransı (Bakı, 2014), II Российский конгресс по катализу «РОСКАТАЛИЗ» (Самара, 2014), Всероссийская молодежная конференция-школа с международным участием «Достижения и

проблемы современной химии» (Санкт-Петербург, 2014), Республиканская научная конференция посвященной академику Т.Н.Шахтахтинскому (Баку, 2015), IV Всероссийская конференция по Органической химии.

Nəşrlər. Dissertasiya mövzusu üzrə 17 elmi iş, o cümlədən, 7 məqalə, 10 tezis məruzə dərc edilmişdir.

Dissertasiyanın həcmi və strukturu. Dissertasiya işi 145 səhifədə şərh edilmişdir, tərkibində 40 cədvəl və 27 şəkil var. Dissertasiya girişdən, beş fəsildən, nəticələr və istinad edilmiş ədəbiyyat siyahısından ibarətdir.

Birinci fəsil hidrogenin alınması proseslərinə aid olan məsələlərin müasir vəziyyətini ətraflı göstərilən dövrü ədəbiyyat icmalına həsr edilmişdir. Qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasının katalitik və termodinamiki tədqiqatlarının nəticələri göstərilmişdir.

İkinci fəsildə katalizatorların hazırlanması metodikası, katalizatorun aktivliyinin öyrənilməsi üçün qurğunun təsviri, xammal və reaksiya məhsullarının analiz üsulları, katalizatorların fiziki-kimyəvi xassələrinin öyrənilməsi üsulları verilmişdir.

Üçüncü fəsil binar nikel tərkibli katalizatorların sintezi və onların müxtəlif fiziki-kimyəvi üsullarla tədqiqinə həsr edilmişdir.

Dördüncü fəsildə sintez edilmiş katalizatorların qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında aktivliyinin tədqiqindən alınmış nəticələr göstərilmişdir.

Beşinci fəsildə təcrübələrdən alınmış nəticələrin müzakirəsi verilmişdir. Nikel tərkibli katalizatorların faza tərkibi və onların katalitik aktivliyi arasında qarşılıqlı əlaqə nəzərdən keçirilmişdir.

İŞİN ƏSAS MƏZMUNU

Qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasında binar Ni-Zr-O, Ni-Zn-O və Ni-Mg-O katalizatorlarının aktivliyi. Nikel-sirkonium nikel-sink və nikel-magnezium oksid katalizatorları birgə çökdürülməsi üsulu ilə hazırlanmışdır. Beləliklə, hər üç katalitik sistem üçün elementlərin atom nisbəti 9:1-dən 1:9-dək 9, ümumi olaraq aşağıdakı şərtlərə cavab verən 27 katalizator nümunəsi hazırlanmışdır:

mA/nB , burada A – Zr, Zn, Mg; B - Ni ; $m,n = 1\div 9$, $m+n = 10$

Övvəlcədən tərəfimizdən aparılmış təcrübələr göstərir ki, aşağı temperaturalarda qliserin müxtəlif üzvi birləşmələrə (etilen, propilen, proponol-1, butanol-1, və s.) çevrilir ki, onlardan miqdarına görə ən çox alınan akroleindir. 500°C-dən yuxarı temperaturda az miqdarda karbon monooksid və metanın əmələ gəlməsi ilə qliserin əsasən hidrogen və karbon dioksida çevrilir.

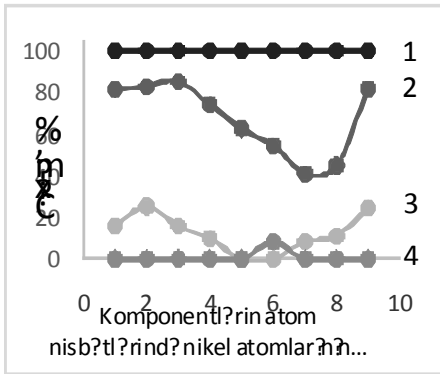
Aparılmış termodinamiki hesablamalar əsasında demək olar ki, qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasını 700 K-dən yüksək temperaturlarda hidrogenin yüksək çıxımla həyata keçirmək olar.

Binar nikel oksid katalizatorların aktivliyini müqayisəli qiymətləndirmək üçün tərəfimizdən qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasında binar katalizatorların sintezində istifadə etdiyimiz fərdi oksidlərin aktivliyi öyrənilmişdir. Apardığımız təcrübələr nəticəsində müəyyən edilmişdir ki, qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasında sink və nikel oksid katalizatorları hidrogenin alınmasında, eyni zamanda sirkonium və maqnezium oksidləri isə akroleinin alınmasında daha aktivdirlər. Həmçinin qeyd etmək lazımdır ki, nikel oksid katalizatoru üzərində akroleinin alınması baş vermir.

Qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyası metan, karbon monooksid və qliserinin müxtəlif parçalanma məhsulları kimi əlavə məhsulların əmələ gəlməsi ilə baş verir.

