

粘结剂对蜂窝状 V_2O_5/ACH 同时脱硫脱硝活性的影响

王艳莉¹, 刘振宇²

(1. 华东理工大学化学工程联合国家重点实验室, 上海 200237; 2. 中国科学院山西煤炭化学研究所煤转化国家重点实验室, 山西 太原 030001)

摘要: 在以硅酸盐和酚醛树脂为粘结剂的蜂窝状活性炭(ACH)载体上担载 V_2O_5 , 制备了系列 V_2O_5/ACH 催化剂, 考察了粘结剂对其同时脱硫脱硝活性的影响. 结果表明, 以硅酸盐为粘结剂的催化剂中碳和碱金属含量改变, 影响脱硫脱硝活性, 碳含量高、碱金属含量低的载体适用于制备脱硫脱硝催化剂. 以酚醛树脂为粘结剂的催化剂具有较高的碳含量和微孔孔容, 脱硫活性较高, 但脱硝活性低. 添加硅酸盐所制催化剂因其具有较高的氧/碳比例, 导致脱硝活性较高, 但载体的微孔数量减少, 从而降低了比表面积和微孔孔容, 进而降低其脱硫活性. 在添加 30% 硅酸盐或酚醛树脂(碳化温度为 900 °C)的最佳条件下, 硅酸盐为粘结剂所制催化剂的脱硝率达 90% 以上, 酚醛树脂为粘结剂所制催化剂的硫容为 7.3% (ω).

关键词: 粘结剂; 蜂窝状 V_2O_5/ACH 催化剂; 同时脱硫脱硝

中图分类号: TQ426

文献标识码: A

文章编号: 1009-606X(2009)04-0701-06

1 前言

燃煤过程中排放的 SO_2 和 NO_x 对人体健康和环境造成极大的危害, 因此烟气同时脱硫脱硝技术一直成为当今的研究热点^[1,2]. 干法同时脱硫脱硝技术因具有同时脱除 SO_2 和 NO_x 、操作简单、投资少、无二次污染等特点而成为一种很具潜力的烟气净化技术. 目前, 广泛研究的颗粒状 CuO/Al_2O_3 ^[3,4] 和活性炭(Activated Carbon, AC)催化剂^[5,6]均表现出较高的脱硫活性和 NH_3 选择性催化还原(Selective Catalytic Reduction, SCR)性能, 其有效使用温度分别为 350~450 °C 和近常温, 而工业锅炉的排烟温区为 120~250 °C, 需要对烟气预热或冷却, 导致操作成本较高. 而且由于现有催化剂为颗粒状, 易造成烟气中粉尘聚集, 堵塞反应器, 限制了其工业应用. 蜂窝状催化剂因具有床层阻力小、几何表面积大等优点而受到广泛关注, 开发低温蜂窝状脱硫脱硝催化剂具有重要意义.

此前的研究^[7,8]表明, 担载 V_2O_5 的蜂窝状活性炭(V_2O_5/ACH)在 200 °C 下显示良好的同时脱硫脱硝效果. V_2O_5/ACH 用于脱硫脱硝反应时, 脱硝过程是将 NO 催化还原为 N_2 , 脱硫过程是催化剂对 SO_2 的吸附过程, 即 SO_2 首先吸附在 V_2O_5/ACH 表面, 然后被氧化为 SO_3 , 进而与 H_2O 反应生成 H_2SO_4 及与 NH_3 反应生成硫酸铵盐, 且在催化剂表面还有少量 $VOSO_4$ ^[9]. 为满足工业化应用的要求, 蜂窝状活性炭的制备需要在活性炭中添加适量粘结剂. 目前, 蜂窝状活性炭成型工艺通常采用硅酸盐作为粘结剂, 控制硅酸盐添加量是蜂窝状活性炭基

催化剂制备的关键, 这是因为添加硅酸盐虽然可以提高催化剂的机械强度, 但硅酸盐中含有少量碱金属和碱土金属化合物, 过高的硅酸盐添加量势必会影响催化剂的脱硫脱硝性能. 也有文献^[10]报道了将活性炭与酚醛树脂粘结剂混合挤压成型、高温碳化后制成蜂窝状活性炭. 该类蜂窝状活性炭主要是利用酚醛树脂碳化后留下的炭骨架增加炭颗粒之间的连接, 同时由于酚醛树脂炭颗粒中的挥发分和反应生成的气体不断逸出, 形成一定的孔隙结构^[11].

