

HOẠT TÍNH XÚC TÁC CỦA Cu TRONG PHẢN ỨNG PHÂN HỦY N₂O

Nguyễn Thị Minh Huệ*, Nguyễn Minh Tuấn, Nguyễn Thị Mơ, Lê Minh Cầm

Khoa Hóa học, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội

Đền Tòa soạn 28-4-2015; Chấp nhận đăng 21-12-2015

Abstract

The focus of the performed studies is Cu containing catalysts for nitrous oxide decomposition in the temperature range of 200–600 °C. Catalytic samples have been synthesized by wet impregnation method. Prepared materials are characterized by means of XRD and N₂ adsorption/desorption. The obtained results reveal that Cu or Fe supported catalysts, especially Cu (or Fe)/ZSM-5, exhibit very promising activity and they are good catalysts for decomposition of N₂O. An optimal copper loading of 5 wt% is found. Further increase of Cu-loading to 7 % results in the formation of segregate and less active phase. Of the three supports, ZnO, Al₂O₃ and ZSM-5 used, H-ZSM-5 produces the most effective catalyst for N₂O decomposition due to acid nature, high surface area and high order pore structure. The decomposition of N₂O follows two stages. At low temperatures, N₂O decomposes to N₂ and surface oxygen atoms. The second high temperature stage involves the formation of O₂ and the rate of oxygen formation correlates with catalytic activity. Fast desorption of O₂ increases the number of effective sites and therefore the catalyst is regenerated.

Keywords. Decomposition, N₂O, copper, ZSM-5, Al₂O₃.

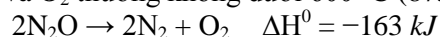
1. MỞ ĐẦU

Trong vài thập kỷ gần đây việc nồng độ các khí nhà kính tăng lên đáng kể do các hoạt động của con người đã tạo nên những quan tâm rất lớn về sự nóng lên của toàn cầu. Nitrous oxide (N₂O) là một khí nhà kính, chỉ số GWP (global warming potential) lớn hơn khí CO₂ tới 310 lần [1]. Hơn nữa, N₂O tồn tại lâu trong khí quyển (khoảng 120 năm) và góp phần vào việc suy giảm ozon ở tầng bình lưu. Các ngành công nghiệp phát thải N₂O chủ yếu là công nghiệp sản xuất axit nitric, axit adipic và caprolactam [2]. Hàng năm các ngành công nghiệp này thải vào môi trường khoảng 2 triệu tấn N₂O [3]. Bởi vậy việc phát triển các biện pháp kỹ thuật để loại bỏ một cách hiệu quả N₂O từ các nguồn khí thải công nghiệp là một nhiệm vụ đầy thách thức của ngành công nghệ môi trường.

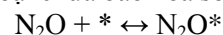
Rất nhiều xúc tác khác nhau đã được nghiên cứu để thúc đẩy sự phân hủy của N₂O. Trong số đó, vật liệu trên cơ sở Cu có rất nhiều ưu điểm về giá thành cũng như hoạt tính xúc tác vượt trội. Li et al. [4] chỉ ra rằng Cu/ZSM-5 và Cu/MOR có hoạt tính cao hơn các kim loại khác cũng trên ZSM-5 và MOR. Một số công trình khác nghiên cứu sự phân hủy N₂O trên xúc tác Cu phân tán trên các chất mang khác nhau như SiO₂ [5], Al₂O₃ [6], cacbon [7], và CeO₂ [8-10].

Đã có nhiều công trình nghiên cứu về sự hấp phụ và phân hủy của N₂O được công bố. Phân tử N₂O có cấu tạo thẳng nhưng không đối xứng, trong phân tử, bậc của liên kết N–N khoảng 1,26 còn của N–O chỉ

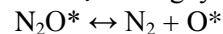
1,186. Bởi vậy khi tham gia phản ứng, thường thì liên kết N–O sẽ bị phân cắt trước với nhiệt phân cắt khoảng 60–65 kcal/mol [11]. Do đó, nhiệt độ cần thiết để N₂O phân hủy đồng thể (không xúc tác) thành N₂ và O₂ thường không dưới 600 °C (873 K):



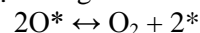
Khi có mặt xúc tác, phản ứng xảy ra ở nhiệt độ thấp hơn nhiều và thường theo một cơ chế chung như sau: trước tiên N₂O hấp phụ trên các tâm hoạt tính (*) là các cation kim loại chưa bão hòa số phối trí:



Sự dịch chuyển electron làm liên kết N–O yếu đi và cấu trúc hình học của N₂O bị thay đổi từ dạng thẳng sang dạng góc. Sau đó là sự giải phóng phân tử N₂ khỏi bề mặt và để lại oxi nguyên tử hấp phụ:



Phân tử O₂ được giải hấp khỏi bề mặt xúc tác theo hai cơ chế, hoặc Langmuir-Hinshelwood:



hoặc Eley-Rideal:



Cơ chế thứ hai chỉ có thể xảy ra khi nồng độ oxi bề mặt lớn. Với cơ chế đề xuất này, thì bước giải hấp của oxi khỏi các tâm hoạt tính được xem là bước quyết định tốc độ phản ứng. Như vậy một xúc tác tốt cho phản ứng phân hủy N₂O phải có khả năng thúc đẩy sự kết hợp của các nguyên tử oxi bề mặt thành O₂ giải hấp khỏi bề mặt xúc tác, giải phóng các tâm hoạt tính bề mặt, kết thúc một chu kỳ xúc tác và do đó sẽ giữ được tốc độ phân hủy N₂O ổn định.

Bài báo này trình bày những kết quả thu được khi nghiên cứu hoạt tính xúc tác của Cu trong phản ứng phân hủy N_2O . Cu được đưa lên ba chất mang khác nhau ZnO , Al_2O_3 và H-ZSM-5 bằng phương pháp tẩm. Xúc tác Fe/ZSM-5 được tổng hợp để so sánh khả năng tương tác của tâm hoạt động với chất mang.

2. THỰC NGHIỆM

2.1. Tổng hợp xúc tác

Các hóa chất ZnO , $\gamma-Al_2O_3$, $(CH_3COO)_2Cu.H_2O$, $FeCl_3.6H_2O$ từ Trung Quốc, NH_4 -ZSM-5 từ Zeolyst International (Kansas City, USA) có tỉ số $SiO_2/Al_2O_3 = 30$. Các mẫu xúc tác $Cu/\gamma-Al_2O_3$ (với hàm lượng kim loại 2,5, 5 và 7 %), 5 % Cu/ZnO , 5% $Cu/ZSM-5$ và 5 % $Fe/ZSM-5$ được tổng hợp bằng phương pháp tẩm sau đó được sấy ở $100^\circ C$ qua đêm rồi nung ở $500^\circ C$ trong 5 giờ với tốc độ nâng nhiệt $5^\circ/phút$.

2.2. Xác định các đặc trưng

Cấu trúc tinh thể của xúc tác được đặc trưng bởi kỹ thuật XRD nhờ máy đo nhiễu xạ tia X D8 Advance - Bruker với $\lambda = 0,154$ nm tại Khoa Hóa học – Trường Đại học KHTH – ĐHQG Hà Nội. Hình thái học và kích thước hạt của các mẫu xúc tác được xác định bằng phương pháp hiển vi điện tử truyền qua TEM trên máy JEM1010-JEOL tại viện Vệ sinh dịch tễ Trung ương. Bề mặt riêng và tính chất xốp của vật liệu xúc tác được xác định nhờ kỹ thuật BET trên thiết bị TRI START 3000 Micromeritics (Trường Đại học Sư phạm Hà Nội).

2.3. Phương pháp thực nghiệm

Hoạt tính xúc tác được khảo sát nhờ hệ thống phản ứng vi dòng nối trực tiếp với sắc ký khí để phân tích sản phẩm trong khoảng nhiệt độ $200-600^\circ C$, ở áp suất thường (1 atm), được xây dựng tại phòng thí nghiệm Bộ môn Hóa lý thuyết và Hóa lý-Trường ĐHSP Hà Nội. Các mẫu xúc tác (0,2 gam xúc tác cho một lần phản ứng được trộn với thạch anh (0,2 g) được hoạt hóa 3 giờ ở $600^\circ C$ trong dòng H_2 (tốc độ gia nhiệt $5^\circ C/phút$), sau đó nhiệt độ được hạ xuống $200^\circ C$. Tại nhiệt độ này, dòng hỗn hợp khí phản ứng gồm N_2O : He với tỉ lệ 1:9 được dẫn qua xúc tác trong ống phản ứng trong 1 giờ với lưu lượng dòng $D = 1,2$ L/h. Sau đó nhiệt độ được nâng dần (tốc độ gia nhiệt $5^\circ C/phút$) và tiến hành phân tích sản phẩm tại các nhiệt độ cần nghiên cứu.

