



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0038344

(51)^{2020.01} B01J 23/83; B01D 53/94

(13) B

(21) 1-2021-00558

(22) 17/06/2019

(86) PCT/JP2019/023902 17/06/2019

(87) WO2020/031508 13/02/2020

(30) 2018-150769 09/08/2018 JP

(45) 25/01/2024 430

(43) 25/05/2021 398

(73) 1. MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD. (JP)

1-11-1 Osaki, Shinagawa-ku, Tokyo 1418584 Japan

2. HONDA MOTOR CO., LTD. (JP)

1-1, Minami-Aoyama 2-chome, Minato-ku, Tokyo 1078556 Japan

(72) Moriya, Toshiharu (JP); IWASHINA, Katsuya (JP); IMAI, Tsubasa (JP);

HORIMURA, Hiroyuki (JP); IWASA, Akiko (JP); SUZUKI, Shumpei (JP); UENO, Koji (JP).

(74) Công ty TNHH một thành viên Sở hữu trí tuệ VCCI (VCCI-IP CO.,LTD)

(54) THÀNH PHẦN CHẤT XÚC TÁC TINH CHẾ KHÍ THẢI VÀ CHẤT XÚC TÁC
TINH CHẾ KHÍ THẢI SỬ DỤNG THÀNH PHẦN NÀY

(57) Sáng chế đề xuất thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải bao gồm oxit phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit; và đồng oxit được mang trên oxit phức này. Oxit phức này có hàm lượng nhôm oxit bằng hoặc lớn hơn 30% khối lượng và hàm lượng xeri oxit nhỏ hơn 50% khối lượng. Đồng oxit tốt hơn là được chứa với lượng bằng hoặc lớn hơn 3 phần khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 30 phần khối lượng, so với 100 phần khối lượng của oxit phức. Đồng oxit tốt hơn là được chứa với lượng bằng hoặc lớn hơn 3% khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 30% khối lượng. Hàm lượng nhôm oxit của oxit phức tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 50% khối lượng, và hàm lượng xeri oxit của oxit phức tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 2,5% khối lượng.

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải chứa chế phẩm này.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Cho đến nay, các chất xúc tác tinh chế khí thải đã được đề xuất để tinh chế ba thành phần được thải ra từ các động cơ đốt trong như là động cơ diesel và các động cơ xăng, đó là cacbon monoxit (CO), hydrocacbon (HC), và nitơ oxit (NO_x). Ba thành phần này được tinh chế chủ yếu bằng cách sử dụng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải chứa oxit kim loại và kim loại quý, như là Pt, Rh, hoặc Pd, được mang trên oxit kim loại. Mặt khác, nhằm mục đích làm giảm lượng các kim loại quý được sử dụng, và cuối cùng là loại bỏ việc sử dụng kim loại quý, thành phần chứa oxit kim loại và đồng oxit, thay thế cho kim loại quý, được mang trên oxit kim loại đã được đề xuất trong những năm gần đây.

Chẳng hạn, tài liệu sáng chế 1 bộc lộ chất xúc tác chứa chất mang và đồng oxit được mang trên chất mang này, chất mang này được làm bằng oxit kim loại phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit, có hàm lượng xeri oxit của oxit kim loại phức bằng hoặc lớn hơn 50% khối lượng, và tài liệu sáng chế 1 có nội dung là chất xúc tác này có khả năng oxy hóa CO tuyệt vời.

Tài liệu sáng chế 2 bộc lộ chất xúc tác tinh chế khí thải chứa thành phần

tinh chế thứ nhất chứa nguyên tố chuyển tiếp 3d và không chứa các kim loại quý, và các thành phần tinh chế thứ hai chứa kim loại quý, các thành phần tinh chế thứ hai này được bố trí cả trước và sau, và liền kề với, thành phần tinh chế thứ nhất theo hướng dòng khí thải. Trong ví dụ 1 của tài liệu sáng chế 2, thành phần tinh chế thứ nhất có $\text{Cu}/\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ và $\text{Cu}/\text{Ce}_{0,30}\text{Zr}_{0,50}\text{La}_{0,05}\text{Y}_{0,05}$ oxit, và tài liệu sáng chế 2 cho rằng chất xúc tác tinh chế khí thải này có khả năng tinh chế HC và CO.

Danh mục tài liệu viện dẫn:

Tài liệu sáng chế:

Tài liệu sáng chế 1: JP 2011-183280A

Tài liệu sáng chế 2: JP 2013-107056A

Đối với các thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải chứa oxit kim loại để mang đồng oxit thay cho kim loại quý để làm thành phần có hoạt tính xúc tác, thách thức lớn nhất là cải thiện tính năng tinh chế cụ thể là NO_x , trong số HC, CO, và NO_x .

Tuy nhiên, trong các Tài liệu sáng chế 1 và 2, chưa xem xét đến đặc điểm của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải để cải thiện tính năng tinh chế NO_x .

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Do đó, mục đích của sáng chế là đề xuất thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có khả năng giải quyết vấn đề được mô tả ở trên và chất xúc tác tinh chế khí thải chứa thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải này.

Các tác giả sáng chế đã thực hiện nghiên cứu sâu về thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải mà có thể tạo ra tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời mặc dù

không kim loại quý nào được bao gồm trong đó. Kết quả là, các tác giả sáng chế đã bất ngờ phát hiện được rằng tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời có thể được tạo ra khi đồng oxit được mang trên oxit phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit với hàm lượng nhôm oxit và hàm lượng xeri oxit được kiểm soát trong các khoảng cụ thể.

Sáng chế đã được tạo ra dựa trên các phát hiện được mô tả ở trên, và đề xuất thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải bao gồm oxit phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit; và đồng oxit được mang trên oxit phức này,

trong đó oxit phức này có hàm lượng nhôm oxit bằng hoặc lớn hơn 30% khối lượng và hàm lượng xeri oxit nhỏ hơn 50% khối lượng.

Ngoài ra, sáng chế đề xuất chất xúc tác tinh chế khí thải chứa thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải này.

Mô tả chi tiết sáng chế

Sau đây, sáng chế sẽ được mô tả dựa trên các phương án được ưu tiên của nó. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế có oxit phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit (sau đây còn được gọi là “oxit phức CZA”), và đồng oxit được mang trên oxit phức này.

