

THÔNG TIN LUẬN ÁN TIẾN SĨ

Tên đề tài: *Nghiên cứu tổng hợp, đặc trưng và hoạt tính oxy hóa các hợp chất hữu cơ dễ bay hơi của các xúc tác nano vàng mang trên than hoạt tính dạng hạt.*

Chuyên ngành: **Kỹ Thuật Hóa Học** Mã số: **62.52.03.01**

Họ tên NCS: **Biện Công Trung**

Người hướng dẫn: **1: PGS.TS. Nguyễn Quang Long**

2: PGS.TS. Ngô Thanh An

Cơ sở đào tạo: **Trường Đại học Bách Khoa, Đại học Quốc Gia Thành Phố Hồ Chí Minh.**

Thông tin tóm tắt về những đóng góp mới về mặt học thuật, lý luận của luận án

Các năm gần đây để xử lý các hợp chất hữu cơ dễ bay hơi (VOCs) gây ô nhiễm môi trường, việc tìm các xúc tác mới hiệu quả ở vùng nhiệt độ thấp và xúc tác có dạng hạt dễ sử dụng luôn được quan tâm phát triển. Do đó, nghiên cứu này tổng hợp các chất xúc tác nano kim loại quý Au, Pd và Au(Pd) mang trên than hoạt tính dạng hạt có chứa và không chứa CeO₂ để làm xúc tác oxy hóa VOCs ở nhiệt độ thấp và có mặt hơi ẩm.

Luận án đã đưa ra được sự ảnh hưởng của các thành phần chất xúc tác, điều kiện tổng hợp đến các tính chất lý hóa, cấu trúc, đặc tính hình thái và hoạt tính xúc tác của các chất xúc tác dạng hạt (kích thước 0,5 – 1 mm) nano-Me/GC và nano-Me/CeO₂/GC (Me = Au, Pd, Au(Pd)) cho phản ứng oxy hoá toluen, fomandehit (là 2 VOCs đại diện) ở nhiệt độ thấp và điều kiện có hơi ẩm.

Các vật liệu xúc tác dạng hạt nano-Me/GC và nano-Me/CeO₂/GC đã được tổng hợp thành công bằng phương pháp đơn giản metal-sol, trong đó than hoạt tính, là vật liệu kỵ nước được sử dụng làm chất mang để tạo xúc tác oxy hóa. Vật liệu được khảo sát đặc trưng bằng các phương pháp: nhiễu xạ tia X (XRD), hấp phụ – giải hấp phụ N₂, kính hiển vi điện tử quét (SEM), kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM), kính hiển vi điện tử truyền qua phân giải cao (HRTEM), quang phổ nguồn plasma cảm ứng cao tần kết nối khối phổ (ICP-MS), phổ tán xạ năng lượng tia X (EDS) và phương pháp quang phổ hồng ngoại (FTIR), xác định điểm đẳng điện (PZC), phương pháp khử hydro theo chương trình nhiệt độ (H₂-TPR), phương pháp khử hấp phụ oxy theo chương trình nhiệt độ (O₂-TPD).

Kết quả phân tích đặc trưng vật liệu cho thấy sự kết hợp của Au và Pd trên bề mặt chất xúc tác lưỡng kim Au(Pd) tạo kích thước hạt Au(Pd) nhỏ hơn so với xúc tác riêng lẻ Au và Pd. Kích thước hạt kim loại giảm từ khoảng 8,4 nm (Au) trên xúc tác đơn kim loại xuống đến dưới 5 nm khi cả Au và Pd cùng hiện diện. Hơn nữa, sự tương tác của các hạt nano Au(Pd) với bề mặt CeO₂ dẫn đến sự suy yếu của liên kết Ce-O làm tăng khả năng phân tán pha hoạt động, và cung cấp oxy mạng cho phản ứng, làm cho hoạt tính xúc tác của các hạt nano kim loại quý trên các xúc tác nano-Me/CeO₂/GC được tốt hơn.

Tại 150 °C, xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC có độ chuyển hóa toluen đạt 81,2%, cao hơn khoảng 17% so với độ chuyển hóa toluen của xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/GC. Đặc biệt, ở nhiệt độ phản ứng 175 °C, xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC có độ chuyển hóa toluen đạt 96,5%, cao hơn khoảng 38% so với độ chuyển hóa toluen của xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/GC. Xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC có độ bền tốt sau 50 giờ phản ứng. Trong khảo sát độ chuyển hóa fomandehit ở nhiệt độ phòng (30 °C), xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC có độ chuyển hóa fomandehit đạt 84,2%, cao hơn khoảng 22% so với độ chuyển hóa fomandehit của xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/GC. Vì vậy độ chuyển hóa toluen/fomandehit của xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC cao hơn đáng kể so với xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/GC trong cùng điều kiện khảo sát và có sự hiện diện của hơi nước. Kết quả còn cho thấy hơi nước làm giảm đáng kể hoạt tính của các vật liệu trong nghiên cứu này do tính kỵ nước của than hoạt tính dạng hạt.

Phân tích động học cho quá trình oxy hóa toluen bằng xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/GC cho thấy phản ứng xảy ra theo mô hình Langmuir–Hinshelwood với toluen và oxy hấp phụ trên hai tâm xúc tác khác nhau, trong đó các hạt nano kim loại Au(Pd) sẽ hấp phụ O₂ có trong dòng khí đầu vào phản ứng với toluen bị hấp phụ trên tâm cacbon là bước xác định tốc độ phản ứng, phù hợp với dữ liệu thực nghiệm. Mặt khác, nghiên cứu động học cho phản ứng oxy hóa toluen bằng xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC cho thấy mô hình Mars-van Krevelen là phù hợp với dữ liệu thực nghiệm thu được. Mô hình phản ứng theo Mars-van Krevelen mô tả như sau: phản ứng oxy hóa toluen với chất xúc tác 0,50%Au-0,27%Pd/CeO₂/GC xảy ra qua hai giai đoạn. Giai đoạn đầu tiên, toluen bị hấp phụ phản ứng với oxy mạng trong xúc tác tại tâm xúc tác Au(Pd), dẫn đến CeO₂ ở trạng thái khử. Giai đoạn hai, CeO₂ đã bị khử sẽ bị oxy hóa trở lại bởi phân tử oxy trong pha khí.

Tập thể hướng dẫn

Nghiên cứu sinh

PGS.TS. Nguyễn Quang Long

PGS.TS. Ngô Thanh An

Biện Công Trung