由于蜂窝状 V_2O_5/ACH 催化剂中引入了粘结剂, 使其组成发生改变, 而且粘结剂性质会影响催化剂同时脱硫脱硝性能. 基于上述认识, 本研究分别选用硅酸盐和酚醛树脂为粘结剂, 制备了两类 ACH, 并以其为载体担载 V_2O_5 , 制得一系列 V_2O_5/ACH 催化剂, 考察粘结剂性质与催化剂性能的内在关系, 以期同时为同时脱硫脱硝 V_2O_5/ACH 催化剂的开发和工程化应用提供理论依据.

2 实验

2.1 试剂与材料

实验所用试剂均为市售分析纯, 所用颗粒状活性炭 AC 为山西新华化工厂商业产品. 制备孔密度为 16 cm^{-2} 的蜂窝状活性炭(ACH)的具体过程如下: 将活性炭粉、硅酸盐和水按一定比例在捏合机中混合后, 装入挤出机挤压成型, 干燥制得蜂窝体. 将制得的 30%, 50% 和 100% (ω) 硅酸盐含量的蜂窝体置于活化炉中, 分别用 28% (φ) 的水蒸汽(Ar 为平衡气)在 850 °C 活化 60 min, 所得样品分别标记为 ACH-G30, ACH-G50 和 MH-G100.

以酚醛树脂为粘结剂的 ACH 用相同方法制备. 将所制含 30%(ω)酚醛树脂的蜂窝块体(孔密度 16 cm^{-2})于 $150 \text{ }^\circ\text{C}$ 固化, 再于氩气气氛下以 $2 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 升温速率由常温分别加热至 $700, 800, 900, 1000 \text{ }^\circ\text{C}$ 碳化 60 min , 得到碳化的 ACH, 分别标记为 ACH-P700, ACH-P800, ACH-P900 和 ACH-P1000.

采用等体积浸渍法制备蜂窝状 $\text{V}_2\text{O}_5/\text{ACH}$ 催化剂, 将 ACH 浸渍于偏钒酸铵和草酸的混合溶液中, 再分别于 50 和 $110 \text{ }^\circ\text{C}$ 下干燥 6 和 5 h , 然后依次于 $450 \text{ }^\circ\text{C}$ 氩气气氛中煅烧 6 h 、 $230 \text{ }^\circ\text{C}$ 空气中氧化 5 h . $\text{V}_2\text{O}_5/\text{ACH}$ 中 V_2O_5 担载量均为 2% (ω). 制备的催化剂按其组成命名, 如 ACH-G30 载体上担载 2% (ω) V_2O_5 记为 V2/ACH-G30. 催化剂的制备条件见表 1.

表 1 蜂窝状 $\text{V}_2\text{O}_5/\text{ACH}$ 催化剂的制备条件
Table 1 Preparation conditions of honeycomb $\text{V}_2\text{O}_5/\text{ACH}$ catalysts

Sample	Support	Type of binder	Carbonization temperature ($^\circ\text{C}$)
V2/ACH-G30	ACH-G30	Silicate (30%)	
V2/ACH-G50	ACH-G50	Silicate (50%)	
V2/MH-G100	MH-G100	Silicate (100%)	
V2/ACH-P700	ACH-P700	Phenolic resin	700
V2/ACH-P800	ACH-P800	Phenolic resin	800
V2/ACH-P900	ACH-P900	Phenolic resin	900
V2/ACH-P1000	ACH-P1000	Phenolic resin	1000

Note: ACH, activated carbon honeycomb; V2, 2% V_2O_5 loading; G, silicate as the binder; P, phenolic resin as the binder.

2.2 实验装置与仪器

催化剂活性评价在内径为 19 mm 的固定床反应器中进行. 入口气体组成为 SO_2 0.136% , NO 0.04% , NH_3 0.04% , H_2O 2.5% , O_2 3.5% (φ)和平衡气 Ar, 气体总流量 $455 \text{ mL}/\text{min}$, 反应温度 $200 \text{ }^\circ\text{C}$, 表观空速 1950 h^{-1} . 入口及出口 SO_2 , NO 和 O_2 浓度用德国 Dräger 燃气分析仪在线检测.