Oxit phức CZA là oxit phức chứa xeri, ziricon, và nhôm. Trong oxit phức CZA, tốt hơn nếu một phần nhôm oxit được hòa tan trong dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit. Sự tạo thành dung dịch rắn của xeri oxit và ziricon oxit có thể được khẳng định bằng cách kiểm tra, bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X, xem pha duy nhất có nguồn gốc từ dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit

có được tạo ra hay không. Nói chung, khi oxit phức CZA được phân tích bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X, đỉnh nhiễu xạ của xeri oxit, zircon oxit, hoặc dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit và đỉnh nhiễu xạ của nhôm oxit được quan sát riêng rẽ. Oxit phức CZA có thể được phân biệt với hỗn hợp của bột nhôm oxit và bột xeri oxit-zircon oxit dựa trên, chẳng hạn, các kết quả của phương pháp đo nhiễu xạ tia X theo cách sau đây. Mẫu được phân tích bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X, và nếu các đỉnh được gán cho dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit (có mặt ở ba vị trí, cụ thể là ở $2\theta =$ khoảng 29° , $2\theta =$ khoảng 34° , và $2\theta =$ khoảng $48,5^\circ$) đã được dịch chuyển về phía góc thấp khoảng $2\theta = 1$ đến 2° do sự hòa tan một phần nhôm oxit trong dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit, xác định được rằng mẫu đo là oxit phức CZA. Theo cách khác, mẫu mà Cu được mang trên đó được xử lý nhiệt ở 950°C trong 4 giờ và sau đó được phân tích bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X; nếu mỗi đỉnh được gán cho dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit (có mặt ở ba vị trí, cụ thể là ở $2\theta =$ khoảng 29° , $2\theta =$ khoảng 34° , và $2\theta =$ khoảng $48,5^\circ$) tách thành hai hoặc nhiều đỉnh do sự tách pha của dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit, xác định được rằng mẫu là hỗn hợp của bột nhôm oxit và bột xeri oxit-zircon oxit, và nếu mỗi đỉnh vẫn là đỉnh đơn, xác định được rằng mẫu là oxit phức CZA. Tốt hơn là sử dụng bức xạ $\text{CuK}\alpha$ làm nguồn bức xạ của phương pháp đo nhiễu xạ tia X. Thuật ngữ “khoảng” được sử dụng liên quan đến vị trí của đỉnh nhiễu xạ tia X có nghĩa là trong phạm vi $\pm 1,0^\circ$.

Theo sáng chế, oxit phức CZA có hàm lượng xeri oxit nhỏ hơn 50% khối

lượng, và đồng oxit được mang trên oxit phức CZA này, nhờ đó tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời được tạo ra. Cụ thể, oxit phức CZA có hàm lượng xeri oxit được hạn chế một cách cố ý được sử dụng, và đồng oxit được mang trên oxit phức CZA này, nhờ đó sự thay đổi hóa trị của đồng trong đồng oxit giữa hóa trị một và hóa trị hai được tạo điều kiện thuận lợi để làm cho phản ứng của H_2O hoặc O_2 với HC hoặc CO còn hoạt động mạnh hơn nữa. Cụ thể, đã cho rằng H_2 được tạo ra bởi phản ứng oxy hóa của HC hoặc CO với H_2O phản ứng với NO_x , và điều này làm thúc đẩy quá trình tinh chế NO_x .

Trái lại, nếu oxit phức có hàm lượng xeri oxit bằng hoặc lớn hơn 50% khối lượng như trong công nghệ được bộc lộ trong tài liệu sáng chế 1, khả năng dự trữ/giải phóng oxy (sau đây còn được gọi là “OSC, oxygen storage capacity”) của oxit phức làm cho CO và HC chỉ được oxy hóa bởi O_2 , và phản ứng oxy hóa bằng H_2O bị hạn chế. Do đó, tính năng tinh chế NO_x như mong muốn trong sáng chế không thể được tạo ra.

Hàm lượng xeri oxit của oxit phức CZA như được sử dụng ở đây bao gồm cả lượng xeri oxit không được bao gồm trong dung dịch rắn và lượng xeri oxit được bao gồm trong dung dịch rắn.

Oxit phức CZA có hàm lượng nhôm oxit bằng hoặc lớn hơn 30% khối lượng, nhờ đó đã thu được các ưu điểm sau đây: sự giảm diện tích bề mặt riêng của oxit phức CZA có thể được ngăn chặn để nhờ đó cải thiện độ bền nhiệt của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải, và ngoài ra lượng tương đối của xeri oxit trong oxit phức CZA có thể được giảm đi để nhờ đó cải thiện tính năng tinh

chế NO_x không chỉ sau khi lão hóa nhiệt ở nhiệt độ 900°C hoặc cao hơn mà còn trước khi lão hóa nhiệt.

Theo quan điểm làm cho các ưu điểm được mô tả ở trên còn rõ rệt hơn, cụ thể, theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x trước khi lão hóa nhiệt, có lợi nếu hàm lượng nhôm oxit của oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 30% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 50% khối lượng, còn tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 60% khối lượng, và đặc biệt tốt là bằng hoặc lớn hơn 70% khối lượng. Các giá trị này là cao hơn đáng kể so với hàm lượng nhôm oxit (khoảng 11% khối lượng) của các oxit phức CZA của các ví dụ thực hiện sáng chế được bộc lộ trong tài liệu sáng chế 1. Mặt khác, cụ thể là theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x trước khi lão hóa nhiệt, hàm lượng nhôm oxit tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 98% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 95% khối lượng, và còn tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 90% khối lượng.

Hàm lượng nhôm oxit của oxit phức CZA được xác định bằng cách sử dụng phương pháp sau đây. Trước hết, dung dịch được điều chế trong đó thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải được hòa tan, và lượng của các nguyên tố khác nhau trong dung dịch được xác định bằng cách sử dụng ICP-AES. Trong số các lượng được tìm thấy của các nguyên tố khác nhau, lượng đồng được mang trên oxit phức CZA đã thu được. Sau đó, lượng của các nguyên tố còn lại được biến đổi thành lượng theo các oxit tương ứng của chúng, và tỷ lệ của lượng nhôm tính theo oxit của nó được tính so với tổng lượng của các nguyên tố còn lại tính theo các oxit tương ứng của chúng, được cho là 100.

Các ví dụ về nhôm oxit chứa trong oxit phức CZA bao gồm γ -nhôm oxit, β -nhôm oxit, δ -nhôm oxit, θ -nhôm oxit, và α -nhôm oxit, và loại bất kỳ của các loại nhôm oxit này có thể được sử dụng. Đặc biệt tốt hơn nếu sử dụng θ -nhôm oxit, do thành phần chất xúc tác tinh thể khí thải chứa θ -nhôm oxit kết hợp với dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit, xeri oxit, và/hoặc ziricon oxit có độ ổn định nhiệt cao trong khi duy trì diện tích bề mặt riêng.

Mặc dù tài liệu sáng chế 1 bộc lộ oxit kim loại phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit, nhôm oxit được phân tán trên phạm vi nanomet, và do đó, cấu trúc tinh thể của nhôm oxit như được mô tả ở trên không thể được khẳng định. Do đó, độ ổn định nhiệt là kém, và tính năng sau khi lão hóa nhiệt, là điều cần quan tâm theo sáng chế, do vậy là kém.

