

复合载体负载型催化剂制备 及其微波辅助催化氧化甲苯性能试验

杨 全, 张 浩, 卜龙利

(西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 陕西 西安 710055)

摘要: 将吸附材料分子筛粉末、吸波材料碳化硅粉末以及催化活性组分铜 (Cu)、锰(Mn)、铈(Ce)盐溶液完全混合, 通过制粒、煅烧后制得复合载体负载型催化剂; 微波辐照条件下, 应用该催化剂进行了甲苯废气的催化氧化性能试验研究. 研究表明, 复合载体负载型催化剂的优化制备条件为: 高岭土为粘合剂, 掺入 3% 的碳化硅, 铜锰质量比为 1:1 (各 5% 负载量), 铈的掺杂量为 1.67%, 焙烧温度为 500 °C, 焙烧时间为 8h. 反应温度 210 °C 下, 优化制备的复合载体催化剂催化氧化甲苯的转化率达 95%, 表现出良好的低温活性和催化氧化性能.

关键词: 复合载体负载铜-锰-铈催化剂; 微波加热; 催化氧化; 甲苯

中图分类号: X 703.1 **文献标志码:** A **文章编号:** 1006-7930(2014)01-0131-06

挥发性有机化合物 (volatile organic compounds, VOCs)^[1] 作为大气污染的主要污染物之一, 其处理技术主要有回收技术和销毁技术. 回收技术是凭借物理原理, 通过压力、温度、选择性渗透膜和吸附剂等方法来分离 VOCs, 主要有吸附技术、吸收技术、冷凝技术及膜分离技术等, 因此对于高浓度的 VOCs 废气宜采用回收技术; 销毁技术主要是利用生化或化学反应, 用微生物和光、热、催化剂等将 VOCs 转化成 CO₂ 和水, 主要有生物技术、等离子体技术、光催化技术、热力焚烧技术^[2] 和催化氧化技术等, 因此对于中低浓度和无利用价值的 VOCs 废气宜采用销毁技术. 催化氧化技术又称无火焰催化燃烧技术, 是指在催化剂作用下将废气中 VOCs 低温氧化成 CO₂ 和水, 一般的催化反应温度为 300~600 °C, 是目前应用较为广泛、具有广阔前景的消除 VOCs 废气的方法之一. 相比于其他技术, 催化氧化的突出优点是能够处理浓度很低的有机废气, 同时节能、操作简单、污染物去除效率高, 而且还具有辅助费用低和无二次污染等^[3-5] 优点.

催化氧化技术通常采用传统电加热方式为催化剂进行加热, 而 2 450 MHz 的微波加热具有加热速度快、均匀性好、无二次污染、无滞后性和微波设备易操作控制等优点而受到青睐, 另外微波能对有机化合物分子的转动有明显的促进作用也有助于有机污染物分子化学键的断裂. Chang Yucha 等^[6,7] 利用微波空气净化技术对含有三氯乙烯的废气进行处理, 微波催化氧化器中装有 SiC, 能吸收微波能, 使催化氧化反应进行完全, 利用这一技术对含有三氯乙烯的废气进行处理, 其催化氧化效率达 98%. 侯晨^[8] 等将微波技术应用用于舱室有机废气的催化热解处理, 在微波条件下, 含有 1% La₂O₃ 的负载型 V₂O₅ 催化剂在 150 °C 可使油烟净化率达到 88% 以上. 付润泽^[9] 等利用微波处理沥青烟气, 大大提高了焚烧法处理沥青尾气的效率. 此外, 前期的实验中, 课题组的卜龙利等^[10-11] 利用微波辅助催化氧化苯系物, 取得了良好的效果.

催化氧化技术中, 选择高效、稳定的催化剂是关键, 其效率高对污染物催化氧化的去除率和反应能耗起决定性的作用. 本文以吸附材料分子筛为主要载体, 混合吸波材料碳化硅以及金属活性组分盐溶液制备成复合载体负载型催化剂, 在微波辐照加热下, 通过固定床反应器考察催化剂对甲苯的催化氧化降解效果, 进而为微波辅助催化氧化 VOCs 新工艺的研究应用奠定有价值的理论基础.

