THE PLATINUM PROMOTING EFFECTS TO THE LPG AROMATIZATION

Bui Thu Ha
Ton Duc Thang University

ABSTRACT

In this report, the platinum promoting effects to the LPG aromatization were investigated by comparing aromatization active of the two catalysts: Ga/H-ZSM-5 and Pt-Ga/H-ZSM-5.

Platinum has the promoting effects in most of investigated catalyts, especially in Pt-Ga/H-ZSM-5 in which gallium content is 1,2%, the ratio between gallium and platinum is 10^3:1 and which is activated in reducing environment (hydrogen). The platinum promoting effects show in some aspect, such as : increasing conversion of LPG to aromatics, catalytic stable and selectivity of toluene and xylene.

THƠM HÓA ALKAN NHẸ TRÊN XÚC TÁC MOLIPDEN

Hoàng Thị Yến
Khoa Khoa học ứng dụng, Trường đại học Tôn Đức Thắng
Điện thoại: 08 – 8405011, 0982745179. Email: hoangyen@tut.edu.vn

1. MỞ ĐẦU

Một trong những hướng phát triển quan trọng nhất của công nghiệp hóa dầu là sản xuất BTX, trong đó B – benzen, T – toluent, X – xylen có độ sạch cao là những sản phẩm có giá trị sử dụng cao hơn cả. Cho đến nay, khoảng 80% BTX được sản xuất từ công nghệ reforming xúc tác. Tuy nhiên, người ta vẫn tiếp tục tìm kiếm các hướng sản xuất BTX từ các nguồn nguyên liệu rẻ hơn và có giá thành sản xuất thấp hơn. Theo xu hướng đó, quá trình chuyển hóa khí thiên nhiên thành các sản phẩm thơm, mà trong đó chủ yếu là BTX là các sản phẩm lỏng có giá trị sử dụng cao, dễ dàng vận chuyển được quan tâm nghiên cứu ở nhiều nước trên thế giới. Thơm hóa alkan nhẹ, olefin nhẹ là hướng chế biến dầu khí có ý nghĩa về lý thuyết cũng như thực tế.

Việc nghiên cứu xúc tác cho quá trình chuyển hóa khí thiên nhiên thành các hợp chất thơm đã được các trung tâm nghiên cứu, phòng thí nghiệm của các viện, trường đại học tiến hành trong nhiều năm qua. Những công trình nghiên cứu đầu tiên của F. Solymosi [2, 3, 4] đã chứng minh được rằng có thể thơm hóa alkan nhẹ từ các xúc tác lưỡng chức năng như Pt/Al_2O_3, hoặc CrO_3/Al_2O_3. Tuy nhiên các vật liệu này bị mất hoạt tính rất nhanh theo thời gian phản ứng, chỉ có trên các zeolit có mao quản trung bình như ZSM–5 phản ứng đó mới có thể xảy ra mà không bị mất hoạt tính một cách nhanh chóng. Đối với mỗi alkan nhẹ, người ta đã tìm ra pha hoạt động tối ưu phân tán trên zeolit HZSM-5. Riêng với quá trình thơm hoá metan, các tác giả đầu tiên nghiên cứu phản ứng này đã sử dụng xúc tác Mo/HZSM-5, một xúc tác hoạt tính nhất, chọn lọc và ổn định nhất. Ở nhiệt độ cao, trong giai đoạn đầu của phản ứng, molipden dạng oxyt đã bị khử thành dạng carbide, tâm hoạt tính cho quá trình thơm hoá. Tuy nhiên, quá trình tạo pha Mo_2C xảy ra đồng thời với quá trình tạo cốc trên zeolit làm cho các tâm axít mất hoạt tính, từ đó phản ứng oligomer và đóng vòng bị hạn chế.