N_2O , N_2 và O_2 được phân tích online nhờ sắc ký RGA 7 cột (Ultra Thermo, ĐHSP Hà Nội). Việc xác định hoạt tính xúc tác của mỗi một mẫu đều được

thực hiện hai lần lặp lại. Độ chuyển hóa (C%) và độ chọn lọc (S%) sản phẩm được tính theo công thức:

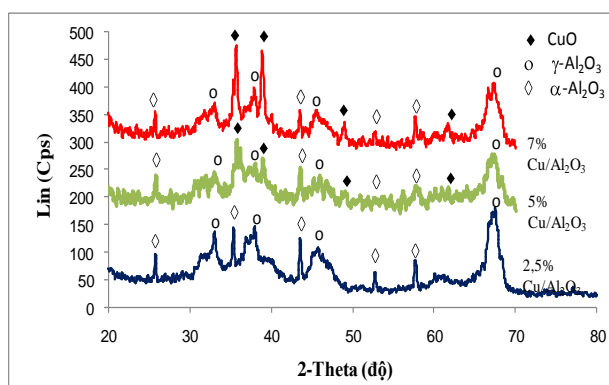
$$C(\%) = \frac{I_{N_2O}^o - I_{N_2O}}{I_{N_2O}^o} \times 100$$

$$S_{O_2}(\%) = \frac{I_{O_2}}{I_{N_2O}^o - I_{N_2O}} \times 100 \quad S_{N_2}(\%) = \frac{I_{N_2}}{I_{N_2O}^o - I_{N_2O}} \times 100$$

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của hàm lượng kim loại đến hoạt tính xúc tác

Giản đồ nhiễu xạ tia X của ba mẫu xúc tác có hàm lượng Cu thay đổi từ 2,5; 5; và 7 % (về khối lượng) trên $\gamma-Al_2O_3$ được trình bày trên hình 1. Để thấy rằng, pic nhiễu xạ đặc trưng cho CuO chỉ xuất hiện trên giản đồ XRD của các mẫu 5 % $Cu/\gamma-Al_2O_3$ và 7% $Cu/\gamma-Al_2O_3$. Độ sắc nét và cường độ của pic tăng theo hàm lượng đồng có trong mẫu. Kết quả này cho phép rút ra nhận xét rằng độ phân tán của đồng trên chất mang $\gamma-Al_2O_3$ phụ thuộc vào hàm lượng của đồng trong mẫu: khi hàm lượng đồng tăng, độ phân tán sẽ giảm, và điều đó sẽ có ảnh hưởng tới hoạt tính xúc tác của vật liệu.



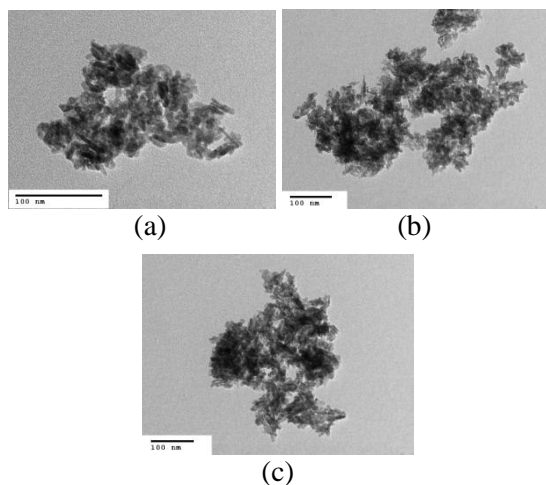
Hình 1: Giản đồ XRD của vật liệu

Nhận xét trên cũng phù hợp với kết quả đo TEM của 3 mẫu xúc tác. Ảnh TEM, được minh họa trên hình 2, cho thấy, khi hàm lượng Cu tăng từ 2,5 % đến 7 % thì kích thước của các cụm tâm hoạt động tăng dần, điều đó đồng nghĩa với độ phân tán của đồng trên chất mang $\gamma-Al_2O_3$ giảm dần.

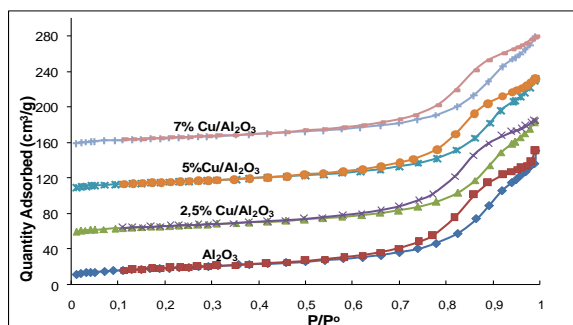
Hình 3 biểu diễn đường đẳng nhiệt hấp phụ và khử hấp phụ N_2 của 3 mẫu xúc tác và của chất mang $\gamma-Al_2O_3$.

Từ bảng 1 và hình 3 dễ thấy ba vật liệu trên đều có cấu trúc mao quản trung bình thứ cấp. Đường kính mao quản xấp xỉ 15 nm. Diện tích bề mặt riêng S_{BET} của $\gamma-Al_2O_3$ là 64 m^2/g , việc thêm Cu với các hàm lượng khác nhau hầu như ít ảnh hưởng tới tính

chất xốp của bề mặt vật liệu, diện tích bề mặt riêng và thể tích mao quản có giảm đi nhưng không nhiều.



