

低负载量 Pt/ γ -AlOOH 催化氧化 VOCs 的性能研究

崔宏智,姚建龙,李 奔,张玉桥,汤伟伟,严新焕*

(浙江工业大学化学工程学院,绿色化学合成技术国家重点实验室培育基地,浙江 杭州 310014)

摘要:通过直接吸附纳米颗粒的方法制备一系列负载量极低的 Pt/ γ -AlOOH 催化剂,并探究了催化剂对苯、甲苯、二甲苯的催化氧化性能和对不同类型 VOCs (CVOCs) 的普适性能。其中,0.02% Pt/ γ -AlOOH 表现出优良的催化性能。在质量分数为 1 000 $\mu\text{g/g}$ 、空速为 24 000 $\text{mL/g}\cdot\text{h}$ 时,对三苯系 95% 转化率的温度分别为 190、176 $^{\circ}\text{C}$ 和 185 $^{\circ}\text{C}$ 。在 200 $^{\circ}\text{C}$ 条件下,对甲苯持续反应 100 h 转化率仍然保持在 100%。对催化剂进行 XRD、TEM、BET 表征的结果表明,金属颗粒在载体表面分散良好,粒径在 2.5 nm 左右,载体形貌无明显改变。XPS 和 H_2 -TPR 结果显示,催化剂的活性中心主要是高价态的铂 ($\text{Pt}^{\delta+}$) 并以 PtO_x 形式存在。

关键词: Pt/ γ -AlOOH; 低负载量; 催化氧化; VOCs

中图分类号: O643.36

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2017)05-0093-05

DOI: 10.16606/j.cnki.issn.0253-4320.2017.05.022

Study on performance of low loading Pt/ γ -AlOOH for VOCs catalytic combustion

CUI Hong-zhi, YAO Jian-long, LI Ben, ZHANG Yu-qiao, TANG Wei-wei, YAN Xin-huan*

(State Key Laboratory Breeding Base of Green Chemistry-Synthesis Technology, Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014, China)

Abstract: With the method of directly adsorbing nano-particles, a series of ultra-low loadings Pt/ γ -AlOOH catalysts have been prepared, and their catalytic combustion performance against benzene, toluene, xylene (BTX) and their universally applicable performance on different types of volatile organic compounds (VOCs) are studied. As a result, 0.02% Pt/ γ -AlOOH catalyst shows a good catalytic performance, with T_{95} reaching 190 $^{\circ}\text{C}$ (benzene), 176 $^{\circ}\text{C}$ (toluene) and 185 $^{\circ}\text{C}$ (xylene) respectively at a concentrate of 1 000 $\mu\text{g/g}$ and a space velocity of 24 000 $\text{mL/g}\cdot\text{h}$. At a temperature of 200 $^{\circ}\text{C}$, this catalyst can make toluene degradation maintain 100% after 100 h continuous reaction. The catalyst is characterized by XRD, TEM and BET, which shows that Pt particles are well-dispersed on the surface of supports, particle sizes are around 2.5 nm, and the morphology of supports has changed a little. XPS and H_2 -TPR results show that the active center of catalyst mainly exists in the form of $\text{Pt}^{\delta+}$ (PtO_x) species.

Key words: Pt/ γ -AlOOH; low loadings; catalytic combustion; VOCs

挥发性有机物 (volatile organic compounds, VOCs) 潜在的毒性,使其成为全世界公认的主要污染物质。同时也是形成 PM_{2.5}、光化学烟雾的主要成分,对臭氧层破坏严重^[1-3]。催化氧化技术被认为是消除 VOCs 最有效的方法。相比传统的热力学燃烧,催化氧化技术具有温度低和环境友好的优势^[4]。

通常来说,负载型催化剂主要分为 2 种:负载贵金属(铂、钯、金)的催化剂和负载过渡金属氧化物的催化剂,以钴、铜、镍、锆、铁的氧化物常用^[5-7]。在负载贵金属的催化剂中,负载铂和金的催化剂的催化性能明显优于其他金属^[8-9]。在工业应用中,这 2 类催化剂有其各自的优缺点^[10]。对于金属氧化物催化剂,催化剂的制备成本较低,但是过渡金属

