

تهیه و شناسایی نانوکاتالیست جدید Ni-Pd/Al₂O₃ برای کلرزدایی از هیدروکربنهای

کلردار

نادر رستمی زاده*

دانشگاه آزاد اسلامی، واحد دزفول، گروه شیمی، دزفول، ایران

تاریخ پذیرش: ۹۱/۰۲/۱۳

تاریخ دریافت: ۹۰/۱۱/۰۷

چکیده:

در این طرح با ایده ای کاملاً نوین، با اختلاط محلول نمک نیترات فلزات نیکل و پالادیم با سل در حال تراکم پایه کاتالیست (آلومینیوم هیدروکسید)، که خود با پیش سازهای مختلف سنتز شده است، بافت نهایی دونه کاتالیست Ni-Pd/Al₂O₃ تهیه می گردد. بدین ترتیب که در یک مورد، قطره قطره آمونیاک غلیظ به محلول آبی نیترات آلومینیوم اضافه شده و رسوب هیدروکسید آلومینیوم با $pH = 10$ حاصل می شود، سپس محلول آبی نیترات نیکل و پالادیم به سل در حال تراکم اضافه می گردد که پس از گذشت شش ساعت پیش ساز کاتالیست اول (C1) تهیه می شود، در مورد دیگر محلول آبی آلومینیوم ایزوپروپیلات در دمای ۷۵°C رفلاکس شده و آنگاه برای خروج الکل حاصل از هیدرولیز، دو ساعت در دمای ۹۰°C نگه داشته می شود، سپس محلول آبی نیترات نیکل و پالادیم به سل در حال تراکم اضافه می گردد که پس از گذشت مدت زمان مورد نظر، پیش ساز کاتالیست دوم (C2) تهیه می گردد. زل بدست آمده خشک شده و سپس در دمای ۶۵۰°C کلسینه می شود و بافت نهایی کاتالیستهای (C1, C2) حاصل می شود. در نهایت برای شناسایی کاتالیست از تکنیکهای BET، XRD، XRF، PSA و SEM استفاده می شود، داده های حاصل از BET و PSA برای کاتالیست C1 و C2 بترتیب سطح موثر ۱۹۶ و ۲۲۶ m²/g و گستره اندازه ذرات ۳۰۰ تا ۷۰۰ nm را نشان می دهد.

واژگان کلیدی: کاتالیست، کلرزدایی، Ni-Pd/Al₂O₃

مقدمه:

فرآیند کلرزدایی رازدودیدگاه مهم می توان مورد بررسی قرار داد، دیدگاه اول به لزوم شکل گیری و توسعه این فرآیند برای بازیافت ترکیبات کلردار مختلف مستعمل که کاربری های صنعتی و خانگی بسیاری دارند، جهت کاهش صدمات زیست محیطی این ترکیبات، توجه دارد و در دیدگاه دوم کلرزدایی بعنوان بخشی از یک فرآیند صنعتی مانند صنعت پالایش نفت که وجود ترکیبات کلردار عامل نامطلوب برای ادامه فرآیند صنعتی محسوب می شود، مورد توجه است و می بایست برای حذف آن تدبیری اندیشید. در اینجا از این دو منظر فرآیند کلرزدایی و لزوم آنرا مورد بحث قرار می دهیم و متذکر می شویم که هدف و کاربرد پروژه حاضر پرداختن به دیدگاه دوم خواهد بود.

دیدگاه اول؛

با توسعه سریع تکنولوژی و صنعت، مصرف پلاستیک‌ها (در این بین، پلاستیک پلی وینیل کلرید در سطح وسیعی در عرصه‌های صنعتی، کشاورزی و داروسازی مورد استفاده قرار می‌گیرد) و ترکیبات آلی کلردار بعنوان مواد شیمیایی صنعتی، حدواسطه‌هایی برای سنتز ترکیبات آلی و حلال‌های آلی، بطور قابل توجهی در حال افزایش است. به همین دلیل وجود ضایعات پلاستیکی به یک مشکل زیست محیطی مهم در سطح جهانی تبدیل شده است بطوریکه تنها در ایالات متحده امریکا، اروپا و ژاپن سالانه حدود ۵۰ میلیون تن ضایعات پلاستیکی تولید می‌شود، با این رشد روزافزون ضایعات، تعداد مکان‌های دفع زباله در حال کاهش است و از طرفی محل‌های دفع زباله به دلیل حضور مواد افزودنی پلاستیکی مانند فتالات‌ها و رنگینه‌های مختلف می‌توانند موجب آلودگی آبهای زیرزمینی شوند.