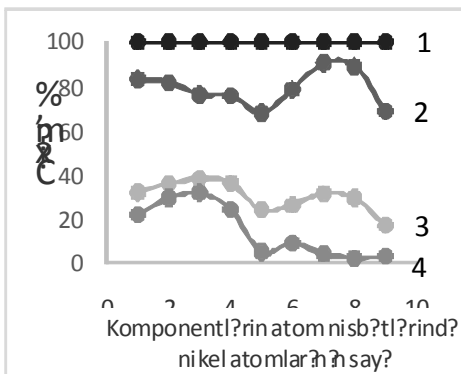
İlkin aparılmış tədqiqatlar göstərir ki, binar nikel-sirkonium oksid katalizatorlarının aktivliyinə onların tərkibi təsir göstərir. Şəkil 1-də 650°C temperaturda qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-sirkonium katalizatorlarının aktivliyinin onların tərkibindən asılılığı göstərilmişdir. Şəkildən görünür ki, bütün tədqiq olunan nikel sirkonium oksid katalizatorları üzərində qliserinin konversiyası 100%-ə bərabərdir. Katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə hidrogenin çıxımı $Ni:Zr=3:7$ atom nisbətində olan nikel sirkonium oksid tərkibli nümunəsində 85.4%-dək artır və sonra $Ni:Zr=7:3$ nümunəsində 41%-dək kəskin azalır, bundan sonra isə $Ni:Zr=9:1$ nümunəsində yenidən 82%-dək artır. Analoji asılılıq karbon monooksidin çıxımı üçün də müşahidə olunur, lakin onun çıxımı 650°C-də 25.4%-dən çox olmur.

Şəkil 1-dən göründüyü kimi metanın əmələ gəlməsi yalnız Ni:Zr=6:4 katalizatorunda müşahidə olunur. Təəssüf ki, binar nikel-magneziyum oksid katalizatorlarının aktivliyi də onların tərkibindən asılıdır. Şəkil 2-də 650°C-də qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-magneziyum katalizatorlarının aktivliyinin onların tərkibindən asılılığı göstərilmişdir.



Şəkil 1. Qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-sirkonium katalizatorlarının aktivliyinin onların tərkibindən asılılığı. T=650°C. 1, konversiya, 2. hidrogen, 3. karbon monoksid, 4. metan

Görünür ki, bütün katalizatorlarda qliserinin konversiyası 100% bərabərdir. Katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə hidrogenin çıxımı Ni:Mg=5:5 atom nisbətində olan nikel maqnezium oksid tərkibli nümunəsində 68.1%-dək azalır və sonra artaraq Ni:Mg=7:3 katalizatorunda maksimumdan (90.4%) keçir və bundan sonra Ni:Mg=9:1 katalizatorunda 68.6%-dək azalır.



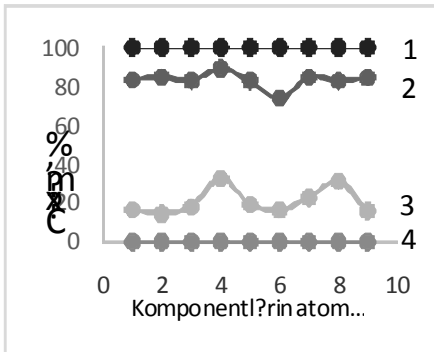
Şəkil 2. Qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-magneziyum katalizatorlarının aktivliyinin onların tərkibindən asılılığı. T=650°C. 1. konversiya, 2. hidrogen, 3. karbon monoksid, 4. metan

2. hidrogen, 3. karbon monoksid, 4. metan

Şəkil 2-dən görünür ki, karbon monoksid və metanın çıxımı üçün katalizatorun tərkibində nikelin miqdarından simbat asılılıq müşahidə edilir. Bu zaman $Ni:Mg=3:7$ və $Ni:Mg=7:3$ atom nisbətində olan nikel maqnezium oksid tərkibli katalizatorlarında karbon monooksid və metanın iki maksimum çıxımı ilə ayrılaraq müşahidə olunur. $650^{\circ}C$ -də karbon monooksidin maksimal çıxımı 38.3%, metanın isə 32%-dən çox deyil.

İlkin aparılmış təcrübələr göstərir ki, qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-sink oksid katalizatorları yüksək aktivlik göstərilir. Qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-maqnezium katalizatorlarının tərkibinin onların aktivliyinə təsiri şəkil 3-də göstərilmişdir.

Şəkil 3-dən görüldüyü kimi, nikellə zənginləşdirilmiş katalizatorlara nisbətən sinklə zəngin katalizatorlar hidrogenin əmələ gəlməsi reaksiyasında daha aktivdirlər. Nikel-sink oksid katalizatorlarının aktivliyinin belə təzahürü onların faza tərkibinin dəyişməsi ilə əlaqələndirilir.



Şəkil 3. Qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel-sink katalizatorlarının aktivliyinin onların tərkibindən asılılığı. $T=650^{\circ}C$, 1, konversiya, 2. hidrogen, 3. karbon monoksid, 4. metan

Beləliklə, aparılmış tədqiqatlar əsasında aşağıdakı nəticələri çıxarmaq olar:

- $500^{\circ}C$ -dən yüksək temperaturlarda bütün tədqiq edilən nikel tərkibli katalizatorlar üzərində qliserinin konversiyası 100%-ə bərabərdir;

- Binar nikel tərkibli katalizatorlar üzərində hidrogenin yüksək çıxımı 90%-ə çatır;
- 500°C-dən aşağı temperaturlarda qliserin müxtəlif üzvi birləşmələrə parçalanır, eyni zamanda 500°C-dən yuxarı temperaturlarda hidrogen qliserinin çevrilmə reaksiyasının əsas məhsulu hesab edilir;
- Nikel-sirkonium oksid sistemində nikel və ya sirkoniumun yüksək miqdarı ilə nümunələr yüksək aktivlik nümayiş etdirir;
- Nikel və ya maqnezium artıqlığı ilə nikel-maqnezium oksid katalizatorları hidrogenin əmələ gəlməsində yüksək aktivliyə malikdir.
- Hidrogenin əmələ gəlməsi reaksiyasında nikel-sink oksid katalizatorlarının aktivliyi onların tərkibindən az asılıdır.

