

改性 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 基整体式催化剂上 NH_3 选择性催化还原 NO

邱春天, 林涛*, 张秋林, 徐海迪, 陈耀强, 龚茂初*

四川大学绿色化学与技术教育部重点实验室, 四川成都 610064

QIU Chuntian, LIN Tao*, ZHANG QiuLin, XU Haidi, CHEN Yaoqiang, GONG Maochu*

Key Laboratory of Green Chemistry & Technology of the Ministry of Education, Sichuan University, Chengdu, 610064, Sichuan, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (626KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 采用共沉淀法制备了 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 催化剂, 考察了 CeO_2 , MoO_3 和 WO_3 的添加对 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 整体式催化剂上 NH_3 选择性催化还原 ($\text{NH}_3\text{-SCR}$) NO_x 的影响, 并利用低温 N_2 吸附-脱附、X 射线衍射、X 射线光电子能谱、 NH_3 和 NO 程序升温脱附等方法对催化剂进行了表征。结果表明催化剂物相为 $\text{Mn}_{0.2}\text{Zr}_{0.8}\text{O}_{1.8}$ 固溶体, CeO_2 和 WO_3 分散在其中; 添加 MoO_3 或 WO_3 后, 样品中出现了新的中强酸位, 强吸附的 NO 物种增加, 从而有利于催化剂中高温活性的提高。另外, Mn 和 Ce 物种主要分别以 Mn^{4+} 和 Ce^{4+} 形式存在。在 $\text{NH}_3\text{-SCR}$ 反应中, CeO_2 的添加提高了 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 催化剂的低温活性, 但反应温度窗口较窄; 继续添加 MoO_3 或 WO_3 后, 催化剂表现出良好的低温活性和宽的反应温度窗口, 其中 $\text{WO}_3/\text{CeO}_2/\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 催化剂上 NO 的起燃温度为 $176\text{ }^\circ\text{C}$, 且反应温度在 $240\text{--}424\text{ }^\circ\text{C}$ 范围内, NO_x 转化率大于 90%, 具有良好的低温活性和宽的温度窗口。

关键词: 氮氧化物 选择性催化还原 整体式催化剂 二氧化锆 二氧化锰 氧化铈 三氧化钨

Abstract: A $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ catalyst was prepared by the co-precipitation method, and modified with CeO_2 , MoO_3 , and WO_3 by impregnation. The catalytic activity of the monolithic catalysts for selective catalytic reduction of NO_x with NH_3 ($\text{NH}_3\text{-SCR}$) was studied. All the catalysts were characterized by low temperature nitrogen adsorption-desorption, X-ray diffraction, X-ray photoelectron spectroscopy, and NH_3/NO -temperature-programmed desorption. The results show that the phase of the catalysts is $\text{Mn}_{0.2}\text{Zr}_{0.8}\text{O}_{1.8}$ solid solution, and CeO_2 and WO_3 are well dispersed in catalysts. When adding MoO_3 or WO_3 into the catalyst, some medium-strength acid sites and the strongly adsorbed NO species that are beneficial to the elevated temperature catalytic activity increase. Mn and Ce exist as Mn^{4+} and Ce^{4+} . The low temperature SCR activity is improved by the modification with CeO_2 , but the temperature window of the reaction is relatively narrow. When MoO_3 or WO_3 is introduced into $\text{CeO}_2/\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$, the catalyst exhibits better catalytic performance and wider temperature window. The light-off temperature of $\text{WO}_3/\text{CeO}_2/\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ is $176\text{ }^\circ\text{C}$, and the NO_x conversion is over 90% in the temperature range of $240\text{--}424\text{ }^\circ\text{C}$, and it has good low-temperature activity and wide temperature window.

Keywords: [nitrogen oxides](#), [selective catalytic reduction](#), [monolithic catalyst](#), [zirconium dioxide](#), [manganese dioxide](#), [cerium oxide](#), [tungsten trioxide](#)

收稿日期: 2011-03-01; 出版日期: 2011-05-06

Service

- ▶ 把本文推荐给朋友
- ▶ 加入我的书架
- ▶ 加入引用管理器
- ▶ Email Alert
- ▶ RSS

作者相关文章

- ▶ 邱春天
- ▶ 林涛
- ▶ 张秋林
- ▶ 徐海迪
- ▶ 陈耀强
- ▶ 龚茂初

引用本文:
邱春天, 林涛, 张秋林等. 改性 $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ 基整体式催化剂上 NH_3 选择性催化还原 NO [J] 催化学报, 2011,V32(7): 1227-1233

QIU Chun-Tian, LIN Tao, ZHANG Qiu-Lin etc .Selective Catalytic Reduction of NO with NH_3 on Modified $\text{ZrO}_2\text{-MnO}_2$ Monolithic Catalysts[J] Chinese Journal of Catalysis, 2011,V32(7): 1227-1233

链接本文:

<http://www.chxb.cn/CN/10.3724/SP.J.1088.2011.10245> 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I7/1227>