自身的性质导致催化氧化过程中起燃温度高,需要更高的热量来维持,增加了设备的成本^[11-12]。这些问题都是在工业中需要考虑的。至于负载贵金属的催化剂,可以实现在较低温度下对 VOCs 完全的氧化,但是考虑到贵金属的价格,在催化剂制备过程中,成本成为制约其工业化应用的主要问题^[13]。因此,如何制备出一种高活性低成本的催化剂,成为了摆在全世界科研人员面前的难题。

笔者成功制备了一系列负载量极低催化剂 (0.01% Pt/ γ -AlOOH、0.02% Pt/ γ -AlOOH 和 0.03% Pt/ γ -AlOOH),他们在对苯、甲苯、二甲苯的催化氧化过程中表现出良好的催化活性。在催化剂的制备过程中,用碳酸丙烯酯(PC)作纳米粒子的分散剂和稳定剂,可将纳米颗粒控制在 2.5 nm 左

收稿日期:2016-11-17

基金项目:国家高技术研究发展计划项目(863)(2013AA065005);浙江省科技计划项目(2016C31104)

作者简介:崔宏智(1990-),男,硕士生,1125123367@qq.com;姚建龙(1965-),男,学士,高级工程师,研究方向为有机合成,yaojl@conbagroup.com;严新焕(1964-),男,博士,教授,主要从事催化氧化、催化加氢技术研究,通讯联系人,0571-88320791,xinhuanyan139@163.com。

右^[14-15]。催化剂表面的活性位,金属与载体间的协同作用也是催化剂表现出良好性能的原因^[16]。

1 实验部分

1.1 试剂

K_2PtCl_4 (AR), 国药化学试剂有限公司生产; PC (AR), 东莞市优特环保材料有限公司生产; γ -AlOOH, 上海绿墙新材料有限公司生产, $S_{BET} = 221.6 \text{ m}^2/\text{g}$ 。

1.2 载体预处理

将 γ -AlOOH 在马弗炉 150℃ 干燥 12 h, 然后在管式炉氮气环境下 400℃ 煅烧 5 h, 待用。

1.3 催化剂制备

按照文献[17]中所述的方法制备出前躯体 $Pt_2(\text{dba})_3$, 将一定量的 $Pt_2(\text{dba})_3$ 溶解在 PC 中, 加入到高压釜中, 室温下 4 MPa 反应 2 h。即获得不同浓度的深褐色 Pt 纳米颗粒溶液。

利用直接吸附纳米颗粒的方法制备负载型催化剂。将一定量预处理过的载体在室温下加入到上述 Pt 纳米颗粒溶液(溶液的量浸没载体即可)。一定时间后, 取出载体并自然沥干(载体表面无液滴), 称取质量, 由质量差确定金属负载量。然后, 将吸附后的载体在马弗炉中 120℃ 干燥 4 h, 管式炉于氮气环境下 400℃ 活化 5 h。即得到一定质量分数的 Pt 基催化剂。

1.4 催化剂表征

利用 X'Pert PRO 型(荷兰 PANalytical 公司生产) X 射线衍射仪(XRD)测试催化剂的物理结构; 利用 Tecnai G2 F30 S-Twin 型(荷兰 Philips-FEI 公司生产)高分辨透射电子显微镜(HRTEM)观测催化剂表面的颗粒粒径及其分布; 利用 Kratos AXIS Ultra DLD 型(日本岛津-KRATOS 公司生产) X 射线光电子能谱仪(XPS)测试元素价态; 利用 ASAP 2020 型物理吸附仪测试催化材料的物理结构; H_2 -TPR 分析采用 FINESORB-3010E 型化学吸附仪(衢州泛泰有限公司生产); 利用 Elan DRC-e 型电感耦合等离子体质谱(ICP-MS)定量分析样品中微量或痕量的元素,(美国 PerkinElmer 公司生产)。

1.5 催化活性测试

催化剂活性评价在常压固定床催化反应器中进行, 反应器为内径 8 mm 的不锈钢管, 外围包裹加热丝及保温材料, 并配有智能控温仪。称取 1 g 催化剂, 置于反应管中部。采用鼓泡法将 0℃ 的 VOCs 饱和蒸汽引入反应管。调节气体流量使甲苯的质量分