脱硫脱硝反应后的催化剂于 5% (φ) NH_3/Ar (空速为 850 h^{-1})气氛中 $330 \text{ }^\circ\text{C}$ 恒温再生 70 min . 再生后的催化剂在 Ar 气氛中冷却至 $200 \text{ }^\circ\text{C}$, 然后进行二次脱硫脱硝活性评价.

2.3 分析方法

催化剂的比表面积和孔结构由 Micromeritics ASAP 2000 型自动吸附仪通过 N_2 吸附法于 77 K 下测定, 采用德国 Elemental Analysensysteme GmbH 公司生产的 Vario EL 型元素分析仪分析催化剂的硫、氮、氢及碳含量.

3 结果与讨论

3.1 硅酸盐粘结剂对催化剂同时脱硫脱硝活性的影响

为便于叙述, 定义从通入 SO_2 开始至 SO_2 转化率为 80% 时对应的反应时间为 $t_{80}(\text{min})$, 此段时间内吸附在 100 g 催化剂上的 SO_2 量称为催化剂的吸附硫容(SO_2 capacity). 前期研究^[7,8,12]表明, NH_3 再生后 V2/ACH 催化剂的脱硝活性显著提高, 且脱硫活性也有所增加. 所以本研究主要讨论再生后催化剂的脱硫脱硝性能.

图 1 为硅酸盐含量对再生后催化剂同时脱硫脱硝活性的影响结果. 由图可知, 再生后 V2/ACH-G30 和 V2/ACH-G50 催化剂的 SO_2 转化率在反应开始的 60 和 47 min 内保持在 100% , 随后逐渐降低, t_{80} 从 V2/ACH-G30 的 136 min 缩短至 V2/ACH-G50 的 93 min , 吸附硫容相应地从 4.1% 下降到 2.5% (ω). V2/MH-G100 的脱硫活性很低, 反应一开始便在出口检测到几乎所有进入反应器的 SO_2 逸出. 脱硝活性也随粘结剂含量增加而降低, V2/ACH-G30 和 V2/ACH-G50 催化剂的初始脱硝率几乎均达 100% , 随反应时间延长而下降, 但下降速率不同, 二者的脱硝率分别均在 90% 和 75% 以上. 以上结果表明, 硅酸盐含量对 V2/ACH-G 催化剂脱硫活性和脱硝活性的影响一致. 适宜的硅酸盐含量为 30% .

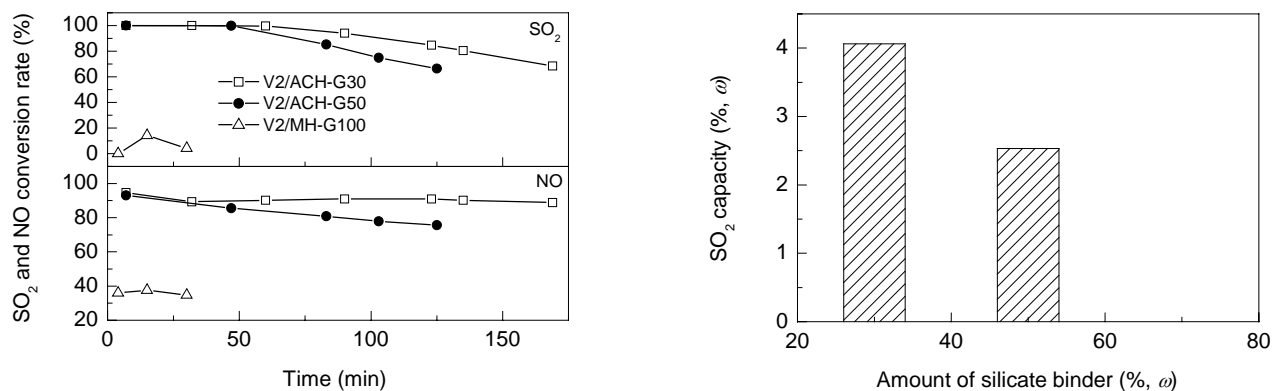


图 1 硅酸盐含量对再生后 V2/ACH-G 同时脱硫脱硝活性的影响

Fig.1 Effect of the amount of silicate binder on SO_2 removal and NO conversion rates and SO_2 capacity for the regenerated V2/ACH-G catalyst

