

Ảnh hưởng của kích thước hạt TiO₂ đến tính chất và hoạt độ xúc tác trong phản ứng quang oxy hóa p-xylen

Nguyễn Quốc Tuấn^{1,*}, Nguyễn Trí², Hồ Cẩm Hoài³, Lưu Cẩm Lộc²

¹Trường Đại học Đà Lạt, 1 Phù Đổng Thiên Vương, Đà Lạt

²Viện Công Nghệ Hóa học, Viện Khoa học và Công Nghệ Việt Nam, 1 Mạc Đĩnh Chi, Hồ Chí Minh, Việt Nam

³Trường Đại học Khoa học Tự nhiên, ĐHQGHCN, 227 Nguyễn Văn Cừ, Hồ Chí Minh, Việt Nam

Nhận ngày 15 tháng 8 năm 2009

Tóm tắt. Các TiO₂ oxit hiệu ST01, ST21 và ST41 (Nhật) với kích thước hạt khác nhau được sử dụng làm xúc tác cho quá trình quang oxi hóa trong pha khí p-xylen. Tính chất lý-hóa của xúc tác được xác định bằng các phương pháp như hấp phụ BET, nhiễu xạ tia X (XRD), phổ tử ngoại (UV) và hồng ngoại (IR). Kết quả nghiên cứu cho thấy, kích thước hạt TiO₂ là yếu tố trực tiếp quyết định tính chất lý-hóa và hoạt độ của xúc tác. Diện tích bề mặt riêng và số lượng nhóm OH của xúc tác tăng khi kích thước hạt giảm. Khả năng hấp phụ và tạo cốc của TiO₂ tăng, còn hoạt độ quang oxi hóa giảm khi kích thước hạt tăng.

1. Giới thiệu

Trong những năm gần đây, oxi hóa quang xúc tác pha hơi được quan tâm nghiên cứu và ứng dụng trong làm sạch không khí. Quang oxi hóa các hợp chất hữu cơ bay hơi (VOC) khác nhau như ankan [1-3], anken [2,4], các hidrocacbon thơm [3,5-8], các hợp chất chứa oxi [3,6] và trichloroetylen [3] đã được nghiên cứu trên xúc tác TiO₂ dưới tác dụng của tia UV. Maria et al [9] đã thông báo rằng hoạt tính quang xúc tác của TiO₂ phụ thuộc vào kích thước tinh thể vì nó quyết định khả năng hấp phụ và phân hủy các VOC trên bề mặt của chúng. Với các TiO₂ có kích thước tinh thể lớn hơn 7nm, xúc tác nào có kích thước nhỏ hơn sẽ có diện tích bề mặt lớn hơn và do vậy có hoạt

tính xúc tác cao hơn. Việc giảm hoạt tính đối với các TiO₂ có kích thước tinh thể nhỏ hơn 7nm được giải thích như là hệ quả của sự thay đổi cấu trúc và tính chất điện tử của các tinh thể kích thước nano.

Trong công trình trước đây [10] chúng tôi đã nghiên cứu phản ứng trên xúc tác TiO₂ Degusa P25 (Đức) với hàm lượng pha anatas và rutil tương ứng là 80 và 20%. Trong đó đã xác định được điều kiện phản ứng tối ưu cũng như vai trò của hơi nước và điều kiện xử lý xúc tác đến tính chất của xúc tác Degusa. Mục đích của bài báo này là nghiên cứu sự ảnh hưởng của kích thước hạt TiO₂ hiệu ST (Nhật Bản) được xử lý ở nhiệt độ khác nhau trong phản ứng quang oxy hóa hơi p-xylen trong không khí ấm dưới tác dụng của tia UV.

