

不同 Mn/(Mn+Ce) 质量比对整体式 $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ 催化剂 $\text{NH}_3\text{-SCR}$ 性能的影响

徐海迪, 房志涛, 曹毅, 孔爽, 林涛^a, 龚茂初, 陈耀强^b

四川大学化学学院, 教育部绿色化学与技术重点实验室, 四川成都 610064

XU Haidi, FANG Zhitao, CAO Yi, KONG Shuang, LIN Taoa, GONG Maochu, CHEN Yaoqiangb

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

- 摘要
- 参考文献
- 相关文章

Download: PDF (607KB) [HTML \(1KB\)](#) Export: BibTeX or EndNote (RIS) Supporting Info

摘要 制备了一系列不同 Mn/(Mn+Ce) 质量比的 $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ 整体式催化剂用于富氧条件下的 NH_3 选择性催化还原 NO_x ($\text{NH}_3\text{-SCR}$), 并采用 N_2 吸脱附、储氧量、X 射线衍射、X 光电子能谱、 NH_3/NO 程序升温脱附以及 H_2 程序升温还原等手段对催化剂进行表征。结果表明, 当 Mn/(Mn+Ce) 质量比为 0.5 时, 整体式催化剂具有较好的 $\text{NH}_3\text{-SCR}$ 性能, 在空速 10000 h^{-1} 和 $173\text{--}355^\circ\text{C}$ 条件反应下, NO_x 转化率达 90% 以上。这是由于该 $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ 催化剂具有更高的 NO 氧化活性、更高的表面 Ce 和 Mn 原子浓度以及 $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$ 值较低的 NH_3 和 NO 脱附温度以及优异的氧化还原性能所致。

关键词: 锰 铈 氨选择性催化还原 氮氧化物 质量比

Abstract: A series of monolith $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ catalysts with different mass ratios of Mn/(Mn+Ce) were prepared and used for the selective catalytic reduction (SCR) of NO_x with NH_3 in the presence of excess O_2 . The catalysts were characterized by N_2 adsorption, oxygen storage capacity, X-ray diffraction, X-ray photoelectron spectroscopy, NH_3/NO temperature-programmed desorption, and H_2 temperature-programmed reduction. The best catalyst had the mass ratio of Mn/(Mn+Ce) = 0.5. It gave 90% NO_x conversion in the range of $173\text{--}355^\circ\text{C}$ at the gas hourly space velocity of 10000 h^{-1} , and characterization results showed that a higher oxidation activity of NO to NO_2 , more surface Ce and Mn with a larger $\text{Ce}^{3+}/\text{Ce}^{4+}$ ratio, lower NH_3 and NO desorption temperatures, and excellent redox ability were together responsible for its best $\text{NH}_3\text{-SCR}$ performance.

Keywords: manganese, cerium, selective catalytic reduction of ammonia, nitrogen oxide, mass ratio

收稿日期: 2012-08-14; 出版日期: 2012-11-28

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

- ▶ 徐海迪
- ▶ 房志涛
- ▶ 曹毅
- ▶ 孔爽
- ▶ 林涛
- ▶ 龚茂初
- ▶ 陈耀强

引用本文:徐海迪, 房志涛, 曹毅等. 不同 Mn/(Mn+Ce) 质量比对整体式 $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ 催化剂 $\text{NH}_3\text{-SCR}$ 性能的影响[J] 催化学报, 2012,V33(12): 1927-1937XU Hai-Di, FANG Zhi-Tao, CAO Yi etc. Influence of Mn/(Mn+Ce) Ratio of $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{WO}_3\text{-ZrO}_2$ Monolith Catalyst on Selective Catalytic Reduction of NO_x with Ammonia[J] Chinese Journal of Catalysis, 2012,V33(12): 1927-1937**链接本文:**[http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067\(11\)60467-1](http://www.chxb.cn/CN/10.1016/S1872-2067(11)60467-1) 或 <http://www.chxb.cn/CN/Y2012/V33/I12/1927>