- [1] 马斯特斯.??环境科学技术导论.??程俊人 译.??北京:科学出版社?(Master G M. Introduction to Environmental Science and Technology. Cheng J R transl. Beijing: Sci Press), 1982. 184
- [2] 周芸芸,钱枫,?付颖.??北京工商大学学报?(自然科学版) (Zhou Y Y, Qian F, Fu Y. J Beijing Technol Business Univ (Nat Sci Ed)), 2006, 24(3): 17
- [3] Smirniotis P G, Pena D A, Uphade B S. Angew Chem, Int Ed, 2001, 40: 2479
- [4] Iwasaki M, Yamazaki K, Banno K, Shinjoh H. J Catal, 2008, 260: 205
- [5] Yu J, Guo F, Wang Y L, Zhu J H, Liu Y Y, Su F S, Gao S Q, Xu G W. Appl Catal B, 2010, 95: 160
- [6] Park J H, Park H J, Baik J H, Nam I S, Shin C H, Lee J H, Cho B K, Oh S H. J Catal, 2006, 240: 47
- [7] Si Z C, Weng D, Wu X D, Li J, Li G. J Catal, 2010, 271: 43
- [8] Kang M, Kim D J, Park E D, Kim J M, Yie J E, Kim S H, Hope-weeks L, Eyring E M. Appl Catal B, 2006, 68: 21