Thành phần chất xúc tác tinh thể khí thải theo sáng chế tạo ra tính năng tinh thể NO_x tuyệt vời trước khi lão hóa nhiệt, hoặc cụ thể hơn, ở trạng thái trong đó thành phần này vẫn chưa được nung nóng ở nhiệt độ 900°C hoặc cao hơn trong 4 giờ hoặc lâu hơn. Ngoài ra, thành phần chất xúc tác tinh thể khí thải theo sáng chế có thể duy trì tính năng tinh thể NO_x tuyệt vời ngay cả sau khi được nung nóng ở nhiệt độ 900°C hoặc cao hơn trong 4 giờ hoặc lâu hơn. Các tác giả sáng chế cho rằng một trong số các lý do là như sau. Trong oxit phức CZA, một phần nhôm oxit tốt hơn là được hòa tan trong dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit như được mô tả ở trên, trong khi phần còn lại không được hòa tan trong oxit bất kỳ trong số xeri oxit, ziricon oxit, và dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit. Do đó, xeri oxit, ziricon oxit, và/hoặc dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit, và phần nhôm

oxit mà không được hòa tan trong đó, tác dụng như các lớp ngăn sự khuếch tán vào nhau. Các tác giả sáng chế cho rằng do đó sự kết khối của các oxit thuộc cùng một loại bị ngăn chặn để nhờ đó cải thiện độ bền nhiệt. Trái lại, trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải mà trong đó đồng oxit được mang trên oxit phức xeri oxit-ziricon oxit không chứa nhôm oxit, nhôm oxit tác dụng như lớp ngăn khuếch tán là không có mặt. Do đó, oxit phức xeri oxit-ziricon oxit có khả năng kết khối, và sự tách pha của xeri oxit và ziricon oxit xảy ra khi được nung nóng ở nhiệt độ 900°C hoặc cao hơn, dẫn tới sự giảm diện tích có hoạt tính xúc tác. Do đó, tính năng tinh chế NO_x đủ không thể được tạo ra.

Theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x còn hơn nữa, cụ thể, theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x cả trước khi và sau khi lão hóa nhiệt, hàm lượng xeri oxit của oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 35% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 25% khối lượng, còn tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 20% khối lượng, và đặc biệt tốt là bằng hoặc nhỏ hơn 15% khối lượng. Mặt khác, theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x trước khi lão hóa nhiệt, hàm lượng xeri oxit tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 1% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 2,5% khối lượng, và còn tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 5% khối lượng.

Hàm lượng xeri oxit của oxit phức CZA được xác định bằng cách sử dụng phương pháp giống như được mô tả ở trên để xác định hàm lượng nhôm oxit của oxit phức CZA.

Ngoài ra, theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x còn hơn nữa,

cụ thể, theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x cả trước khi và sau khi lão hóa nhiệt, tỷ lệ khối lượng của nhôm oxit với xeri oxit, nhôm oxit/xeri oxit, trong oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 5, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 7, và còn tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 10.

Theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x sau khi lão hóa nhiệt, hàm lượng zircon oxit của oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 1% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 2,5% khối lượng, và còn tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 5% khối lượng. Mặt khác, cụ thể là theo quan điểm cải thiện tính năng tinh chế NO_x trước khi lão hóa nhiệt, hàm lượng zircon oxit tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 35% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 25% khối lượng, và còn tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 20% khối lượng.

Hàm lượng zircon oxit của oxit phức CZA được xác định bằng cách sử dụng phương pháp giống như được mô tả ở trên để xác định hàm lượng nhôm oxit của oxit phức CZA.

Như đã rõ từ phương pháp được mô tả ở trên để xác định hàm lượng, hàm lượng nhôm oxit, hàm lượng xeri oxit, và hàm lượng zircon oxit được mô tả ở trên lần lượt bao gồm cả lượng nhôm oxit, xeri oxit, và zircon oxit được bao gồm trong dung dịch rắn trong oxit phức CZA và lượng nhôm oxit, xeri oxit, và zircon oxit không được bao gồm trong dung dịch rắn.

Ngoài ra, về độ bền nhiệt, tỷ lệ khối lượng giữa lượng xeri oxit và zircon oxit chứa trong oxit phức CZA tốt hơn là sao cho tỷ lệ của xeri oxit với zircon oxit là bằng hoặc lớn hơn 1 và bằng hoặc nhỏ hơn 3, hoặc tốt hơn nữa là bằng

hoặc lớn hơn 1 và bằng hoặc nhỏ hơn 2, trên 1. Mặt khác, theo quan điểm tính năng tinh chế NO_x , tỷ lệ của zircon oxit với xeri oxit tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 0,5 và bằng hoặc nhỏ hơn 3, hoặc tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 0,5 và bằng hoặc nhỏ hơn 2, trên 1.

Theo quan điểm cải thiện hơn nữa tính năng tinh chế NO_x sau khi lão hóa nhiệt, tốt hơn nếu oxit phức CZA chứa nguyên tố đất hiếm khác với xeri. Các ví dụ về nguyên tố đất hiếm khác với xeri bao gồm scandi, ytri, lantan, praseodym, neodim, samari, europi, gadolini, tebi, dysprosi, holmi, erbi, tuli, yterbi, và luteti. Các nguyên tố đất hiếm này có thể được chứa trong oxit phức CZA dưới dạng oxit, chẳng hạn. Hai hoặc nhiều oxit nguyên tố đất hiếm có thể được chứa trong oxit phức CZA. Oxit của nguyên tố đất hiếm khác với xeri có thể tạo thành hoặc có thể không tạo thành dung dịch rắn với dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit, xeri oxit, hoặc zircon oxit. Việc oxit của nguyên tố đất hiếm khác với xeri có tạo ra dung dịch rắn với dung dịch rắn xeri oxit-zircon oxit hay không có thể được khẳng định bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X.

Trong trường hợp mà trong đó oxit phức CZA chứa oxit của nguyên tố đất hiếm khác với xeri, hàm lượng oxit nguyên tố đất hiếm của oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 5% khối lượng, và tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 3% khối lượng, theo quan điểm ngăn ngừa sự giảm hoạt tính xúc tác gây bởi phản ứng của đồng oxit với oxit nguyên tố đất hiếm. Mặt khác, theo quan điểm đảm bảo độ ổn định nhiệt, hàm lượng oxit nguyên tố đất hiếm tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 0,1% khối lượng, và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 0,5% khối

lượng.

Lượng oxit của nguyên tố đất hiếm khác với xeri bao gồm cả lượng oxit nguyên tố đất hiếm được bao gồm trong dung dịch rắn và lượng oxit nguyên tố đất hiếm không được bao gồm trong dung dịch rắn.