* Tác giả liên hệ. ĐT.: 84-06-33826916.
E-mail: quoctuanlu@yahoo.com

2. Phương pháp nghiên cứu

Các chất xúc tác được điều chế bằng phương pháp nhúng phủ bột TiO₂ hiệu ST01, ST21 và ST41 (ISK- Nhật bản) trên đũa thủy tinh pyrex theo phương pháp tương tự như [10]. Lượng TiO₂ được nhúng phủ là 30mg, diện tích phủ TiO₂ và được chiếu sáng là 68 cm². Xúc tác được hoạt hóa ở nhiệt độ 450, 550°C hoặc bằng ánh sáng UV ở nhiệt độ 40°C trong dòng không khí, trong 4 giờ. Các tính chất lý-hóa của xúc tác như diện tích bề mặt riêng, kích thước hạt, thành phần pha của TiO₂, năng lượng vùng cấm E_{bg}, mật độ nhóm OH trên bề mặt xúc tác được xác định bằng các phương pháp hấp phụ BET, nhiễu xạ tia X (XRD), quang phổ hồng ngoại (IR) và tử ngoại (UV), được mô tả chi tiết trong [10].

Khả năng hấp phụ và hoạt tính của xúc tác được khảo sát bằng phương pháp dòng vi lượng. Điều kiện phản ứng theo kết quả nghiên cứu [10] được chọn như sau: nồng độ của p-xylen ($C_{p\text{-}xylene}$); hơi nước ($C_{H_2O}^o$) và oxi ($C_{O_2}^o$) trong hỗn hợp khí tham gia phản ứng tương ứng bằng 15,94 ; 11,5 và 285,7 mg/l; tốc độ dòng khí (V) được giữ cố định là 6 l/h, nhiệt độ phản ứng 40°C và chiếu tia UV với bước sóng λ =

Bảng 1. Tính chất các loại chất xúc tác TiO₂ hiệu ST01, ST21 và ST41

Đại lượng	Loại TiO ₂		
	ST01	ST21	ST41
Hàm lượng TiO ₂ , %	95	95	95
Độ pH	6,0-8,0	6,0-8,0	6,0-8,0
Diện tích bề mặt riêng (S_{BET}), m ² /g	I 320	II 77,2	III 69,3
Kích thước hạt, nm	7	12	15
(I- trước xử lý, II, III- xử lý ở nhiệt độ 450° và 550°C trong dòng không khí)	20	23	26
	10	18,1	200
	-	-	-

Kết quả bảng 1 cho thấy đối với các TiO₂ cùng dãy ST diện tích bề mặt riêng giảm mạnh khi kích thước hạt tăng từ 7 lên 200 nm và giá trị đại lượng S_{BET} biến thiên trong khoảng rộng (10- 320 m²/g). Bên cạnh đó sự thay đổi diện tích bề mặt riêng khi nhiệt độ xử lý thay đổi cũng phụ thuộc vào kích thước hạt. TiO₂ có

365 nm. Hấp phụ p-xylen hoặc hơi nước cũng tiến hành trong điều kiện tương tự nhưng không chiếu UV. Hỗn hợp phản ứng được phân tích trên máy sắc ký khí Agilent 6890 plus, đầu dò FID, cột mao quản HP-1 Methyl Siloxane (30m; 0,32mm; 0,25μm). Lượng cốc tạo thành trên bề mặt xúc tác được xác định bằng phương pháp đốt xúc tác ở nhiệt độ 500°C và hấp phụ lượng hơi nước và CO₂ tạo thành bằng anhydron và ascarit theo phương được mô tả chi tiết như trong [10]. Tính toán kích thước hạt được tính theo phổ XRD, theo phương trình Scherrer (1) [11]:

$$d_{XRD} = 57,3 \frac{0,9\lambda}{\beta \cos \theta}, \quad (1)$$

trong đó: d_{XRD} - kích thước trung bình của tinh thể, λ - bước sóng của tia X (nm), β - chiều rộng của $\frac{1}{2}$ peak đặc trưng (độ), θ : góc Bragg (độ) và 57,3 là hệ số chuyển từ đơn vị độ sang radian