Mục đích của công trình này là nghiên cứu bản chất các tâm hoạt tính tham gia vào quá trình thơm hóa alkan nhẹ (C_3H_8:C_4H_{10}) trên xúc tác Mo/HZSM-5. So sánh độ chọn lọc sản phẩm thơm và nhiệt độ của quá trình thơm hóa trên các dạng Mo phân tán trên zeolit HZSM-5. Từ đó khẳng định vai trò của carbide molipden trong quá trình thơm hóa.

2. THỰC NGHIỆM

2.1 Các chất xúc tác

Zeolit HZSM-5 (Si/Al = 20) được tẩm với dung dịch amoni heptanmolipdat. Mẫu được sấy khô và sau đó nung trong không khí ở 773K. Mẫu được chuẩn bị có hàm lượng Mo là 2 và 4%.

Ngoài ra, mẫu xúc tác Mo dạng carbide có hàm lượng 2% và 4% Mo được điều chế theo chương trình nhiệt độ. Tỷ lệ hỗn hợp nguyên liệu/H_2 là 1/4 theo thể tích, tốc độ dòng 2l/giờ được cho qua lớp MoO_3 hoặc MoO_3/HZSM-5. Nhiệt độ phản ứng được cài theo chương trình nhiệt độ (phản ứng theo chương trình nhiệt độ).

1. Giai đoạn 1: tăng nhanh nhiệt độ từ nhiệt độ phòng đến 450^{o}C, 5^{o}C/phút.

2. Giai đoạn 2: tăng nhiệt độ từ 450^{o}C đến 680^{o}C với tốc độ 0,5^{o}C/phút.
3. Giai đoạn 3: giữ nhiệt độ phản ứng ở 680^{o}C trong 3 giờ.

Dạng Mo_2C rất hoạt động. Do vậy, để ngăn cản sự bốc cháy của nó khi tiếp xúc với không khí, Mo_2C phải được làm thụ động hóa bề mặt.

2.2 Phản ứng

Phản ứng thơm hóa alkan nhẹ được thực hiện trên thiết bị phản ứng dòng, ở áp suất khí quyển. Hỗn hợp alkan nhẹ/hydro với tỷ lệ 1:4 được đi qua lớp xúc tác với tốc độ dòng 2l/giờ. Nhiệt độ phản ứng là 680^{o}C đối với mẫu xúc tác MoO_3/HZSM-5 và 600^{o}C đối với các mẫu Mo_2C/HZSM-5. Sản phẩm của phản ứng đươc phân tích bằng máy sắc ký khí dùng cột silicagel và cột mao quản, detector ion hóa ngọn lửa.

Các đại lượng đặc trưng cho phản ứng được tính toán như sau:

- Độ chuyển hóa (α): $\alpha(\%) = \frac{A_o - A_1}{A_o}.100$
- Độ chọn lọc sản phẩm I (β_i): $\beta_i(\%) = \frac{A_i}{A_o - A_i}.100$
- Hiệu suất tạo sản phẩm i (η_i): $\eta_i(\%) = \frac{\alpha.\beta_i}{100} = \frac{A_i}{A_o}.100$

Trong đó: A – là diện tích pic của các chất trong sắc ký đồ đã được hiệu chỉnh theo số mol bằng phương pháp chuẩn dùng chất nguyên chất (A_o – nguyên liệu ban đầu, A_1 – nguyên liệu còn lại sau phản ứng, A_i – là sản phẩm i).

3 KẾT QUẢ - THẢO LUẬN

3.1 Xúc tác MoO_3:

Ở trạng thái bền, kết quả trình bày trên bảng 1 cho thấy khi tăng hàm lượng pha Mo từ 2 lên đến 4% thì độ chuyển hóa nguyên liệu tăng từ 7,7% lên 15,3% độ chọn lọc sản phẩm thơm tăng từ trung bình từ 82,11% lên đến 96,77%.