Không có giới hạn cụ thể về phương pháp tạo ra oxit phức CZA, và oxit phức CZA có thể được tạo ra bằng cách sử dụng, chẳng hạn, phương pháp đồng kết tủa, đây là phương pháp phản ứng pha lỏng. Để làm phương pháp đồng kết tủa, phương pháp có thể được sử dụng bao gồm: bổ sung chất bazơ chứa dung dịch nước của nhôm vào dung dịch axit chứa muối tan trong nước của xeri, muối tan trong nước của ziricon, và, nếu cần, muối tan trong nước của nguyên tố đất hiếm khác với xeri làm nguyên liệu, để thu được chất kết tủa; sấy chất kết tủa; và nung nó trong không khí. Các muối tan trong nước của ziricon, xeri, và nguyên tố đất hiếm khác với xeri có thể là nitrat, oxalat, axetat, phức chất amin, hoặc clorua. Dung dịch natri nhôm aluminat được sử dụng làm dung dịch nước chứa nhôm, và các ví dụ về chất bazơ bao gồm nước amoniac. Trong quá trình đồng kết tủa, độ pH được kiểm soát trong khoảng từ 6 đến 10, và nhiệt độ kết tủa được kiểm soát trong khoảng từ 48 đến 80°C.

Chất hoạt động bề mặt có thể được bổ sung thêm vào chất kết tủa thu được, và trong trường hợp này, chất kết tủa và chất hoạt động bề mặt được khuấy đủ trong nước hoặc tương tự, sau đó lọc trong khi rửa, và sau đó sấy. Chất hoạt động bề mặt này có thể bao gồm chất bất kỳ trong số rượu polyvinyllic (polyvinyl alcohol, PVA), polyvinylamin, polyetylen glycol-200 (PEG-200), 2-propanol, và

etanol, một mình hoặc hỗn hợp của chúng.

Lượng chất hoạt động bề mặt được bổ sung tốt hơn là nằm trong khoảng từ 1 đến 30% khối lượng dựa trên lượng của các kim loại của các muối tan trong nước tính theo các oxit tương ứng của chúng. Theo quan điểm tạo ra theo cách tin cậy oxit phức CZA, quá trình nung nóng chất kết tủa tốt hơn là được thực hiện ở nhiệt độ 600°C hoặc cao hơn. Nhiệt độ nung nóng bằng 900°C hoặc cao hơn là tốt hơn do có thể thu được oxit phức CZA chứa θ -nhôm oxit làm nhôm oxit. Theo quan điểm đảm bảo khả năng phân tán của dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit và xeri oxit, nhiệt độ nung nóng tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 1100°C. Thời gian nung nóng tốt hơn là 2 giờ hoặc lâu hơn và bằng hoặc ít hơn 6 giờ. Để làm môi trường nung nóng, môi trường chứa oxy, như là không khí, hoặc môi trường khí trơ, như là môi trường khí nitơ hoặc môi trường khí argon, có thể được sử dụng, chẳng hạn.

Oxit phức CZA có cỡ hạt trung bình thể tích D_{50} tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 3 μm , và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 7 μm , theo quan điểm cải thiện khả năng khuếch tán khí. Mặt khác, tốt hơn là D_{50} bằng hoặc nhỏ hơn 60 μm , và tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 40 μm , theo quan điểm khả năng bám dính với nền khi oxit phức CZA được tạo thành lớp chất xúc tác. Khoảng được ưu tiên của D_{50} của oxit phức mang đồng oxit, trong đó oxit phức mang đồng oxit, và D_{50} của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải là giống như khoảng được ưu tiên được mô tả ở trên của D_{50} của oxit phức CZA.

D_{50} của oxit phức CZA, D_{50} của oxit phức mang đồng oxit, và D_{50} của

thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có thể được xác định, chẳng hạn, theo cách sau đây. Cụ thể, oxit phức CZA được bổ sung vào môi trường nước bằng cách sử dụng máy cấp mẫu tự động (“Microtrac SDC” là sản phẩm của MicrotracBEL Corporation) cho thiết bị đo sự phân bố cỡ hạt nhiễu xạ laser. Các sóng siêu âm 30W được đặt vào dung dịch thu được trong 360 giây. Sau đó, việc đo được thực hiện bằng cách sử dụng máy phân tích phân bố cỡ hạt tán xạ nhiễu xạ laser (“Microtrac MT3000II” là sản phẩm của MicrotracBEL Corporation). Điều kiện đo được đặt như sau: chỉ số khúc xạ của hạt là 1,5; hình dạng hạt là hình cầu lý tưởng; chỉ số khúc xạ của dung môi là 1,3; thời gian đặt 0 là 30 giây; thời gian đo là 30 giây; và việc đo được thực hiện hai lần, và thu được giá trị trung bình. Nước tinh khiết được sử dụng làm môi trường nước.

Trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế, các hạt đồng oxit được mang trên các hạt oxit phức CZA. Cụ thể, trạng thái mà hạt A được mang trên hạt B có thể được khẳng định bằng cách đo cỡ hạt, chẳng hạn, bằng kính hiển vi điện tử quét (sau đây còn được gọi là “SEM” (scanning electron microscope)). Chẳng hạn, cỡ hạt trung bình của hạt A có mặt trên bề mặt của hạt B tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 10%, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 3%, còn tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 1%, so với cỡ hạt trung bình của hạt B. Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ “cỡ hạt trung bình” có nghĩa là giá trị trung bình của các đường kính Feret tối đa của 30 hạt hoặc nhiều hơn 30 hạt khi được quan sát bằng SEM. Đường kính Feret tối đa để chỉ khoảng cách lớn nhất giữa hai đường song song tiếp xúc với hình hạt.

Đồng oxit được mang trên oxit phức CZA trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế, nó rõ ràng là khác với oxit phức của CZA và đồng. Nếu oxit phức của CZA và đồng được sử dụng làm thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải, đồng oxit, mà tác dụng làm các vị trí hoạt tính, không thể tiếp xúc với thành phần khí thải, và do đó, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải không thể tạo ra tính năng tinh chế NO_x . Mặt khác, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải chứa oxit phức CZA và đồng oxit được mang trên đó như trong sáng chế tạo ra tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời mà không làm giảm tính năng xúc tác của đồng oxit.

Theo quan điểm cải thiện một cách đầy đủ tính năng tinh chế NO_x , hàm lượng đồng oxit của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải mà trong đó đồng oxit được mang trên oxit phức CZA tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 2,5% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 4,5% khối lượng, và đặc biệt tốt là bằng hoặc lớn hơn 5,5% khối lượng. Mặt khác, theo quan điểm đảm bảo khả năng phân tán của đồng oxit và ngăn chặn sự thiêu kết, hàm lượng đồng oxit tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 25% khối lượng, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 15% khối lượng, và đặc biệt tốt là bằng hoặc nhỏ hơn 10% khối lượng. Lượng đồng oxit ở đây để chỉ lượng CuO. Theo các quan điểm này, lượng đồng oxit tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 3 phần khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 30 phần khối lượng, và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 6 phần khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 15 phần khối lượng, so với 100 phần khối lượng của oxit phức CZA.