3. Kết quả và bàn luận

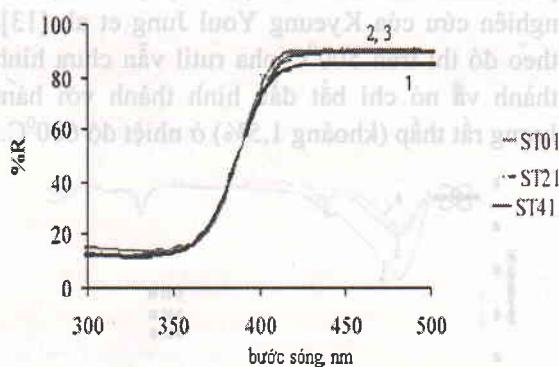
3.1. Tính chất lý hóa của xúc tác

kích thước hạt càng nhỏ sự thay đổi kích thước hạt và diện tích bề mặt riêng càng nhanh khi nhiệt độ xử lý tăng. Mẫu ST01 với kích thước hạt nhỏ (7nm) có các đại lượng này thay đổi nhanh nhất. Khi tăng nhiệt độ xử lý đến 450 và 550°C diện tích bề mặt riêng của mẫu ST01 giảm tương ứng 76 và 78% và kích thước hạt

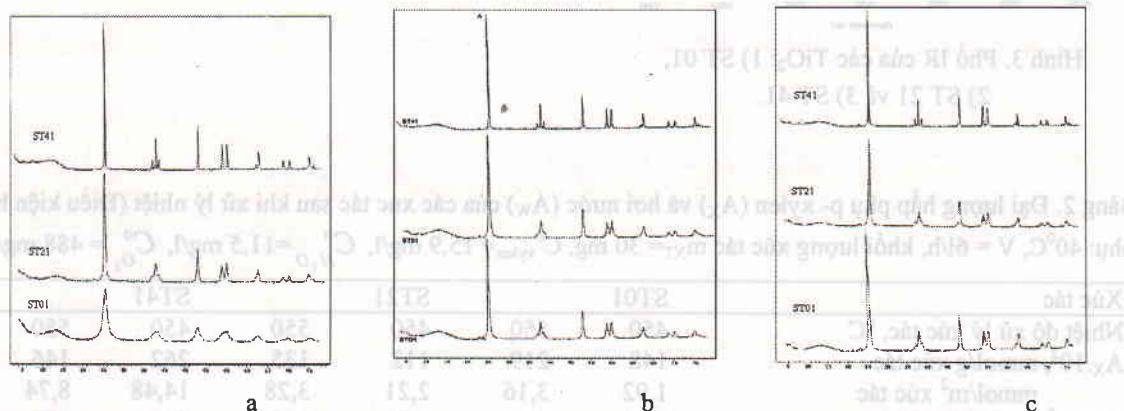
tăng tương ứng 70 và 100%. Trong khí đó, sau khi xử lý ở 450°C kích thước hạt của ST21 mới tăng 15%, còn diện tích bề mặt riêng vẫn chưa thay đổi và giá trị đại lượng S_{BET} chỉ giảm ~20% khi kích thước hạt tăng 30% ở nhiệt độ xử lý 550°C . Ngược lại, đối với mẫu ST41 với kích thước hạt lớn (200 nm), sau khi xử lý nhiệt diện tích bề mặt riêng cao hơn, nhưng xúc tác này vẫn có diện tích bề mặt riêng rất thấp. Rõ ràng, các hạt có kích thước trung bình có độ ổn định cao hơn trong quá trình xử lý nhiệt. Tuy nhiên, ngay cả sau khi xử lý ở 550°C diện tích bề mặt riêng của ST01 vẫn còn $69,3 \text{ m}^2/\text{g}$, cao hơn mẫu ST21 và kích thước hạt mới đạt tới 15 nm, nhỏ hơn mẫu ST21 trước xử lý.

Phổ UV-Vis của các mẫu TiO_2 được dán ra trong hình 1. Theo phổ UV của các mẫu TiO_2 có thể tính được năng lượng vùng cấm (E_G) theo công thức (2) [12]:

$$E_G = h\nu / eV \quad (2)$$



Hình 1. Phổ UV của các mẫu TiO_2 : 1) ST01; 2,3) ST21 và ST41.