Hình 2: Ảnh TEM của 2,5 % Cu/Al₂O₃ (a) 5 % Cu/Al₂O₃ (b) 7 % Cu/Al₂O₃ (c)



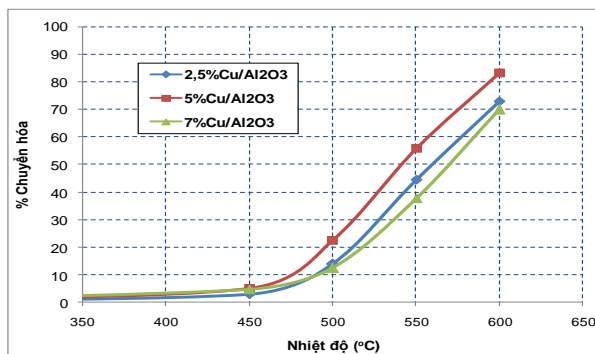
Hình 3: Đường đẳng nhiệt hấp phụ-khử hấp phụ N₂ của vật liệu

Bảng 1: Tính chất xốp của vật liệu

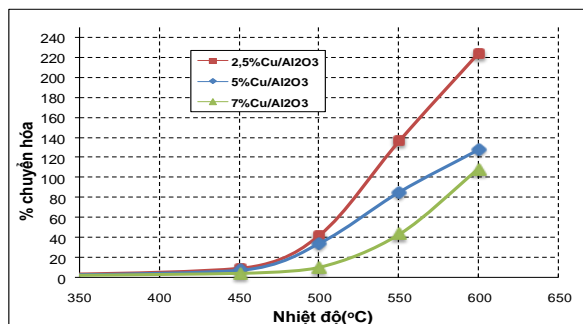
Mẫu	S _{BET} (m ² /g)	V _{mao quản} (cm ³ /g)	d _{mao quản} (nm)
7% Cu/ γ -Al ₂ O ₃	53±0,5	0,199	14,936
5% Cu/ γ -Al ₂ O ₃	54±0,5	0,204	15,010
2,5% Cu/ γ -Al ₂ O ₃	55±0,5	0,208	15,141
γ -Al ₂ O ₃	64±0,5	0,232	14,546
5% Cu/ZnO	3,0±0,4	0,008	12,281
5% Cu/ZSM-5	362±0,2	0,123	10,042

Hoạt tính xúc tác của ba mẫu trong phản ứng phân hủy N₂O được chỉ ra trên bảng 2 và hình 4a. Có thể thấy hoạt tính xúc tác phụ thuộc vào nhiệt độ và chỉ ở nhiệt độ cao (từ 500 °C trở lên) tốc độ phản ứng mới tăng mạnh. Xét về độ chuyển hóa N₂O theo hàm lượng Cu (hình 4a) thấy rằng, độ chuyển hóa tăng khi hàm lượng Cu tăng từ 2,5 % đến 5 % (từ

44,62 lên 55,69 % ở 500 °C) nhưng sau đó lại giảm xuống còn 37,71 % khi hàm lượng Cu lên tới 7 %. Có thể giải thích rằng, khi hàm lượng Cu tăng thì số tâm xúc tác tăng lên làm tăng tốc độ chuyển hóa, nhưng khi tiếp tục tăng nữa thì có sự co cụm của các tâm xúc tác dẫn đến số tâm hoạt tính thực sự giảm và độ chuyển hóa của N₂O vì thế giảm xuống. Khuynh hướng này đã được minh chứng qua các phép đo đặc trưng vật liệu XRD và TEM.



Hình 4a: Độ chuyển hóa N₂O trên 3 xúc tác có hàm lượng Cu khác nhau



Hình 4b: Chỉ số TOF của 3 xúc tác Cu/ γ -Al₂O₃ với hàm lượng Cu khác nhau

Bảng 2: Độ chuyển hóa của N₂O trên 3 xúc tác Cu/ γ -Al₂O₃ với các hàm lượng kim loại Cu khác nhau

t (°C)	2,5% Cu / γ -Al ₂ O ₃	5% Cu / γ -Al ₂ O ₃	7% Cu / γ -Al ₂ O ₃
200	0,00	0,00	0,00
450	3,04	4,95	4,89
500	13,82	22,43	12,47
550	44,62	55,69	37,71
600	72,94	83,29	69,95