Ni-Zr-O, Ni-Zn-O və Ni-Mg-O katalizatorlarının xüsusi səthinin müəyyən edilməsi. Məlum olduğu kimi, bərk maddənin səth molekulları yalnız daxili təbəqənin molekulları ilə əlaqədardır. Səth rabitələri doymamışdır ki, bu da qaz, buxar və ya maye molekullarının bərk maddə səthinə cəzb edilməsi ilə kompensasiya olur. Katalizatorun sintezi zamanı katalizatorla nöqsanlı strukturlar əmələ gəldikdə bu hadisə (adsorbsiya) daha ətraflı görünür. Ona görə də katalizatorun katalitik aktivliyini xarakterizə edən əsas xassələrindən biri xüsusi səth hesab edilir.

Müqayisəli qiymətləndirmə üçün tərəfimizdən həmçinin fərdi nikel, sirkonium, sink və maqnezium oksidlərinin xüsusi səthləri ölçülmüşdür. Belə ki, nikel oksidin xüsusi səthi $1,3 \text{ m}^2/\text{q}$, sirkonium oksidin $0,5 \text{ m}^2/\text{q}$, sink oksidin $4,0 \text{ m}^2/\text{q}$ və maqnezium oksidin $15,9 \text{ m}^2/\text{q}$ -dır. Azotun desorbsiyası üsulu ilə Ni-Zr-O, Ni-Zn-O və Ni-Mg-O katalizatorlarının xüsusi səthinin ölçmə nəticələri cədvəl 1-də göstərilmişdir. Cədvəldən görüldüyü kimi, nikel-sirkonium oksid katalizatorları üçün iki maksimum ilə xüsusi səthin nikelin miqdarından asılılığı müşahidə olunur. Birinci maksimum Ni-Zr =3:7 ($10,4 \text{ m}^2/\text{q}$) katalizatorunda, ikincisi isə Ni-Zr =6:4 ($25,7 \text{ m}^2/\text{q}$) katalizatorunda müşahidə olunur.

Cədvəldən həmçinin görünür ki, xüsusi səthin qiyməti Ni-Zr =1:9 atom nisbətində olan nikel sirkonium oksid tərkibli

katalizatorunda 2,8 m²/q-dan Ni-Zr =6:4 katalizatorunda 25,7 m²/q-dək dəyişir.

Cədvəl 1

Ni-Zr-O, Ni-Zn-O və Ni-Mg-O katalizatorlarının xüsusi səthinin ölçmə nəticələri.

Katalizatorun tərkibi	Xüsusi səth, m ² /q		
	Ni-Zn-O	Ni-Mg-O	Ni-Zr-O
1-9	6.0	24.4	2.8
2-8	3.3	15.0	4.6
3-7	4.0	11.2	10.4
4-6	3.3	18.7	6.1
5-5	3.9	9.4	12.2
6-4	3.7	7.5	25.7
7-3	3.8	6.9	17.5
8-2	3.2	5.7	7.1
9-1	3.2	5.7	6.7

Əvvəlki katalitik sistemlərdən fərqli olaraq nikel-sink oksid katalizatorunda xüsusi səth katalizatorun tərkibindəki nikelin miqdarından praktiki olaraq asılı deyil (Ni-Zn=1:9 istisna olmaqla), yalnız kiçik azalma trendi müşahidə olunur. Xüsusi səth Ni-Zn=1:9 katalizatorunda 6,0 m²/q-dan Ni-Zn=9:1 atom nisbətində olan nikel sink oksid tərkibli katalizatorunda 3,2 m²/q-a qədər azalır.

Nikel-maqnezium oksid katalizatorlarının xüsusi səthi Ni-Mg=9:1 atom nisbətində olan nikel maqnezium oksid tərkibli katalizatorunda 5,7 m²/q-dan Ni-Mg=1:9 katalizatorunda 24,4 m²/q-dək geniş intervalda dəyişir. Nikel-maqnezium oksid katalizatorlarında həmçinin iki maksimum ilə xüsusi səthin nikelin miqdarından asılılığı müşahidə olunur: Ni-Mg=1:9 katalizatorunda 24,4 m²/q və Ni-Mg=4:6 katalizatorunda 18,7 m²/q.

Alınmış nəticələri müqayisə edərək söyləmək olar ki, nikel-sink oksid sistemi üçün xüsusi səth sink oksiddən nikel oksidə azalır.

Nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid sistemlərində isə oksidlərin qarışması binar katalizatorların xüsusi səthinin kəskin artmasına gətirib çıxarır.

Ni-Zr-O, Ni-Zn-O və Ni-Mg-O katalizatorlarının rentgenoqrafik tədqiqi. Sintez edilmiş Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-

Zr-O katalizatorlarının faza tərkibinin rentgenoqrafik tədqiqi “D2 Phaser” avtomatik toz difraktometrində (CuK_α -şüalanma, Ni-süzgəc) $5^\circ \leq 2\theta \leq 80^\circ$ bucaq əks etmə intervalında aparılmışdır.