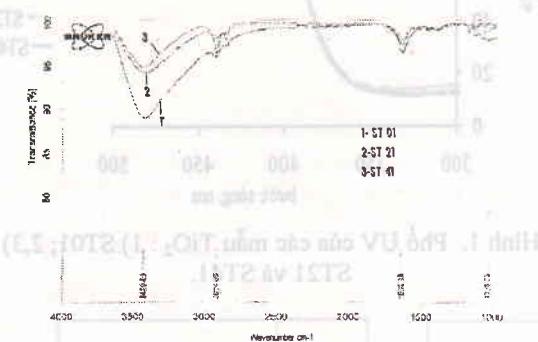


Hình 2. Phổ XRD của các mẫu TiO_2 ST01, ST21 và ST41 chưa xử lý (a), sau khi xử lý ở 450°C (b) và 550°C (c).

Hình 1 cho thấy, phổ UV của cả ba mẫu đều có dạng dốc đứng với điểm uốn trong khoảng 380-386 nm và năng lượng vùng trống bằng 3,2-3,3 eV. Điều này chứng tỏ trong các mẫu xúc tác TiO_2 đều ở dạng anatas. Kết luận được kiểm chứng qua phân tích XRD (hình 2). Theo đó, trong tất cả các mẫu TiO_2 đều chỉ tồn tại ở pha anatas. Tuy nhiên, đặc điểm dạng phổ của từng loại TiO_2 khác nhau. ST01 có đường kính hạt TiO_2 nhỏ (7 nm) được đặc trưng bởi các mũi bầu với cường độ thấp. Các oxit titan ST21 và ST41 có kích thước hạt lớn (từ 20 nm

trở lên) có các mũi hẹp, nhọn, cường độ cao hơn. Điều này là do trong các mẫu ST21 và ST41 tinh thể TiO_2 có kích thước lớn hơn. Sau khi xử lý ở 450°C , dạng phổ XRD (hình 2) của ST01 đã gần giống với mẫu ST21, các mũi có cường độ mạnh hơn và kích thước hạt đã tăng đến 12 nm, thuộc nhóm có kích thước trung bình. Đây cũng là lý do vì sao diện tích bề mặt riêng của vật liệu giảm 4,2 lần. Khi tiếp tục tăng nhiệt độ xử lý lên đến 550°C thì phổ XRD của xúc tác lúc này đã hoàn toàn giống với các mẫu ST21, đồng thời kích thước hạt đã đạt tới

15nm và diện tích bề mặt xúc tác cũng giảm đi 4,6 lần, rất gần với mẫu ST21. Kết quả phân tích XRD cũng cho thấy sau khi xử lý nhiệt trong tất cả các mẫu TiO_2 đều vẫn chỉ có một pha anatas tồn tại. Kết quả này phù hợp với nghiên cứu của Kyeung Youl Jung et al. [13], theo đó thì trên 500°C pha rutil vẫn chưa hình thành và nó chỉ bắt đầu hình thành với hàm lượng rất thấp (khoảng 1,5%) ở nhiệt độ 600°C .



Hình 3. Phổ IR của các TiO_2 : 1) ST 01, 2) ST 21 và 3) ST 41.

Phổ IR (hình 3) của các TiO_2 : ST01, ST21 và ST41 cho thấy cả ba mẫu đều có mũi hấp thụ cực đại ở các tần số $3420 - 3438 \text{ cm}^{-1}$ và $1634 - 1645 \text{ cm}^{-1}$, đặc trưng cho dao động hoá trị của nhóm -OH mang tính bazơ liên kết mạng. Tuy nhiên đối với ST01 cường độ của các phô hấp thụ cực đại ở tần số 3420 cm^{-1} cao hơn nhiều so với TiO_2 ST21 và ST21 cao hơn ST41. Điều này cho thấy mật độ nhóm -OH trong mẫu các TiO_2 giảm khi kích thước hạt của nó tăng. Cường độ phô IR của mẫu ST01 cao hơn ST21 rất nhiều, trong khi đó ST21 và ST41 xấp xỉ nhau. Như vậy đối với hạt có kích thước 7nm khả năng tạo nhóm -OH cao hơn so với hạt có kích thước từ 20nm trở lên.