Đồng oxit được mang trên oxit phức theo sáng chế có thể ở dạng CuO

hoặc Cu_2O . Trong lớp chất xúc tác tinh chế khí thải, lớp này sẽ được mô tả sau, hàm lượng đồng oxit được ưu tiên cũng là giống như khoảng được ưu tiên của hàm lượng đồng oxit của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải được mô tả ở trên.

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có thể bao gồm oxit phức CZA và đồng oxit, chẳng hạn. Tuy nhiên, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải cũng có thể chứa thành phần khác ngoài các oxit này. Các ví dụ về thành phần này bao gồm các chất xốp vô cơ như là TiO_2 , SiO_2 , zeolit, MgO , và MgAl_2O_4 , chất OSC như là CeO_2 và oxit phức $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$, và các hợp chất kim loại kiềm thổ như là Ba, Sr, và Mg, chúng chủ yếu hoạt động như chất mang; và sol nhôm oxit, sol zircon oxit, và tương tự, chúng hoạt động như chất kết dính. Các thành phần này cũng có thể mang đồng oxit.

Theo quan điểm thu được tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời và độ bền nhiệt, hàm lượng của oxit phức CZA trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 60% khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 90% khối lượng, và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 70% khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 87% khối lượng.

Hàm lượng oxit phức CZA của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có thể được xác định bằng cách sử dụng phương pháp sau đây. Cụ thể, dung dịch được điều chế trong đó thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải được hòa tan, và lượng của các nguyên tố khác nhau trong dung dịch được xác định bằng cách sử dụng ICP-AES. Tiếp theo, thị trường để phân tích ở độ phóng đại cụ thể được

chọn để chỉ chứa oxit phức CZA mang đồng, và việc phân tích nguyên tố được thực hiện bằng cách sử dụng EDX. Dựa trên sự khác nhau giữa lượng các nguyên tố thu được bằng cách sử dụng ICP-AES và các kết quả phân tích nguyên tố thu được bằng cách sử dụng EDX, oxit phức CZA có thể được phân biệt với các chất phụ gia khác như là thành phần chất kết dính, và do đó, hàm lượng oxit phức CZA có thể được xác định.

Theo quan điểm tạo ra một cách hiệu quả lượng mong muốn của đồng oxit được mang, và theo quan điểm đảm bảo khả năng phân tán của đồng oxit và do đó cải thiện đủ tính năng tinh chế NO_x , oxit phức CZA trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải trước khi lão hóa nhiệt có diện tích bề mặt riêng tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn $50 \text{ m}^2/\text{g}$, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn $60 \text{ m}^2/\text{g}$, và đặc biệt tốt là bằng hoặc lớn hơn $70 \text{ m}^2/\text{g}$. Theo quan điểm ngăn chặn sự kết khối của đồng oxit gây bởi sự lão hóa nhiệt và do đó đảm bảo tính năng tinh chế NO_x tốt, diện tích bề mặt riêng này tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn $150 \text{ m}^2/\text{g}$, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn $140 \text{ m}^2/\text{g}$, và đặc biệt tốt là bằng hoặc nhỏ hơn $130 \text{ m}^2/\text{g}$.

Mặt khác, diện tích bề mặt riêng của oxit phức CZA trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải sau khi lão hóa nhiệt tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn $15 \text{ m}^2/\text{g}$, và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn $20 \text{ m}^2/\text{g}$. Diện tích bề mặt riêng này tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn $140 \text{ m}^2/\text{g}$, và tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn $130 \text{ m}^2/\text{g}$. Tốt hơn nếu quá trình lão hóa nhiệt được thực hiện trong các điều kiện, chẳng hạn, ở nhiệt độ 900°C trong 4 giờ trong không khí và sau đó ở 950°C trong 4 giờ trong môi trường trơ như là môi trường nitơ hoặc môi trường argon.

Trong các điều kiện này, mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của oxit phức CZA trong thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải (= diện tích bề mặt riêng sau khi lão hóa nhiệt / diện tích bề mặt riêng trước khi lão hóa nhiệt $\times 100$) tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 25%, và tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 35%. Diện tích bề mặt riêng được xác định bằng cách sử dụng phương pháp BET ba điểm. Cụ thể hơn, diện tích bề mặt riêng được xác định bằng cách sử dụng phương pháp sẽ được mô tả sau đây trong các ví dụ. Diện tích bề mặt riêng của oxit phức CZA, và mức độ duy trì của nó, có thể được xác định đối với oxit phức CZA ở trạng thái trong đó đồng oxit được mang trên đó.

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải bao gồm oxit phức CZA và đồng oxit được mang trên oxit phức CZA này có thể được sử dụng có lợi làm chất xúc tác tinh chế khí thải nhờ lợi dụng tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời của nó. Chẳng hạn, trong chất xúc tác tinh chế khí thải chứa nền và lớp chất xúc tác được tạo ra trên bề mặt của nền, lớp chất xúc tác được tạo ra của thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải. Do đó, chất xúc tác tinh chế khí thải có tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời có thể thu được.

Không có giới hạn cụ thể về hình dạng của nền. Nói chung, nền có dạng hình tổ ong, dạng tấm, hoặc dạng viên, chẳng hạn, và tốt hơn là dạng hình tổ ong. Các ví dụ về vật liệu của nền bao gồm nhôm oxit (Al_2O_3), mulit ($3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}2\text{SiO}_2$), cordierit ($2\text{MgO-}2\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}5\text{SiO}_2$), nhôm titanat (Al_2TiO_5), và silic carbua (SiC); và các vật liệu kim loại như là thép không gỉ.

Huyền phù đặc chứa muối tan trong nước của đồng và oxit phức CZA có

thể được gắn vào bề mặt của nền, sấy, và nung để thu được chất xúc tác tinh chế khí thải trong đó lớp chất xúc tác làm bằng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế được tạo ra trên nền. Chẳng hạn, chất xúc tác tinh chế khí thải có thể được tạo ra bằng cách bổ sung oxit phức CZA, và thành phần khác nếu cần, vào dung dịch nước chứa muối tan trong nước của đồng để điều chế huyền phù đặc, và gắn huyền phù đặc này vào nền, sau đó sấy và nung. Theo quan điểm cải thiện hoạt tính xúc tác của chất xúc tác tinh chế khí thải cần điều chế, nhiệt độ nung để nung nền có huyền phù đặc được gắn vào đó tốt hơn là từ 300 đến 800°C, và tốt hơn nữa là 400 đến 600°C. Thời gian nung tốt hơn là 0,5 đến 10 giờ, và tốt hơn nữa là 1 đến 3 giờ. Quá trình nung có thể được thực hiện trong không khí, chẳng hạn.