1 实验材料与方法

1.1 仪器与材料

电子天平, FA/JA 型, 上海民桥精密仪器有限公司; 电热鼓风干燥箱, 101-3AB 型, 天津市泰斯特仪器有限公司; 马弗炉, SX-4-10 型, 北京科伟永兴仪器有限公司; 注射泵, LSP01-2B 型, 保定兰格恒流泵

收稿日期: 2013-05-20

修改稿日期: 2014-02-17

基金项目: 西安市产业技术创新计划-技术转移促进工程项目(CX12176-4)

作者简介: 杨全(1968-), 男, 工程师, 硕士, 主要大气污染控制方向研究为. E-mail: yangquan@xauat.edu.cn

有限公司;电磁式空气泵,ACO-003型,广东日生集团有限公司;比表面积测定仪,V-Sorb X800型,北京金埃谱科技有限公司;扫描电子显微镜(SEM),S-570型,日本日立公司;X射线衍射仪,D/MAX-2400型,日本理学公司;微波加热装置,MCL-2型,四川大学无线电系;气相色谱仪,6890N型,美国安捷伦科技公司。

甲苯、硝酸铜、硝酸锰,分析纯,天津福晨化学试剂厂;硝酸铈,分析纯,上海山浦化工有限公司;高岭土、皂土,分析纯,上海国药集团化学试剂有限公司;5A分子筛粉末,分析纯,浙江宁海远大;碳化硅粉末,分析纯,西安科技大学。

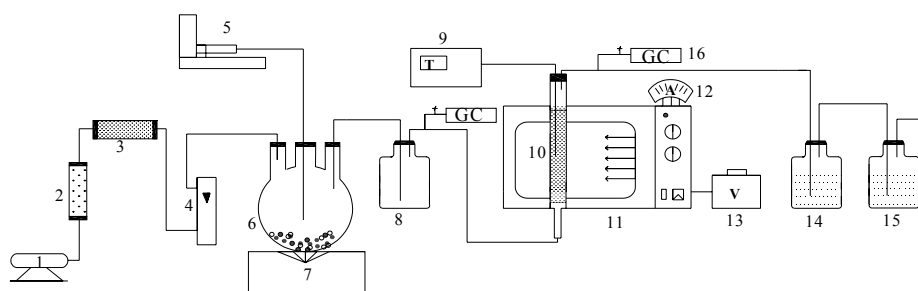
1.2 催化剂的制备与表征

常用的催化剂制备方法有浸渍法、沉淀法、沥滤法、热熔融法、电解法和离子交换法等,本研究以分子筛原粉为载体,碳化硅(SiC)粉末为吸波材料,高岭土为粘合剂,采用完全混合法制备复合载体负载型催化剂:称取分子筛原粉90 g、高岭土30 g和不同质量的硝酸铜、硝酸锰和硝酸铈(铜、锰、铈负载量分别为5%、5%和1.67%)三份,分别和不同配比的SiC粉末完全混合,加适量蒸馏水搅拌使其充分溶解;搅拌使其变为泥浆状,放入烘箱干燥2 h;待泥浆变为泥状混合物时从烘箱取出,人工揉捏将其制成大小为3~5 mm的小球,放入烘箱在106℃下干燥12 h;取出干燥后的样品,500℃的马弗炉中焙烧8 h;冷却后即制得复合载体负载型催化剂。

催化剂的表面形貌、金属颗粒的大小与形状通过SEM进行观察;催化剂的物相组成、晶粒大小和分散度采用XRD分析仪予以测试,所用射线为铜K α 射线,加速电压和应用电流分别为40 kV和40 mA;催化剂的比表面积与孔径变化通过BET测试予以分析。