3.2. Khả năng hấp phụ p-xylen và hơi nước trên các xúc tác



Bảng 2. Đại lượng hấp phụ p-xylen (A_x) và hơi nước (A_w) của các xúc tác sau khi xử lý nhiệt (Điều kiện hấp phụ: 40°C , $V = 6\text{l/h}$, khối lượng xúc tác $m_{XT} = 30 \text{ mg}$, $C^0_{\text{xylen}} = 15,9 \text{ mg/l}$, $C^0_{H_2O} = 11,5 \text{ mg/l}$, $C^0_{O_2} = 488 \text{ mg/l}$)

Xúc tác	ST01	ST21	ST41
Nhiệt độ xử lý xúc tác, $^\circ\text{C}$	450	550	450
$A_x \cdot 10^2$, mmol/g xúc tác	148	219	112
mmol/m ² xúc tác	1,92	3,16	2,21
$A_w \cdot 10^2$, mmol/g xúc tác	333	389	667
mmol/m ² xúc tác	4,31	5,61	13,21
$(A_x + A_w) \cdot 10^2$, mmol/m ² xúc tác	6,23	8,77	15,42
A_x/A_w	0,45	0,56	0,17
$(A_x + A_w)_{550}/(A_x + A_w)_{450}$	1,4	1,0	0,27
$S_{BET,550}/S_{BET,450}$	0,9	0,8	0,9

Kết quả bảng 2 cho thấy, khả năng hấp phụ p-xylen và hơi nước ($A_x + A_w$) của các oxit titan tăng theo thứ tự sau:

$$\text{ST01} < \text{ST21} < \text{ST41} \quad (3)$$

nghĩa là tăng theo chiều tăng của kích thước hạt. Khả năng hấp phụ tương đối của p-xylen so với hơi nước được đánh giá theo tỷ lệ A_x/A_w . Kết quả nhận được chỉ ra rằng, TiO_2 có ái lực

với hơi nước cao hơn p-xylen và ái lực này phụ thuộc vào kích thước hạt. TiO_2 anatas với kích thước hạt 20nm có khả năng hấp phụ nước cao nhất, do đó khả năng hấp phụ tương đối xylen của nó thấp nhất, còn ST01 với kích thước hạt 7nm có khả năng hấp phụ xylen và hơi nước tương đương nhau.

Ảnh hưởng của nhiệt độ xử lý đến khả năng hấp phụ của các TiO_2 được đánh giá theo tỷ lệ tổng đại lượng hấp phụ p-xylen và hơi nước của mẫu xử lý ở 550° và 450°C , $[(\text{Ax}+\text{Aw})_{550}/(\text{Ax}+\text{Aw})_{450}]$. Ta thấy, khi kích thước hạt TiO_2 tăng tỷ lệ này giảm dần. Điều này được giải thích như sau, TiO_2 kích thước trung bình có khả năng hấp phụ p-xylen và hơi nước tốt nhất. Khi nhiệt độ xử lý tăng kích thước hạt tăng, đối với ST01 do có kích thước nhỏ nên tăng nhiệt độ xử lý hạt của nó chuyển từ vùng kích thước nhỏ sang vùng kích thước trung bình nên hấp phụ tăng. ST21 do kích thước hạt ban đầu tương đối lớn, sự thay đổi kích thước hạt không nhiều nên khả năng hấp phụ của nó không đổi. ST41 có kích thước hạt

quá lớn, nên khi tăng nhiệt độ xử lý từ 450° lên 550°C , diện tích bề mặt riêng của nó giảm dẫn tới đại lượng hấp phụ giảm. Điều này phù hợp với kết quả phân tích diện tích bề mặt riêng và phổ XRD.