Kết quả này hoàn toàn phù hợp với các công trình đã công bố trước đây [13] cho rằng khi tăng hàm lượng pha Mo, sự dịch chuyển Mo vào mạng lưới zeolit sẽ tăng dần lên, mà giai đoạn đầu của phản ứng được thực hiện trên tâm kim loại. Do vậy hiệu suất của phản ứng thơm hóa tăng lên.

Khi nguyên liệu được phản ứng trên các hệ xúc tác MoO_3/HZSM-5, một lượng lớn hydro được sinh ra ở giai đoạn đầu của phản ứng. Trong giai đoạn này hầu hết các chất không phải hydrocacbon được tạo thành. Độ chuyển hóa của phản ứng tăng nhanh. Các sản phẩm chính là cốc, hydro và nước nhưng không có sản phẩm thơm hóa do xúc tác có chức năng thơm hóa chưa hình thành. Ở thời gian này, MoO_3 phản ứng với nguyên liệu để tạo thành $Mo(CO)_6$, tiếp đó dạng carbide molipden được hình thành, đồng thời nước cũng là sản phẩm của quá trình này. Thời gian hình thành carbide molipden khoảng từ 60 – 70 phút. Sau giai đoạn này, lượng hydrocacbon trong sản phẩm phản ứng tăng lên trong khi độ chuyển hóa giảm.

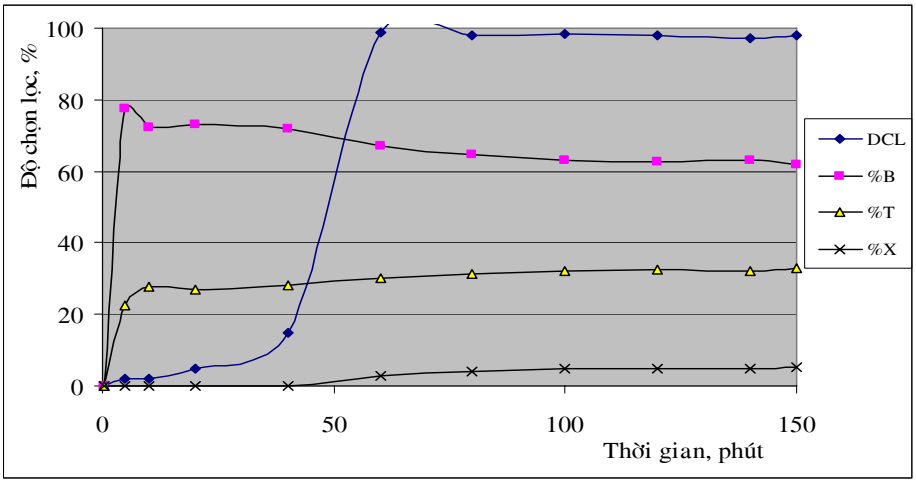
Dưới đây là bảng tổng hợp kết quả của phản ứng thơm hóa trên các hệ xúc tác MoO_3/HZSM-5.

Bảng 1: Bảng tổng hợp số liệu kết quả của phản ứng thơm hóa trên các hệ xúc tác MoO_3/HZSM-5, $T_{pứ}$ = 680°C, tốc độ nạp liệu 2l/giờ

Thông số	MoO_3/HZSM-5	
	2%MoO_3	*4%MoO_3*
Độ chuyển hóa, %	7,7	15,3
Độ chọn lọc theo sản phẩm thơm,%	82,11	96,77
Phân bố sản phẩm thơm, %		
Benzen	69,24	64,10
Toluen	30,76	31,63
Xylen	0	4,28

Theo kết quả phân tích được tổng hợp ở bảng 1, chúng tôi nhận thấy: khi hàm lượng molipden tăng dần lên thì thành phần sản phẩm thơm cũng thay đổi có quy luật: hàm lượng molipden tăng thì hàm lượng benzen trong sản phẩm thơm (BTX) giảm, trong khi hàm lượng toluent và xylen đều tăng dần theo thời gian. Khi hàm lượng molipden tăng nghĩa là số tâm axít của zeolit bị thay thế bởi molipden tăng, dẫn đến độ axít của hệ xúc tác bị giảm dẫn đến độ axít của hệ xúc tác giảm, phản ứng cracking khó xảy ra hơn.