از این رو از سال‌های دور سوزاندن مواد پلاستیکی بعنوان روشی جهت از بین بردن ضایعات پلاستیکی مورد توجه بوده است، اما این عمل باعث انتشار گازهای سمی مختلفی از قبیل اکسید نیتروژن، اکسید گوگرد، غبار گوگرددار، دی اکسین‌ها (اعضائی از خانواده هیدروکربنهای آروماتیک کلردار و بسیار سمی) می‌شود، از طرفی بازیافت مکانیکی ضایعات پلاستیکی و تبدیل آنها به محصولات پلاستیکی جدید با کیفیت پایین، مشکل ضایعات پلاستیکی را در بلند مدت از بین نمی‌برد و بنابراین تبدیل ضایعات پلاستیکی به مواد شیمیایی پایه از طریق واکنشهای شیمیایی همچون هیدرولیز (آبکافت)، متانوکافت، آمونیاکافت توسعه پیدا کرده است. تحقیقات زیادی در زمینه تفکافت پلاستیک‌های با، یا بدون ترکیب با PVC برای تبدیل به سوخت‌های مایع صورت گرفته است، اما یکی از مشکلات مهم در تفکافت PVC، تولید کلرید هیدروژن، ترکیبات غیر آلی و آلی کلردار در طول مراحل اولیه فرآیند تفکافت است که حضور چنین ترکیباتی در محصولات تفکافت نامطلوب است. تقریباً تمام ترکیبات آلی کلردار، بویژه آروماتیک‌های کلردار، مواد شیمیایی سمی بشمار می‌روند و به سختی تجزیه می‌شوند، برای روشن‌تر شدن ابعاد مختلف این موضوع مثال‌هایی را بطور خاص مطرح کرده و مورد تحلیل قرار می‌دهیم.

هگزا کلروبنزن (HCB) بعنوان یک ماده قارچ کش به دلیل تشکیل زیست توده‌های پایدار و سمی جزء یکی از ۱۲ آلاینده آلی (POPs) از طرف سازمان ملی استکهلم اعلام گردیده، تجزیه محیطی HCB در شرایط بی‌هوای در خاک و لایه‌های رسوبی، امکان پذیر است اما بسیار کند صورت می‌گیرد. مطالعات نشان داده است حدود ۸۰٪ از HCB تجزیه شده، محصولات جانبی ۳،۱-۵ تری کلرو بنزن (TCB) و ۳،۱-دی کلروبنزن (DCB) را بعد از یک دوره بیست ساله تولید می‌کنند. (نیمه عمر HCB در خاک و آبهای زیرزمینی به ترتیب ۳ الی ۶ و ۵ الی ۱۲ سال گزارش شده است).

پلی‌کلریدبای‌فنیل‌ها (PCBs) از سال ۱۹۳۰ بصورت تجاری به عنوان سیال‌های هیدرولیک و روان‌کننده، سیال‌های تبادلگرما و به عنوان مواد افزودنی در صنایع چسب و رنگ بکار برده شدند. این ترکیبات بدلیل پایداری عمومی و نیز ویژگی‌های دی‌الکتریکی بسیارخوبشان کاربردهای وسیعی دارند. اما استفاده از محصولات حاوی PCB مشکلات زیست محیطی

چشمگیری را به وجود می‌آورد، زیرا این ترکیبات با نیمه عمر بالا، در محیط و نیز در بافت‌های چربی‌دار انسانها و حیوانات تجمع پیدا کرده و اثرات سمی و زیان آوری را برجا می‌گذارند. از زمانیکه گزارشات مبنی بر سمیت این ترکیبات به صورت روز افزون منتشر شد، اروپاییان تصمیم به حذف کامل این ترکیبات تا سال ۲۰۱۰ گرفتند.