1.3 微波辅助催化氧化甲苯的实验方案

实验研究以空气为氧源,空气经干燥剂干燥和活性炭柱吸附净化后进入挥发装置,微量进样器注入的液体甲苯加热挥发后与空气混合,经缓冲瓶充分混合后进入微波反应装置进行催化氧化反应,反应后的尾气经有机溶剂吸收和碱液吸收净化后排空。实验工艺流程如图1所示。



1. Air pump; 2. Desiccator; 3. Adsorption column; 4. Flowmeter; 5. Microinjector; 6. Volatilizer; 7. Electric furnace; 8. Buffer bottle; 9. Thermocouple; 10. Quartz tube; 11. Modified microwave oven; 12. Ammeter; 13. Transformer; 14. Methanol absorber; 15. Alkali liquor absorber; 16. Gas chromatograph

图1 实验工艺流程图

Fig.1 Schematic diagram of experimental process

实验装置中石英管尺寸 $D \times L = 28 \text{ mm} \times 320 \text{ mm}$,反应床层温度通过热电偶温控仪进行在线监测,微波功率通过电流表的读数可计算出。

1.4 分析方法

实验过程中反应器进、出口气体甲苯浓度采用气相色谱(FID检测器)进行定量分析,并由此计算甲苯的转化率。催化剂的活性通过测试其对苯的起燃温度(T_{50})与完全燃烧温度(T_{95})来评价,其中 T_{50} 指苯转化率为50%时的反应温度, T_{95} 为苯转化率95%时的反应温度。

2 结果与讨论

2.1 不同碳化硅配比的催化剂活性分析

由于SiC具有良好的吸波性、导热性和稳定性,因此可作为催化剂载体予以研究。SiC掺入比3%、5%和10%条件下,分别与分子筛原粉、粘合剂(这里选用高岭土做粘合剂)混合作为复合载体,然后

混合 Cu-Mn-Ce (Cu: Mn=1: 1 (质量比)、铈的掺杂量为 1.67%) 盐溶液制成三种不同 SiC 配比的颗粒催化剂, 通过微波辅助催化氧化甲苯试验考察催化剂的活性与稳定性, 结果如图 2 所示。

由图 2 可以看出, 复合载体催化剂对甲苯的催化氧化效率明显不同, 随着 SiC 相对含量的增加, 甲苯的 T_{50} 依次升高, 其去除效率却依次降低, 催化剂对甲苯的催化活性也依次降低。分析可知, 碳化硅具备强吸波性和高导热性, 其掺入可大大增加催化剂的升温性能。由于催化剂表面活性组分的多少与分布状况影响着催化剂的活性, 而碳化硅的适量加入可迅速将热量传递给活性组分, 从而加速活性组分处污染物的氧化; 但过多的掺入量会导致催化剂载体的内部孔道被碳化硅微粒堵塞, 活性组分被碳化硅覆盖, 从而使得催化剂比表面积减少和表面活性组分减少, 导致催化剂活性的降低。本试验研究中, 当碳化硅的配比为 3% 时, 甲苯的 T_{50} 和 T_{95} 达到最低值, 催化剂活性最高。因此, 本文中碳化硅的最佳配比确定为 3%。

对 3% 掺入比的碳化硅复合载体进行了 XRD 表征, 结果如图 3 所示。

由图 3 可知, 分子筛和碳化硅都具备一定的晶型, 复合载体以分子筛衍射峰为主; 碳化硅的含量虽仅有 3%, 但其晶体衍射峰明显, 可有效地将微波能转化为热能并及时地传递给分子筛和其负载的活性组分。因此混合 3% SiC 既能够减少反应时的升温时间, 又不会影响催化剂的催化氧化效果。

分别对 3% SiC 复合载体、Cu/3% SiC 复合载体以及 Cu-Mn/3% SiC 复合载体催化剂进行 SEM 和 BET 表征, 结果如图 4 和表 1 所示。