Trong trường hợp mà trong đó nền có dạng hình tổ ong, lượng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải trong chất xúc tác tinh chế khí thải tốt hơn là bằng hoặc lớn hơn 50 g/l, tốt hơn nữa là bằng hoặc lớn hơn 70 g/l, và đặc biệt tốt là bằng hoặc lớn hơn 85 g/l, theo quan điểm thu được độ bền nhiệt và tính năng tinh chế khí thải ở nhiệt độ thấp. Mặt khác, theo quan điểm thu được hoạt tính có lợi ở nhiệt độ thấp trong khi ngăn ngừa sự giảm áp suất ngược, lượng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải trong chất xúc tác tinh chế khí thải tốt hơn là bằng hoặc nhỏ hơn 220 g/l, tốt hơn nữa là bằng hoặc nhỏ hơn 200 g/l, và đặc biệt tốt là bằng hoặc nhỏ hơn 180 g/l.

Như được sử dụng ở đây, lượng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải trong chất xúc tác tinh chế khí thải để chỉ lượng cho một thể tích của nền, và thể

tích của nền được xác định dựa trên hình dạng bên ngoài của nền và còn bao gồm tất cả các phần không gian trong nền để làm các phần của thể tích của nền.

Như được mô tả ở trên, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế và chất xúc tác tinh chế khí thải chứa thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải này tạo ra tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời trước khi lão hóa nhiệt. Ngoài ra, ngay cả sau khi tiếp xúc với nhiệt độ cao bằng 900°C hoặc cao hơn, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải tạo ra tính năng xúc tác tinh chế NO_x ổn định. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải này có thể tạo ra tính năng tinh chế khí thải tốt và ổn định khi được sử dụng cho động cơ đốt trong sử dụng nhiên liệu hóa thạch làm nguồn năng lượng, như là động cơ xăng hoặc động cơ diesel. Cụ thể, ở xe tự di chuyển hai bánh, khoảng biến thiên của khí thải là gần phía giàu ($\lambda > 1$) so với khoảng biến thiên này ở in xe tự di chuyển bốn bánh, và do đó, phản ứng tinh chế NO_x có nhiều khả năng xảy ra. Do đó, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải theo sáng chế được sử dụng đặc biệt có lợi trong xe tự di chuyển hai bánh.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Sau đây, sáng chế sẽ được mô tả chi tiết hơn bằng các ví dụ. Tuy nhiên, phạm vi của sáng chế không chỉ giới hạn ở các ví dụ được đưa ra dưới đây.

Cả quá trình sấy và nung trong quá trình sản xuất thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải được thực hiện trong không khí. Diện tích bề mặt riêng được xác định bằng phương pháp BET ba điểm bằng ccsH sử dụng thiết bị phân tích sự phân bố cỡ lỗ và diện tích bề mặt riêng (model

QUADRASORB SI) là sản phẩm của Quantachrome Corporation. Heli được sử dụng làm khí đo.

Ví dụ 1

(1) Điều chế huyền phù đặc để tạo ra chất xúc tác tinh chế khí thải

Xeri nitrat hexahydrat, zirconyl nitrat dihydrat, dung dịch nước của ytri nitrat, và dung dịch nước của lantan nitrat được sử dụng, và dung dịch nitrat trong nước được tạo ra có chứa xeri nitrat, zirconyl nitrat, ytri nitrat, và lantan nitrat ở tổng nồng độ 0,1 mol/l. Dung dịch nitrat trong nước này có thành phần sao cho tỷ lệ khối lượng giữa xeri nitrat, zirconyl nitrat, ytri nitrat, và lantan nitrat tính theo các oxit tương ứng của chúng là $\text{CeO}_2:\text{ZrO}_2:\text{Y}_2\text{O}_3:\text{La}_2\text{O}_3 = 33:25:1:1$. Tiếp theo, dung dịch nước của natri aluminat được tạo ra, và dung dịch nước chứa natri aluminat được bổ sung nhỏ giọt vào dung dịch nitrat trong nước để nhờ đó tạo thành huyền phù đặc có độ pH bằng 7 ở nhiệt độ 75°C. Tỷ lệ khối lượng giữa nhôm và các kim loại hỗn hợp Ce, Zr, Y, và La trong huyền phù đặc tính theo các oxit tương ứng của chúng là 40:60.

Sau khi kết tủa, nhiệt độ được tăng tới 90°C, và huyền phù đặc này được để già hóa trong 30 phút, sau đó làm nguội đến 40°C. Tiếp theo, PEG-200 để làm chất hoạt động bề mặt được bổ sung vào huyền phù đặc với lượng 30% khối lượng dựa trên tổng khối lượng của các kim loại hỗn hợp tính theo oxit. Huyền phù đặc thu được được khuấy trong 1 giờ, sau đó thu hồi và rửa bằng nước được loại ion. Chất rắn ướt thu được theo cách này được sấy trong lò ở 120°C trong khoảng 12 giờ, và sau đó được rây để nhờ đó thu được bột khô. Tiếp theo, bột

này được nung ở 1000°C trong 4 giờ để thu được oxit phức CZA. Lượng Al_2O_3 , ZrO_2 , CeO_2 , La_2O_3 , và Y_2O_3 trong oxit phức CZA thu được là như được thể hiện trong bảng 1. Cỡ hạt trung bình thể tích D_{50} của oxit phức CZA này được xác định bằng cách sử dụng phương pháp được mô tả ở trên, và được tìm ra là $10\mu\text{m}$. Oxit phức CZA được đo nhiễu xạ tia X, và đã khẳng định được rằng nhôm oxit là θ -nhôm oxit. Trong phương pháp đo nhiễu xạ tia X được thực hiện bằng cách sử dụng nguồn bức xạ nêu trên, đã khẳng định được rằng các đỉnh nhiễu xạ của dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit được dịch chuyển về phía góc thấp, và do đó đã khẳng định được rằng một phần nhôm oxit được hòa tan trong dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit. Cũng đã khẳng định được bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X rằng ZrO_2 , CeO_2 , La_2O_3 , và Y_2O_3 đã tạo ra dung dịch rắn.

Sau đó, bột oxit phức CZA thu được trong mục (1) ở trên được bổ sung vào dung dịch nước chứa đồng (II) nitrat trihydrat trong nước được trao đổi ion, và dung dịch thu được được khuấy. Tiếp đó, chất kết dính ziricon oxit được bổ sung vào dung dịch này để bằng cách đó thu được huyền phù đặc để tạo thành chất xúc tác tinh chế khí thải. Thành phần của huyền phù đặc để tạo thành chất xúc tác tinh chế khí thải là sao cho khi huyền phù đặc này được sử dụng làm thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải bao gồm 6,0% khối lượng đồng oxit, 85,5% khối lượng oxit phức CZA, và 8,5% khối lượng ziricon oxit.