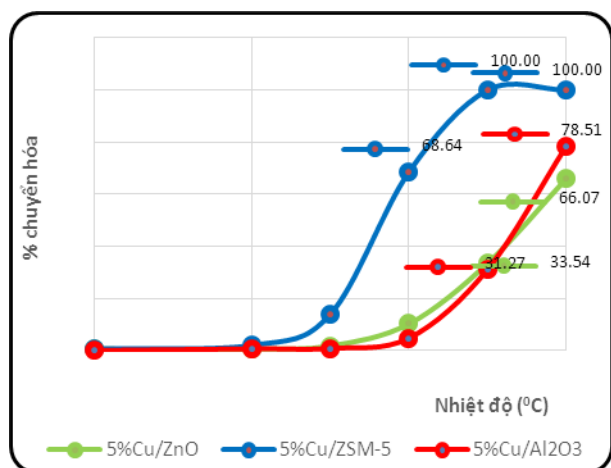
Để làm rõ hơn nữa hoạt tính thực sự của mỗi tâm xúc tác, chỉ số TOF (số mol N₂O chuyển hóa trên 1mol tâm xúc tác trong 1 giờ) cho mỗi chất xúc tác được xác định và kết quả được trình bày trên hình 4b. Chỉ số TOF tăng dần từ mẫu 7 % Cu, đến 5 %

Cu và cao nhất là ở mẫu 2,5 % Cu cho thấy các tâm xúc tác trong mẫu 2,5 % Cu thực sự hoạt động hơn. Như vậy, bằng phương pháp tẩm, khi hàm lượng tâm xúc tác thấp, thì khả năng phân tán của các tâm sẽ tốt hơn và có ảnh hưởng tích cực đến hoạt tính xúc tác.

3.2. Ảnh hưởng của chất mang đến hoạt tính xúc tác

Nếu như trong nghiên cứu trước [16], ảnh hưởng của chất mang được xét ở góc độ tính chất axit-bazơ của vật liệu thì nghiên cứu này quan tâm tới bản chất xốp của bề mặt chất mang. Ba chất mang ZnO, γ -Al₂O₃ và H-ZSM-5 có diện tích bề mặt khác nhau được dùng để tổng hợp 3 mẫu xúc tác chứa 5%Cu.

Kết quả thử hoạt tính xúc tác cho phản ứng phân hủy N₂O được trình bày trên bảng 3 và hình 5.



Hình 5: Độ chuyển hóa N₂O của xúc tác Cu trên ba chất mang khác nhau: ZnO, γ -Al₂O₃, H-ZSM-5

Quan sát bảng 3 và hình 5 thấy rằng xúc tác 5 %Cu trên chất mang γ -Al₂O₃ có hoạt tính xúc tác tốt hơn trên chất mang ZnO. Cụ thể, ở 600 °C độ chuyển hóa trên xúc tác 5 %Cu/ZnO chỉ đạt 66,07 % thì độ chuyển hóa trên xúc tác 5 %Cu/ γ -Al₂O₃ đạt 78,51 %. Với xúc tác 5 %Cu/ZSM-5, kết quả thực nghiệm cho thấy đây là xúc tác tốt nhất, độ chuyển hóa đạt 100 % ở nhiệt độ 550 °C và nhiệt độ mà tại đó N₂O bắt đầu chuyển hóa (400 °C) cũng thấp hơn so với trên hai xúc tác còn lại.

Hoạt tính xúc tác tốt hơn của Cu/ZSM-5 trước hết là do ZSM-5 có cấu trúc mao quản trật tự, có diện tích bề mặt riêng rất cao, cao hơn hẳn các chất mang là oxit (bảng 1). Với các phản ứng bề mặt thì khả năng tương tác giữa xúc tác với các phân tử chất phản ứng đóng vai trò rất quan trọng và quyết định đến khả năng hấp phụ của chất phản ứng trên bề mặt xúc tác. Vì thế, với cùng một hàm lượng đồng được đưa lên ba chất mang có diện tích bề mặt riêng khác

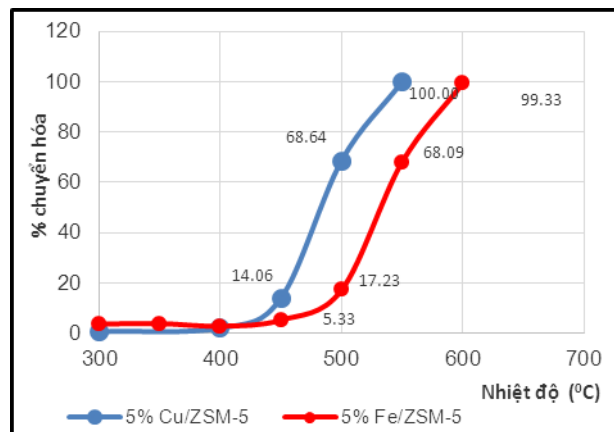
nhau và tính chất axit-bazơ bề mặt khác nhau thì sẽ có độ phân tán khác nhau. Cụ thể diện tích bề mặt riêng tăng dần theo thứ tự: H-ZSM-5 > γ -Al₂O₃ > ZnO, ngoài ra ZnO có tính bazơ mạnh hơn γ -Al₂O₃ trong khi H-ZSM-5 là một xúc tác axit rắn mạnh. Trên cơ sở so sánh như vậy thì có thể chấp nhận giả thiết rằng độ phân tán của Cu trên H-ZSM-5 là lớn nhất và thấp nhất là trên ZnO. Hoạt tính xúc tác bởi thế tăng theo độ phân tán của pha hoạt động.