数约为 1 000 $\mu\text{g}/\text{g}$, 在空速为 24 000 $\text{mL}/(\text{g}\cdot\text{h})$ 的条件进行反应。产物通过六通阀取样导入到带有氢火焰离子检测器(FID)的 Fuli-9790 型气相色谱仪, 在线测定甲苯浓度随反应温度的变化。

2 结果与讨论

2.1 金属负载量测试

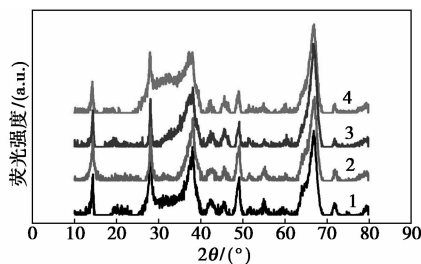
Pt/AlOOH 催化剂负载量测试结果如表 1 所示。由表 1 可以看出, 实际的金属 Pt 的质量分数与理论计算的质量分数十分接近。确定了催化剂的极低金属质量分数。

表 1 Pt/AlOOH 催化剂负载量测试

样品	每千克实际 Pt 的质量/mg	实际 Pt 质量分数/%
0.01% Pt/AlOOH	124.8912	0.0124
0.02% Pt/AlOOH	238.3617	0.0238
0.03% Pt/AlOOH	317.2264	0.0317

2.2 催化剂的表征

载体及不同负载量催化剂的 XRD 分析结果如图 1 所示。由图 1 可以看出, 载体与斜方晶型 γ -AlOOH(JCPDS No. 21-1307) 匹配度最高, 并且没有观察到其他晶型的衍射峰, 表明样品纯度很高。负载 Pt 后的催化剂的 XRD 谱图与载体相似, 没有出现 Pt 的特征衍射峰 40.1°(110)、46.4°(200)、67.9°(220)^[18]。这是由于 Pt 颗粒没有形成大的晶体, 分散度高; 也是由于金属质量分数极低, 不能被检测出。

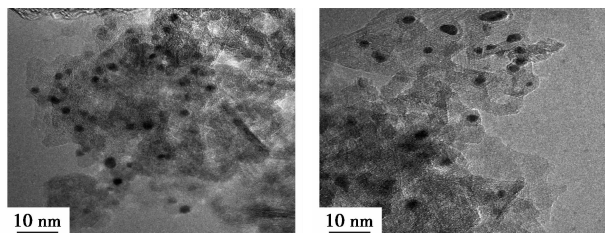


1—AlO(OH); 2—0.01% Pt/AlO(OH);
3—0.02% Pt/AlO(OH); 4—0.03% Pt/AlO(OH)

图 1 载体及不同负载量催化剂的 XRD 图

0.02% Pt/ γ -AlOOH 的 TEM 图如图 2 所示, 新鲜和连续反应 100 h 催化剂的 Pt 粒径分布如表 2 所示。由粒径分布图得知颗粒平均粒径在 2.5 nm, 良好的分散在载体表面。主要是由于在制备纳米颗粒的过程中, PC 作为保护剂和稳定剂, 良好的表面张

力使得纳米颗粒稳定存在且均匀分散在载体表面,没有形成大颗粒。这都使得催化剂保持很高的催化活性^[19]。



(a) 0.02% Pt/AlOOH (b) 0.02% Pt/AlOOH
连续反应 100 h

图2 0.02% Pt/ γ -AlOOH 的 TEM 图

表2 新鲜催化剂与连续反应 100 h 后催化剂的粒径对比

样品	1.5 nm	2.5 nm	3.5 nm	4.5 nm
	颗粒	颗粒	颗粒	颗粒
	比例/%	比例/%	比例/%	比例/%
0.02% Pt/ γ -AlOOH	4	86	8	2
0.02% Pt/ γ -AlOOH-100 h	2	80	10	8