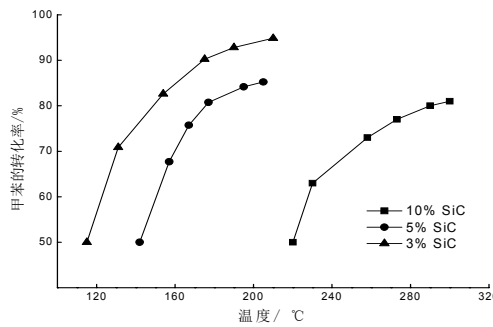


图 2 SiC 掺入比对甲苯转化率的影响
Fig.2 Effect of SiC mixing ratio on toluene

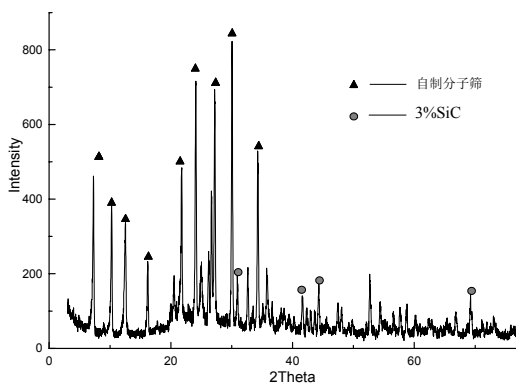


图 3 3% SiC 掺入比的复合载体 XRD 图
Fig.3 XRD of the composite carrier with 3%

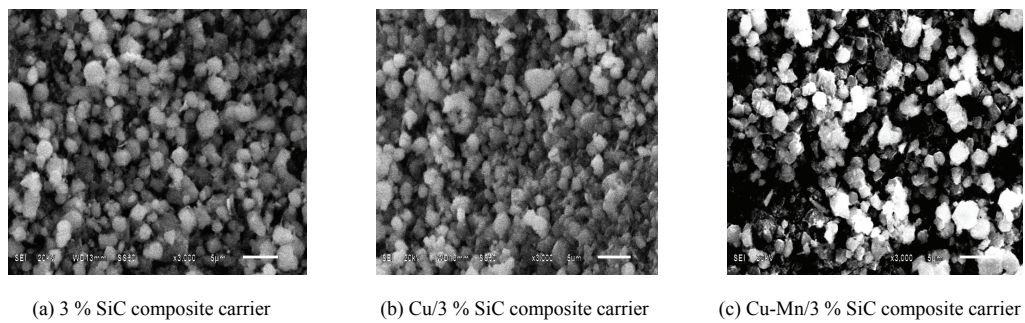


图 4 不同催化剂的 SEM 图
Fig.4 SEM of different catalysts

表 1 不同催化剂的比表面积、孔体积及平均孔径

Tab. 1 Specific surface area, pore volume and average pore diameter of different catalysts

催化剂	比表面积/ $\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$	孔体积/ $\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$	平均孔径/ nm
3% SiC 复合载体	362.15	0.31	3.36
Cu /3% SiC 复合载体	284.28	0.26	3.22
Cu-Mn /3% SiC 复合载体	246.50	0.20	3.13

图 4(a)可看出 3%SiC 复合载体表面颗粒大小不一且存在微孔结构, 但颗粒分布比较均匀; 图 4(b)与图 4(a)相比, 分布也还是比较均匀的, 但可以看出表面颗粒紧密, 存在有活性组分颗粒; 图 4(c)与图 4(b)、图 4(a)相比, 表面活性组分颗粒明显增多, 分布也比较均匀, 其较好的分散性有利于催化反应活性的提高。

从表1中可以看出, 3%SiC 复合载体比 Cu/3%SiC 复合载体催化剂的比表面积、孔体积和孔径都大; 在 Cu/3%SiC 复合载体催化剂基础上再负载锰之后, Cu-Mn/3%SiC 复合载体催化剂的比表面积减少, 平均孔径减少了 0.23 nm, 说明锰的加入, 形成的铜锰尖晶石固溶物, 改变了部分分子筛的骨架结构^[11], 使得孔径变小. 但在改变分子筛的孔径上, 铜离子比锰离子起着更大的作用. 活性组分的负载, 减少了催化剂的比表面积、孔体积和平均孔径, 从而降低催化剂的吸附性, 这对污染物的氧化降解是不利的; 但活性组分高效的催化能力却有利于污染物的快速氧化分解, 寻求两者之间的最佳结合点则可有效提高催化剂的活性与污染物的降解效率.