در حال حاضر PCB ها از طریق سوختن دردمای بسیار بالا از بین می‌روند که منجر به تشکیل دی بنزودی اکسین‌های چند کلره و دی بنزوفوران‌های چند کلره با سمیت بالا می‌شوند، بنابراین تحقیقات وسیعی برای کلرزدایی و بازیافت کاتالیستی دما پایین برای تبدیل PCB ها به هیدروکربن‌های مفید و قابل استفاده در حال انجام است. ۴،۲-دی کلروفنیل یک ماده اولیه در تولید علفکش‌ها و مواد دارویی و رنگ هاست که در سال حدود ۱۰ تن از این ماده وارد محیط زیست می‌شود. زیست تخریبی پایین این ماده و سمیت بالای آن، این ماده شیمیایی را در رده آلوده کننده‌های اولیه قرار داده است. ۱،۱-بیس (۴-کلروفنیل)-۲،۲-تری کلرواتان (DDT) به عنوان حشره کش، استفاده‌های زیادی در کشاورزی، مصارف مسکونی و برنامه‌های سلامت عمومی دارد، اما به دلیل سمیت آن برای انسان و اکوسیستم در بسیاری از کشورهای توسعه یافته استفاده از DDT از سال ۱۹۷۰ محدود یا متوقف شده است، اما در بسیاری از کشورهای گرمسیری هنوز کاربرد دارد، از طرفی در برخی کشورها بدلیل سیاستهای ممانعت از مصرف DDT، میزان زیادی از این ماده بلا استفاده ذخیره شده است (۹۴۰ تن در ژاپن) که تبدیل و تخریب این مواد نگرانی بزرگی را ایجاد کرده است، از این رو تحقیقات وسیعی جهت تبدیل این ماده به مواد اولیه سازنده آن صورت گرفته، از آن جمله به روشهای کلرزدایی شیمیایی مانند فوتوشیمی، الکتروشیمی و ... می توان اشاره کرد، اما در بسیاری از این موارد محصولات اصلی بازم کلودار هستند لیکن برای کلرزدایی کامل DDT، استفاده از کلرزدایی کاتالیتیکی توسعه پیدا کرده است، به عنوان مثال استفاده از کاتالیست‌هایی مانند کاتالیست‌های دوفلزی Mg/Pd، Pd/Fe و کاتالیست های Pd/C و ... را می‌توان نام برد. یک روش موثر برای جدا کردن کلریدهای آلی از ترکیبات دیگر، تبدیل آنها به کلریدهای معدنی است. در سیستم‌های زیرزمینی و طبیعی که مشخصه آنها آب کم و محتوای پایین اکسیژن است، زباله‌ها می‌توانند بخودی خود در طبیعت در طول هزاران سال تجزیه شوند. علاوه بر این به یک دوره طولانی برای تصفیه در طبیعت نیاز است. بنابراین روش‌های شیمیایی جدیدی برای بازیافت پلاستیک‌های کلردار مانند PVC توسعه یافته است که از آن جمله به فرآیندهای هیدروترمال جهت شبیه‌سازی سیستم‌های طبیعی برای تخریب پلاستیک‌ها می توان اشاره کرد، اما این فرآیند به تنهایی منجر به تخریب حرارتی و تشکیل محصولاتی با وزن مولکولی متفاوت و محتوای کلر کنترل نشده می شود. اما در مقایسه با فرآیندهای مختلفی که برای از بین بردن ضایعات کلردار استفاده شده است کلرزدایی کاتالیتیکی بعنوان یک روش قابل قبول که دردمای پایین انجام می گیرد و از طرفی به تولید محصولات با ارزش مانند اولفین ها ، اولفین‌های کلردار و ... منجر می‌شود ، مطرح است. به عبارت دیگر کلرزدایی کاتالیستی را می‌توان یک روش زیست سازگار و سبز به حساب آورد.

دیدگاه دوم:

کلرزدایی خوراک ورودی به واحد تولید هیدروژن در پالایشگاه‌ها می‌تواند مثالی بر این دیدگاه باشد. واحد هیدروژن در پالایشگاه‌ها، تولیدکننده هیدروژن مورد نیاز برای واحد ایزوماکس است. خوراک این واحد هیدروکربنهای ۱ تا ۶ کربنه است که از گازهای خروجی واحد تبدیل کاتالیستی و نیز گازهای خروجی از برج جذب آمین در فشار بالا و گازهای متان و پروپان برای جبران کمبود خوراک ورودی، تامین می‌شود. خوراک قبل از ورود به Shift, Reformer و Conversion می‌بایست کلرزدایی و گوگردزدایی گردد، زیرا ترکیبات کلردار و گوگردار برای کاتالیست‌های دو فرآیند مذکور سم محسوب می‌شوند. در پروژه حاضر تلاش بر این است که کاتالیست کلرزدایی از خوراک واحد هیدروژن تهیه گردد و گامی در جهت بومی سازی تهیه این سبک کاتالیست‌ها برداشته شود [۷-۱].