Kết quả phân tích sản phẩm phản ứng thực hiện trên hệ xúc tác 2%MoO_3/HZSM-5 và 4%MoO_3/HZSM-5, theo thời gian phản ứng, hàm lượng benzen giảm dần trong khi hàm lượng toluent và xylen tăng dần. Điều này được giải thích như sau: Theo lý thuyết, hằng số cân bằng của phản ứng dehydro vòng hóa của n-C_6 thấp hơn n-C_7. Ở thời điểm đầu, độ axít của xúc tác còn mạnh nên phản ứng vòng hóa của n-C_6 được đẩy mạnh, nhưng sau một thời gian phản ứng, độ axít của hệ xúc tác giảm do bị cốc hoá và giảm hoạt tính nên n-C_6 ít bị chuyển hóa thành benzen hơn.



Hình 1. Độ chọn lọc sản phẩm thơm phụ thuộc vào thời gian ($T_{pứ}$ = 680°C, xúc tác 4%MoO_3/HZSM-5, tốc độ nạp liệu 2l/giờ)

3.2 Xúc tác carbide molipden

Tham khảo các công trình nghiên cứu phản ứng thơm hóa [2, 3, 5], chúng tôi nhận thấy, nhiệt độ thực hiện phản ứng là rất cao. Tuỳ theo nguồn nguyên liệu và xúc tác, nhiệt độ phản ứng thường từ 550°C đến 750°C. Do vậy, khi chế tạo xúc tác, nhiệt độ hình thành carbide molipden cũng khác nhau. Khi nguyên liệu có mạch cacbon càng dài thì nhiệt độ hình thành carbide càng thấp.

Bảng 2. Ảnh hưởng của nguồn cacbon đến nhiệt độ phản ứng chuyển pha MoO_3 thành Mo_2C [12]

Các thông số	Nguồn cacbon			
	CH_4	C_2H_6	C_3H_8	C_4H_{10}
Nhiệt độ chuyển pha, ^oC	750	700	680	600
Độ chuyển hóa $MoO_3 \rightarrow Mo_2C$, %	95,02	94,97	94,45	94,28

Tiến hành thực hiện phản ứng thơm hóa LPG (1:4) trên các hệ xúc 2%Mo_2C/HZSM-5, 4%Mo_2C/HZSM-5 khối lượng xúc tác 300mg, nhiệt độ phản ứng là 600^{o}C. Tỷ lệ nguyên liệu/H_2=4:1, tốc độ dòng nạp liệu 2l/giờ.

Kết quả phân tích sản phẩm bảng 3 cho thấy, tăng hàm lượng carbide molipden cũng làm cho độ chuyển hóa và chọn lọc sản phẩm thơm của phản ứng tăng lên. Khi so sánh giữa các mẫu xúc tác có hàm lượng molipden như nhau 2%, 4% nhưng tồn tại dạng khác nhau: carbide và oxyt, chúng tôi nhận thấy cả độ chuyển hóa và độ chọn lọc tăng lên từ hệ oxyt sang hệ carbide. Ở trạng thái ổn định, độ chọn hóa ở hệ xúc tác 2%MoO_3/HZSM-5 là 7,7% thì sang hệ carbide 2%Mo_2C/HZSM-5 là 10,2%, độ chuyển hóa ở hệ 4%MoO_3/HZSM-5 là 15,3% thì ở hệ 4%Mo_2C/HZSM-5 là 22%. Độ chọn lọc sản phẩm thơm, tỷ lệ toluent, xylen ở hệ carbide cao hơn rất nhiều so với các hệ oxyt. Điều đó cũng chứng tỏ giai đoạn dehydro hóa trên tâm carbide là quan trọng nhất trong quá trình thơm hóa alkan vì hiệu suất và độ chọn lọc của sản phẩm thơm phụ thuộc rõ ràng vào số lượng tâm carbide tồn tại trên bề mặt và trong lỗ xốp của xúc tác.