2.2 不同粘合剂对催化剂的影响分析

由于复合载体负载型催化剂需要将载体和活性组分混合均匀后制得, 那么就需要用到粘合剂, 借助其粘性将两种分离的材料连接在一起. 因此, 有必要对选取何种粘合剂进行研究. 本实验中选取了两种粘合剂进行比选, 分别是高岭土和皂土.

分别用高岭土、皂土与分子筛原粉以 1: 3 的质量比混合, 掺入 3% 碳化硅粉末和 Cu: Mn: Ce=1: 1: 0.33 的浸渍液, 制成不同粘合剂的催化剂, 考察其对甲苯的催化氧化活性, 结果见图 5 及表 2.

由图 5 和表 2 可以看出, 采用高岭土作为粘合剂所制成的催化剂对甲苯的微波辅助催化氧化效率明显高于用皂土作粘合剂所制成的催化剂. 这两种粘合剂都具有较高的粘结力, 但每种都有其各自的属性. 皂土亦即膨润土, 具有膨胀性、触变性和悬浮性, 对乳胶和有机胶的稳定性强、对有机质的吸附性强; 高岭土质软、白度高、易分散且悬浮于水中, 具有优良的电绝缘性能、良好的可塑性和高的粘结性, 同时还有良好的抗酸溶性、较好的耐火性和很低的阳离子交换量等理化性质. 通过上述实验和两种粘合剂的性质可知, 选用高岭土作为催化剂的粘合剂对甲苯的微波辅助催化氧化效果最佳.

由图 6(a)的 SEM 可以看出, 铜、锰、铈氧化物颗粒较均匀地分散于用高岭土制得的催化剂表面上; 图 6(b)可以看出, 有少量的铜、锰、铈氧化物颗粒分散在皂土所制得的催化剂表面, 这就使得用皂土做粘合剂制得的催化剂对甲苯的微波催化氧化效果不如用高岭土做粘合剂制得的催化剂好. 图 6 的 SEM 表征有力地支持了图 5 的研究结果.

2.3 焙烧时间对催化剂性能的影响分析

由于制备催化剂需要在高温下烧结形成, 温度过低, 活性组分或其晶形未形成, 结构不完整; 温度过高, 则易烧结成块, 严重减少活性点位而降低催化剂活性. 因此, 需要一定的焙烧温度使活性组分在形状和分布上形成实验所需的理想结果. 根据前期张钰彩^[11]等的研究, 500℃被认为是适宜的催化剂焙烧温度, 所以本实验采用的催化剂焙烧温度为 500℃. 适宜的焙烧温度需要在适当的时间下才能达到催化剂最优的效果, 所以有必要对催化剂的最佳焙烧时间进行考察. 在焙烧温度 500℃下分别按焙烧时间 2、4、6、8 h 制备 4 组催化剂, 所得催化剂在微波辅助加热下对甲苯的催化氧化曲线如图 7 所示.

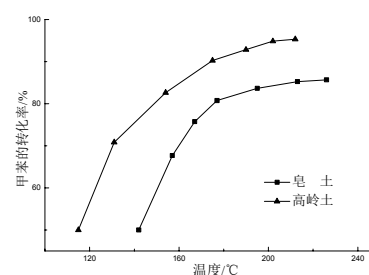
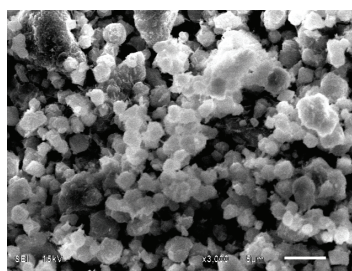