بخش تجربی:

مواد مورد استفاده:

مواد اولیه برای این آزمایش شامل آلومینیوم تری ایزوپروپیلات $(Al(C_3H_7O)_3)$ ، آلومینیوم نیترات نه آبه $(Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O)$ ، نیکل نیترات شش آبه $(Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O)$ و پالادیم نیترات $(Pd(NO_3)_2 \cdot 6H_2O)$ از شرکت مرک و آمونیاک ۲۸٪ (NH_3) از شرکت آلد ریچ تهیه شده است.

تهیه پایه کاتالیست:

تهیه پایه A:

۳۰ گرم آلومینیوم تری ایزوپروپیلات با سرعت 2 g/min به بالن ته گرد حاوی ۱۰۰ میلی لیتر آب مقطر با دمای ۷۵ C اضافه می‌گردد، سپس با بستن سیستم رفلکس به مدت نیم ساعت مخلوط واکنش با هم زدن شدید رفلکس می‌شود، بعد از باز کردن سیستم رفلکس دمای سوسپانسیون تا ۹۰ C افزایش داده می‌شود و ۲ ساعت در این دما باقی می‌ماند تا الکل ایجاد شده در فرآیند هیدرولیز بطور کامل خارج گردد. سل بدست آمده چندین مرتبه با آب شستشو داده شده و برای تهیه کاتالیست اول (C1) مورد استفاده قرار می‌گیرد.

تهیه پایه B:

در یک بشر، محلول ۵۵ گرم آلومینیوم نیترات در ۱۰۰ میلی لیتر آب مقطر را تهیه کرده (pH~4) و در حالیکه محلول به شدت هم می‌خورد به آن قطره قطره آمونیاک اضافه می‌شود تا pH مخلوط به ۱۰ برسد. بعد از ۲ ساعت سل بدست آمده، صاف شده و شستشو داده می‌شود تا محلول زیر صافی خنثی گردد، سپس برای تهیه کاتالیست دوم (C2) مورد استفاده قرار می‌گیرد.

تهیه کاتالیستهای نهایی:

تهیه کاتالیست (C1):

سه گرم نمک نیکل نیترات و 0.03 گرم نمک پالادیم نیترات که در 20 میلی لیتر آب مقطر حل شده، به پیش ماده پایه A در مرحله کهنگی ژل (ageing)، در حالیکه بشدت به هم می خورد، قطره قطره اضافه می شود و 6 ساعت زمان داده می شود تا مراحل ژله ای شدن و هضم تکمیل گردد. پیش ماده بدست آمده، در دمای 120°C به مدت 10 ساعت خشک شده و در کوره ای با قابلیت تنظیم دمایی با سرعت 5 درجه بر دقیقه تا 650°C حرارت داده می شود و در آن دما 3 ساعت کلسینه می گردد، بدین ترتیب کاتالیست C1 تهیه می شود.

تهیه کاتالیست (C2):

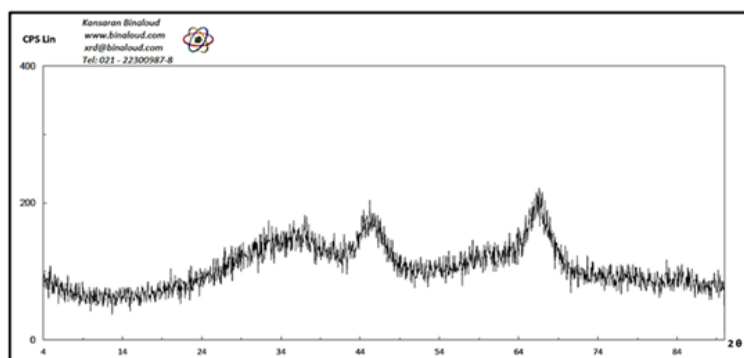
سه گرم نمک نیکل نیترات و 0.03 گرم نمک پالادیم نیترات که در 20 میلی لیتر آب مقطر حل شده به پیش ماده پایه B که شرح تهیه آن در بخش قبلی ارائه شده در مرحله کهنگی ژل، در حالیکه بشدت هم می خورد قطره قطره اضافه شده و 6 ساعت زمان داده می شود تا مراحل ژله ای شدن و هضم تکمیل گردد، پیش ماده بدست آمده، در دمای 120°C به مدت 6 ساعت خشک شده و در کوره ای با قابلیت تنظیم دمایی با سرعت 5 درجه بر دقیقه تا 650°C حرارت داده می شود و در آن دما 3 ساعت کلسینه می گردد، بدین ترتیب کاتالیست C2 تهیه می شود.