3.2 酚醛树脂粘结剂对催化剂同时脱硫脱硝活性的影响

图 2 是不同温度碳化后 ACH 为载体所制催化剂再生后的同时脱硫脱硝活性. 碳化温度从 700 °C 升至 800 °C, SO₂ 的穿透时间明显增加, 从 77 min 延长至 132 min, 吸附硫容相应地从 5.2% 提高至 6.4%; 继续升至 900 °C, 穿透时间略有缩短, 但 SO₂ 穿透后, 其转化率的下降速率明显降低, t_{80} 从 V2/ACH-P800 的 227 min 延长至 V2/ACH-P900 的 263 min, 吸附硫容从 6.4% 提高至

7.3%; 再继续升至 1000 °C, t_{80} 缩短为 238 min, 吸附硫容降至 6.7%. 碳化温度在 700~900 °C, 催化剂的初始脱硝率均达 100%, 随反应时间的延长而逐渐下降, 且三者的脱硝率差别较小, 均在 70% 以上. 碳化温度为 1000 °C 时, 脱硝活性有所降低. 这些结果表明, 碳化温度对脱硫活性和脱硝活性的影响不一致. 综合考虑脱硫脱硝活性, 适宜的碳化温度为 900 °C.

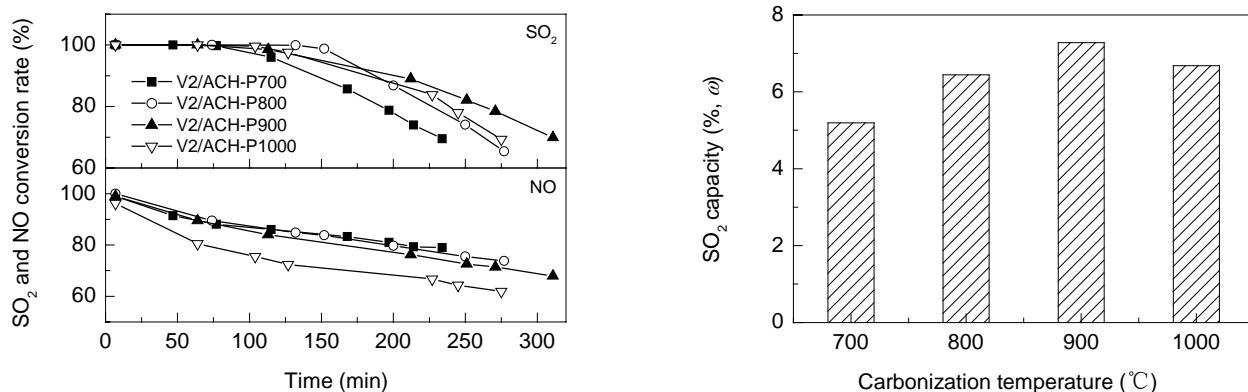


图 2 不同 V2/ACH-P 催化剂再生后的同时脱硫脱硝活性

Fig.2 SO₂ and NO conversion rates and SO₂ capacity over various V2/ACH-P catalysts after regeneration

表 2 不同硅酸盐含量的 ACH 和 AC 的工业分析和元素分析

Table 2 Proximate and ultimate analyses of activated carbon honeycomb (ACH) prepared with different amounts of silicate binder and granular activated carbon (AC)

Sample	Proximate analysis (% , ω , air dry basis)			Ultimate analysis (% , ω , air dry basis)				
	Moisture	Ash	Volatile matter	C	H	O ¹⁾	N	S _{total}
AC	2.94	10.25	10.81	77.27	1.98	5.99	1.20	0.37
ACH-G30	0.31	38.5	0.60	57.36	0.89	2.00	0.61	0.33
ACH-G50	0.31	54.57	0.52	42.26	0.71	1.46	0.45	0.24

Note: 1) By difference.