Hərtərəfli rentgenfaza analizi göstərir ki, Mg-Ni-O sistemində üç faza əmələ gəlir: MgO, MgNiO_2 və $\text{NiO}_{0.97}$. Bütün nümunələrdə nikel və sink komponentlərinin faiz nisbəti saxlanılır ki, bunu da difraksiya şəkilində reflekslərin intensivliyinin qanunauyğun dəyişməsi sübut edir. Rentgenfaza analizi əsasında aşkar edilmişdir ki, Zn-Ni-O katalizator sistemində əsasən Zn və Ni oksidləri əmələ gəlir. Daha dəqiq desək Zr-Ni-O katalitik sistemində üç faza ZrO_2 , NiO və Zr_3NiO yaranır. Bütün nümunələrdə Zr/Ni komponentlərinin faiz nisbəti saxlanılır ki, bunu da difraksiya şəkilində reflekslərin intensivliyinin qanunauyğun dəyişməsi sübut edir.

Tərfimizdən həmçinin bütün əmələ gələn fazaların kristalliklik dərəcəsi hesablanmışdır, nəticələr cədvəl 2-də göstərilmişdir.

Cədvəl 2

Mg-Ni-O, Zn-Ni-O və Zr-Ni-O sistemlərində nümunələrin kristallikliyi

Katalizatorlarda metalların atom nisbəti	Kristalliklik, %		
	Ni-Zn-O	Ni-Mg-O	Ni-Zr-O
1-9	66.6	79.8	61.2
2-8	65.7	81.6	60.3
3-7	62.9	85.1	62.6
4-6	68.9	85.0	64.9
5-5	70.7	82.7	67.5
6-4	72.7	85.3	69.4
7-3	75.8	82.9	70.9
8-2	80.6	83.2	73.8
9-1	83.5	83.9	75.5

Beləliklə, rentgenfaza tədqiqatları əsasında demək olar ki, nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid sistemləri təkcə ilkin oksidlərdən deyil, həmçinin onlar arasında kimyəvi birləşmələr qammasından ibarətdir. Müxtəlif tərkibli nikel-sink oksid sistemləri əsasən ilkin oksidlərdən ibarətdir.

Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-Zr-O katalizatorlarının İQ-spektroskopik tədqiqi. Katalizator səthində mövcud olan aralıq

birləşmələr və komplekslər barədə məlumatlar almaq məqsədilə dissertasiya işində reaksiya mühitində işlənmiş binar Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-Zr-O oksid sistemləri öyrənilmişdir. İQ-spektrlər “Nicolet-İS10” İQ-Furye spektrofotometrində 400-4000 sm^{-1} sahəsində çəkilməmişdir. Müxtəlif tərkibli işlənmiş binar Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-Zr-O katalizatorlarının İQ-spektrlərini təyin edilmiş zolaqlar cədvəl 3-də göstərilmişdir.

Müxtəlif tərkibli binar Ni-Mg-O katalizatorlarının İQ-spektrlərində cədvəldən göründüyü kimi aşağıdakı zolaqlar müşahidə olunur: 850, 924, 995, 1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335 sm^{-1} . 850 və 924 sm^{-1} zolaqları yalnız nikel oksidlə zəngin nümunələrdə, qalanları isə bütün katalizatorlarda müşayiət olunur.

Cədvəl 3

Nikel tərkibli binar katalizatorların İQ- spektrlərində müşahidə olunan udulma zolaqları.

Katalitik sistem	Udulma zolaqları sm^{-1}
Ni-Mg-O	850, 924, 995, 1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335
Ni-Zr-O	995, 1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335
Ni-Zn-O	1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335

Nikel-sirkonium nümunələrində cədvəl 3-də göründüyü kimi, praktiki olaraq eyni zolaqlar müşahidə olunur: 995, 1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335 sm^{-1} . Bu udulma zolaqlarının intensivliyi əvvəlki seriya katalizatorlara nisbətən xeyli aşağıdır. Bu seriya katalizatorlarda 850 və 924 sm^{-1} zolaqlarının əmələ gəlməsi müşahidə olunmur. 995 və 2350 sm^{-1} zolaqları bəzi nikel-sirkonium katalizatorlarında müşahidə olunur və bu zaman onların intensivliyi çox azdır.

Müxtəlif tərkibli binar Ni-Zn-O katalizatorlarının İQ-spektrləri praktiki olaraq nikel-sirkonium nümunələrində olduğu kimidir, yalnız zolaqların intensivliyinin katalizatorun tərkibindən asılı olaraq dəyişməsi burada qismən başqadır. Praktiki olaraq eyni zolaqlar müşahidə olunur: 1045, 1111, 1417, 1521, 2350, 2881 və 3335 sm^{-1} . 850, 924, 995 və 2350 sm^{-1} zolaqlarının əmələ gəlməsi bəzi nikel-

sirkonium katalizatorlarında müşahidə olunur və bu zaman onların intensivliyi çox az olur.

Spektrlərdən görüldüyü kimi burada ədəbiyyat məlumatlarına əsasən C-H rabitəsinə aid olan 2800-dən 3000 sm^{-1} -dək zolaqlar mövcuddur. Spektrin yüksək tezlikli sahəsində həmçinin ədəbiyyat məlumatlarına əsasən hidroksilin (OH qrupu) valent titrəməsinə aid olan 3200-3500 sm^{-1} -də geniş zolaq görünür.