- [1] Bosch H, Janssen F. Catal Today, 1988, 2: 369
- [2] Kaspar J, Fornasiero P, Hickey N. Catal Today, 2003, 77: 419
- [3] Djerad S, Tifouti L, Crocoll M, Weisweiler W. J Mol Catal A, 2004, 208: 257
- [4] Choo S T, Yim S D, Nam I S, Ham S W, Lee J B. Appl Catal B, 2003, 44: 237
- [5] Kang M, Park E D, Kim J M, Yie J E. Catal Today, 2006, 111: 236
- [6] Wu Z, Jiang B, Liu Y. Appl Catal B, 2008, 79: 347
- [7] Kijlstra W S, Brands D S, Poels E K, Bliek A. J Catal, 1997, 171: 208
- [8] Park E S, Chin S M, Kim J S, Bae G N, Jurng J S. Powder Technol, 2011, 208: 740
- [9] Huang J, Tong Z, Huang Y, Zhang J. Appl Catal B, 2008, 78: 309
- [10] Wang C, Sun L, Cao Q, Hu B, Huang Z, Tang X. Appl Catal B, 2011, 101: 598
- [11] Qi G. S, Yang R T. Appl Catal B, 2003, 44: 217

- [12] Si Z, Weng D, Wu X, Yang J, Wang B. *Catal Commun*, 2010, 11: 1045 
- [13] Jin R, Liu Y, Wu Z, Wang H, Gu T. *Chemosphere*, 2010, 78: 1160 
- [14] 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
- [15] Qi G S, Yang R T. *J Catal*, 2003, 217: 434
- [16] Qi G S, Yang R T. *Chem Commun*, 2003: 848
- [17] Qi G S, Yang R T. *J Phys Chem B*, 2004, 108: 15738 
- [18] Qi G S, Yang R T, Chang R. *Appl Catal B*, 2004, 51: 93 
- [19] Xu H D, Zhang Q L, Qiu C T, Lin T, Gong M C, Chen Y Q. *Chem Eng Sci*, 2012, 76: 120 
- [20] Liu F D, He H, Zhang C B, Feng Z C, Zheng L R, Xie Y N, Hu T D. *Appl Catal B*, 2010, 96: 408 
- [21] 邱春天, 林涛, 张秋林, 徐海迪, 陈耀强, 龚茂初. 催化学报 (Qiu Ch T, Lin T, Zhang Q L, Xu H D, Chen Y Q, Gong M Ch. *Chin J Catal*), 2011, 32: 1227
- [22] Machida M, Uto M, Kurogi D, Kijima T. *Chem Mater*, 2000, 12: 3158 
- [23] Kang M, Park E D, Kim J M, Yie J E. *Appl Catal A*, 2007, 327: p. 261 
- [24] Busca G., Larrubia M A, Arrighi L, Ramis G. *Catal Today*, 2005, 107-108: 139 
- [25] Wang Y A, Cheng H M, Hao Y Z, Ma J M, Li W H, Cai S M. *J Mater Sci*, 1999, 34: 3721 
- [26] Kim Y J, Kwon H J, Nam I S, Choung J W, Kil J K, Kim H J, Cha M S, Yeo G K. *Catal Today*, 2010, 151: 244 
- [27] Wang X Y, Kang Q, Li D. *Appl Catal B*, 2009, 86: 166 
- [28] He H, Dai H X, Au C T. *Catal Today*, 2004, 90: 245 
- [29] Chen L, Li J, Ge M, Zhu R. *Catal Today*, 2010, 153: 77 
- [30] Mao X B, Gong M C, Chen Y Q. *Chin J Inorg Chem*, 2006, 22: 1521
- [31] Martinez A, Prieto G, Arribas M A, Concepcion P, Sanchez R J F. *J Catal*, 2007, 248: 288 
- [32] Liu F D, He H, Ding Y, Zhang C B. *Appl Catal B*, 2009, 93: 194 
- [33] Thirupathi B, Smirniotis P G. *J Catal*, 2012, 288: 74 
- [34] Ding Z Y, Li L X, Wade D, Gloyna E F. *Ind Eng Chem Res*, 1998, 37: 1707 
- [35] Arena F, Trunfio G, Negro J, Fazio B, Spadaro L. *Chem Mater*, 2007, 19: 2269 
- [36] Lin S S, Chen C L, Chang D J, Chen C C. *Water Res*, 2002, 36: 3009 
- [37] Yang S, Feng Y, Wan J, Zhu W, Jiang Z. *Appl Surf Sci*, 2005, 246: 222 
- [38] Vartuli J C, Santiesteban J G, Traverso P, Cardona-Martinez N, Chang C D, Stevenson S A. *J Catal*, 1999, 187: 131 
- [39] Due-Hansen J, Kustov A L, Rasmussen S B, Fehrman R, Christensen C H. *Appl Catal B*, 2006, 66: 161 
- [40] Chen J P, Yang R T. *Appl Catal A*, 1992, 80: 135 
- [41] Ettireddy P R, Ettireddy N, Mamedov S, Boolchand P, Smirniotis P G. *Appl Catal B*, 2007, 76: 123 
- [42] Liu Y, Luo M, Wei Z, Xin Q, Ying P, Li C. *Appl Catal B*, 2001, 29: 61 
- [43] Zhang Q L, Qiu C T, Xu H D, Lin T, Lin Z E, Gong M C, Chen Y Q. *Catal Today*, 2011, 175: 171 
- [44] Liu J, Zhao Z, Wang J, Xu C, Duan A, Jiang G, Yang Q. *Appl Catal B*, 2008, 84: 185 
- [1] 张鸿鹏, 刘海超.Ce-Zr 复合氧化物负载 Au 纳米粒子催化甲醇氧化反应中的载体效应[J]. 催化学报, 2013,34(1): 235-242
- [2] 李星运, 王发根, 潘秀莲, 包信和 .Rh/CeO₂-SiC 催化乙醇部分氧化制氢[J]. 催化学报, 2013,34(1): 257-262
- [3] 张玉良, 杨永兴, 林峰, 杨民, 刘铁峰, 蒋宗轩, 李灿.Mn掺杂对Ni/ZnO吸附剂脱硫性能的改进[J]. 催化学报, 2013,34(1): 140-145
- [4] 张一波, 王德强, 王静, 陈去非, 张震东, 潘喜强, 苗珍珍, 张彬, 武志坚, 杨向光.BiMnO₃ 钙钛石上低温 NH₃ 选择性催化还原 NO[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1448-1454
- [5] 张亚平, 汪小蕾, 沈凯, 徐海涛, 孙克勤, 周长城.WO₃ 改性方法对 MnO_x/TiO₂ 催化剂低温催化 NH₃ 还原 NO 特性的影响[J]. 催化学报, 2012,33(9): 1523-1531
- [6] 孙明娟, 邹国军, 许珊, 王晓来.前驱体 CeOHCO₃ 的结构对产物 CeO₂ 催化性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(8): 1318-1325
- [7] 高旭锋, 谌春林, 任士远, 张建, 苏党生.氧化铈的结构对其热稳定性及催化丙烷氧化脱氢反应性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1069-1074
- [8] 张慧丽, 任丽会, 陆安慧, 李文翠.Au/CeO₂/SiO₂ 催化CO 低温氧化反应过程中CeO₂ 的作用[J]. 催化学报, 2012,33(7): 1125-1132
- [9] 唐富顺, 庄柯, 杨芳, 杨利利, 许波连, 邱金恒, 范以宁.负载型 V₂O₅/TiO₂ 催化剂表面分散状态和性质对氨选择性催化还原 NO 性能的影响[J]. 催化学报, 2012,33(6): 933-940