Trong quá trình điều chế xúc tác molipden carbide trên zeolit HZSM-5 như chúng tôi đã trình bày ở trên, nhiệt độ phản ứng phải được tuân theo một chương trình nhiệt độ đặc biệt. Nhiệt độ tối đa để chuyển hóa molipden oxyt sang carbide là 680^{o}C, nhiệt độ này đượe duy trì trong 3 giờ.

Bảng 3. Thời gian xuất hiện sản phẩm thơm, độ chuyển hóa và độ chọn lọc của các phản ứng thơm hóa trên các hệ xúc tác.

Thông số	Mo_2C/HZSM-5		MoO_3/HZSM-5	
	2%Mo_2C	*4%Mo_2C*	*2%MoO_3*	*4%MoO_3*
Thời gian (phút)	10-20	10-20	60-70	60-70
Độ chuyển hóa, %	10	21	7,7	15,3
Độ chọn lọc, %	98,2	99	80,5	98,8

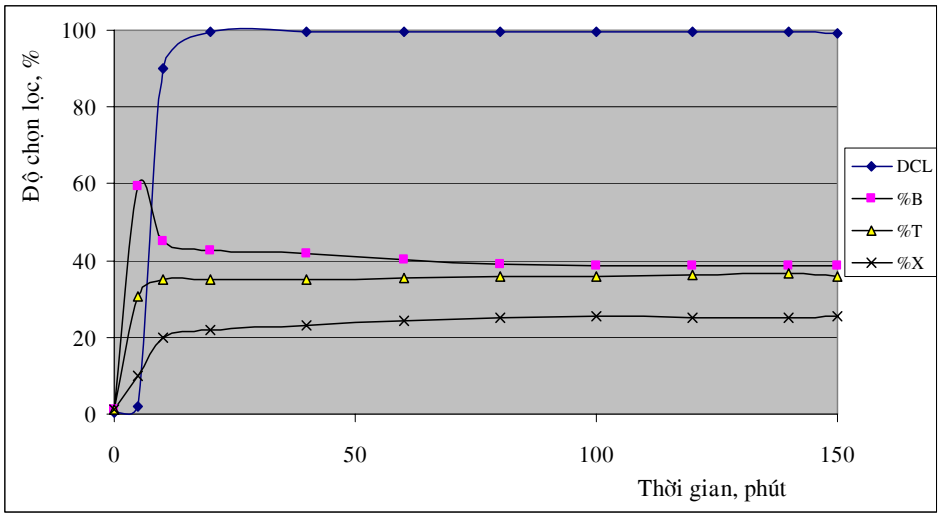
Khi nghiên cứu phản ứng thơm hóa trên các mẫu xúc tác dạng carbide, chúng tôi đã tiến hành thực hiện phản ứng ở 600^{o}C, trong thời gian đầu phản ứng, khoảng từ 10 đến 20 phút, độ chuyển hóa tương đối cao từ 30 đến 40%. Sản phẩm phản ứng trong giai đoạn này chủ yếu là H_2, hydrocacbon nhẹ, một lượng nhỏ BTX, không xuất hiện nước, CO và CO_2. Đây là giai đoạn hoạt hóa lại bề mặt đã thụ động hóa của xúc tác, trong khi giai đoạn đầu của phản ứng thơm hóa trên hệ MoO_3/HZSM-5, sản phẩm chủ yếu là các hợp chất không phải là hydrocacbon: cốc, hydro, CO. Thời gian để độ chọn lọc, độ chuyển hóa sản phẩm thơm đạt trạng thái ổn định ở hệ Mo_2C/HZSM-5 đạt khoảng 10 – 20 phút, ở hệ MoO_3/HZSM-5 là 60 – 70 phút.