İQ-spektrlərdən ikinci qrup zolaqları ayırmaq olar, intensivliyi simbat dəyişən 1050, 1100 sm^{-1} zolaqlarının katalizatorun tərkibindən asılı olaraq dəyişmə xarakterini nəzərə alaraq isbat etmək olar ki, onlar eyni bir səth birləşməsinə aiddir. Ədəbiyyat məlumatlarına əsasən onları alkoholyat tipli aralıq komplekslərə aid etmək olar.

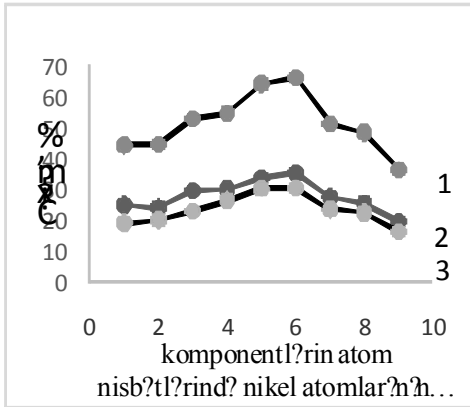
İQ-spektrlərdən həmçinin demək olar ki, 1417 və 1521 sm^{-1} udulma zolaqları eyni bir səth qrupuna aiddir ki, bu da ehtimala görə karbonat-karboksilat strukturuna uyğun gəlir.

Nikel tərkibli katalizatorların səthinin turşu-əsasi xassələrinin buten-1-in buten-2-yə izomerləşməsi reaksiyası ilə tədqiqi. Son illərdə oksid katalizatorların turşu-əsasi xassələrinin xarakteristikası üçün əsasən buten-1-in *sis*- və *trans*-buten-2-yə izomerləşməsi reaksiyasında onların aktivliyinin ölçülməsindən istifadə olunur. Ona görə də tərəfimizdən sintez edilmiş katalizatorların səthinin turşu xassələrinin qiymətləndirilməsi üçün buten-1-in buten-2-yə izomerləşmə reaksiyasında onların aktivliyi öyrənilmişdir.

Şəkil 4-də *trans* və *sis* buten-2-lərin çıxımının Ni-Zr-O katalizatorlarının tərkibindən asılılığı göstərilmişdir. Şəkildən görüldüyü kimi katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə Ni-Zr=6:4 atom nisbətində olan nikel sirkonium oksid tərkibli katalizatorunda buten-2-nin çıxımı maksimumdan keçir. *Trans* izomerin *sis* izomerə nisbəti praktiki olaraq dəyişmir və 1.2-yə bərabərdir. Bu bizə deyir ki, katalizator səthində həm Lyuis turşu mərkəzləri, həm də Brensted turşu mərkəzləri mövcuddur, eyni zamanda onların nisbəti təxminən eynidir.

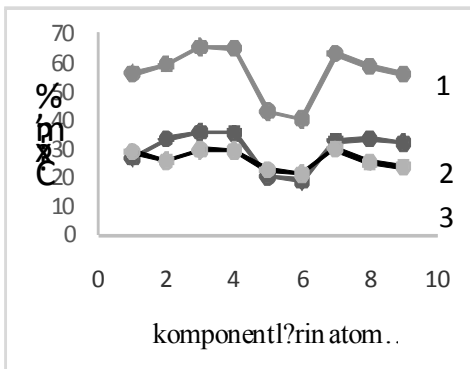
Rentgenfaza analizi əsasında aşkar edilmişdir ki, Ni-Zr-O katalizatoru sistemində üç faza: ZrO_2 , NiO və Zr_3NiO əmələ gəlir.

Zr_3NiO -nun əmələ gəlməsi əsasən orta qatılıqlarda müşahidə edilir. Məlumdur ki, Zr_3NiO birləşməsi sirkonium və nikel oksidlərinə nisbətən daha yüksək turşuluğa malikdir, bunun nəticəsində Ni-Zr-O katalizatorunda buten-1-in buten-2-yə izomerləşməsi maksimumdan keçir.



Şəkil 4. Trans və sis buten-2-nin çıxımının Ni-Zr-O katalizatorlarının tərkibindən asılılığı
1. Σ buten-2
2. Trans- buten-2
3. Sis- buten-2

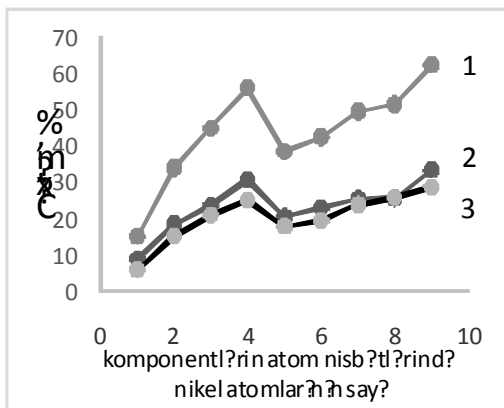
Trans və sis buten-2-lərin çıxımının Ni-Zn-O katalizatorunun tərkibindən asılılığı şəkil 5-də göstərilmişdir. Şəkildən görünür ki, katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə Ni-Zn=4:6 və Ni-Zn=7:3 atom nisbətində olan nikel sink oksid tərkibli katalizatorlarında buten-2-nin çıxımının iki maksimumu olan əyri müşahidə olunur.