- [10] 崔亚娟, 何胜楠, 方瑞梅, 史忠华, 龚茂初, 陈耀强. 整体式 $Pd/La_2O_3-Al_2O_3$ 和 $Pd/CeO_2-ZrO_2-Y_2O_3$ 催化剂上汽油车尾气净化性能的比较[J]. 催化学报, 2012, 33(6): 1020-1026
- [11] 单文娟, 杨利花, 马娜, 杨佳丽. K/CeO_2 催化剂上碳黑催化燃烧性能及稳定性[J]. 催化学报, 2012, 33(6): 970-976
- [12] 于琴琴, 刘彤, 王卉, 肖丽萍, 陈敏, 蒋晓原, 郑小明. 低温等离子体协助 $B_2O_3-Y-Al_2O_3$ 选择催化还原 NO [J]. 催化学报, 2012, 33(5): 783-789
- [13] 郭荷芹, 李德宝, 陈从标, 范志宏, 孙予罕. V_2O_5/CeO_2 催化剂上甲醇氧化一步法合成二甲氨基甲烷[J]. 催化学报, 2012, 33(5): 813-818
- [14] 黄健, 马人熊, 高志华, 沈朝峰, 黄伟. $CeO_2/Ni/Mo/SBA-15$ 甲烷二氧化碳重整催化剂的表征和催化性能[J]. 催化学报, 2012, 33(4): 637-644
- [15] 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