载体及催化剂的物理结构数据如表3所示。由表3可以看出,在负载Pt后,催化剂的比表面积(S_{BET})、孔径(D_p)、孔容(V_p)并没有明显的变化。表明该方法制备的催化剂,纳米粒子良好地分散在载体上,没有使载体结构受到破坏。这主要是因为,Pt 纳米粒子的粒径很小,在粒子进入载体孔道过程中,没有使载体孔道阻塞,这样确保了反应物分子在载体内外能够良好地转移。同时对于气固反应,活性组分的分散情况也是催化剂催化性能是否良好的决定因素之一。直接吸附的方法使得更多活性组分分散在载体表面,由TEM看到分散性很好,这都为反应提供了更多有效的活性中心。良好的分散性有效地延缓了反应过程中纳米粒子的团聚。良好的特性都使催化活性明显增强。

表3 AlOOH 和 Pt/AlOOH 的物理性质和结构

样品	$S_{\text{BET}}/(\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1})$	D_p/nm	$V_p/(\text{m}^3 \cdot \text{g}^{-1})$
γ -AlOOH	263.4	5.0	0.43
0.01% Pt/ γ -AlOOH	251.3	4.6	0.39
0.02% Pt/ γ -AlOOH	260.6	5.0	0.41
0.03% Pt/ γ -AlOOH	253.4	5.0	0.40

载体和催化剂的 N_2 吸附-脱附曲线如图3所示。在相对压力(p/p_0)为0~1.0 MPa 时,可以明显地看到磁滞回线,曲线呈典型的IV型。说明具有统

一的孔隙结构,这也证明了XRD的分析结果^[20]

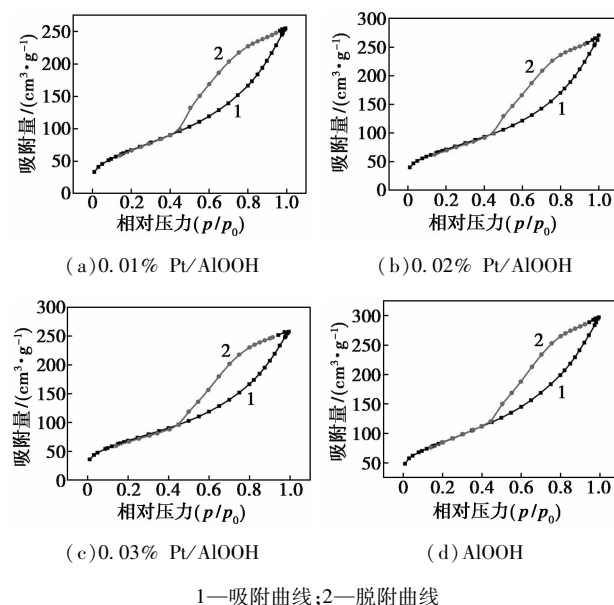


图3 催化剂及载体的 N_2 吸附-脱附曲线

利用XPS分析催化剂的氧化位,结果如图4及表4所示。图4(a)中,利用C的1s轨道进行基线校正。由图4(b)可以看出,O的1s轨道裂分为2个峰,结合能分别为528.2 eV和529.1 eV,分别代表的是晶格氧(O_{latt})和吸附氧(O_{ads})。由图4(c)可以看出,1个宽峰裂分为3个尖峰。第1个峰是

