

李群, 李彩亭, 罗瑶, 等. 2009  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂用于低温  $NH_3$ -SCR 的性能研究 [J]. 环境科学学报, 29(7): 1480-1484

Li Q, Li C T, Luo Y, et al. 2009.  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts for low temperature  $NH_3$ -SCR [J]. Acta Scientiae Circumstantiae 29(7): 1480-1484

# $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂用于低温 $NH_3$ -SCR 的性能研究

李群, 李彩亭\*, 罗瑶, 田立辉, 柯琪, 路陪

湖南大学环境科学与工程学院, 长沙 410082

收稿日期: 2008-10-16 修回日期: 2009-02-01 录用日期: 2009-05-10

摘要: 采用浸渍法制备了系列  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂, 用于低温  $NH_3$  选择性催化还原 ( $NH_3$ -SCR)  $NO$ 。同时, 考察了催化剂中  $V_2O_5$  负载量和煅烧温度对催化活性的影响, 并运用 SEM、BET 和 XRD 物理化学技术对催化剂进行了表征。结果表明,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂对模拟烟气中的  $NO$  转化呈现出较高的活性, 但是  $V_2O_5$  负载量和催化剂的催化活性并不呈线性递增的关系。当  $V_2O_5$  负载量超过 10% 时, 催化剂的催化活性开始下降。随着煅烧温度的升高, 由于钒酸铈的生成, 催化剂的催化活性下降。400°C 为最佳煅烧温度。

关键词: 浸渍法;  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂; 钒酸铈

文章编号: 0253-2468 (2009) 07-1480-05 中图分类号: X131.1 文献标识码: A

## $V_2O_5/CeO_2$ catalysts for low temperature $NH_3$ -SCR

LI Qun, LI Caiting\*, LUO Yao, TIAN Lihui, KE Qi, LU Pei

College of Environmental Science & Engineering, Hunan University, Changsha 410082

Received 16 October 2008 received in revised form 1 February 2009; accepted 10 May 2009

**Abstract** A series of  $CeO_2$  supported  $V_2O_5$  catalysts were prepared by incipient impregnation for low temperature selective catalytic reduction (SCR) of  $NO_x$  with ammonia ( $NH_3$ ). The effects of  $V_2O_5$  loading of catalysts and calcination temperature on the catalytic activity were investigated. A combination of various physicochemical techniques such as SEM, BET surface area and X-ray diffraction (XRD) were used to characterize the catalysts. The experimental results showed that the  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts had high activity, but  $V_2O_5$  loading and catalytic activity had no linear relationship.  $NO$  conversion increased significantly when the  $V_2O_5$  loading was from 0 to 10%, but decreased at higher loading. As calcination temperature increased, catalytic activity decreased by the formation of  $CeVO_4$ . The best calcination temperature was 400°C.

**Keywords** incipient impregnation;  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts; cerium vanadate

### 1 引言 (Introduction)

化石燃料(煤、石油和汽油)燃烧产生的氮氧化物( $NO_x$ )是造成大气污染的主要污染物,它能导致酸雨、光化学烟雾和臭氧层的消耗以及温室效应(Bosch *et al.*, 1988)。近年来,  $NO_x$ 的催化技术一直是研究的热点。利用  $CO$ 、 $H_2$ 、 $NH_3$ 和脂肪族羧酸作为还原剂,选择性催化还原(SCR)  $NO_x$ 已被广泛验证,并应用于工业化的烟气脱硝工程中(Drent *et al.*, 1989; Severino *et al.*, 1998)。已报道的工业化 SCR 脱硝催化剂有  $V_2O_5/TiO_2$  (Wood, 1994)、负载  $WO_3$  或  $MoO_3$  的  $V_2O_5/TiO_2$  (Ha *et al.*, 2006;