شناسایی کاتالیست های سنتز شده:

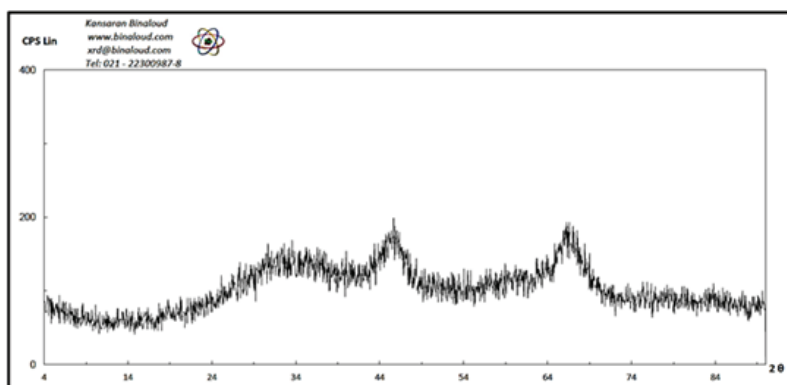
در این پروژه برای شناسایی فاز کاتالیست نهایی و مورفولوژی سطح کاتالیست و نیز سطح موثر و ترکیب درصد و گستره اندازه ذرات کاتالیست به ترتیب از تکنیک های شناسایی SEM، BET، XRF، PSA و XRD بهره گرفته شده است.

فاز شناسی کاتالیست ها بوسیله اشعه $X(XRD)$:

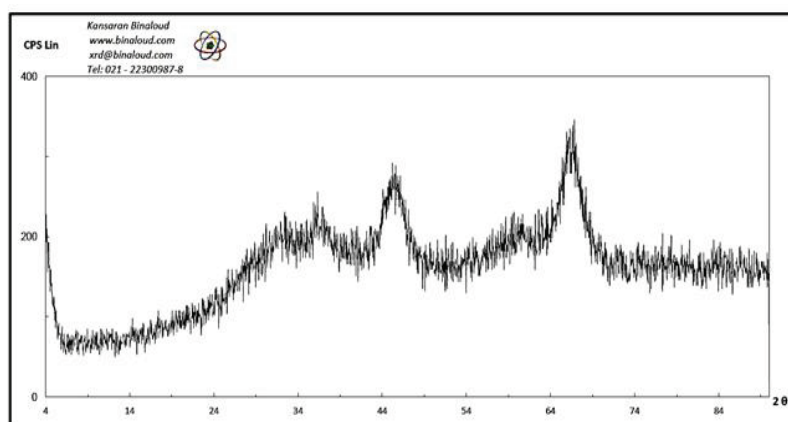
آنالیز اشعه X به منظور شناسایی فازها بر روی پودر حاصل از کلسیناسیون پیش سازهای کاتالیست در دماهای مختلف بوسیله دستگاه PW1800 Philips با کاتد مس (k_{α}) انجام شد.



شکل ۱. الگوی XRD پودر کاتالیست C1 با دمای کلسیناسیون 650°C .



شکل ۲. الگوی XRD پودر کاتالیست C2 با دمای کلسیناسیون C ۶۵۰



شکل ۳. الگوی XRD پودر کاتالیست C2 با دمای کلسیناسیون C ۸۵۰

تعیین مساحت سطح کاتالیست ها با استفاده از تکنیک BET:

اندازه گیری مساحت سطح موثر، قطر حفرات و حجم کل حفرات با استفاده از دستگاه Quantachrome Instrument

مدل Nova 2000 انجام شده و نتایج زیر بدست آمد.

جدول ۱. داده های حاصل از تکنیک BET برای کاتالیست های C1 و C2

نمونه	مساحت سطح (m ² /g)	قطر حفرات (nm)	حجم کل حفرات (cm ³ /g)
C1	۱۹۶	۶۱۰۲	۰/۲۹
C2	۲۲۶	۶۱۸	۰/۳۹

تعیین ترکیب درصد کاتالیست نهایی با استفاده از تکنیک XRF:

آنالیز فلورسانس اشعه X به منظور تعیین ترکیب درصد عناصر موجود در بافت کاتالیست های سنتز شده، روی پودر

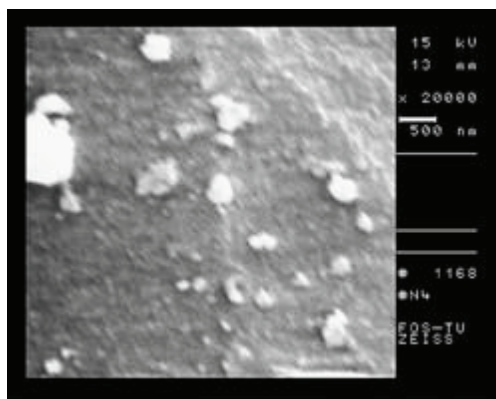
حاصل از کلسیناسیون پیش سازهای کاتالیست، بوسیله دستگاه PW1480 Philips انجام شده و نتایج زیر بدست آمد.