Để tránh sự thay đổi kích thước hạt dưới tác dụng của nhiệt độ mẫu ST01 được xử lý bằng UV ở 40°C . Ở điều kiện xử lý này đại lượng hấp phụ p-xylen thu được cao hơn mẫu xử lý ở 450°C ($2,5$ so với $1,92 \cdot 10^{-2} \text{ mmol/m}^2$). Trong trường hợp này khả năng hấp phụ cao của hạt kích thước lớn hơn không bù trừ được diện tích bề mặt riêng giảm quá nhanh (76%).

3.3. Khảo sát hoạt tính xúc tác

Bảng 3. Độ chuyển hóa đầu (X_0), độ chuyển hóa sau 30 phút (X_{30}), 60 phút (X_{60}) làm việc và lượng cốc tạo thành sau 60 phút làm việc (C) trong phản ứng quang oxy hóa p-xylen trên các xúc tác khác nhau được hoạt hóa theo các chế độ: I) $40^\circ\text{C} + \text{UV}$; II) 450°C và III) 550°C (Điều kiện phản ứng: UV, 40°C , $V = 61/\text{h}$, $m_{\text{XT}} = 30 \text{ mg}$, $C^o_{\text{xylene}} = 15,9 \text{ mg/l}$, $C^o_{H_2O} = 11,5 \text{ mg/l}$, $C^o_{O_2} = 488 \text{ mg/l}$)

Xúc tác	ST01			ST21			ST41		
Điều kiện hoạt hóa	I	II	III	II	III	II	III	III	
$X_0, \%$	85	62	58	56,9	43,0	49	31,9		
$X_{30}, \%$	17	25	7,2	7	7,4	6	8,4		
$X_{60}, \%$	10,5	10	9	9	5	3	3		
C (mmol/g)	0,157	0,092	0,077	0,107	0,072	0,109	0,125		

Kết quả khảo sát hoạt độ của các xúc tác được trình bày trong bảng 3. Từ bảng 3 ta thấy, đối với tất cả các mẫu hoạt độ đầu của xúc tác giảm khi nhiệt độ xử lý và kích thước hạt tăng. Cả hai yếu tố này đều nói lên rằng, kích thước hạt TiO_2 càng lớn hoạt độ xúc tác càng thấp. Điều này có thể liên quan đến số lượng nhóm OH trong các xúc tác. Theo kết quả nghiên cứu IR ở trên thì TiO_2 có kích thước hạt nhỏ hơn có lượng nhóm OH nhiều hơn. Theo các tác giả [14] chính nhóm OH với vai trò là tâm axít Lewis, sẽ là tâm hấp phụ p-xylene nhờ liên kết giữa nhóm OH với H trên phân tử p-xylene. Đồng thời nhóm OH cũng là nguồn sinh gốc tự do OH[•] là tác nhân cho oxi hóa p-xylene. Sau khi

xử lý bằng UV ở nhiệt độ phòng, hoạt độ của chất xúc tác ST01 cao hơn so với khi xử lý nhiệt. Điều này có thể giải thích là do khi xử lý bằng UV ở 40°C kích thước hạt và diện tích bề mặt riêng của xúc tác được bảo toàn, còn xử lý ở nhiệt độ cao đã làm tăng kích thước hạt TiO_2 và giảm S_{BET} quá nhanh, nên mặc dù số nhóm OH tăng cũng không đủ bù trừ.

Đối với ST01 độ chuyển hóa X_{30} sau khi xử lý ở 450°C là cao nhất, hay nói cách khác độ bền làm việc của chúng tốt hơn. Theo kết quả nghiên cứu trước đây, đối với TiO_2 Degusa P25 [10], việc hoạt hóa các xúc tác ở 450° hoặc 550°C giúp cho bề mặt của xúc tác sạch hơn và các tâm của xúc tác dễ tái tạo các nhóm

hydroxyl hơn so với xúc tác hoạt hóa bằng tia UV ở 40°C.

