

# CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> 复合氧化物催化剂的 NH<sub>3</sub>-SCR 反应机理

陈亮 1,2, 李俊华 2,3, 葛茂发 1, 马磊 2, 常化振 2

1 中国科学院化学研究所分子动态与稳态结构国家重点实验室, 北京 100190; 2 清华大学环境科学与工程系, 北京 100084; 3 清华大学环境模拟与污染控制国家重点实验室, 北京 100084

CHEN Liang 1,2, LI Junhua2,3,\* , GE Maofa1,#, MA Lei2, CHANG Huazhen2

1State Key Laboratory for Structural Chemistry of Unstable and Stable Species, Institute of Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China; 2Department of Environmental Science and Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China; 3State Key Joint Laboratory of Environment Simulation and Pollution Control, Tsinghua University, Beijing 100084, China

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (577KB) HTML (1KB) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

**摘要** 采用共沉淀法制备了新型 CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> 复合氧化物催化剂, 并用于氨选择性催化还原 (NH<sub>3</sub>-SCR) NO<sub>x</sub> 反应中. 活性测试表明, 在 200~450 °C NO<sub>x</sub> 转化率接近 100%. 采用程序升温脱附和原位漫反射红外光谱研究了该催化剂上的 NH<sub>3</sub>-SCR 反应机理. 结果表明, 该催化剂的主要活性位是 CeO<sub>2</sub>, 而 WO<sub>3</sub> 的加入大大提高了其表面 Brönsted 酸位的数量与强度及其氧化 NO 的能力. 另外还发现, 除了催化剂表面 Lewis 酸与 Brönsted 酸参与反应外, 表面的桥式与单齿硝酸盐也是活性很高的物种. 整个 SCR 反应可通过以上两种途径进行.

**关键词:** 氮氧化物去除 选择性催化还原 活性 一氧化氮氧化能力 机理

**Abstract:** The mechanism of NH<sub>3</sub>-selective catalytic reduction (SCR) over a CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> catalyst was investigated by temperature-programmed desorption (TPD) analysis and in situ diffuse reflectance infrared Fourier transform spectroscopy. The active sites were on CeO<sub>2</sub>, while WO<sub>3</sub> greatly enhanced the amount and strength of the surface Brönsted acid sites and the NO oxidation ability. Both NH<sub>4</sub><sup>+</sup> and coordinated NH<sub>3</sub> contributed to the SCR reaction. Bridging nitrate and monodentate nitrate were confirmed as the reactive nitrate species. Under SCR reaction conditions, surface NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub> was formed, which played the role of an important intermediate species. Two different pathways for the SCR reaction were suggested for the CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> catalyst.

**Keywords:** nitrogen oxide removal, selective catalytic reduction, activity, nitrogen oxide oxidation ability, mechanism

收稿日期: 2010-11-16; 出版日期: 2011-01-19

**引用本文:** 陈亮, 李俊华, 葛茂发等. CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> 复合氧化物催化剂的 NH<sub>3</sub>-SCR 反应机理[J]. 催化学报, 2011, V32(5): 836-841

CHEN Liang, LI Jun-Hua, GE Mao-Fa etc. Mechanism of Selective Catalytic Reduction of NO<sub>x</sub> with NH<sub>3</sub> over CeO<sub>2</sub>-WO<sub>3</sub> Catalysts[J]. Chinese Journal of Catalysis, 2011, V32(5): 836-841

**链接本文:** [http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(10\)60195-7](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(10)60195-7) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2011/V32/I5/836>