جدول ۲. داده های حاصل از تکنیک XRF برای کاتالیست C2

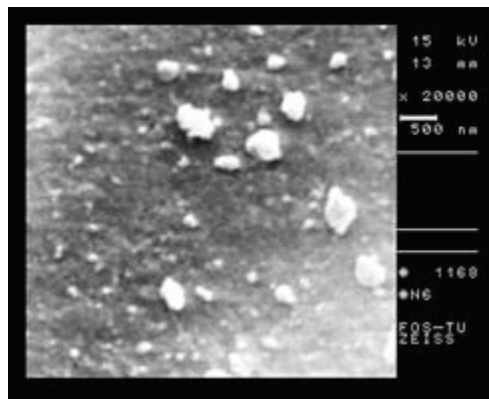
نمونه	%Al ₂ O ₃	%PdO	%NiO	%سایر
کاتالیست C2	۸۹/۶۳	۰/۱۵	۸/۱۷	~۲

تعیین مورفولوژی سطح کاتالیست با استفاده از میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM):

تصاویر SEM مربوط به پودر کاتالیست‌های سنتز شده با دستگاه S-360 ثبت و مورد بررسی قرار گرفت.



شکل ۵. تصاویر SEM پودر کاتالیست C2



شکل ۴. تصاویر SEM پودر کاتالیست C1

تعیین گستره اندازه ذرات با استفاده از تکنیک PSA (Particle Size Analyzer):

آنالیز PSA با استفاده از دستگاه Horiba LB550 انجام گرفت و نتایج زیر حاصل شد.

جدول ۳. داده های حاصل از تکنیک PSA برای کاتالیست C1

نمونه	اندازه متوسط ذرات	گستره اندازه ذرات
کاتالیست C1	۴۳۱nm	۳۰۶-۶۹۴nm

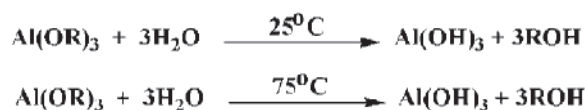
بحث و نتیجه گیری:

بر اساس مواد اولیه دو روش مهم برای تهیه سل بوهمیت (شبه بوهمیت) وجود دارد، که در تحقیق حاضر با ساده کردن روشهای متداول و گزارش شده قبل، از هردو روش یعنی هیدرولیز آلکوکسید و استفاده از نمک غیرآلی آلومینیوم جهت تهیه سل بهره گرفته شد و در نهایت با روشی ابتکاری جهت رسیدن به توزیع مناسب ذرات فلزات واسطه روی بستر کاتالیست، محلول نمک فلزات واسطه در مرحله تراکم ژل اضافه شد. در بین بسترهای کاتالیستی، γ -Al₂O₃ بدلیل خواص ویژه مکانیکی و حرارتی، گزینه ای مناسب بعنوان بستر می‌باشد. نقش نیکل و پالادیم بعنوان فاز فعال جهت ایجاد اتمهای فعال هیدروژن شناخته شده است که در این تحقیق به دلیل ارزان قیمت بودن نیکل نسبت به Pd، درصد بیشتری از نیکل نسبت به Pd مورد

استفاده قرار گرفته و نیز با توجه به اینکه کاتالیستهای دو فلزی نتیجه مطلوبتری دارند، از ترکیب این دو استفاده شده است [۸-۱۰].

هیدرولیز آلومینیوم تری ایزوپروپیلاتک:

باید توجه داشت بخاطر فعالیت شدید الکوکسیدها با آب، واکنش هیدرولیز می تواند با آب سرد یا آب داغ صورت بگیرد. کار تجربی در هر دو شرایط انجام شد. اگر از آب سرد (۲۵ °C) برای هیدرولیز استفاده شود، بعد از لخته زدایی مقداری رسوب سفید رنگی در ته ظرف مشاهده می شود که نتیجه آن عدم دسترسی به سل پایدار است، بدین صورت که در اثر ورود الکوکسید به آب سرد، واکنش هیدرولیز انجام گرفته و بعد از مدتی محصول واکنش به بایریت ($\beta\text{-Al(OH)}_3$) با ذرات بزرگ تبدیل می شود [۱۱]. در حالیکه اگر آب گرم (حدود ۷۵ °C) برای هیدرولیز استفاده شود، سل بدست آمده برای ماهها پایدار خواهد بود. در زیر خلاصه ای از واکنش های انجام شده در دمای پایین و بالا نشان داده شده است.