Şəkil 5. Trans və sis buten-2-nin çıxımının Ni-Zn-O katalizatorlarının tərkibindən asılılığı
1. Σ buten-2
2. Trans- buten-2
3. Sis- buten-2

Rentgenfaza analizi əsasında aşkar edilmişdir ki, Zn-Ni-O katalizator sistemində əsasən Zn və Ni oksidləri əmələ gəlir. Bunun əsasında söyləmək olar ki, Ni-Zn=4:6 və Ni-Zn=7:3 atom nisbətində olan nikel sink oksid tərkibli katalizatorlar bərk məhlullardır, ona görə də onlar digər mexaniki tərkibli qarışıqlara nisbətən daha yüksək turşuluğa malikdir. Trans izomerin sis izomerə nisbəti Ni-Zn=1:9 katalizatorunda 0.9-dan Ni-Zn=9:1 katalizatorunda 1.3-dək artır. Bu onu göstərir ki, Ni-Zn-O katalizatorları səthində miqdarı nisbəti trans və sis buten-2 izomerlərinin nisbətində bərabər olan Lyuis və Brensted turşu mərkəzləri mövcuddur.

Ni-Mg-O katalizatorunun tərkibinin trans və sis buten-2-lərin çıxımına təsiri şəkil 6-da göstərilmişdir. Şəkildən görünür ki, katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə buten-2-nin ümumi çıxımı Ni-Mg=4:6 atom nisbətində olan nikel maqnezium oksid tərkibli katalizatorunda 55%-dək artır, bundan sonra Ni-Mg=5:5 katalizatorunda 40%-dək azalır və sonra yenidən Ni-Mg=9:1 katalizatorunda 62,4%-dək artır.



Şəkil 6. Trans və sis buten-2-nin çıxımının Ni-Mg-O katalizatorlarının tərkibindən asılılığı.
1. Σ buten-2
2. Trans- buten-2
3. Sis- buten-2

Məlum olduğu kimi, MgO əsasi oksid, NiO isə ona nisbətən daha turş xassəlidir, ona görə də katalizatorun tərkibində nikel oksidin miqdarının artması ilə izomerləşmə reaksiyasında onun aktivliyi və uyğun olaraq səthin turşuluğu artır.

Trans izomerin sis izomerə nisbəti praktiki olaraq 1.1-ə bərabər sabit qalır. Demək olar ki, Lyuis və Brensted turşu mərkəzlərinin nisbi miqdarı Ni-Mg-O katalizatorunun tərkibindən praktiki olaraq asılı deyil.

NƏTİCƏLƏR

1. Müxtəlif tərkibli nikel-sirkonium, nikel-maqnezium və nikel-sink oksid katalizatorları sintez edilərək müəyyən edilmişdir ki, bu katalizatorlar qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında yüksək aktivlik nümayiş etdirirlər. Təyin olunmuşdur ki, qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasında nikel və ya ikinci metalla zəngin nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid katalizatorları yüksək aktivliyə malikdir. Eyni zamanda nikel-sink oksid katalizatorlarının aktivliyi demək olar ki tərkibdən asılı deyil. Bu katalizatorların iştirakında hidrogenin ən yüksək çıxımı qliserinin 100% konversiyası zamanı 90%-ə çatır.
2. Qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasının termodinamiki tədqiqatları aparılaraq müəyyən edilmişdir ki, qliserinin buxar fazalı konversiya və parçalanma reaksiyaları üçün Hibbs enerjisinin dəyişməsinin mənfi qiymətləri reaksiya temperaturunun yüksəlməsi ilə artır. Eyni zamanda karbon monooksid və dioksidin metanlaşma reaksiyaları üçün Hibbs enerjisinin mənfi qiymətləri azalır. Aparılmış termodinamiki hesablamalar əsasında müəyyən edilmişdir ki, hidrogenin yüksək çıxımını əldə etmək üçün qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasını 500°C-dən yüksək temperaturda aparmaq məqsədə uyğundur.
3. Mg-Ni-O, Zn-Ni-O və Zr-Ni-O katalizatorlarının rentgenoqrafik tədqiqatları aparılaraq müəyyən edilmişdir ki, nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid sistemləri təkcə ilkin oksidlərdən deyil, həmçinin onlar arasında yaranmış kimyəvi birləşmələrdən də ibarətdir. Nikel-sink oksid sistemi isə əsasən ilkin oksidlərdən ibarət olur. Göstərilmişdir ki, nümunələrin kristalliklik dərəcəsi nikel tərkibli katalizatorların aktivliyinə müxtəlif cür təsir göstərir. Belə ki, Ni-Mg-O katalizatorlar sistemi üçün kristalliklik dərəcəsinin artması ilə karbon(II) oksidin və hidrogenin çıxımları

artır. Eyni zamanda Ni-Zr-O katalizatorları üçün bu asılılıq maksimumdan keçir. Ni-Zn-O katalizatorlarında isə kristalliklik dərəcəsi karbon(II) oksidin və hidrogenin əmələ gəlməsinə praktiki olaraq təsir etmir.