(2) Tạo ra chất xúc tác tinh chế khí thải

Huyền phù đặc để tạo thành chất xúc tác tinh chế khí thải được tạo ra

trong mục (1) ở trên được gắn vào nền thép không gỉ hình tổ ong (là sản phẩm của Goshi Giken Co., Ltd.; có đường kính 40mm, chiều dài trục 60mm, số ô 300 cpsi, và thể tích 0,0754l), và tiếp đó, lượng huyền phù đặc dư được thổi đi. Tiếp theo, nền có huyền phù đặc được sấy theo cách sao cho bề mặt của nền mà thành phần này đã được gắn vào được tiếp xúc trực tiếp với không khí nóng ở 70°C, và sau đó nền thu được được nung ở 450°C trong 1 giờ để loại bỏ nhóm nitrat. Do đó, chất xúc tác tinh chế khí thải mà trong đó lớp chất xúc tác được tạo ra trên nền thép không gỉ hình tổ ong đã thu được.

Lớp chất xúc tác này được làm bằng thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có tỷ lệ thành phần được mô tả ở trên, và được làm chủ yếu bằng bột oxit phức CZA mang đồng oxit. Lượng lớp chất xúc tác cho một thể tích của nền là 165 g/l.

Một phần chất xúc tác thu được trong ví dụ 1 được loại ra khỏi nền hình tổ ong bằng cách bằng cách nghiền nó, và được sử dụng làm mẫu để xác định D_{50} . D_{50} của mẫu bột chất xúc tác thu được được xác định bằng cách sử dụng phương pháp giống như được mô tả ở trên để xác định D_{50} của oxit phức CZA. Kết quả được thể hiện trong bảng 1.

Ngoài ra, mẫu bột chất xúc tác thu được được lão hóa trong các điều kiện được mô tả sau đây. Diện tích bề mặt riêng và mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của mẫu bột chất xúc tác trước khi và sau khi lão hóa được xác định bằng cách sử dụng các phương pháp được mô tả ở trên. bảng 1 thể hiện các kết quả này.

Các ví dụ 2 đến 4

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, chỉ khác là lượng xeri nitrat hexahydrat, zirconyl nitrat dihydrat, dung dịch nước chứa lantan nitrat, dung dịch nước chứa ytri nitrat, và nhôm hydroxit được thay đổi sao cho lượng Al_2O_3 , ZrO_2 , CeO_2 , La_2O_3 , và Y_2O_3 trong oxit phức CZA là các giá trị được thể hiện trong bảng 1.

Mẫu bột chất xúc tác đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, và D_{50} của mẫu bột chất xúc tác được xác định. Kết quả được thể hiện trong bảng 1.

Ngoài ra, diện tích bề mặt riêng và mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của mẫu bột chất xúc tác trước khi và sau khi lão hóa được xác định theo cách giống như trong ví dụ 1. Bảng 1 thể hiện các kết quả này.

Ví dụ 5

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 3, chỉ khác là cỡ hạt D_{50} của oxit phức CZA là $24\mu\text{m}$. Mẫu bột chất xúc tác đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, và D_{50} của mẫu bột chất xúc tác được xác định theo cách giống như trong ví dụ 1. Kết quả được thể hiện trong bảng 1.

Ngoài ra, diện tích bề mặt riêng và mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của mẫu bột chất xúc tác trước khi và sau khi lão hóa được xác định theo cách giống như trong ví dụ 1. Bảng 1 thể hiện các kết quả này.

Ví dụ so sánh 1

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, chỉ khác là oxit phức CZA được thay bằng oxit phức xeri oxit-ziricon oxit có bán trên thị trường (lượng ZrO_2 và CeO_2 là như được thể hiện trong bảng 1).

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và lớp chất xúc tác bao gồm 6,0% khối lượng đồng oxit, 85,5% khối lượng oxit phức xeri oxit-ziricon oxit, và 8,5% khối lượng ziricon oxit. Mẫu bột chất xúc tác đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, và D_{50} của mẫu bột chất xúc tác được xác định. Kết quả được thể hiện trong bảng 1.

Ngoài ra, diện tích bề mặt riêng và mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của mẫu bột chất xúc tác trước khi và sau khi lão hóa được xác định theo cách giống như trong ví dụ 1. Bảng 1 thể hiện các kết quả này.

Ví dụ so sánh 2

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, chỉ khác là oxit phức CZA được thay bằng θ -nhôm oxit được ổn định bằng La có bán trên thị trường (lượng Al_2O_3 và La_2O_3 là như được thể hiện trong bảng 1).

Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và lớp chất xúc tác bao gồm 6,0% khối lượng đồng oxit, 85,5% khối lượng nhôm oxit, và 8,5% khối lượng ziricon oxit. Mẫu bột chất xúc tác đã thu được theo cách giống như trong ví dụ 1, và D_{50} của mẫu bột chất xúc tác được xác định. Kết quả được thể hiện trong bảng 1.

Ngoài ra, diện tích bề mặt riêng và mức độ duy trì diện tích bề mặt riêng của mẫu bột chất xúc tác trước khi và sau khi lão hóa được xác định theo cách giống như trong ví dụ 1. Bảng 1 thể hiện các kết quả này.

Bảng 1

	Thành phần của chất mang (% khối lượng)					D ₅₀ của oxit phức mang đồng oxit (μm)	D ₅₀ của xúc tác (μm)	Diện tích bề mặt trước khi lão hóa (m^2/g)	Diện tích bề mặt riêng sau khi lão hóa (m^2/g)	Mức độ duy trì trước khi và sau khi lão hóa (%)
	Al ₂ O ₃	ZrO ₂	CeO ₂	La ₂ O ₃	Y ₂ O ₃					
Ví dụ 1	40	25	33	1	1	10	10	88	26	30
Ví dụ 2	60	16	22	1	1	11	11	75	32	42
Ví dụ 3	80	9	10	0,5	0,5	9	9	81	38	46
Ví dụ 4	90	4	5	0,5	0,5	10	10	100	52	52
Ví dụ 5	80	9	10	0,5	0,5	24	24	90	42	47
Ví dụ so sánh 1	0	70	30	0	0	12	12	48	5	11
Ví dụ so sánh 2	99	0	0	1	0	10	10	103	52	69

Đánh giá

Các chất xúc tác tinh chế khí thải theo các ví dụ 1 đến 5 và các ví dụ so sánh 1 và 2 được để lão hóa trong các điều kiện sau đây.