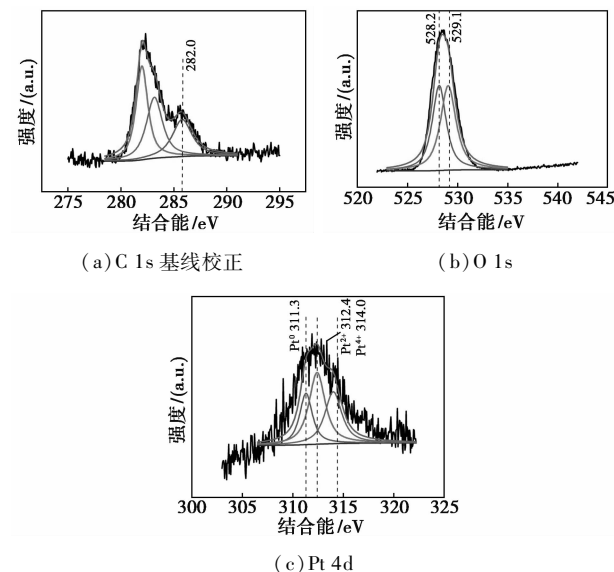


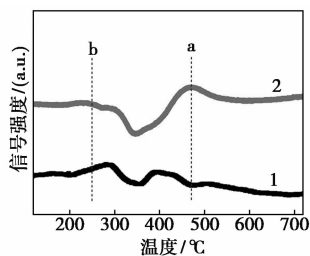
图4 0.02% Pt/AlOOH 催化剂的 XPS 谱图

表4 0.02% Pt/AlOOH 催化剂表面不同物种含量的 XPS 分析结果

Pt 4d 5/2/eV 的摩尔分数/%			O 1s/eV 的摩尔分数/%	
Pt ⁰	Pt ²⁺	Pt ⁴⁺	O _{latt}	O _{ads}
32.5	43.1	24.4	52.7	47.3

311.3 eV 的金属铂(Pt^0),第 2 个峰是 312.4 eV 的 PtO 物种;第 3 个峰是 312.4 eV 的是 PtO_2 ^[21]。由表 4 可以看出, $\text{Pt}^{\delta+}$ (PtO 、 PtO_2) 的摩尔分数占主导。

利用 H_2 -TPR 技术测定催化剂的还原性,结果如图 5 所示。由图 5 可以看出,载体在 100 ~ 700℃ 之间没有出现明显的还原峰。随着 Pt (0.02%) 的加入,在 500℃ 左右观察到了 1 个较弱的还原峰,该峰应该是 Pt (II/IV) 的二维分散峰^[22]。



1— AlOOH ; 2—0.02% Pt/AlOOH

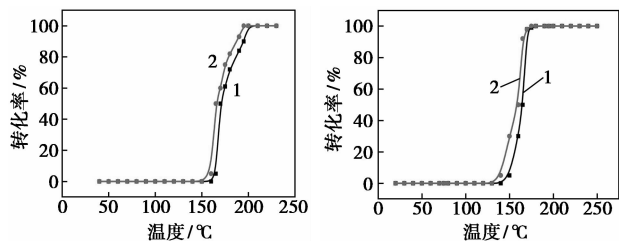
图 5 AlOOH 和 0.02% Pt/AlOOH 催化剂的 H_2 -TPR 谱图

没有观察到 Pt (II) 的低温还原峰 (200 ~ 250℃)^[22]。这是因为 Pt 粒子高度分散在载体上或者 0.02% Pt 的质量分数极低,还原峰不能明显观察到。

2.3 纳米催化剂的氧化性能研究

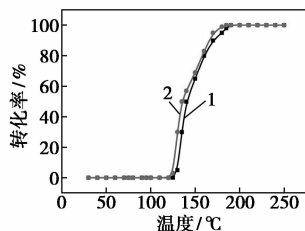
2.3.1 不同浓度的 VOCs 氧化性能研究

0.02% Pt/AlOOH 催化剂对不同质量分数 VOCs 的氧化性能如图 6 所示。



(a) 苯

(b) 甲苯



(c) 二甲苯

1—1 000 $\mu\text{g}/\text{g}$; 2—3 000 $\mu\text{g}/\text{g}$

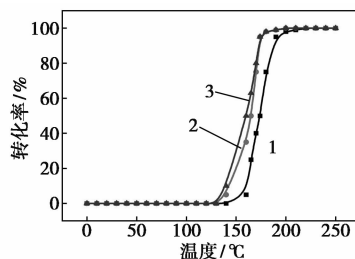
注:反应空速:24 000 $\text{mL}\cdot\text{g}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}$ 。

图 6 0.02% Pt/AlOOH 催化剂对不同质量分数 VOCs 的氧化性能

由图 6 可以看出,苯的完全氧化可以在低于 200℃ 下完成。在一定浓度范围内,随着有机物质量分数的增加,3 000 $\mu\text{g}/\text{g}$ 的苯可以在 195℃ 被完全氧化。这主要是因为随着苯质量分数的升高,反应放出的热量补充了反应所需。这种现象在甲苯、二甲苯的氧化过程中也表现出来。