4. İQ-spektroskopiya üsulu ilə prosesdə işlənmiş Ni-Mg-O, Ni-Zn-O və Ni-Zr-O oksid katalizatorları tədqiq edilərək müəyyən edilmişdir ki, binar nikel tərkibli katalizatorların səthində alkoholyat kompleksləri, karbonat-karboksilat strukturları və C-H rabitəsinə aid olan üç qrup udulma zolaqları mövcuddur.
5. Mg-Ni-O, Zn-Ni-O və Zr-Ni-O oksid sistemlərinin səthinin turşu xassələri onların buten-1-in buten-2-yə izomerləşməsi reaksiyasında aktivliyinin müəyyən edilməsi üsulu ilə öyrənilmişdir. Təyin edilmişdir ki, buten-1-in izomerləşməsi nikel-sink, nikel-sirkonium və nikel-maqnezium oksid katalizatorlarında yüksək sürətlə baş verir. Nikel-sink oksid katalizatorları üçün komponentlərdən birinin üstünlük təşkil elədiyi nümunələr nisbətən yüksək aktivliyə malik olur. Nikel-sirkonium katalizatorları üçün komponentlərin nisbəti eyni olan nümunələr yüksək aktivliyə malikdir. Nikel-maqnezium oksid katalizatorlarında izomerləşmə məhsullarının çıxımı katalizatorun tərkibində nikelin miqdarının artması ilə artır.
6. Sintez edilmiş Mg-Ni-O, Zn-Ni-O və Zr-Ni-O katalizatorlarının qliserinin buxar fazada hidrogenə konversiyası prosesində aktivliyinin onların buten-1-in buten-2-yə izomerləşməsi reaksiyasındakı aktivliyi ilə müqayisəsi aparılmışdır. Müəyyən edilmişdir ki, Mg-Ni-O və Zr-Ni-O katalizatorlarında buten-1-in buten-2-yə izomerləşmə reaksiyasının sürətinin artması ilə hidrogenin və karbon monooksidin əmələ gəlməsi azalır. Bu onu göstərir ki, bu katalizatorlar səthində qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyası əsasi mərkəzlərdə baş verir. Zn-Ni-O katalizatorlarında isə izomerləşmə reaksiyasının sürətinin artması ilə hidrogenin və karbon monooksidin əmələ gəlməsi nisbətən artır ki, bu da Zn-Ni-O katalizatorlarında qliserinin hidrogenə buxar fazalı konversiya reaksiyasının turşu mərkəzlərdə baş verməsini göstərir.
7. Aparılmış tədqiqatlar göstərir ki, qliserinin buxar fazalı konversiya reaksiyasında katalizatorların aktivliyi və adsorbsiya

olunmuş komplekslərin miqdarı arasında asılılıq mövcuddur. Təyin edilmişdir ki, Ni-Zn-O katalizatorunda səthdə aralıq komplekslərin miqdarının artması ilə hidrogen və karbon monooksidin çıxımında aşkar asılılıq müşahidə olunur. Ni-Zr-O katalizatorları üçün də analoji qanunauyğunluqlar müşahidə olunur. Eyni zamanda adsorbsiya olunmuş hissəciklərin udulma zolaqlarının intensivliyinin artması ilə hidrogen və karbon monooksidin çıxımı Ni-Mg-O katalizatorları üçün azalır.

Dissertasiya işinin əsas nəticələri aşağıdakı məqalə və tezislərdə çap edilmişdir:

1 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. О реакции паровой конверсии глицерина в водород. Тезисы докладов Республиканской научной конференции, посвященной акад. Т.Н.Шахтахтинскому, Баку, 2011, с.298;

2 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Термодинамический расчет реакции паровой конверсии глицерина в водород. «МЕНДЕЛЕЕВ-2013», VII всероссийская конференция молодых учёных, тезисы докладов, секция 5 физическая химия, Санкт-Петербург, 2013, с. 119-120.

3 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Паровая конверсия глицерина в водород на никель-цинк оксидной системе. I Beynəlxalq kimya və kimya mühəndisliyi konfransı, Tezislər və məqalələr, Bakı, 2013, s.1134-1135

4 Гасанова Ф.Ч., О возможных путях превращения глицерина в реакции его паровой конверсии. “Azərbaycan 2020: neft-qaz sənayesinin inkişaf perspektivləri” adlı elmi praktiki konfransının materialları, ADNA, Bakı, 2013, s. 78-80

5 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Изучение реакции изомеризации бутена-1 в бутены-2 на никель-цинк оксидной системе Akademik M.F.Nağıyevin 105 illiyinə həsr olunmuş elmi konfransın materialları, 2013, II cild, s.137-139.

6 Гасанова Ф.Ч., Изучение реакции изомеризации бутена-1 в бутены-2 на никель-магний оксидной системе Tezis

Gənc tədqiqatçıların II beynəlxalq elmi konfransı. Materiallar, Bakı, 2014, s.138.

7 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Термодинамический анализ протекания реакции паровой конверсии глицерина в водород, Известия высших учебных заведений Азербайджана, 2014, с. 39.

8 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Активность бинарных Ni-Zr-O катализаторов в реакции паровой конверсии глицерина, II

Российский конгресс по катализу «РОСКАТАЛИЗ» 2 - 5 октября

2014 г. Сборник тезисов, Том II, с. 252

9 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Превращение глицерина в водород в паровой фазе на магний-никель оксидных катализаторах, Всероссийская молодежная конференция-школа с международным участием «Достижения и проблемы современной химии» Санкт-Петербург, 10–13 ноября 2014 с.174

10 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Изучение реакции паровой конверсии глицерина в водород на бинарных никель содержащих оксидных катализаторах, IV всероссийская конференция по Органической химии. Сборник тезисов. Москва, 2015, с. 129

11 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Изомеризация бутена-1 в бутены-2 на никель-цирконий оксидной системе. Тезисы докладов республиканской научной конференции, посвященной 90-летию юбилею академика Тогрула Шахтахтинского, Баку, 2015, с. 64

12 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Рентгенографическое изучение магний-никель оксидных катализаторов. Tezis

Тезисы докладов республиканской научной конференции, посвященной 90-летию юбилею академика Тогрула Шахтахтинского, Баку, 2015, с.68

13 Hasanova F.C., Baghiyev V.L., Study of reaction of glycerol steam reforming to hydrogen over binary Ni-Zr-O catalysts, Azərbaycan Kimya Jurnalı, 2015, N 4, s.35-39

14 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л.. Изучение активности магний-никель оксидных катализаторов в реакции паровой

конверсии глицерина в водород, “Kimya problemləri” jurnalı, 2016, №1 s. 53.