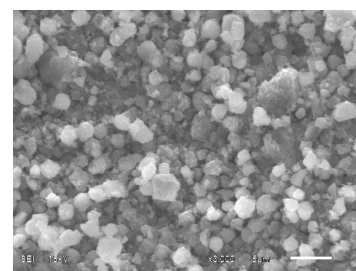
图5 不同粘合剂对催化剂活性的影响
Fig.5 Effect of different adhesives on the catalyst activity

表2 不同粘合剂制成的催化剂活性比较
Tab. 2 Comparison of the activity of catalyst made by different adhesives

粘合剂种类	$T_{50} / ^\circ\text{C}$	$T_{95} / ^\circ\text{C}$
皂土	142	未达到
高岭土	115	210



(a) Kaolin as adhesive of the catalyst



(b) Bentonite as adhesive of the catalyst

图6 不同粘合剂制得催化剂的SEM图
Fig.6 SEM of the catalysts made by different adhesives

图 7 考察了 500℃ 下不同的焙烧时间对 Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体催化剂对甲苯的微波辅助催化氧化效果。从图中可以看出, 随着焙烧时间的增加, 复合载体催化剂对甲苯的催化氧化去除效率也随之升高, 在微波催化反应温度 210℃ 下, 2 h、4 h、6 h、8 h 焙烧时间下的催化剂对甲苯的转化率分别为 71%、77%、85% 和 95%。焙烧时间对催化剂晶粒大小、内部结构、物相组成与表面分布等有直接影响: 在较短的焙烧时间下, 催化剂的活性组分尚未完全形成, 所以活性组分含量较少, 导致催化剂活性较低; 但焙烧时间过长则不经济, 且可能导致催化剂内部结构发生改变而降低催化剂的催化活性。因此, 本试验制备复合载体负载型催化剂的最佳焙烧时间为 8 h。

2.4 完全混合型催化剂的微波辅助催化氧化甲苯性能研究与表征

实验以浙江宁海远大的分子筛原粉、高岭土做粘合剂, 与碳化硅微粉混合制得复合载体, 选用铜锰质量比为 1: 1 (铜、锰负载量分别为 5%)、铈的掺入量为 1.67%、在 500℃ 焙烧温度下, 焙烧时间为 8 h, 制备 Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体、Cu-Mn-Ce/5%SiC 复合载体、Cu-Mn-Ce/10%SiC 复合载体负载型催化剂。通过对甲苯的微波辅助催化氧化试验来考察催化剂的催化活性, 试验测试结果如图 8 所示。

由图 8 可知, 复合载体负载过渡金属及助剂稀土金属后, 对甲苯的微波辅助催化氧化效果显著增强, 反应温度明显降低。通过实验研究表明, Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体催化剂对甲苯的催化氧化活性最佳。分析原因可知, 碳化硅作为吸波材料的显著优点是, 具有很高的导热性, 使其在微波场中迅速升温, 而掺杂碳化硅的催化剂也表现出良好的吸波性能。实验过程中, 具有良好吸波性能的碳化硅将热量传递给催化剂, 从而保证催化剂表面的高温, 确保了催化氧化反应更好更快的进行, 所以对甲苯的催化效果较好, 使得催化氧化反应的起始温度也较低。Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体的催化活性高于 Cu-Mn-Ce/5%SiC 复合载体和 Cu-Mn-Ce/10%SiC 复合载体催化剂, 表明随着碳化硅含量的增加温度虽然明显升高, 但是对甲苯的微波催化氧化效率却依次下降, 说明碳化硅的增加减少了催化剂载体上的活性点位, 使得催化剂不能充分的结合在载体的活性点位上。

根据图 8 的实验结果, 将掺杂不同比例的碳化硅负载催化剂对甲苯的 T_{50} 和 T_{95} 进行统计, 进而对催化剂的催化活性进行深入的比较分析。对于催化剂而言, 催化反应的 T_{50} 和 T_{95} 越低, 则催化剂的催化活性越高。因此, 由表 3 可看到, 三种催化剂对甲苯的催化活性排序为: Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体 > Cu-Mn-Ce/5%SiC 复合载体 > Cu-Mn-Ce/10%SiC 复合载体。混合 3% 碳化硅的催化