2.3.2 不同金属负载量催化剂对 VOCs 氧化性能的影响

不同金属质量分数对于 VOCs 氧化性能的影响如图 7 所示。由图 7 可以看出,随着金属质量分数的升高,催化剂活性也相应的提升。这是因为存在更多的活性组分为反应提供活性位,对 VOCs 进行吸附,更利于反应的进行。



1—0.01% Pt/AlOOH ; 2—0.02% Pt/AlOOH ;
3—0.03% Pt/AlOOH

注:甲苯质量分数为 1 000 $\mu\text{g}/\text{g}$;反应空速为 24 000 $\text{mL}/(\text{g}\cdot\text{h})$ 。

图 7 不同负载量 Pt/AlOOH 催化剂对甲苯氧化性能的影响

2.3.3 催化剂催化氧化性能的普适性研究

普适性研究也是评价的重要指标。利用 0.02% Pt/AlOOH 催化剂氧化不同种类的 VOCs。结果如表 5 所示。

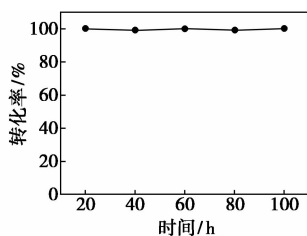
表 5 不同类型 VOCs 的氧化结果

样品	T50/℃	T95/℃	样品	T50/℃	T95/℃
甲醇	97	121	氯苯	270	300
乙醇	113	170	二氯甲烷	180	240
丙酮	165	175	1,2-二氯乙烷	160	245
环己酮	100	152	环戊烷	155	180
乙酸乙酯	193	215	环戊烯	95	110
溴苯	175	205	邻苯二酚	136	228

注:样品质量分数为 1 000 $\mu\text{g}/\text{g}$;反应空速为 24 000 $\text{mL}/(\text{g}\cdot\text{h})$ 。

2.4 纳米催化剂稳定性研究

催化剂稳定性曲线如图 8 所示。在反应温度为 200℃,甲苯的质量分数为 1 000 $\mu\text{g}/\text{g}$,空速为 24 000 $\text{mL}/(\text{g}\cdot\text{h})$ 的条件下,甲苯可以连续 100 h 维持转化率在 100%。



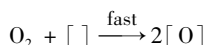
注:反应温度为 200℃;样品质量分数为 1 000 μg/g;反应空速为 24 000 mL/(g·h)。

图 8 0.02% Pt/ γ -AlOOH 催化剂稳定性测试

在催化氧化过程中,甲苯分子大量附着在催化剂表面,降低吸附氧的能力,最终导致催化活性下降。然而,从图 2(b)中也可以看到,0.02% Pt/ γ -AlOOH-100 h(连续反应 100 h),催化剂的金属没有发生明显的团聚显现,从粒径分布的前后对比可以看到,没有发生较大改变。这说明催化剂仍然保持着良好的活性,也说明催化剂的稳定性良好。

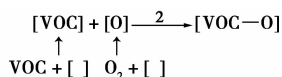
3 反应机理

贵金属催化剂通常以 Longmuir-Hinshelwood 机理和 Elay-Rideal 机理为主^[23]。一般贵金属催化剂的氧化机理涉及对氧的吸附解离:



其中,[]表示“活性位”。这一步骤后,吸附态的氧 [O]直接与气态有机物反应。

然而,有时候气态有机物会首先吸附在活性位上,再进行平行反应,具体机理如下:



同时,XPS 和 H₂-TPR 分析结果表明,Pt^{δ+}(PtO、PtO₂)是催化剂的活性组分。从而由 Mars-van Krevelen^[23]机理猜测出可能的机理,如图 9 所示。

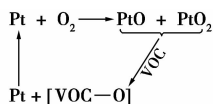


图 9 催化剂表面活性位形成过程及催化氧化机理示意图

氧化还原循环过程是发生在催化剂上的氧阴离子表面的反应。反应以化学吸附或气相有机反应物 2 种形式同时发生。VOCs 分子与 Pt^{δ+}物种反应并夺取 PtO_x 中的氧,形成了 [VOC-O]。同时,Pt^{δ+}被还原为 Pt(0)后,再次从空气中获得氧气或 [O],形成 Pt^{δ+}物质。