[1] osch H, Janssen F J. Catal Today, 1988, 2: 369 

[2] unn J P, Koppula P R, Stenger H G, Wachs I E. Appl Catal B, 1998, 19: 103 

[3] iu F D, He H, Zhang C B. Chem Commun, 2008: 2043

[4] u W Q, Yu Y B, Zhang C B, He H. Catal Commun, 2008, 9: 1453 

[5] ao X, Jiang Y, Zhong Y, Luo Z Y, Cen K F. J Hazard Mater, 2010, 174: 734 

[6] hen Y S, Zhu S M, Qiu T, Shen S B. Catal Commun, 2009, 11: 20 

[7] i Z C, Weng D, Wu X D, Li J, Li G. J Catal, 2010, 271: 43 

[8] u T T, Liu Y, Weng X L, Wang H Q, Wu Z B. Catal Commun, 2010, 12: 310 

[9] hen L, Li J H, Ge M F, Zhu R H. Catal Today, 2010, 153: 77 

[10] Chen L, Li J H, Ge M F. J Phys Chem C, 2009, 113: 21177 

[11] Chen L, Li J H, Ge M F. Environ Sci Technol, 2010, 44: 9590 

## 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

- ▶ 陈亮
- ▶ 李俊华
- ▶ 葛茂发
- ▶ 马磊
- ▶ 常化振

- [12] Chen L, Li J H, Ge M F. ACS Catal, 2012, 2: 2965 
- [13] Tronconi E, Lietti L, Forzatti P, Malloggi S. Chem Eng Sci, 1996, 51: 2965 
- [14] Eigenmann F, Maciejewski M, Baiker A. Appl Catal B, 2006, 62: 311 
- [15] Shimizu K, Satsuma A, Hattori T. Appl Catal B, 1998, 16: 319 
- [16] Ramis G, Busca G, Bregani F, Forzatti P. Appl Catal, 1990, 64: 259 
- [17] Ramis G, Yi L, Busca G. Catal Today, 1996, 28: 373 
- [18] Matralis H K, Ciardelli M, Ruwet M, Grange P. J Catal, 1995, 157: 368 
- [19] Kijlstra W S, Brands D S, Smit H I, Poels E K, Blik A. J Catal, 1997, 171: 219 
- [20] Ramis G, Larrubia M A. J Mol Catal A, 2004, 215: 161 
- [21] Larrubia M A, Ramis G, Busca G. Appl Catal B, 2001, 30: 101 
- [22] Larrubia M A, Ramis G, Busca G. Appl Catal B, 2000, 27: L145
- [23] Lin S D, Gluhoi A C, Nieuwenhuys B E. Catal Today, 2004, 90: 3 
- [24] Chen J P, Yang R T. Appl Catal A, 1992, 80: 135 
- [25] Choi E Y, Nam I S, Kim Y G. J Catal, 1996, 161: 597 
- [26] Qi G S, Yang R T, Chang R. Appl Catal B, 2004, 51: 93 
- [27] Martínez-Arias A, Soria J, Conesa J C, Seoane X L, Arcoya A, Cataluña R. J Chem Soc, Faraday Trans, 1995, 91: 1679 
- [28] Hadjiivanov K I. Catal Rev-Sci Eng, 2000, 42: 71 
- [29] Underwood G M, Miller T M, Grassian V H. J Phys Chem A, 1999, 103: 6184 
- [30] Liu F D, He H. Catal Today, 2010, 153: 70 
- [31] Komatsu T, Ogawa T, Yashima T. J Phys Chem, 1995, 99: 13053 
- [32] Salker A V, Weiweiler W. Appl Catal A, 2000, 203: 221 
- [33] Centi G, Perathoner S. J Catal, 1995, 152: 93 
- [1] 王卫, 陆春华, 苏明星, 倪亚茹, 许仲梓. N 掺杂富含 (001) 晶面 TiO<sub>2</sub> 纳米片的制备及 N 掺杂浓度对可见光催化活性的影响[J]. 催化学报, 2012,33(4): 629-636
- [2] 陈亮, 沈俭一. 间苯二酚-甲醛树脂凝胶对 Co/SiO<sub>2</sub> 催化剂费-托性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(4): 621-628
- [3] 孟庆森, 申勇立, 徐晶, 巩金龙. Au(111) 表面上乙醇选择性氧化反应机理的密度泛函理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(3): 407-415
- [4] 王燕芹, 李振江. 咪唑(咪)-2-羧酸盐作为潜在的/可热活化的有机小分子催化剂催化转酯反应[J]. 催化学报, 2012,33(3): 502-507
- [5] 李扬, 杜伟, 刘德华. 磷脂对脂肪酶催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 389-395
- [6] 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<sub>3</sub> 选择性催化还原 NO<sub>x</sub> 的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 454-464
- [7] 张泽凯, 俞河, 廖冰冰, 黄海凤, 陈银飞. 铁前驱体对 Fe/β 催化 NH<sub>3</sub>-SCR 反应性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(3): 576-580
- [8] 张岩, 黄翠英, 王俊芳, 孙琪, 王长生. Ti/SiO<sub>2</sub> 催化 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 氧化苯甲醇制苯甲醛反应机理的理论研究[J]. 催化学报, 2012,33(2): 360-366
- [9] 袁翠岭, 魏迎旭, 李金哲, 徐舒涛, 陈景润, 周游, 王全义, 许磊, 刘中民. 程序升温条件下甲醇转化反应及流化床催化剂 SAPO-34 的积碳[J]. 催化学报, 2012,33(2): 367-374
- [10] 宫绪敏, 聂尧, 徐岩, 肖荣, Gaetano T. MONTELLIONE. 羧基还原酶辅酶结合域位点突变对其不对称催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(2): 330-335
- [11] 张莉娜, 王浩, 樊卫斌, 王建国. 阳离子表面活性剂-阴离子聚合物为模板剂合成硅基介孔材料[J]. 催化学报, 2012,33(1): 164-173
- [12] 武光军, 关乃佳, 李兰冬. 含氮分子筛的研究进展[J]. 催化学报, 2012,33(1): 51-59
- [13] 郭强, 范峰滔, 郭美玲, 冯兆池, 李灿. 紫外拉曼光谱研究 FeAlPO<sub>4</sub>-5 分子筛的合成机理[J]. 催化学报, 2012,33(1): 106-113
- [14] 王月娟, 郭美娜, 鲁继青, 罗孟飞. 介孔 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 负载 PdO 催化甲烷燃烧反应性能[J]. 催化学报, 2011,32(9): 1496-1501
- [15] 罗海英, 聂信, 李桂英, 刘冀锋, 安太成. 水热法合成的介孔二氧化钛的结构表征及其对水中 2,4,6-三溴苯酚的光催化降解活性[J]. 催化学报, 2011,32(8): 1349-1356