表 3 不同硅酸盐含量的 ACH 和 AC 的灰成分

Table 3 Composition of mineral matters in the ACH prepared with different amounts of silicate binder and AC (% , ω)

Sample	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O
AC	6.78	1.84	1.18	0.04	0.12	0.09	0.02	0.05
ACH-G30	21.53	13.61	1.16	0.15	0.64	0.92	0.36	0.41
ACH-G50	27.77	20.20	2.32	0.09	0.76	1.85	0.74	0.48

3.3 粘结剂性质与再生后催化剂脱硫脱硝活性的关系

3.3.1 硅酸盐粘结剂

表 2 为不同硅酸盐含量的 ACH 和 AC 的工业分析和元素分析结果. 可见 AC 灰分含量为 10.25% (ω), 添加硅酸盐粘结剂后, ACH-G30 和 ACH-G50 的灰分含量分别上升为 38.5% (ω) 和 54.57% (ω); 碳含量相应地从 AC 的 77.27% (ω) 下降为 57.36% (ω) 和 42.26% (ω). 载体的灰成分分析结果示于表 3. 与 AC 相比, 硅酸盐所制 ACH 的 SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ 及碱金属和碱土金属等含量

较高. ACH-G30 和 ACH-G50 碱金属含量不同, 分别约为 0.8% (ω) 和 1.22% (ω). 然而, 脱硫脱硝活性随硅酸盐含量的增加而下降, V2/ACH-G30 催化剂脱硫脱硝活性较高.

表 4 为载体担载 V₂O₅ 催化剂的比表面积和孔结构. 可以看出, 颗粒状 V2/AC 的比表面积和微孔孔容分别为 919 m²/g 和 0.221 mL/g, V2/ACH-G30 的比表面积和微孔孔容较 V2/AC 均减少约 30%, V2/ACH-G50 较 V2/AC 均减少约 50%. 这些数据表明, 在 ACH 载体的

制备过程中,由于添加粘结剂降低了活性炭用量,减少了活性炭的微孔数量,进而降低了其比表面积和微孔孔容. V2/MH-G100 的比表面积仅为 $8 \text{ m}^2/\text{g}$,说明在蜂窝体的制备过程中,为了获得较高的比表面积和孔容,活性炭是不可缺少的组分.

表 4 不同 V2/ACH-G 催化剂的比表面积和孔结构

Table 4 BET specific surface areas and pore structures of various V2/ACH-G catalysts

Sample	Specific surface area (m^2/g)	Micropore area (m^2/g)	Micropore volume (mL/g)
V2/AC	919	531	0.221
V2/ACH-G30	621	390	0.155
V2/ACH-G50	414	251	0.104
V2/MH-G100	8	Not determined	Not determined

表 5 不同温度碳化后 ACH 和 AC 的工业分析和元素分析

Table 5 Proximate and ultimate analyses of activated carbon honeycomb carbonized at different temperatures and granular activated carbon

Sample	Proximate analysis (% ω , air dry basis)			Ultimate analysis (% ω , air dry basis)				
	Moisture	Ash	Volatile matter	C	H	O ¹⁾	N	S _{total}
AC	2.94	10.25	10.81	77.27	1.98	5.99	1.20	0.37
ACH-P700	0.62	7.71	1.97	88.28	1.23	0.94	0.88	0.34
ACH-P800	0.58	7.71	1.16	88.58	1.14	0.70	0.94	0.35
ACH-P900	0.61	7.78	0.92	88.94	1.19	0.28	0.86	0.34
ACH-P1000	0.70	7.43	1.11	89.17	1.26	0.15	0.84	0.45

Note: 1) By difference.

表 6 给出了这些催化剂的比表面积和孔结构. 随碳化温度从 700°C 升高至 800°C , 催化剂的比表面积和微孔孔容均下降. 当碳化温度升至 900°C 时, 催化剂的比表面积和微孔孔容反而有所增加; 继续升温至 1000°C , 催化剂的比表面积和微孔孔容又分别下降, 但仍高于 V2/ACH-P800. 这些数据表明, 尽管 V2/ACH-P700 的比表面积($662 \text{ m}^2/\text{g}$)高于 V2/ACH-P900($640 \text{ m}^2/\text{g}$), 但前者的脱硫活性较后者低, 说明比表面积的变化不能解释脱硫活性的变化. 且 V2/ACH-P700 的微孔孔容($0.184 \text{ mL}/\text{g}$)也略高于 V2/ACH-P900($0.180 \text{ mL}/\text{g}$), 表明微孔孔容的变化也不能解释二者脱硫活性的差异. 另外, 900°C 碳化使其载体的碳含量略高于 700°C 碳化, 而前者的氧含量较后者明显下降(表 5).