4 结论

通过直接吸附纳米颗粒的方法制备出极低金属质量分数的催化剂。在对三苯系的催化氧化探究中展现出了良好的性能。研究中发现,负载的铂主要存在 2 种形式:Pt^{δ+}(PtO、PtO₂)。最后对催化剂稳定性进行了研究,在 100 h 的连续反应中,未出现活性下降的情况。

参考文献

- [1] 崔保聪,易红宏. 工业废气中甲苯处理技术研究现状与进展[J]. 现代化工,2016,36(2):30-33.
- [2] 黎维彬,龚浩. 催化燃烧去除 VOCs 污染物的最新进展[J]. Acta Phys Chim Sin,2010,26(4):885-894.
- [3] 马超,薛志钢. VOCs 排放、污染以及控制[J]. 环境工程技术学报,2012,2(2):103-109.
- [4] 党小庆,刘晓,黄家玉,等. 吸附联合低温等离子体法去除甲苯废气[J]. 环境工程学报,2012,6(9):3223-3228.
- [5] Henri-Joël Sedjame, Céline Fontaine. On the promoting effect of the addition of ceria to platinum based alumina catalysts for VOCs oxidation[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2014, 144: 233-242.
- [6] Sang Chai Kim, Seung Won Nahm, Young-Kwon Park. Property and performance of red mud-based catalysts for the complete oxidation of volatile organic compounds[J]. Journal of Hazardous Materials, 2015, 300: 104-113.
- [7] 牛茜,李兵,徐校良. 催化燃烧法处理挥发性有机化合物研究进展[J]. 现代化工,2013,33(11):19-23.
- [8] Bastos S S T, Carabineiro S A C. Total oxidation of ethyl acetate, ethanol and toluene catalyzed by exotemplated manganese and cerium oxides loaded with gold[J]. Catal Today, 2012, 180: 148-154.
- [9] Liotta L F. Catalytic oxidation of volatile organic compounds on supported noble metals[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2010, 100: 403-412.
- [10] Li Dalin, Ding Yuanyuan, Wei Xiaofeng. Cobalt-aluminum mixed oxides prepared from layered double hydroxides for the total oxidation of benzene[J]. Applied Catalysis A: General, 2015, 507: 130-138.
- [11] Lojewska J, Kolodziej A, Lojewski T. Structured cobalt oxide catalyst for VOC combustion. Part I: Catalytic and engineering correlations[J]. Appl Catal A: Gen, 2009, 366: 206-211.
- [12] Feng Y, Li L, Niu S, et al. Controlled synthesis of highly active mesoporous Co₃O₄ polycrystals for low temperature CO oxidation[J]. Appl Catal B: Environ, 2012, 111: 461-466.
- [13] Liotta L F, Deganello G, Di C G, et al. Total oxidation of propene at low temperature over Co₃O₄-CeO₂ mixed oxides: Role of surface oxygen vacancies and bulk oxygen mobility in the catalytic activity[J]. Appl Catal A, 2008, 347: 81-88.

公司生产。

丙烯酸(AA)、丙烯酸十八酯(SA)、过氧化十二酰(LPO)、季戊四醇三烯丙基醚(APE)、乙酸乙酯(EA)、碳酸氢钠(NaHCO_3)、氢氧化钠(NaOH)、十二烷基苯磺酸钠(LAS;41.75%)、十六烷基三甲基溴化铵(CTAB)、脂肪醇聚氧乙烯醚(AEO₉)、烷基糖苷(APG)、甜菜碱、脂肪醇聚氧乙烯醚硫酸钠(AES),均为市售化学纯,所有原料在使用前均未精制。

2 实验部分

2.1 疏水缔合型聚丙烯酸酯增稠剂的合成

在装有搅拌器、温度计、回流冷凝器的反应釜中先后加入200 mL EA、20 g AA、2 g SA、0.2 g APE、1 g NaHCO_3 、1 g AEO₉,通氮气30 min,开启搅拌,升温至60℃,缓慢滴加0.8 g LPO,控制反应温度在73~76℃,反应4 h后,冷却至室温,过滤,用EA洗涤2次,在40℃下真空干燥24 h,得到白色聚丙烯酸酯增稠剂粉末,记为HAAT。