Djerad *et al.*, 2006; Kijlstra *et al.*, 1997; Ramis *et al.*, 1995; Ramis *et al.*, 1989)、 $CuO/TiO_2$  和  $MnO_x/TiO_2$  (Wahlher *et al.*, 1993)等。这些商业催化剂的运行温度为 300~400°C, 位于脱硫和除尘之前, 催化剂的活性和寿命将不可避免地受到高浓度  $SO_2$  和粉尘的影响而削弱。因此, 需要研究一种能在脱硫除尘后(温度为 80~300°C)使用的低温高效催化剂。而一些含过渡金属的催化剂已被研究用于低温 SCR, 例如,  $MnO_x/Al_2O_3$  (Kijlstra *et al.*, 1996)、 $V_2O_5/AC$  (Zhu *et al.*, 1999)、 $MnO_x/NaY$  (Richter *et al.*, 2002)、硅铁气凝胶 (Fabrizioli *et al.*, 2002)、 $MnO_x/CeO_2$  (Qi *et al.*, 2004; Tikhonov *et al.*,

基金项目: 国家自然科学基金项目 (No. 50878080); 湖南省科技计划项目 (No. [2008]GK3118); 长沙市科技计划项目 (No. k0803114-11)

Supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 50878080), the Scientific and Technological Project of Hunan Province in China (No. [2008]GK3118) and the Scientific and Technological Project of Changsha City in China (No. k0803114-11)

作者简介: 李群 (1983-), 女, E-mail: hdlqun@163.com; \* 通讯作者 (责任作者), E-mail: ctl@hnu.cn

Biography: LI Qun (1983-), female, E-mail: hdlqun@163.com; \* Corresponding author, E-mail: ctl@hnu.cn

2006 Machila *et al.*, 2000)和其他氧化物 (Cousin *et al.*, 2007). 氧化铈 ( $CeO_2$ ) 是“三效催化剂”中一种至关重要的成分 (Kasepar *et al.*, 1999), 它最重要的性质是作为氧的存储器, 在氧化和还原条件下能通过  $Ce^{4+}$  和  $Ce^{3+}$  的转换来存储和释放氧. 氧化铈也能够促进  $NO$  转化成  $NO_2$  来提高  $NH_3$  选择还原  $NO$  活性. 同时, 氧化铈还具有提高活性金属的分散度, 改善活性金属颗粒界面的催化活性的性质 (Kasepar *et al.*, 1999; Trovarelli *et al.*, 1996). 而钒基催化剂具有高的活性和抗硫性, 如 Gu 等 (2006) 发现钒的负载能使催化剂表面结构发生改变.

因此, 本文通过使用浸渍法将钒负载在氧化铈上, 制备了  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂, 并将其用于低温 ( $120 \sim 300^\circ C$ )  $NH_3$ -SCR 脱硝性能研究. 同时, 在模拟烟气的条件下, 着重研究了不同负载量和煅烧温度的系列催化剂活性, 并使用 SEM、BET 和 XRD 对催化剂进行表征分析, 旨在为催化剂的工业化应用提供参考.

## 2 实验部分 (Experimental)

### 2.1 催化剂的制备

将硝酸铈 ( $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ ) 晶体在马弗炉中  $340^\circ C$  的温度下热解 12 h 得到  $CeO_2$  粉末. 使用浸渍法制备不同负载量 ( $w(V_2O_5) = 1\% \sim 20\%$ ) 的  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂. 偏钒酸氨 ( $NH_4VO_3$ ) 和草酸 ( $C_2H_2O_4$ ) 以质量比为 2:1 混合配置成溶液, 加入按不同负载量 ( $w(V_2O_5) = 1\% \sim 20\%$ ) 计算称量好的氧化铈, 室温下静置 12h, 然后  $100^\circ C$  下干燥 12h, 最后在  $400^\circ C$  下煅烧 4h 冷却后取出, 密封备用. 使用同样的方法, 改变煅烧温度 ( $500^\circ C$  和  $600^\circ C$ ) 制备不同负载量的  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂. 催化剂标记为  $x\% V_2O_5/CeO_2(t)$ ,  $x\%$  是  $V_2O_5$  在催化剂中所占的质量百分数,  $t$  是催化剂的煅烧温度 ( $^\circ C$ ).