Bảng 3: Ảnh hưởng của chất mang đến hoạt tính xúc tác của Cu

Nhiệt độ (°C)	5%Cu /ZnO	5%Cu / γ -Al ₂ O ₃	5%Cu /ZSM-5	5%Fe /ZSM-5
300	0,63	0,16	0,73	3,72
400	0,58	0,75	2,10	2,90
450	1,90	0,94	14,06	5,33
500	10,35	4,87	68,64	17,23
550	33,54	31,27	100,00	68,09
600	66,07	78,51	100,00	99,33

3.3. So sánh hoạt tính xúc tác của Fe/ZSM-5 với Cu/ZSM-5

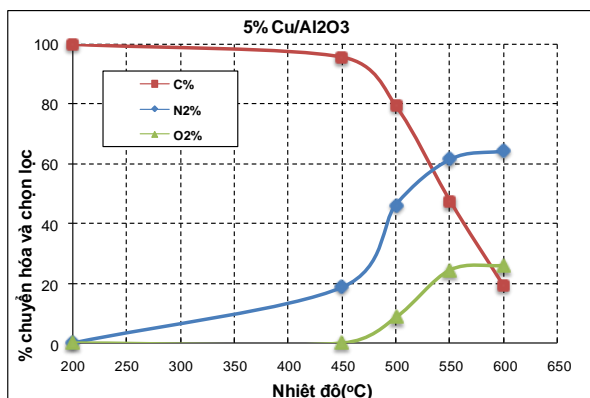
Mẫu xúc tác 5 %Fe/ZSM-5 được tổng hợp bằng phương pháp tẩm và nghiên cứu hoạt tính xúc tác cho phản ứng phân hủy N₂O. Kết quả được chỉ ra trên hình 6. Việc so sánh kết quả thực nghiệm trên hai mẫu xúc tác 5%Cu/ZSM-5 và 5%Fe/ZSM-5 cho thấy Cu là kim loại có hoạt tính oxi hóa khử tốt hơn Fe. Trên xúc tác Cu, chuyển hóa của N₂O được bắt đầu ở nhiệt độ thấp hơn và chuyển hóa sâu hơn. Tại 500 °C khi chuyển hóa của N₂O trên xúc tác 5 %Cu/ZSM-5 đạt 68,64 % thì trên mẫu xúc tác 5 %Fe/ZSM-5 chỉ đạt 17,23. Nhiệt độ tại đó N₂O chuyển hóa 100 % trên xúc tác Cu chỉ là 550 °C thấp hơn so với trên xúc tác Fe (600 °C).



Hình 6: Độ chuyển hóa của N₂O trên xúc tác 5%Cu/ZSM-5 và 5%Fe/ZSM-5

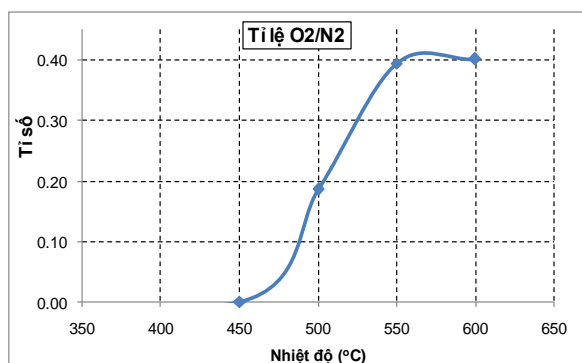
3.4. Đề xuất về đường phản ứng thông qua các kết quả thực nghiệm

Các kết quả thực nghiệm về chuyển hóa của N₂O theo nhiệt độ trên các mẫu xúc tác nghiên cứu đều có cùng khuynh hướng. Bởi thế trong phần thảo luận này chỉ đưa ra hai ví dụ tiêu biểu. Hình 6a và 6b là kết quả về độ chuyển hóa N₂O và chọn lọc N₂, O₂ trên mẫu xúc tác 5 %Cu/γ-Al₂O₃. Hình 7a và 7b là kết quả của phản ứng trên mẫu xúc tác 5%Fe/ZSM-5.