15 Гасанова Ф.Ч., Багиев В.Л., Зависимость активности никель содержащих катализаторов в реакции паровой конверсии глицерина от их кристалличности. Проблемы современной науки и образования. Иваново (Россия), 2016, № 7, с. 12.

16. Hasanova F.C., Baghiyev V.L., Activity of binary nickel-zinc oxide catalysts in reaction of glycerol steam reforming into hydrogen, European applied sciences, Stuttgart (Germany), 2016, № 6, p.50.

17. Hasanova F.C., Baghiyev V.L., X-ray study of nickel oxide catalysts. News of Azerbaijan High Technical Educational Institutions, v.18, № 1, p.63-67

ФАРГАНА ЧИНГИЗ КЫЗЫ ГАСАНОВА

ПАРОВАЯ КОНВЕРСИЯ ГЛИЦЕРИНА В ВОДОРОД НА БИНАРНЫХ НИКЕЛЬ СОДЕРЖАЩИХ КАТАЛИЗАТОРАХ

Резюме

Синтезированы бинарные никель-цирконий, никель-магний и никель-цинк оксидные катализаторы различного состава. Установлено, что синтезированные катализаторы проявляют высокую активность в реакции паровой конверсии глицерина в водород. На самых активных катализаторах выход водорода достигает 90% при конверсии глицерина 100%.

Для установления влияния поверхностных и структурных свойств Mg-Ni-O, Zn-Ni-O и Zr-V-O катализаторов на их активности в реакции паровой конверсии глицерина в водород проведены исследования их фазового состава и физико-химических свойств. На основании рентгенографических исследований найдено, что никель-цирконий оксидная система состоит в основном из исходных оксидов в то время как никель-цинк и никель-магний оксидные системы состоят не только из исходных оксидов, но и гаммы химических соединений между ними. ИК-спектроскопические исследования показали, что на

поверхности бинарных никель содержащих катализаторов имеются три группы полос поглощения, относящиеся к С-Н и О-Н связям, алкоголятным и карбонатно- карбоксилатным комплексам.

Изучение кислотных свойств поверхности Mg-Ni-O, Zn-Ni-O и Zr-V-O оксидных систем показало, что в реакции изомеризации бутена-1 в бутены-2 активны никель-цирконий оксидные катализаторы с экимоляным отношением металлов и никель-цинк оксидные катализаторы с преобладанием одного из компонентов. На никель-магний оксидных катализаторах выходы продуктов изомеризации возрастают с ростом содержания никеля в составе катализаторе.

FARGANA CHINGIZ HASANOVA

STEAM REFORMING OF GLYCEROL INTO HYDROGEN OVER BINARY NICKEL-CONTAINING CATALYST

Abstract

Binary nickel-zirconium, nickel-magnesium and nickel-zinc oxide catalysts of different compositions have been synthesized. The synthesized catalysts exhibit high activity in the glycerol steam reforming reaction into hydrogen. Over the most active catalysts yield of hydrogen reaches 90% at a conversion of glycerol equal 100%.

Phase composition and physico-chemical properties of Mg-Ni-O, Zn-Ni-O and Zr-V-O catalysts were studied for investigation of the influence of surface and structural properties of the catalysts on their activity in the glycerol steam reforming reaction into hydrogen. Based on X-ray studies it is found that nickel-zirconium oxide system consists essentially of the initial oxides, while the nickel-zinc and nickel-magnesium oxide systems are not only from the initial oxides, but also from a number of its chemical compounds. Infrared spectroscopic studies have shown that on the surface of the binary nickel-containing catalysts, there are three groups of absorption

bands belonged to the C-H and O-H bond, alcoholate and carbonate-carboxylate complexes.

Study of acid-base surface properties of Mg-Ni-O, Zn-Ni-O and Zr-VO oxide systems showed that in the reaction of isomerization of butene-1 into butenes-2 are active nickel-zirconium oxide catalysts with equimolar metal ratio and nickel-zinc oxide catalysts with a predominance of one of components. Over nickel-magnesium oxide catalysts isomerization product yields increase with increasing nickel content in the catalyst.

**НАЦИОНАЛЬНАЯ АКАДЕМИЯ НАУК АЗЕРБАЙДЖАНА
ИНСТИТУТ КАТАЛИЗА И НЕОГАНИЧЕСКОЙ
ХИМИИ ИМЕНИ АКАД. М.Ф.НАГИЕВА**

На правах рукописи

ФАРГАНА ЧИНГИЗ КЫЗЫ ГАСАНОВА

**ПАРОВАЯ КОНВЕРСИЯ ГЛИЦЕРИНА В ВОДОРОД
НА БИНАРНЫХ НИКЕЛЬ СОДЕРЖАЩИХ
КАТАЛИЗАТОРАХ**

Специальность: 2316.01 – Химическая кинетика и катализ

АВТОРЕФЕРАТ

Диссертации на соискание ученой
степени доктора философии по
химическим наукам

Баку - 2016