Sự chênh lệch về nhiệt độ phản ứng trên các hệ xúc tác có pha hoạt động Mo ở dạng khác nhau có thể kết luận nhiệt độ tạo thành sản phẩm thơm và nhiệt độ hình thành carbide molipden là khác nhau: carbide hình thành ở nhiệt độ cao hơn.

Như vậy, thơm hóa trên hệ xúc tác Mo_2C/HZSM-5 đã giải thích sự tăng đáng kể độ chuyển hóa, độ chọn lọc sản phẩm thơm giữa hai hệ xúc tác có molipden tồn tại ở các dạng khác nhau. Kết quả này cũng phù hợp với nhiều công trình đã công bố [2, 3, 4, 5, 12]. Các mẫu xúc tác thực hiện trong điều kiện tăng nhanh nhiệt độ đều dẫn đến hiện tượng xúc tác có độ phân tán Mo thấp, mà đây là một trong các yếu tố quyết định độ chuyển hóa và độ chọn lọc sản phẩm thơm BTX

Bảng 4. Độ chuyển hóa, độ chọn lọc và phân bố sản phẩm thơm của phản ứng thơm trên các hệ xúc tác Mo_2C/HZSM-5, $T_{pứ} = 600^oC$

Thông số	**Mo_2C/HZSM-5**	
	2%Mo_2C	*4%Mo_2C*
Độ chuyển hóa, %	10.2	22.0
Độ chọn lọc, %	98,8	98,6
Phân bố sản phẩm thơm, %		
Benzen	49.2	40,4
Toluen	30,4	35,7
Xylen	20,4	23,9



Hình 2. Độ chọn lọc sản phẩm thơm phụ thuộc vào thời gian ($T_{pứ} = 600^oC$, xúc tác 4%Mo_2C/HZSM-5, tốc độ dòng nạp liệu 2l/giờ)

Sự khác nhau về thành phần sản phẩm phản ứng trong thời gian đầu, nhiệt độ phản ứng và thời gian phản ứng để đạt trạng thái ổn định khác nhau giữa các hệ phù hợp với các công trình nghiên cứu đã công bố [2, 3, 5, 12]. Với kết quả nghiên cứu đó, người ta cho rằng [15], trong thời gian đầu có thể xảy ra một số phản ứng: 1) phản ứng khử MoO_3; 2) cốc hoá; 3) chuyển dạng oxyt molipden thành dạng carbide, và thời gian tiếp theo là quá trình thơm hóa hydrocacbon xảy ra trên hệ Mo_2C/HZSM-5.

Như vậy, pha hoạt độ molipden là thành phần hoạt hoá hydrocacbon tạo các gốc cho phản ứng oligomer và thơm hóa. Phản ứng oligomer hóa và thơm hóa xảy ra trên tâm axít HZSM-5. Khi tăng nhanh nhiệt độ trên các hệ MoO_3/HZSM-5 sẽ thuận lợi cho quá trình cốc hóa xảy ra gây "ngộ độc" tâm axít và ngăn cản quá trình thơm hóa.