Hình 6a: Độ chuyển hóa và chọn lọc sản phẩm của quá trình phân hủy N₂O trên 5 %Cu/ γ-Al₂O₃

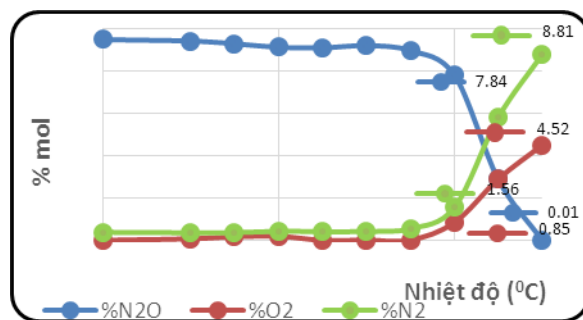
Có thể thấy rằng xúc tác Cu và Fe đều có khả năng hoạt hóa N₂O rất tốt và thứ tự xuất hiện sản phẩm N₂ cũng như O₂ phù hợp khá tốt với những công trình đã công bố [12-15]. Trong khoảng nhiệt độ từ 200÷450 °C, N₂ được giải phóng do liên kết N–O bị phân cắt trên tâm hoạt tính để lại nguyên tử oxi bị hấp phụ trên bề mặt. Giai đoạn này tốc độ phân hủy N₂O chưa cao và không thấy xuất hiện O₂ trong sản phẩm phản ứng ở tất cả các mẫu xúc tác.



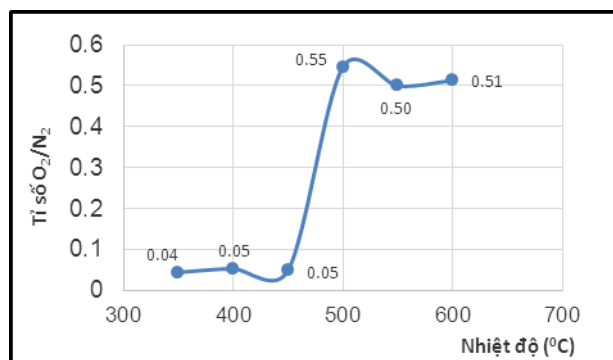
Hình 6b: Tỉ lệ O₂/N₂ trong quá trình phân hủy N₂O trên xúc tác 5 %Cu/ γ-Al₂O₃

Khi nhiệt độ cao hơn (> 450 °C) các nguyên tử oxi kết hợp với nhau thành O₂ phân tử giải hấp khỏi

bề mặt và giải phóng các tâm hoạt tính, làm tốc độ phản ứng tăng mạnh. Tỉ lệ O₂/N₂ giải phóng xấp xỉ 0,5 đúng với hệ số tỉ lượng trong phương trình phản ứng, chứng tỏ N₂ và O₂ là sản phẩm của chính quá trình phân hủy N₂O và các tâm xúc tác không bị oxi hóa, tức là không bị mất hoạt tính trong khoảng nhiệt độ khảo sát.



Hình 7a: Độ chuyển hóa và chọn lọc trong quá trình phân hủy N₂O trên xúc tác 5% Fe/ZSM-5



Hình 7b: Tỉ lệ O₂/N₂ trong quá trình phân hủy N₂O trên xúc tác 5%Fe/ZSM-5

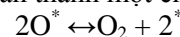
Kết quả thu được này cho phép đề xuất một cơ chế phân hủy N₂O trên xúc tác Cu hoặc Fe như sau:

- N₂O bị hấp phụ trên các tâm hoạt tính

$$N_2O + * \leftrightarrow N_2O^* \text{ (hấp phụ)}$$
- Sau đó liên kết N–O bị phân cắt, giải phóng N₂

$$N_2O^* \leftrightarrow N_2 + O^* \text{ (hấp phụ)}$$

Ở nhiệt độ cao O₂ phân tử giải hấp khỏi bề mặt theo cơ chế Langmuir-Hinshelwood giải phóng các tâm hoạt động, hoàn thành một chu kì xúc tác.



4. KẾT LUẬN

Trong công trình nghiên cứu này, xúc tác Cu trên các chất mang khác nhau được khảo sát hoạt tính cho quá trình phân hủy của N₂O. Hàm lượng Cu trong mẫu xúc tác không làm thay đổi đáng kể tính chất xốp của bề mặt nhưng lại có ảnh hưởng lớn đến tính chất oxi hóa khử và hoạt tính xúc tác của nó. Xúc tác với hàm lượng Cu 5 % thể hiện hoạt tính

cao nhất trong khi tiếp tục tăng hàm lượng đến 7 % dẫn đến sự co cụm và kém hoạt tính. Bản chất của chất mang đóng vai trò quan trọng, chất mang có tính axit thuận lợi cho quá trình phản ứng hơn so với chất mang thể hiện tính bazơ bề mặt. Zeolit H-ZSM-5 là xúc tác axit rắn với diện tích bề mặt riêng cao, cấu trúc mao quản trật tự là một chất mang “hoàn hảo” cho Cu hoặc Fe. Hoạt tính xúc tác của Cu/ZSM-5 và Fe/ZSM-5 trong phản ứng phân hủy N_2O rất lớn và hiệu suất đạt gần như tuyệt đối.