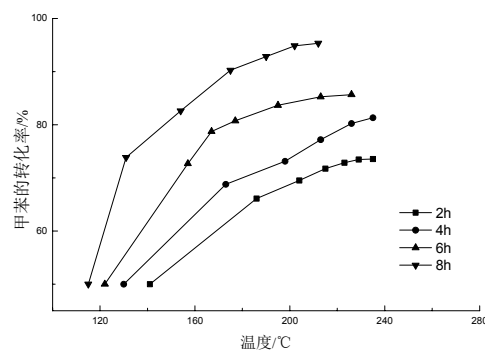


图 7 不同焙烧时间对催化剂微波辅助催化氧化甲苯性能的影响

Fig.7 Effect of different calcination time on catalyst performance in catalytic oxidation of toluene

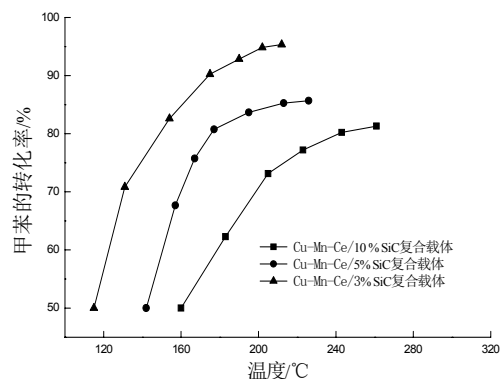


图 8 不同催化剂微波辅助催化氧化甲苯性能

Fig.8 Different catalyst performance of microwave assisted catalytic oxidation of toluene

表 3 不同催化剂对苯的起燃温度 (T_{50}) 和完全燃烧温度 (T_{95})

Tab.3 Different catalysts of benzene light-off temperature (T_{50}) and complete combustion temperature (T_{95})

	Cu-Mn-Ce/3 %SiC 复合载体	Cu-Mn-Ce/5 %SiC 复合载体	Cu-Mn-Ce/10 %SiC 复合载体
$T_{50}/^{\circ}\text{C}$	115	142	160
$T_{95}/^{\circ}\text{C}$	210	未达到	未达到

剂比 5 % 和 10 % 的催化剂对甲苯的 T_{50} 降低 27℃~45℃。由表 3 可知, Cu-Mn-Ce/3 %SiC 复合载体催化剂微波辅助催化氧化甲苯的 T_{50} 和 T_{95} 分别为 115℃ 和 210℃, 其完全燃烧温度低于相关文献报道。

3 结论

(1) Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体催化剂较优的制备条件为:高岭土做粘合剂,3%碳化硅掺入量,Cu:Mn=1:1(质量比,各5%负载量),铈的掺杂量为1.67%,焙烧温度为500℃,焙烧时间为8h,在此制备条件下,催化剂表现出良好的催化活性。

(2) 催化剂微波辅助催化氧化甲苯的降解顺序为:Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体>Cu-Mn-Ce/5%SiC 复合载体>Cu-Mn-Ce/10%SiC 复合载体。实验发现,混合少量的碳化硅有助于提高催化剂的吸波性并且提高了催化剂对甲苯的催化氧化活性。反应温度210℃时,Cu-Mn-Ce/3%SiC 复合载体催化剂微波辅助催化氧化甲苯的转化率可达95%以上,表现出良好的低温活性和催化性能。