میزان آب نیز از جمله متغیرهای موثر در مرحله هیدرولیز است هرچه میزان آب افزایش یابد واکنش هیدرولیز سریعتر انجام می گیرد، با توجه به نتایج بدست آمده رسیدن به سل شفاف در مرحله بعدی با میزان آب اولیه کم (کمتر از دوازده مول به ازای هر مول Al) امکان پذیر نخواهد بود زیرا واکنش ها به صورت کامل انجام نمی گیرند [۱۲-۱۳].

باید در نظر داشت که مقادیر زیاد آب نیز سبب افزایش زمان خشک شدن و افزایش مدت تبدیل سل به ژل خواهد شد. با توجه به مطالب فوق، نسبت آب به الکوکسید و دمای انجام فرآیند از جمله مهمترین فاکتورهای موثر بر خواص ژل نهایی هستند.

تجزیه و تحلیل داده ها:

مطالعه و شناسایی فازها:

بوهمیت دارای ساختار لایه ای است که لایه ها توسط پیوند هیدروژنی بهم متصل شده اند. هشت وجهی های اکسیژنی ساختار بوهمیت، که لایه اکسیژنی آن را بوجود می آورند دو نوع متفاوت اکسیژن را سبب میشوند، اکسیژن بین دو لایه بین چهار هشت وجهی تقسیم میشود در حالیکه اکسیژنهای داخلی تنها بین دو هشت وجهی در اشتراک اند و این اکسیژن ها در اثر ایجاد پیوند هیدروژنی سبب وجود آب بین لایه های و آرایش مولکول آب و در نهایت ایجاد حالت کریستالی میشوند، شبه بوهمیت حالت ضعیف کریستال اکسی هیدروکسید است که میزان آب آن حدود یک و نیم برابر بوهمیت است بدین ترتیب شبه بوهمیت دارای کریستال های $\gamma\text{-AlOOH}$ است ولی مقداری آمورف است، پس بوهمیت که فاز کریستالی محدود و ناچیز در آن وجود دارد شبه بوهمیت است. آنچه در مورد تبدیلات مسیر بوهمیت به آلومینا دارای اهمیت می باشد،

این است که تبدیلات در لایه‌ها (بصورت لایه ای) صورت می‌گیرد، بدین ترتیب در هنگام حرارت دهی بوهمیت، لایه‌های هیدروکسیدی از بین می‌روند در صورتیکه لایه‌های اکسیژنی بدون تغییر باقی می‌مانند و اسکلت ساختار γ -Al₂O₃ را فراهم می‌آورد [۱۴، ۱۵].

در الگوهای XRD مربوط به پودر کاتالیست‌های C1 (۶۵۰°C) و C2 (۶۵۰°C) و C2 (۸۵۰°C)، بر اساس کارت ۰۳۶۷-۴۸ فاز اصلی، گاما آلومینا تشخیص داده شد که فازهای مربوط به پالادیم اکسید و نیکل اکسید با توجه به آمورف بودن گاما آلومینا و پهنای پیک‌ها پوشیده شده‌اند، برای اثبات این موضوع یکی از نمونه‌ها در دمای دمای ۸۵۰ °C کلسینه شده و مجدداً با XRD مورد مطالعه قرار گرفت، الگوی بدست آمده نشان می‌دهد که افزایش درجه حرارت موجب پیشرفت تبدیل فازی و رشد دانه می‌شود و بدین ترتیب پیک‌های موجود به وضوح بیشتری می‌رسد و پیک‌های مربوط به اکسیدهای پالادیم و نیکل تا حدودی مشخص‌تر می‌شوند.