So sánh hoạt độ của xúc tác với khả năng hấp phụ của chúng, thấy chúng biến thiên ngược chiều nhau, khi tăng kích thước hạt khả năng hấp thụ tăng, còn hoạt độ giảm. Bên cạnh đó, cũng thấy rằng, đối với ST01 sau khi xử lý ở 450°C diện tích bề mặt riêng đã giảm 76% từ 320 xuống 77,2m²/g, nhưng hoạt độ đầu chỉ giảm 27%. Đối với tất cả các xúc tác lượng giảm độ chuyển hóa của các mẫu xử lý khác nhau không tỷ lệ với sự thay đổi của S_{BET}. Tất cả những hiện tượng này khẳng định rằng diện tích bề mặt riêng, cũng như khả năng hấp phụ không phải là yếu tố trực tiếp liên quan với hoạt độ xúc tác trong phản ứng quang oxi hóa, mà kích thước hạt chính là nguyên nhân trực tiếp quyết định hoạt độ của chúng.

Từ bảng 3 thấy rằng lượng cốc tạo thành sau 60 phút phản ứng của các xúc tác tăng theo thứ tự ST01 < ST21 < ST41, trùng với dãy (1) theo khả năng hấp phụ tổng (A_x+A_w) của chúng. Nghĩa là kích thước hạt càng lớn, khả năng hấp phụ của TiO₂ càng cao và lượng cốc tạo thành càng nhiều. Tuy nhiên, không có mối quan hệ mật thiết giữa đại lượng hấp phụ p-xilen (A_x) và lượng cốc tạo thành. Phân tích kết quả cho thấy để phản ứng diễn ra cần có hấp phụ của cả p-xilen và hơi nước, nhưng hướng chuyển tiếp của chúng phụ thuộc vào kích thước hạt. TiO₂ kích thước hạt nhỏ không thuận lợi cho tạo cốc nên p-xilen hấp phụ chuyển hóa theo hướng oxy hóa sâu, còn TiO₂ hạt lớn thuận lợi cho phản ứng tạo cốc, dẫn đến giảm hoạt độ oxi hóa.

Có thể thấy rằng, khi tăng nhiệt độ xử lý lượng cốc tạo thành sau 60 phút làm việc của xúc tác ST01 và ST21 giảm, tương tự qui luật biến thiên của độ chuyển hóa, còn trên ST41 thì ngược lại. Nghĩa là trên các TiO₂ kích thước nhỏ ($\leq 20\text{nm}$) tạo cốc có quan hệ với sản phẩm

của phản ứng oxi hóa, còn trên xúc tác hạt lớn ST41 hai phản ứng này diễn ra cạnh tranh nhau.

4. Kết luận

Qua kết quả nghiên cứu phản ứng quang oxi hóa p-xilen trên các xúc tác ST có thể rút ra một số kết luận về ảnh hưởng của kích thước hạt đến tính chất lý-hóa và hoạt độ của xúc tác TiO₂ anatas như sau:

- Diện tích bề mặt riêng của TiO₂ giảm mạnh khi kích thước hạt tăng từ 7 lên 200nm.

- TiO₂ hạt càng nhỏ thì kích thước hạt của nó tăng càng nhanh và diện tích bề mặt giảm càng nhanh khi tăng nhiệt độ xử lý mẫu. Sau khi xử lý nhiệt, ở nhiệt độ 450°C mẫu ST01 với các hạt kích thước 7nm có diện tích bề mặt giảm 76%, đường kính hạt tăng đến 12nm. Mẫu ST21 với kích thước hạt 20nm có độ ổn định cao.

- Kích thước hạt không ảnh hưởng đến khả năng hấp thu electron và năng lượng vùng cấm của TiO₂ và sau khi xử lý ở 450° và 550°C thành phần pha của các mẫu không thay đổi, vẫn ở dạng anatas.

- TiO₂ có kích thước hạt càng nhỏ thì có số lượng nhóm OH càng cao.