表 6 不同 V2/ACH-P 催化剂的比表面积和孔结构

Table 6 BET specific surface areas and pore structures of various V2/ACH-P catalysts

Sample	Specific surface area (m^2/g)	Micropore area (m^2/g)	Micropore volume (mL/g)
V2/ACH-P700	662	453	0.184
V2/ACH-P800	623	426	0.173
V2/ACH-P900	640	442	0.180
V2/ACH-P1000	628	440	0.179

以上结果表明, V2/ACH-P900 催化剂脱硫活性较高的原因可能是 900°C 碳化后载体的表面化学结构发生变化, 且已有文献^[13]表明, 高温有助于炭质材料化学结

构的改变. 具体原因有待进一步分析.

3.3.2 酚醛树脂粘结剂

表 5 给出了酚醛树脂所制 ACH 不同温度碳化后和 AC 的物理性质. 由表可以看到, 将 AC 制成 ACH 后再碳化处理, 其碳含量增加 13.9%, 这是由于在载体的碳化过程中, 主要发生酚醛树脂的碳化. 另外, 与 AC 相比, 碳化后 ACH 的氧含量大大下降, 且随碳化温度的升高逐渐降低. 以酚醛树脂为粘结剂所制 ACH 的灰分含量从 AC 的 10.25% (ω) 降为 7% (ω) 左右.

构的改变. 具体原因有待进一步分析.

3.3.3 两种不同粘结剂的比较

图 3 为再生后 V2/ACH-G30 和 V2/ACH-P900 的脱硫脱硝活性. 可以看出, 与 V2/ACH-G30 相比, V2/ACH-P900 具有较高的脱硫活性. 脱硝活性的变化规律与脱硫活性不同, V2/ACH-G30 的脱硝率始终保持在 90% 以上, 而 V2/ACH-P900 的脱硝率随反应时间的延长下降速度加快, 在 SO_2 转化率降至 80% 时, 脱硝率约为 72%. 另外, 由表 7 的元素分析结果可知, ACH-G30 碳含量为 57.36% (ω), ACH-P900 碳含量高达 88.94% (ω). 如前所述, V2/ACH-G30 的比表面积和微孔孔容较 V2/AC 均减少是由于其载体微孔数量减少的缘故(表 4). 由表 4 和 6 可知, 尽管 V2/ACH-P900 的比表面积和微孔孔容较 V2/AC 均降低, 但二者的降幅不同, 比表面积和微孔孔容分别减少约 30% 和 19%, 说明酚醛树脂碳化后形成的炭其比表面积较低, 但这部分炭的内部有较多的孔隙.

上述结果表明, 与 ACH-G30 相比, ACH-P900 具有较高的碳含量和微孔孔容, 使催化剂具有较高的脱硫活性. ACH-G30 的碳含量较低, 以其为载体的催化剂中部分 V_2O_5 可能位于无机组分的表面, 而碳是催化剂低温高活性的主要原因, 无机组分并不具备低温活性, 这可能解释了 V2/ACH-G30 催化剂具有较低的脱硫活性.

同时, 从表 7 还可看出, ACH-G30 的氧含量(2.00%, ω) 比 ACH-P900(0.28%, ω)高, ACH-G30 的氧/碳比(0.035) 是 ACH-P900(0.003)的 11.67 倍. 研究^[14]表明, 活性炭质

材料的脱硝活性主要依赖于其表面化学结构, 如含氧、氮官能团等. 因此, $V_2/ACH-30$ 催化剂显示较高的脱硝活性可能源于其载体的氧/碳比较高.

