



您现在的位置: 首页 > 科研进展

## 贺泓院士团队在机动车污染排放控制方面取得重要进展

2022-08-15 | 【大 虫 小】【打印】【关闭】

中国科学院生态环境研究中心大气环境与污染控制实验室贺泓院士团队, 在机动车污染排放控制方面取得重要进展, 研究成果以“Strikingly distinctive NH<sub>3</sub>-SCR behavior over Cu-SSZ-13 in the presence of NO<sub>2</sub>”为题, 发表于Nature Communications (2022, 13, 4606)上。

我国柴油车尤其柴油货车高频、长距离运行导致其主要污染物氮氧化物(NO<sub>x</sub>)排放量大, 约占全国排放总量的30%, 已成为我国灰霾(PM<sub>2.5</sub>)和臭氧(O<sub>3</sub>)复合污染形成的重要原因。重型柴油车NO<sub>x</sub>排放控制应用最广泛的技术是氨选择性催化还原(NH<sub>3</sub>-SCR)技术, 该技术的核心是NH<sub>3</sub>-SCR催化剂。

该团队前期研究发现, NO<sub>2</sub>存在显著抑制了Cu-SSZ-13小孔分子筛的NH<sub>3</sub>-SCR催化性能, 这一现象与其他体系如氧化物催化剂、Fe基分子筛等的NO<sub>2</sub>促进SCR现象明显不同(Catal. Sci. Technol., 2014, 4, 1104; J. Phys. Chem. C., 2018, 122, 25948; Appl. Catal. B, 2020, 275, 119105)。研究团队通过动力学实验、原位X射线吸收精细结构谱(in situ XAFS)、以及密度泛函理论(DFT)模拟计算, 证实了NO<sub>2</sub>由于具有较O<sub>2</sub>更强的氧化性, 使活性铜物种在实际反应中以更高价态和更多配位的Cu<sup>II</sup>形式存在(骨架固定Cu<sup>II</sup>和NH<sub>3</sub>络合Cu<sup>II</sup>形式), 严重抑制了活性铜物种的移动性(图1)。这使铜位点上的SCR反应能垒明显增加, 导致含有NO<sub>2</sub>的SCR反应更倾向于发生在Bronsted酸性位点上(图2)。

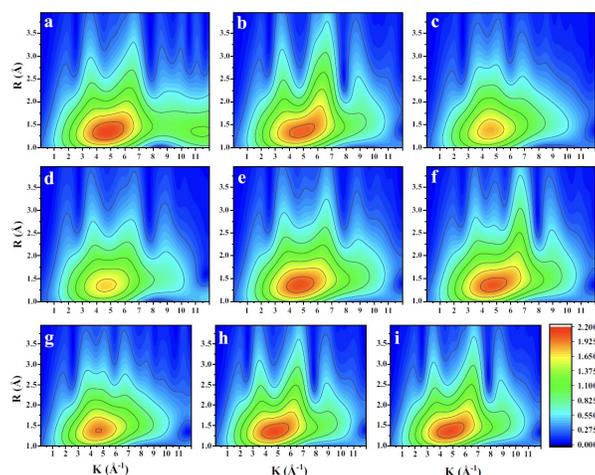


图1 Cu-SSZ-13的原位XAFS图谱。a. O<sub>2</sub>/He, b. NO吸附, c. NH<sub>3</sub>吸附, d. NO+ NH<sub>3</sub>吸附, e. NO+ NH<sub>3</sub>吸附后O<sub>2</sub>氧化, f. NO+ NH<sub>3</sub>吸附后NO<sub>2</sub>氧化, g. 标准SCR反应条件下, h. 快速SCR反应条件, i. NO<sub>2</sub>-SCR反应条件。

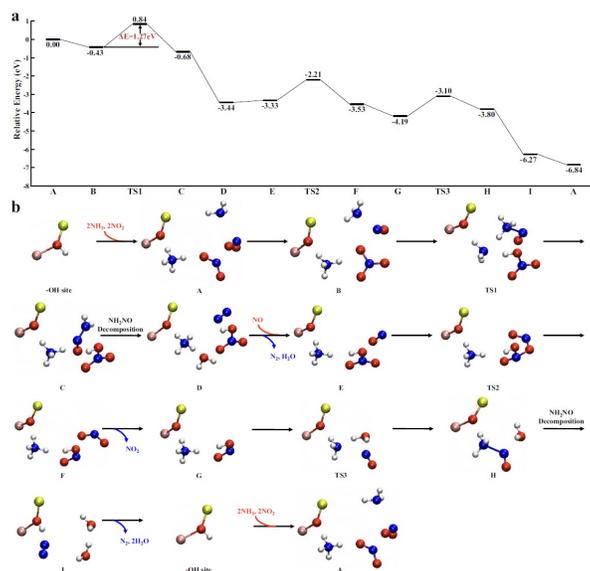


图2 Brønsted酸性位点上的快速SCR反应模拟计算。 a. 吉布斯自由能, b. 基元反应中反应物、过渡态和产物的优化结构。

该研究成果揭示了实际应用过程中NO<sub>2</sub>抑制商用Cu-SSZ-13小孔分子筛催化剂SCR性能的本质原因, 为柴油车尾气后处理系统SCR催化转化器设计提供了理论依据。

该项研究得到了国家自然科学基金基础科学中心基金(22188102)、青年基金(21906172)、中科院青促会(2019045)和中科院生态中心臭氧专项(RCEES-CYZX-2020)项目的资助。

该论文的通讯作者为何广智副研究员和贺泓院士, 第一作者为单玉龙助理研究员。

文章链接: <https://www.nature.com/articles/s41467-022-32136-z>

大气环境与污染控制实验室

2022年8月15日