Kết quả khảo sát quá trình phân hủy N_2O trên các mẫu xúc tác nghiên cứu cho thấy cơ chế chuyển hóa hoàn toàn phù hợp với các công trình nghiên cứu khác đã công bố. Tốc độ của phản ứng phụ thuộc vào tốc độ kết hợp của các oxi nguyên tử hấp phụ thành O_2 giải hấp khỏi bề mặt xúc tác. Kết quả thực nghiệm chỉ ra Cu và Fe là một xúc tác tốt cho quá trình phân hủy trực tiếp của N_2O thành N_2 và O_2 .

Lời cảm ơn. Trân trọng cảm ơn Bộ Giáo dục và Đào tạo tài trợ cho công trình này thông qua đề tài có mã số B2012-17-28.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. <http://www.climatechange.vic.gov.au/greenhouse-gas-emissions>, accessed.
2. <http://epa.gov/climatechange/ghgemissions/gases/n2o.html>, accessed 21.02.2014.
3. <http://www.state.gov/e/oes/rls/rpts/car4/90324.htm>, accessed 24.02.2014.
4. Y. Li, J. N. Armor. *Catalytic decomposition of nitrous oxide on metal exchanged zeolites*, Appl. Catal. B Environ., **1**, 21-29 (1992).
5. A. Dandekar, M. A. Vannice. *Decomposition and reduction of N_2O over copper catalysts*, Appl. Catal. B Environ., **22**, 179-200 (1999).
6. Z. H. Zhu, H. Y. Zhu, S. B. Wang, G. Q. Lu, *Preparation and characterization of copper catalysts supported on mesoporous Al_2O_3 nanofibers for N_2O reduction to N_2* , Catal. Lett., **91**, 73-81 (2003).
7. J. Ma, N. M. Rodriguez, M. A. Vannice, R. T. K. Baker. *Nitrous oxide decomposition and reduction over copper catalysts supported on various types of carbonaceous materials*, Top. Catal., **10**, 27-38 (2000).
8. A. Adamski, W. Zaja, F. Zasada, Z. Sojka. *Copper ionic pairs as possible active sites in N_2O decomposition on CuO_x/CeO_2 catalysts*, Catal. Today, **191**, 129-133 (2012).
9. H. Zhou, Z. Huang, C. F. Qin, D. Xiong, W. Shen, H. Xu. *Catalytic decomposition of N_2O over $Cu_xCe_{1-x}O_y$ mixed oxides*, Appl. Catal. B Environ., **125**, 492-498 (2012).
10. Z. Maxim, D. Petar, E. Boštjan, D. Goran, P. Lbin. *Small CuO clusters on CeO_2 nanospheres as active species for catalytic N_2O decomposition*, Appl. Catal. B: Environmental, **163**, 113-122 (2015).
11. M. Wojciechowska, S. Lomnicki. *Nitrogen oxides removal by catalytic methods*, Clean Products and Processes, **1**, 237-247 (1999).
12. Z. Wei, X. Pengfei, H. Weiming, W. Yangdong, K. Dejin, Y. Yinghong, M. Zhen, Y. Weimin, G. Zi, *Catalytic decomposition of N_2O over Cu-ZSM-5 nanosheets*, Journal of Molecular Catalysis A: Chemical, **394**, 83-88 (2014).
13. G. Li, E. A. Pidko, A. E. W. Filot, R. A. van Santen, C. Li, E. J. M. Hensen. *Catalytic properties of extraframework iron-containing species in ZSM-5 for N_2O decomposition*, J. Catalysis, **308**, 386-397 (2013).
14. W. Ewa, K. Krzysztof, P. Jan, W. S. Janusz, K. Zbigniew. *Direct nitrous oxide decomposition with a cobalt oxide catalyst*, Applied Catalysis A: General, **389**, 165-172 (2010).
15. Z. Fengfeng, W. Xinpeng, Z. Xiaoxiao, T. Mamutjan, Y. Haibiao, Z. Jingjing. *The catalytic activity of NiO for N_2O decomposition doubly promoted by barium and cerium*, Chemical Engineering Journal, **256**, 365-371 (2014).
16. Nguyễn Thị Mơ, Ngô Đức Huyền, Lê Minh Cầm, Trương Thị Cẩm Mai, Nguyễn Thị Minh Huệ. *Tổng hợp Me/MO_x (Me: Cu, Fe; M: Al, Si) đặc trưng và nghiên cứu hoạt tính xúc tác cho phản ứng phân hủy N_2O* . Tạp chí Xúc tác và Hấp phụ, **4**, 59-66 (2015).

Liên hệ: **Nguyễn Thị Minh Huệ**

Khoa Hóa học, Trường Đại học Sư phạm Hà Nội
Số 136, Xuân Thủy, Cầu Giấy, Hà Nội
E-mail: hue.nguyen@hnue.edu.vn.