

## THÔNG TIN LUẬN ÁN

Tên luận án: Nghiên cứu phản ứng oxy hóa sâu carbon monoxide và p-xylene trên xúc tác Pt + CuO với các chất mang khác nhau.  
Chuyên ngành: Kỹ thuật Hóa học  
Mã số: 62.52.01.03  
Họ và tên NCS: Nguyễn Trí  
Cán bộ hướng dẫn: GS.TSKH. Lưu Cẩm Lộc  
Tên cơ sở đào tạo: Trường Đại học Bách Khoa – ĐHQG-HCM.

### Tóm tắt luận án:

Các hệ xúc tác oxy hóa nhiệt độ thấp trên cơ sở CuO biến tính Pt trên các chất mang  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{TiO}_2$  và  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + \text{CeO}_2$  được điều chế và nghiên cứu các tính chất lý - hóa cũng như được khảo sát hoạt tính trong phản ứng oxy hóa sâu carbon monoxide (CO), p-xylene và hỗn hợp của chúng trong môi trường có và không có hơi nước. Các kết quả đạt được là sáng tỏ ảnh hưởng của thành phần xúc tác và thành phần tác chất phản ứng đến tính chất và hoạt tính xúc tác Pt + CuO. Pt và  $\text{CeO}_2$  một mặt làm suy yếu tương tác CuO với chất mang, mặt khác làm tăng độ phân tán và tăng mức độ khử của CuO, tăng hấp phụ CO, nhờ đó làm tăng hoạt tính của các xúc tác. Chất mang quyết định diện tích bề mặt riêng và tính kỵ nước của xúc tác. Thành phần tối ưu của xúc tác Pt + CuO trên các chất mang khác nhau đã được xác định. Xúc tác Pt + CuO trên chất mang  $\text{CeO}_2$  và  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 + \text{CeO}_2$  có hoạt tính cao trong phản ứng oxy hóa CO, chuyển hóa hoàn toàn CO ở 125 °C ở tốc độ dòng 75.000 h<sup>-1</sup>. Trong oxy hóa hỗn hợp CO và p-xylene, trên các xúc tác Pt + CuO, sự hiện diện của CO làm tăng độ chuyển hóa p-xylene, trong khi đó p-xylene lại ức chế oxy hóa CO. Sự hiện diện của hơi nước trong hỗn hợp khí không ảnh hưởng đến phản ứng oxy hóa CO trên các xúc tác Pt + CuO, trong khi đó nó ảnh hưởng đến phản ứng oxy hóa p-xylene. Sự đầu độc của hơi nước đến hoạt tính xúc tác là thuận nghịch.

Động học phản ứng oxy hóa CO, p-xylene và hỗn hợp trên các xúc tác Pt + CuO được nghiên cứu trên sơ đồ dòng tuần hoàn không gradient ở vùng nhiệt độ thấp 125 – 225 °C. Các phương trình động học ở dạng phân số, thể hiện phản ứng diễn ra trong vùng che phủ trung bình; CO và p-xylene tham gia phản ứng ở dạng phân tử hấp phụ, oxy tham gia phản ứng ở dạng nguyên tử. Thành phần và bản chất chất mang làm thay đổi tính chất, hoạt độ cũng như khả năng hấp phụ của xúc tác Pt + CuO nhưng chúng không làm thay đổi quy luật động học của các phản ứng. Trong oxy hóa hỗn hợp, sự ảnh hưởng tương hỗ giữa CO và p-xylene là phức tạp, có sự hình thành hợp chất trung gian mới, làm thay đổi động học phản ứng.

Kết hợp kết quả nghiên cứu động học trong vùng ổn định và qui luật phản ứng trong vùng chưa ổn định được nghiên cứu bằng phương pháp phản hồi nhất thời, cơ chế phản ứng oxy hóa CO trên các hệ xúc tác Pt + CuO đã được đề xuất. Phản ứng diễn ra song song theo 2 cơ chế Langmuir-Hinshelwood và Mars-Van Krevelen. CO

tham gia phản ứng ở dạng hấp phụ phân tử, oxy tham gia phản ứng ở dạng nguyên tử kể cả oxy dạng hấp phụ cũng như oxy từ mạng của chất xúc tác.

### **Những đóng góp của luận án:**

- + Đã chế tạo thành công các xúc tác hỗn hợp mang ưu điểm của xúc tác oxide kim loại và kim loại quý trên cơ sở kết hợp CuO và Pt và sử dụng chất mang kỵ nước. Đặc điểm của hệ xúc tác này là có hoạt độ oxy hóa cao ở nhiệt độ thấp và không bị sự hấp phụ của hơi nước kìm hãm.
- + Đã làm sáng tỏ tương tác của các tác chất có bản chất khác nhau trong oxy hóa hỗn hợp trên các hệ xúc tác Pt + CuO và chứng minh trên hệ xúc tác hỗn hợp này đã khắc phục được nhược điểm của xúc tác Pt là sự kìm hãm của CO trong oxy hóa các hydrocarbon.
- + Đề xuất phương trình động học phản ứng oxy hóa sâu CO, p-xylene và hỗn hợp trên các xúc tác Pt + CuO và đề xuất cơ chế phản ứng oxy hóa CO trên các xúc tác hỗn hợp Pt + CuO góp phần hoàn thiện lý thuyết phản ứng oxy hóa CO trên hệ xúc tác hỗn hợp Pt + CuO với các chất mang khác nhau

Cán bộ hướng dẫn

Nghiên cứu sinh

GS.TSKH. Lưu Cẩm Lộc

Nguyễn Trí