4 KẾT LUẬN

1. Ở nhiệt độ cao, alkan nhẹ tham gia phản ứng khử MoO_3 để tạo thành Mo_2C và cốc.
2. Nhiệt độ hình thành carbide molipden ($T=680^oC$) cao hơn nhiệt độ phản ứng oligomer hóa và đóng vòng ($T=600^oC$).
3. Độ chọn lọc và độ chuyển hóa trên hệ xúc tác carbide molipden cao hơn là do độ phân tán của Mo_2C trên HZSM-5. Sản phẩm đầu tiên của phản ứng thơm hóa trên hệ MoO_3/HZSM-5 là H_2O, CO_2 và CO. Sản phẩm đầu tiên của phản ứng thơm hóa trên hệ Mo_2C/HZSM-5 là hydrocacbon nhẹ.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1] D.Wang, J.H. Lunsford and M.P. Rosynek, J. Catal. 169 (1997)347
[2] F. Solymosi, A. Erdohelyi and Szoke, Catalysis Letters 32 (1995) 43 – 53
[3] F.Solymosi, J. Cserényi, A. Szoke, T. Bánsági, and A. Oszló, Journal of Catalysis 165, 150-161 (1997)
[4] F. Solymosi, A. Szoke, Applied Catalysis A: General 166 (1998) 225 – 235
[5] J.H. Lunsford, M.P. Rosynek and D. Wang, in: Stud. Surf. Sci. Catal., Vol. 107 (Elsevier 1997) p.257
[6] Mériaudeau P. and Naccache C., Applied Catalysis, 73 (1991) 113-118
[7] Mériaudeau P. and Naccache C., Catalysis Today 31 (1996) 265-273.
[8] Nguyễn Thiết Dũng, Nguyễn Đình Thành và Hồ Sơn Lâm, Hội nghĩ xúc tác – hấp phụ toàn quốc lần thứ 3, Hà Nội, 2001, 211-216
[9] Paul Mériadeau, Lớp học xúc tác ở Việt Nam lần thứ 3, (1999) 1-34
[10] Paul Mériadeau and Claude Naccache, Cata. Revscl. Eng., 39 (1&2), 5-48 (1997)
[11] Price G.L. and Kanazirev V., Journal of Molecular Catalysis, 66 (1991) 115-120.
[12] Tiancun Xiaao, Andrew P. E. York, Karl S. Coleman, John B. Claridge, Jeremy Sloan, John Charnock and Malcolm L. H. Green, Journal of Materials 11, 3094-3098 (2001).
[13] Vũ Thị Thu Hà, Lê Văn Tiệp, P. Mériadeau, C. Naccache, Hội nghị xúc tác – hấp phụ toàn quốc lần thứ 2, Hà Nội, 2001, 244-254
[14] Yide Xu, Yuying Shu, Shetian liu. Jiasheng Huang and Xiexian Guo, Catalysis Letters 35 (1995) 233 – 243
[15] Yoshio Ono, Transformation of Lower Alkanes into Aromatic Hydrocacbons over ZSM-5 zeolites, Cata. Rev.-Scl. Eng., 34(3), 179-226 (1992)

Abstract

The aromatization of alkan on supported molypdenum catalysts has been investigated at 773-973K. ZSM-5 was used as support. In the formation of carbide active centers at high temperature, MoO_3 is partially reducted with alkan above 800K to give H_2O and CO_2. The formation of H_2, C_2H_4 and CH_4 was also observed. The difference of the aromatics selectivity and performance indicate the important role of carbide centers in aromatization reaction. The hightly dispersed Mo_2C/ZSM-5 is a better catalyst for the transformation of alkan in aromatization of alkan.

HỆ XÚC TÁC VANADIUM TRONG XỬ LÝ MONOCHLOROBENZENE

Lê Văn Tiệp[1], Nguyễn Phan Thùy Dương[1], Phạm Thị Thanh Huyền[2], Trần Thu Trang[1]

[1]Phòng Xúc tác và Công nghệ môi trường, Viện Khoa học vật liệu ứng dụng, Viện Khoa học và Công nghệ Việt Nam, số 1 Mạc Đĩnh Chi, Q.1, TP. HCM

[2]Khoa Khoa học Ứng dụng, Đại học Tôn Đức Thắng

1.MỞ ĐẦU

PCBs (PolyChlorinated Biphenyls) là hợp chất hữu cơ rất bền, có áp suất bay hơi và tính cháy nổ thấp. Khi thải vào môi trường, PCBs sẽ đi vào cơ thể con người qua da, phổi và hệ tiêu hóa ảnh hưởng nghiêm trọng đến đời sống và sức khỏe con người, đặc biệt có nguy cơ gây ung thư và chứng vô sinh cao. [1, 2]

Trong dầu biến thế, PCBs được sử dụng như là phụ gia có tính cách điện và thực hiện chức năng chống oxy hóa, có tên thương mại là Aroclor [3]. Dầu biến thế từ các nhà máy nhiệt điện, lò đốt, … là nguồn gây ô nhiễm PCBs lớn nhất trên thế giới nói chung và ở Việt Nam nói riêng.