参考文献 References

- [1] 乔月珍.上海市机动车和涂料VOCs源成分谱及其大气反应活性研究[D].上海:华东理工大学,2011.
QIAO Yuezheng. Source profile and chemical reactivity of volatile organic compounds(VOCs) from vehicle exhaust and paints[D]. East China University of Science and Technology, 2011.
- [2] 徐铭遥.单元式CuMn₂Ce_nO_x/Cord催化剂的研制及其对甲苯催化燃烧性能[D].广州:华南理工大学,2011.
XU Mingyao. Preparation and catalytic performance for toluene combustion of CuMn₂Ce_nO_x/Cord cell-type catalysts[D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2011.
- [3] KIM Sangchai, WANG Geunshim. Recycling the copper based spent catalyst for catalytic combustion of VOCs[J]. Applied catalysis B: Environmental, 2008, 79(2): 149-156.
- [4] 闫清云,李新勇,肇启东,等. Co₃O₄纳米棒的制备及其对气相甲苯的催化氧化[J]. 环境科学, 2011, 32(12): 3689-3693.
YAN Qingyun, LI Xinyong, ZHAO Qidong, et al. Fabrication of Co₃O₄ nanorods and its catalytic oxidation of gaseous toluene [J]. Environmental Science, 2011, 32(12): 3689-3693.
- [5] NEDYALKOVA R, Ilieva L, Bernard MC, et al. Gold supported catalysts on titania and ceria, promoted by vanadia or molybdena for complete benzene oxidation[J]. Materials Chemistry and Physics, 2009, 116(1): 214-218.
- [6] CHANG Y C, Charlie T. Carlisle. Microwave process for volatile organic compound abatement[J]. Air & Waste Management Association, 2001, 51(12):1628-1641.
- [7] CHANG Y C, Charlie T C. Microwave process for removal and destruction of volatile organic compounds[J]. Environmental Progress, 2001, 20(3):145-150.
- [8] 侯晨.有机废气的微波催化热解技术研究[D].武汉:华中科技大学,2009.
HOU Chen. Studies on microwave assisted catalytic pyrolysis of VOCs[D]. Wuhan: Huazhong University of Science & Technology, 2009.
- [9] 付润泽,曹威扬,朱红波,等.微波处理沥青烟气的探讨研究[J].环境保护科学,2012,38(4):12-14.
FU Runze, CAO Weiyang, ZHU Hongbo, et al. Exploratory research on microwave processing of asphalt smoke[J]. Environmental Protection Science, 2012, 38(4):12-14.
- [10] 廖建波,卜龙利,张钰彩,等.微波辐照下碳化硅与沸石负载氧化铜催化剂协同去除甲苯的实验研究[J].环境科学学报,2011,31(11):2416-2422.
LIAO Jianbo, BO Longli, ZHANG Yucai, et al. Synergistic effect of SiC and CuO/zeolite catalyst on the removal of toluene under microwave irradiation[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2011, 31(11):2416-2422.
- [11] 张钰彩,卜龙利,王晓晖,等.微波加热下苯的催化氧化性能研究[J].环境科学,2012,33(8):2759-2765.
ZHANG Yucai, BO Long-li, WANG Xiaohui, et al. Study on catalytic oxidation of benzene by microwave heating[J]. Environmental Science, 2012, 33(8):2759-2765.

Preparation of composite carrier loaded catalyst and microwave assisted catalytic oxidation of gaseous toluene

YANG Quan, ZHANG Hao, BO Longli

(School of Envir. And Muni. Eng., Xi'an Univ. of Arch. & Tech. Xi'an 710055, China)

Abstract: Molecular sieve powder, silicon carbide powder and copper (Cu), manganese (Mn) and cerium (Ce) saline solutions were mixed completely, and then pelletized and calcined to prepare composite carrier loaded Cu-Mn-Ce catalyst. The catalyst prepared was applied to oxidize gaseous toluene under microwave irradiation and continuous flow mode, and catalytic performance was mainly checked. The research showed that optimization preparation conditions of the catalyst were kaolin as the binder, 3% silicon carbide doping amount, 1:1 mass ratio for Cu and Mn and 5% loaded amount respectively, 1.67% cerium doping amount, 500 °C calcination temperature and 8 h roasting time. Under the reaction temperature of 210 °C, the removal efficiency of toluene reached 95% by microwave assisted catalytic oxidation using optimized catalyst. It indicated that the prepared catalyst owned good catalytic activity and performance under low temperature.

Key words: composite carrier loaded Cu-Mn-Ce catalyst; microwave heating; catalytic oxidation; toluene

(本文编辑:沈波)