Điều kiện lão hóa

Mỗi chất xúc tác tinh chế khí thải được lão hóa ở 900°C trong 4 giờ trong không khí, và sau đó được lão hóa ở 950°C trong 4 giờ trong môi trường nitơ.

Trên mỗi chất xúc tác tinh chế khí thải, T50 và η_{400} của NO_x trước khi và sau khi lão hóa được xác định trong các điều kiện được mô tả dưới đây để đánh giá tính năng tinh chế NO_x . Bảng 2 thể hiện các kết quả này.

Điều kiện xác định T50 và η_{400}

Chất xúc tác tinh chế khí thải được đặt trong đường dẫn dòng khí, và khí thải mô phỏng như được mô tả dưới đây được cho đi qua đường dẫn dòng khí này. Nhiệt độ khí của khí đi vào chất xúc tác tinh chế khí thải được tăng dần từ nhiệt độ trong phòng, và lượng NO_x chứa trong khí thải đã đi qua chất xúc tác được xác định. Tỷ lệ tinh chế NO_x được tính bằng cách sử dụng công thức sau:

$$\text{tỷ lệ tinh chế } \text{NO}_x (\%) = (A-B)/A \times 100$$

trong đó A là lượng NO_x được phát hiện trước khi chất xúc tác được đặt vào, và B là lượng NO_x được phát hiện sau khi chất xúc tác được đặt vào.

Nhiệt độ khí của chất xúc tác khi tỷ lệ tinh chế NO_x đạt 50% được định nghĩa là nhiệt độ tắt đèn T50. Ngoài ra, η_{400} được xác định. η_{400} là tỷ lệ tinh chế NO_x được xác định theo cách giống như đối với T50 chỉ khác là nhiệt độ của khí thải đi vào thiết bị được duy trì ở 400°C. Giá trị T50 càng thấp, tính năng

tính chế NO_x càng tốt, và giá trị η_{400} càng cao, tính năng tính chế NO_x càng tốt.

· khí thải mô phỏng (theo tỷ lệ phần trăm hoặc ppm theo thể tích): CO:

1,25%, C_3H_6 : 1740 ppmC, NO: 2450 ppm, O_2 : 0,6%, CO_2 : 14%, H_2O : 10%, N_2 :

lượng còn lại

· Tốc độ dòng khí: 25 l/phút

· Tốc độ tăng nhiệt độ: $20^\circ\text{C}/\text{phút}$

Bảng 2

	Tính năng tính chế NO_x trước khi lão hóa		Tính năng tính chế NO_x sau khi lão hóa	
	T50 ($^\circ\text{C}$)	η_{400} (%)	T50 ($^\circ\text{C}$)	η_{400} (%)
Ví dụ 1	337	91	378	65
Ví dụ 2	336	92	368	75
Ví dụ 3	331	95	356	86
Ví dụ 4	346	93	359	89
Ví dụ 5	328	97	345	92
Ví dụ so sánh 1	350	86	446	31
Ví dụ so sánh 2	361	85	372	74

Như được thể hiện trong Bảng 2, các ví dụ dẫn đến T50 trước khi lão hóa bằng hoặc nhỏ hơn 346°C và η_{400} trước khi lão hóa bằng hoặc lớn hơn 91%, điều này có nghĩa là tính năng tính chế NO_x tuyệt vời được tạo ra. Trái lại, ví dụ so sánh 1, trong đó đồng oxit được mang trên oxit phức xeri oxit-ziricon oxit mà không là oxit phức CZA, và ví dụ so sánh 2, trong đó đồng oxit được mang trên θ -nhôm oxit, dẫn đến T50 trước khi lão hóa lớn hơn so với trong các ví dụ, điều này có nghĩa là tính năng tính chế NO_x kém được tạo ra. Ngoài ra, các ví dụ dẫn

đến T50 bằng hoặc nhỏ hơn 378°C ngay cả sau khi lão hóa, điều này có nghĩa là tính năng tinh chế tốt được duy trì. Trái lại, ví dụ so sánh 1 dẫn đến T50 cao hơn đáng kể so với trong các ví dụ, điều này có nghĩa là tính năng tinh chế NO_x sau khi lão hóa là kém.

Khả năng áp dụng trong công nghiệp

Theo sáng chế, thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải và chất xúc tác tinh chế khí thải có tính năng tinh chế NO_x tuyệt vời được tạo ra mà không sử dụng kim loại quý.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải bao gồm:

hạt oxit phức chứa xeri oxit, ziricon oxit, và nhôm oxit, trong đó dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit có mặt trong đó; và

đồng oxit được mang trên bề mặt của hạt oxit phức này,

trong đó oxit phức này có hàm lượng nhôm oxit bằng hoặc lớn hơn 30% khối lượng và hàm lượng xeri oxit nhỏ hơn 50% khối lượng, và

khi thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải này được xử lý nhiệt ở nhiệt độ 950°C trong 4 giờ và sau đó phân tích bằng cách sử dụng phương pháp đo nhiễu xạ tia X, không đỉnh nào tách thành hai hoặc nhiều đỉnh do xử lý nhiệt được quan sát trên mỗi trong số ba đỉnh được gán cho dung dịch rắn xeri oxit-ziricon oxit lần lượt ở $2\theta =$ khoảng 29°, $2\theta =$ khoảng 34°, và $2\theta =$ khoảng 48,5°.

2. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm 1,

trong đó đồng oxit được chứa với lượng bằng hoặc lớn hơn 3 phần khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 30 phần khối lượng, so với 100 phần khối lượng của oxit phức.

3. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm 1 hoặc 2,

trong đó hàm lượng nhôm oxit của oxit phức là bằng hoặc lớn hơn 50% khối lượng, và hàm lượng xeri oxit của oxit phức là bằng hoặc lớn hơn 2,5% khối lượng.

4. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số

các điểm từ 1 đến 3, trong đó oxit phức có hàm lượng zircon oxit bằng hoặc lớn hơn 1% khối lượng và bằng hoặc nhỏ hơn 35% khối lượng.

5. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 4, trong đó nhôm oxit trong oxit phức là θ -nhôm oxit.

6. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 5, trong đó thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải có cỡ hạt trung bình thể tích D_{50} bằng hoặc lớn hơn $3\mu\text{m}$ và bằng hoặc nhỏ hơn $60\mu\text{m}$.

7. Chất xúc tác tinh chế khí thải chứa thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 5.

8. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 6, trong đó, oxit phức chứa xeri oxit, zircon oxit, nhôm oxit, và đồng được loại bỏ khỏi oxit phức nêu trên.

9. Thành phần chất xúc tác tinh chế khí thải như nêu trong điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 6 và 8, trong đó hàm lượng xeri oxit của oxit phức là bằng hoặc nhỏ hơn 15% khối lượng.