Hiện nay việc xử lý chất thải – khí thải chứa PCBs chủ yếu sử dụng phương pháp thiêu đốt ở 1000 – 2000^{0}C. Phương pháp này tỏ ra không hiệu quả do đòi hỏi tiêu tốn nhiên liệu và khả năng xử lý chưa triệt để, có thể sinh ra một số sản phẩm thứ cấp độc hại hơn rất nhiều (PCDDs, PCDFs, …).

Do vậy, vấn đề oxy hóa PCBs bằng xúc tác nhằm tăng hiệu quả xử lý và tiết kiệm nhiên liệu đang được rất nhiều nhà khoa học trên thế giới quan tâm và nghiên cứu. Tuy nhiên, đến thời điểm hiện tại vẫn chưa có câu trả lời thỏa đáng cũng như là biện pháp tối ưu cho bài toán khó khăn này.

Điển hình cho phương pháp xử lý PCBs triệt để bằng con đường oxy hóa hoàn toàn trên xúc tác dị thể đặc trưng, chúng tôi chọn sử dụng Monochlorobenzene (MCBz) là chất đại diện cho nhóm hydrocacbon vòng thơm chứa Chlor (nhiệt độ sôi 132^{0}C, nhiệt độ nóng chảy -45.2^0, áp suất hơi bão hòa ở 25^{0}C là 11.8torr, độ hòa tan 0.049g/100ml H_2O).

Các hệ xúc tác được tổng hợp và thử nghiệm là V_2O_5 trên chất mang TiO_2, Al_2O_3 và biến tính một số kim loại. Trong đó, V_2O_5/TiO_2 là hệ xúc tác mới được dùng trong phản ứng khử chọn lọc (SCR), chống lại sự đầu độc SO_2 trong khí thải động cơ, … đặc biệt đây là xúc tác có hiệu quả nhất cho quá trình oxy hóa triệt để PCBs và khống chế đến mức tối thiểu sự sinh ra các hợp chất hữu cơ chứa Chlor thứ cấp độc hại hơn như chlorinated dioxin, furan, benzene … [4, 5]

2.THỰC NGHIỆM

2.1. Phương pháp tổng hợp xúc tác

Xúc tác được tổng hợp theo phương pháp tẩm ướt: Hòa tan muối ammonium metavanadate NH_4VO_3 (Merck) ở 70^{0}C, cho một lượng xác định chất mang vào, cô hỗn hợp dung dịch đến cạn nước ở 80 – 100^{0}C. Sau đó đem phần sệt thu được sấy khô ở 100 - 120^{0}C trong 2h. Nghiền mịn mẫu rắn sau sấy, nung trong dòng O_2 3h ở các chế độ nhiệt nung 300^0, 400^0 và 500^{0}C, ta thu được xúc tác với hàm lượng tẩm mong muốn. Mẫu trước khi tiến hành phản ứng cần hoạt hóa ở nhiệt độ tương ứng.

Các chất mang được sử dụng là TiO_2 (Degussa P25), Al_2O_3 (Merck); biến tính một số kim loại chuyển tiếp và kim loại quý. Xúc tác V_2O_5/TiO_2 được tổng hợp theo 4 phương pháp khác nhau (thay đổi một vài thông số hay thứ tự điều chế):

+ Phương pháp I: áp dụng cách tẩm ướt bình thường.

+ Phương pháp II: xử lý nhiệt TiO_2 trước giai đoạn tẩm và thay đổi chế độ nung mẫu sau sấy.