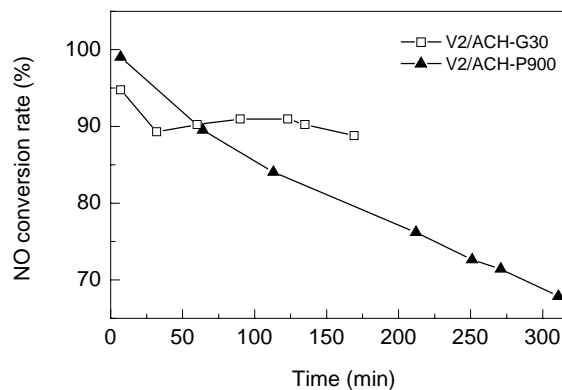
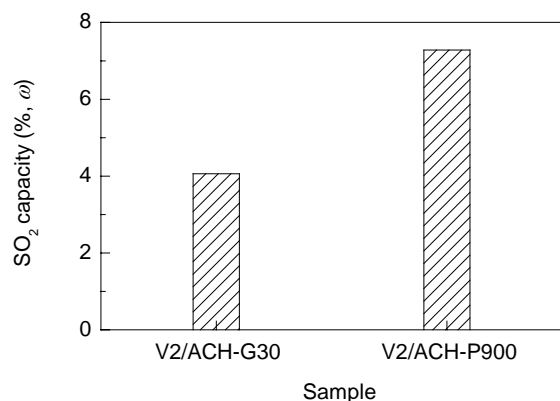


图 3 再生后 $V_2/ACH-G30$ 和 $V_2/ACH-P900$ 催化剂的同时脱硫脱硝活性

Fig.3 SO₂ capacity and NO conversion rate over the regenerated $V_2/ACH-G30$ and $V_2/ACH-P900$ catalysts

表 7 不同粘结剂所制蜂窝状活性炭的元素分析

Table 7 Elemental analysis results of various ACH prepared with different binders

Sample	Ultimate analysis (% , ω , air dry basis)		
	C	O	O/C
ACH-G30	57.36	2.00	0.035
ACH-P900	88.94	0.28	0.003

4 结论

分别以硅酸盐和酚醛树脂为粘结剂, 制备了不同的蜂窝状活性炭(ACH), 并在其上担载 V_2O_5 , 制得一系列 V_2O_5/ACH 催化剂, 考察了这两类粘结剂对 V_2O_5/ACH 同时脱硫脱硝活性的影响, 主要结论如下:

(1) 以硅酸盐为粘结剂制成的催化剂, 硅酸盐主要影响碳含量和碱金属含量, 因而影响脱硫脱硝活性. 碳含量高、碱金属含量低的 ACH 适合用于制备脱硫脱硝催化剂的载体.

(2) 以酚醛树脂为粘结剂, 将 AC 制成 ACH 后再碳化处理, 其碳含量明显增加, 同时微孔孔容也有所增加, 导致催化剂的脱硫活性很高, 但脱硝活性很低.

(3) 添加硅酸盐所制催化剂因具有较高的氧/碳比, 使脱硝活性较高, 但脱硫活性较低, 这是由于添加的硅酸盐使活性炭用量减少, 从而减少了载体的微孔数量, 进而降低了比表面积和微孔孔容.

(4) 在本研究范围内, 制备 ACH 的最佳硅酸盐含量为 30%, 以酚醛树脂为粘结剂制备 ACH 适宜的碳化温度为 900 °C, 添加硅酸盐的 V_2O_5/ACH 催化剂的脱硝率达 90% 以上, 添加酚醛树脂的催化剂的硫容为 7.3% (ω).

参考文献:

- [1] Yeh J T, Demeki R T, Strakey J P. Combined SO₂/NO_x Removal from Flue Gases [J]. Environ. Prog., 1985, 4(4): 223-228.
- [2] Knoblauch K, Richter E, Jüntgen H. Application of Active Coke in Processes of SO₂ and NO_x Removal from Flue Gases [J]. Fuel, 1981, 60(9): 832-838.
- [3] Centi G, Passarini N, Perathoner S, et al. Combined DeSO₂/DeNO_x Reactions on a Copper on Alumina Sorbent-catalyst: 1. Mechanism of SO₂ Oxidation-Adsorption [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 1992, 31(8): 1947-1955.
- [4] Macken C, Hodnett B K, Papparato G. Testing of the CuO/Al₂O₃ Catalyst-sorbent in Extended Operation for the Simultaneous Removal of NO_x and SO₂ from Flue Gases [J]. Ind. Eng. Chem. Res., 2000, 39(10): 3868-3874.
- [5] Tsuji K, Shiraiishi I. Combined Desulfurization, Denitrification and Reduction of Air Toxics Using Activated Coke: 2. Process Applications and Performance of Activated Coke [J]. Fuel, 1997, 76(6): 555-560.
- [6] Mochida I, Korai Y, Shirahama M, et al. Removal of SO_x and NO_x over Activated Carbon Fibres [J]. Carbon, 2000, 38(2): 227-239.
- [7] Wang Y L, Huang Z G, Liu Z Y, et al. A Novel Activated Carbon Honeycomb Catalyst for Simultaneous SO₂ and NO Removal at Low Temperatures [J]. Carbon, 2004, 42(2): 445-448.
- [8] Wang Y L, Liu Z Y, Huang Z G, et al. Performance of an Activated Carbon Honeycomb Supported V₂O₅ Catalyst in Simultaneous SO₂ and NO Removal [J]. Chem. Eng. Sci., 2004, 59(22/23): 5283-5290.
- [9] 王艳莉, 詹亮, 凌立成, 等. 载钒量对蜂窝状 V_2O_5/ACH 催化剂同时脱硫脱硝活性的影响 [J]. 华东理工大学学报(自然科学版), 2006, 32(5): 497-502.
- [10] Lozano-Castelló D, Cazorla-Amorós D, Linares-Solano A, et al. Activated Carbon Monoliths for Methane Storage: Influence of Binder [J]. Carbon, 2002, 40(15): 2817-2825.
- [11] 杨骏兵, 凌立成, 刘朗. 固化和碳化条件对酚醛树脂基球形活性炭机械强度与吸附性能的影响 [J]. 炭素技术, 1999, (4): 10-14.
- [12] 王艳莉, 詹亮, 凌立成, 等. NH₃ 再生对蜂窝状 V_2O_5/ACH 催化

- 剂同时脱硫脱硝性能的影响 [J]. 华东理工大学学报(自然科学版), 2007, 33(3): 297–305.
- [13] Mochida I, Kuroda K, Miyamoto S, et al. Remarkable Catalytic Activity of Calcined Pitch Based Activated Carbon Fiber for Oxidative Removal of SO₂ as Aqueous H₂SO₄ [J]. Energy Fuels, 1997, 11(2): 272–276.
- [14] Olson D G, Tsuji K, Shiraishi I. The Reduction of Gas Phase Air Toxics from Combustion and Incineration Sources Using the MET–Mitsui–BF Activated Coke Process [J]. Fuel Process. Technol., 2000, 65/66: 393–405.

Effect of Binder on Simultaneous SO₂ Removal and NO Conversion over Activated Carbon Honeycomb Supported V₂O₅ Catalyst

WANG Yan-li¹, LIU Zhen-yu²

(1. State Key Laboratory of Chemical Engineering, East China University of Science and Technology, Shanghai 200237, China;

2. State Key Laboratory of Coal Conversion, Institute of Coal Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Taiyuan, Shanxi 030001, China)

Abstract: A series of V₂O₅/ACH catalysts were prepared by supporting V₂O₅ on activated carbon honeycomb (ACH). Silicate and phenolic resin were used as binders, respectively. Two types of V₂O₅/ACH catalyst were studied for simultaneous SO₂ removal and NO conversion. The results indicate that the silicate binder affects the amounts of carbon and alkali metal oxides in the catalyst and subsequent SO₂ removal and NO conversion rates, therefore, the ACH with higher carbon and lower alkali metal oxide contents is preferred. The catalyst with phenolic resin has high carbon amount and micropore volume, and hence higher SO₂ removal rate, but lower NO conversion rate. The high proportion of oxygen and carbon in the ACH with the silicate results in improvement of NO conversion. However, the silicate decreases SO₂ removal rate by reducing the micropore quantity of ACH and decreasing the specific surface area and micropore volume of the catalyst. Under the optimal conditions of ACH with 30% silicate or with phenolic resin carbonized at 900 °C, over 90% NO conversion rate for the catalyst with the silicate can be reached, and SO₂ capacity for the catalyst with phenolic resin is 7.3% (ω).

Key words: binder; honeycomb V₂O₅/ACH; simultaneous SO₂ removal and NO conversion