- [9] 李雪辉,[?]李华,[?]高翔,[?]陈志航,[?]杨青,[?]王芙蓉,[?]王乐夫.^{??}催化学报?(Li X H, Li H, Gao X, Chen Zh H, Yang Q, Wang F R, Wang L F. Chin J Catal), 2011, 32: 477
- [10] Liu F D, He H, Zhang C B. Chem Commun, 2008: 2043
- [11] Liu F D, He H, Ding Y, Zhang C B. Appl Catal B, 2009, 93: 194
- [12] Wu Z B, Jiang B Q, Liu Y. Appl Catal B, 2008, 79: 347
- [13] Verdier S, Rohart E, Bradshaw H, Harris D, Bichon Ph, Delahay G. SAE Paper, 2008-01-1022
- [14] Sohn J R, Cho E S. Appl Catal A, 2005, 282, 147
- [15] Chen Y Z, Liaw B J, Kao Ch F, Kuo J Ch. Appl Catal A, 2001. 217, 23
- [16] 李伟,[?]林涛,[?]张秋林,[?]龚茂初,[?]陈耀强.^{??}催化学报?(Li W, Lin T, Zhang Q L, Gong M Ch, Chen Y Q. Chin J Catal), 2009, 30: 104
- [17] 徐海迪,[?]邱春天,[?]张秋林,[?]林涛,[?]龚茂初,[?]陈耀强.^{??}物理化学学报?(Xu H D, Qiu Ch T, Zhang Q L, Lin T, Gong M Ch, Chen Y Q. Acta Phys-Chim Sin), 2010, 26: 2449
- [18] Qi G S, Yang R T, Chang R. Appl Catal B, 2004, 51: 93
- [19] Shen Y S, Zhu S M, Qiu T, Shen S B. Catal Commun, 2009, 11: 20
- [20] 林涛,[?]李伟,[?]龚茂初,[?]喻瑶,[?]杜波,[?]陈耀强.^{??}物理化学学报?(Lin T, Li W, Gong M Ch, Yu Y, Du B, Chen Y Q. Acta Phys-Chim Sin), 2007, 23: 1851
- [21] Lietti L, Forzatti P, Bregani F. Ind Eng Chem, Res, 1996, 35: 3884
- [22] Lietti L, Alemany J L, Forzatti P, Busca G, Ramis G, Giannello E, Bregani F. Catal Today, 1996, 29: 143
- [23] Lietti L. Appl Catal B, 1996, 10: 281
- [24] Xie G Y, Liu Z Y, Zhu Z P, Liu Q Y, Ge J, Huang Z G. J Catal, 2004, 224: 36
- [25] Xie G Y, Liu Z Y, Zhu Z P, Liu Q Y, Ge J, Huang Z G. J Catal, 2004, 224: 42
- [26] López E F, Escribano V S, Resini C, Gallardo-Amores J M, Busca G. Appl Catal B, 2001, 29: 251
- [27] Gutierrez-Ortiz J I, Rivas B D, Lopez-Fonseca R, Martin S, Gonzalez-Velasco J R. Chemosphere, 2007, 68: 1004
- [28] Machida M, Uto M, Kurogi D, Kijima T. Chem Mater, 2000, 12: 3158
- [29] Busca G, Larrubia M A, Arrighi L, Ramis G. Catal Today, 2005, 107-108: 139
- [30] Busca G, Lietti L, Ramis G, Berti F. Appl Catal B, 1998, 18: 1
- [31] Bagnasco G, Busca G, Galli P, Massucci M A, Melanová K, Patrono P, Ramis G, Turco M. Appl Catal B, 2000, 28: 135
- [32] Forzatti P. Appl Catal A, 2001, 222: 221
- [33] Jia L W, Shen M Q, Wang J, Chu X, Wang J M, Hu Z C. J Rare Earths, 2008, 26: 523
- [34] 李烨,[?]程昊,[?]李德意,[?]秦永生,[?]王树东.^{??}催化学报?(Li Y, Cheng H, Li D Y, Qin Y Sh, Wang Sh D. Chin J Catal), 2008, 29: 547
- [35] 刘清雅,[?]刘振宇,[?]李成岳.^{??}催化学报?(Liu Q Y, Liu Zh Y, Li Ch Y. Chin J Catal), 2006, 27: 636
- [36] Ding Z Y, Li L X, Wade D, Gloyna E F. Ind Eng Chem, Res, 1998, 37: 1707
- [37] 唐晓龙,[?]郝吉明,[?]徐文国,[?]李俊华.^{??}催化学报?(Tang X L, Hao J M, Xu W G, Li J H. Chin J Catal), 2006, 27: 843
- [1] 方星, 陈崇启, 林性贻*, 余育生, 詹瑛瑛, 郑起. La_2O_3 对 CuO/CeO_2 水煤气变换反应催化剂微观结构及催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 425-431
- [2] 石晓燕, 刘福东, 单文坡, 贺泓. 水热老化对不同方法制备的 Fe-ZSM-5 用于 NH_3 选择性催化还原 NO_x 的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 454-464
- [3] 张泽凯, 俞河, 廖冰冰, 黄海凤, 陈银飞. 铁前驱体对 Fe/β 催化 NH_3 -SCR 反应性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 576-580
- [4] 林建新, 张留明, 王自庆, 王榕, 魏可镁. Pr 掺杂对 Ru/CeO_2 催化剂结构和氨合成性能的影响[J]. 催化学报, 2012, 33(3): 536-542
- [5] 黄燕, 李可心, 颜流水, 戴玉华, 黄智敏, 薛昆鹏, 郭会琴, 熊晶晶. 二维六方 $p6mm$ 有序介孔 $\text{WO}_3\text{-TiO}_2$ 复合材料的制备及其可见光光催化性能[J]. 催化学报, 2012, 33(2): 308-316
- [6] 庞潇健, 陈亚中, 代瑞旗, 崔鹏. 柠檬酸络合法制备的 Co/CeO_2 催化剂上中温乙醇水蒸气重整性能[J]. 催化学报, 2012, 33(2): 281-289
- [7] 张燕杰, 詹瑛瑛, 曹彦宁, 陈崇启, 林性贻, 郑起. 以水热法合成的 ZrO_2 负载 Au 催化剂的低温水煤气变换反应[J]. 催化学报, 2012, 33(2): 230-236
- [8] 任利敏, 张一波, 曾尚景, 朱龙凤, 孙琦, 张海燕, 杨承广, 孟祥举, 杨向光, 肖丰收. 由新型铜胺络合物模板剂设计合成活性优异的 Cu-SSZ-13 分子筛[J]. 催化学报, 2012, 33(1): 92-105
- [9] 刘彤, 于琴琴, 王卉, 蒋晓原, 郑小明. 等离子体与催化剂协同催化 CH_4 选择性还原脱硝反应[J]. 催化学报, 2011, 32(9): 1502-1507
- [10] 钟富兰, 钟喻娇, 肖益鸿, 蔡国辉, 郑勇, 魏可镁. $\text{Pt}/\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2\text{-La}_2\text{O}_3$ 柴油车尾气氧化催化剂活性及抗硫性能[J]. 催化学报, 2011, 32(9): 1469-1476
- [11] 张佳瑾, 李建伟, 朱吉钦, 王越, 陈标华. 助剂对 Cu-Mn 复合氧化物整体式催化剂催化低浓度甲烷燃烧反应性能的影响[J]. 催化学报, 2011, 32(8): 1380-1386
- [12] 杨文, 储伟, 江成发, 文婕, 孙文昌. CeO_2 助 Ni/MgO 催化剂用于化学气相沉积法制备多壁碳纳米管[J]. 催化学报, 2011, 32(8): 1323-1328
- [13] 单文娟, 刘畅, 郭红娟, 杨利华, 王晓楠, 冯兆池. $0, 1, 3$ 维 CeO_2 的可控制备及 CuO/CeO_2 催化剂上 CO 氧化反应[J]. 催化学报, 2011, 32(8): 1336-1341
- [14] 刘洪磊, 袁茂林, 郭彩红, 李瑞祥, 付海燕, 陈华, 李贤均. $\text{Ru/ZrO}_2\text{-xH}_2\text{O}$ 催化剂催化肉桂醛选择性加氢制肉桂醇[J]. 催化学报, 2011, 32(7): 1256-1261
- [15] 刘福东, 单文坡, 石晓燕, 张长斌, 贺泓. 用于 NH_3 选择性催化还原 NO 的非钒基催化剂研究进展[J]. 催化学报, 2011, 32(7): 1113-1128