2.2 溶液的配制

(1)将缔合型聚丙烯酸类增稠剂HAAT溶解于二次蒸馏水中配制成不同质量分数的溶液,同样将表面活性剂也溶于二次蒸馏水中配制成一定浓度的溶液。

(2)按表1所列配方分别将A和B、C、D、E相混合均匀,再将制得样品装入150 mL透明塑料瓶中,然后在2 000 r/min转速下离心消泡20 min,再放至恒温箱中于(25±1)℃下恒温1 h。

表1 配方

相	试剂	质量分数/%
A	去离子水	50
	HAAT	0.0.2.0.4.0.6.0.8
	NaOH(20%)	适量
B	LAS	10
C	CTAB	10
D	APG	10
E	甜菜碱	10
去离子水		50

黏度测定:利用NDJ-8S型旋转黏度计在转速为20 r/min,25℃下检测黏度3次,取平均值。

透光率测定:将制备好的样品装入1 cm的干净比色皿中,然后放入底部垫有纸巾(起缓冲作用)的塑料离心管中,用离心机离心消泡到无气泡为止,样品装至比色皿的3/4;在波长为426 nm下,测其透光率,以去离子水为参比样,测定样品的透光率,平行测量3次,取平均值。

3 结果与讨论

3.1 不同pH对HAAT性能的影响

不同pH下,不同质量分数的HAAT水溶液的黏度和透光率的变化情况如图1所示。从图1可以看出,HAAT水溶液的黏度随着质量分数的增大而增大,透光率随着HAAT质量分数的增大而减小,当pH=6~8时,黏度和透光率均达最大值。当pH较小时,体系的黏度和透光率都较低,这是因为聚合物主要以羧酸的形式存在,分子链蜷缩在一起,随着

(上接第97页)

[14] Li Jia-heng, Ao Ping, Gao Xiang, *et al.* Removal of volatile organic compounds at low temperature by a self-assembled Pt/ γ - Al_2O_3 catalyst[J]. *Acta Phys Chim Sin*, 2015, 31: 173–180.

[15] Xu Xiangsheng, Li Xiaoqing, Gu Huizi, *et al.* A highly active and chemoselective assembled Pt/C(Fe) catalyst for hydrogenation of *o*-chloronitrobenzene[J]. *Appl Catal A*, 2012, 429: 17–23.

[16] Zhou Guilin, He Xiaoling, Liu Sheng, *et al.* aPhenyl VOCs catalytic combustion on supported CoMn/AC oxide catalyst[J]. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2015, 21: 932–941.

[17] Ould-Ely T, Pan C, Amiens C. Precursors and poly vinylpyrrolidone: Synthesis organometallic dispersed characterization[J]. *Phys Chem B*, 2000, 104: 695.

[18] Matam S K, Kondratenko E V, Aguirre M H, *et al.* The impact of aging environment on the evolution of Al_2O_3 supported Pt nanoparticles and their NO oxidation activity[J]. *Appl Catal B*, 2013, 129:

214.

[19] Ao Ping, Xu Xiang-sheng, Yan Xin-huan. Low-temperature total oxidation of toluene over assembled Pt/ TiO_2 catalyst[J]. *Acta Physico-Chimica Sinica*, 2014, 30: 950–956.

[20] García-Dieguez M, Pieta I S, Herrera M C, *et al.* Transient study of the dry reforming of methane over Pt supported on different Al_2O_3 [J]. *Catal Today*, 2010, 149: 380–387.

[21] Corro G, Cano C, Fierro J L G. A study of Pt-Pd/ γ - Al_2O_3 catalysts for methane oxidation resistant to deactivation by sulfur poisoning [J]. *Catal A: Chem*, 2010, 315: 35.

[22] Jongpatiwut S, Rattanapuchapong N, Rirksomboon T, *et al.* Enhanced sulfur tolerance of bimetallic PtPd/ Al_2O_3 catalysts for hydrogenation of tetralin by addition of fluorine[J]. *Catal Lett*, 2008, 122: 214.

[23] Spivey J J. Complete catalytic oxidation of volatile organics[J]. *Ind Eng Chem Res*, 1987, 26: 2165–2180. ■