- Khả năng hấp phụ và tạo cốc của các oxit titan tăng theo khi kích thước hạt tăng, còn hoạt độ quang oxi hóa thì ngược lại, TiO₂ có kích thước hạt càng nhỏ thì hoạt độ càng cao.

Tóm lại, kích thước hạt là yếu tố trực tiếp quyết định tính chất lý-hóa và khả năng hấp phụ, hoạt độ quang oxi hóa cũng như khả năng tạo cốc của TiO₂ trong phản ứng quang oxi hóa p-xilen.

Tài liệu tham khảo

- [1] N. Djeghri, S.J. Teichner, J. Catal. 62 (1980) 99.

- [2] J.M. Herrmann, W.Mu, P.Pichat, Heterogen. Catal., *Fine Chem.* 2 (1991) 405.
- [3] D. S. Muggli, L. Ding, *Appl. Catal. B:* 32 (2001) 181.
- [4] M. Anpo, K. Chiba, M. Tomonari, S. Coluccia, M. Che, M.A. Fox, Bull, *Chem. Soc. Jpn.* 64 (1991) 543.
- [5] M. Fujihira, Y. Satoh, T. Osa, *Nature* 293 (1981) 206.
- [6] J. Peral, D.F. Ollis, *J. Catal.* 136 (1992) 554.
- [7] L. Cao, Z. Gao, S.L. Suib, T.N. Obiee, S.O. Hay, J.D. Freihaut, *J. Catal.* 196 (2000) 253.
- [8] A.. J. Maria, K.L. Yeung, J. Soria, J.M. Coronado, C. Belver, C.Y. Lee, V. Augugliaro, *Appl. Catal. B:* 29 (2001) 327.
- [9] A. J. Maira, K.L. Yeung, C.Y. Lee, P.L. Yue, C.K. Chan, *J. Catal.*, 192 (2000) 185.
- [10] Nguyễn Quốc Tuấn, Nguyễn Trí, Lưu Cảnh Lộc. Ảnh hưởng của chế độ xử lý xúc tác và điều kiện phản ứng và đến hoạt độ quang oxi hóa p-xylene của TiO₂ degusa P25, *Tạp chí Khoa học và Công nghệ* 45, số 4 (2007) 51.
- [11] H. Ogawa, A. Abe, *J. Electronchem.Soc.* 128 (1981) 685.
- [12] X. Yan, J. He, D. G. Evans, X. Duan and Y. Zhu, *Applied Catalysis B: Envir* 55 (2005) 243.
- [13] Kyeung Youl Jung and Seung Bin Park, *Korean J.Chem Eng.* 18 (2001) 879.
- [14] V. Augugliaro, L. Palmisaco, A. Sclafani, C. Minero. Et al, *Toxicol. Environ. Chem.* 16 (1988) 89.

Effects of particle size of TiO₂ on catalyst properties and activity for p-xylene photooxidation

Nguyen Quoc Tuan¹, Nguyen Tri², Ho Cam Hoai³, Luu Cam Loc²

¹Da Lat University, 1 Phu Dong Thien Vuong, Da Lat

²Institute of Chemical technology, VAST, 1 Mac Dinh Chi, Ho Chi Minh, Vietnam

³University of Natural Sciences, VNU-HCM, 227 Nguyen Van Cu, Ho Chi Minh, Vietnam

Titanium oxide ST01, ST21 và ST41 have been used as catalysts for gase-phase photooxidation of p-xylene. Physico-chemical properties of catalysts were determined by the methods of BET Adsorption, X-ray Diffraction (XRD), UV, and IR. Experimental data showed that, particle size of TiO₂ appears as the factor, directly determined the physico-chemical properties of catalysts as well as their photooxidation activity. The specific surface area and amount of -OH group of catalysts increases as particle size of TiO₂ decreases. Adsorption capacity and coke formation of titanium oxide increase, but their photooxidation activity decrease as particle size of TiO₂ rises.