مطالعات سطح و توزیع اندازه ذرات:

داده‌های حاصل از تکنیک BET نشان می‌دهد، کاتالیست تهیه شده از پیش ساز آلومینیوم نترات از نظر سطح موثر، قطر و حجم حفرات نسبت به پیش ساز آلکوکسیدی مقادیر بیشتری را نشان می‌دهد که این می‌تواند به دلیل بزرگ بودن یون NO₃⁻ و اثر کم آن بر بار سطحی که منجر به دافعه بیشتر بین ذرات می‌گردد، باشد. تصاویر SEM کاتالیست‌ها و نیز آنالیز PSA نشان دهنده به ترتیب توزیع مناسب ذرات از نظر پخش ذرات فاز اصلی کاتالیست (نیکل و پالادیم)، روی سطح بستر (ذرات روشن در سطح بستر)، و توزیع اندازه ذرات می‌باشد، که عوامل مهمی در کارایی کاتالیست در فرآیندهای کاتالیستی هستند.

نتیجه گیری:

نتایج بدست آمده در این تحقیق نشان می‌دهد که با استفاده از روش سل-ژل می‌توان به پایه‌های کاتالیستی گاما آلومینا با خواص منحصر بفرد (سطح موثر بالا، محدوده تخلخل باریک و حجم تخلخل بالا) دست یافت. روش بکاررفته در این تحقیق می‌تواند روشی کارآمد و منعطف جهت تغییر ترکیب درصد اجزا سازنده کاتالیست و همچنین روش مناسبی برای داشتن توزیع مناسب ذرات موثر در بافت بستر کاتالیست، باشد.

تشکر و قدردانی:

از حوزه معاونت محترم پژوهشی دانشگاه آزاد اسلامی واحد دزفول برای حمایت مالی این تحقیق تشکر و قدردانی به عمل می‌آید.

Preparation and Characterization of Novel Ni-Pd/Al₂O₃ nanocatalyst for dechlorination of chlorinated hydrocarbons

Nader Rostamizadeh*

Department of Chemistry, Dezful Branch, Islamic Azad University, Dezful, Iran

Received: 26 January 2012

Accepted: 2 May 2012

Abstract

In this study with a unique method, two samples of Ni-Pd/Al₂O₃ nanocatalyst were synthesized by new type of sol-gel method and with different aluminum precursors. In one case ammonia solution was added drop by drop to a well-stirred aqueous solution of aluminum nitrate to precipitate hydroxide in the pH =10, after gelation for 2 hours, nickel and palladium nitrate salts solution added to gel in aging step, after 6 hours catalyst(C1) precursor was prepared. In other case aluminum isopropoxide was refluxed at 70°C and then the suspension kept at 90°C/2 h for remove of alcohol, remains steps for preparation of catalyst (C2) precursor, were at the same of above. The gels washed with deionized water, and dried at 120°C then calcinated at 650 °C/5 h in air to produced porous catalysts (C1 and C2). The obtained catalysts characterized by SEM, XRF, XRD, BET and PSA techniques. These powders showed BET surface area, 196 and 226 m²/g and PSA data 300 to 700 nm for C1 and C2 respectively.

Keywords: Catalyst, Dechlorination, Ni-Pd/Al₂O₃

*. **Corresponding author:** Department of Chemistry, Dezful Branch, Islamic Azad University, Dezful, Iran
E-mail address: Rostamizadeh59@gmail.com

مراجع:

- [1] A. Mohammad Farhat, *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, **74** (2005) 282.
- [2] G. Gryglewicz, *Fuel*, **85** (2006) 374.
- [3] Y. Ukisu, *J. Hazard. Mater.* **152** (2008) 287.
- [4] L. Wei, *Chemosphere* **72** (2008) 53.
- [5] Z. Guohua, *Polym. Degrad. Stabil.* **94** (2009) 1047.
- [6] J. Anotai, *J. Hazard. Mater.* **177** (2010) 244.
- [7] M. Keane, *Chem. Eng. J.* **166** (2011) 1044.
- [8] B. Beguin, E. Garbowski and M. Primet, *Appl Catal.* **75** (1991) 119.
- [9] T. E. Mallouk, B. Schrick and J. L. Blough, *Chem. Mater.* **14** (2002) 5140.
- [10] W. H. Zhang, X. Quan and J. X. Wang, *Chemosphere* **65** (2006) 58.
- [11] N. Dilsiz and G. Akovali, *J. Mater. Sci. Eng A.* **332** (2002) 91.
- [12] B. E. Yoldas, *Am. Ceram. Bulletin*, **54** (1975) 286.
- [13] B. E. Yoldas, *Us Patent* 3681113, 1 August 1972.
- [14] W. N. Martens, R. L. Frost and J. Barlett, *J. Mater. Chem.* **200** (2011) 1681.
- [15] R. W. Hicks and T. J. Pinnavaia, *J. Chem. Mater.* **15** (2003) 78.