### 2.2 催化剂的表征

使用扫描电子显微镜 (SEM, JSM-6700F) 观察样品的表面形貌结构, 库尔特比表面仪 (BET, SA 310) 测量样品比表面积, X 射线衍射分析仪 (XRD, D-5000) 分析样品中组分的晶相.

### 2.3 催化剂的活性测试

将  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂装入钢制的连续流固定床反应器, 实验温度范围是  $120 \sim 300^\circ C$ . 模拟的烟气成分为:  $\varphi(NO) = 0.1\%$ ,  $\varphi(NH_3) = 0.108\%$ ,

$\varphi(O_2) = 5\%$ , 剩余为平衡气  $N_2$ ; 每一轮实验气体总流量为  $100 mL \cdot min^{-1}$ , 催化剂使用量为  $500 mg$  为避免硝酸铵盐的形成和沉积, 反应系统的钢管被持续加热. 通过程序升温来控制反应器温度, 以  $NO$  的转化率作为衡量催化剂的活性的指标. 采用 KM 900 烟气分析仪测定反应器进出口  $NO$  浓度.

## 3 结果 (Results)

### 3.1 催化剂的表征结果

3.1.1 SEM 结果 图 1 是  $400^\circ C$  下不同  $V_2O_5$  负载量催化剂的扫描电镜 (SEM) 图. 从图 1 中可以看出, 负载  $V_2O_5$  煅烧后制备的催化剂载体上的颗粒物

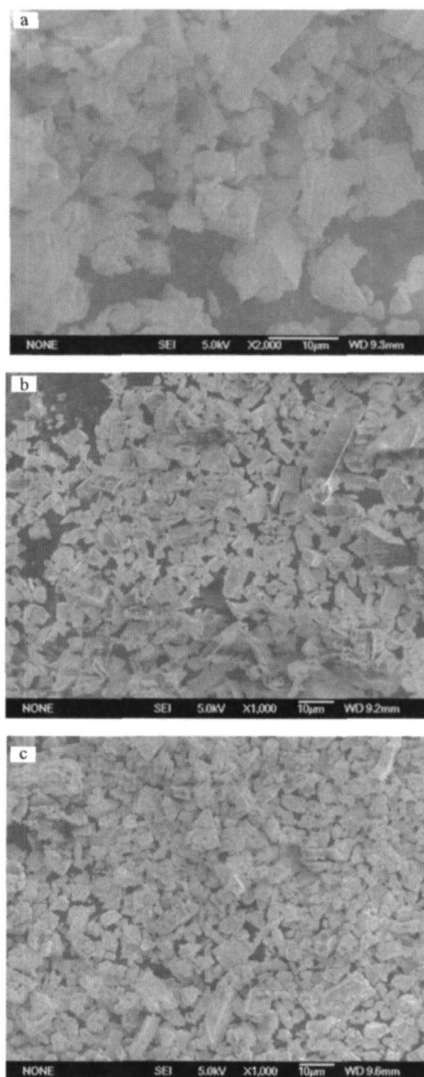


图 1 不同  $V_2O_5$  负载量催化剂的 SEM 图 (a 纯氧化铈; b  $5\% V_2O_5/CeO_2$ ; c  $20\% V_2O_5/CeO_2$ )

Fig. 1 SEM picture of catalysts loaded  $V_2O_5$  (a Pure  $CeO_2$ ; b  $5\% V_2O_5/CeO_2$ ; c  $20\% V_2O_5/CeO_2$ )

分布均匀,这说明 $V_2O_5$ 在氧化铈上的分散性较好,负载量大的催化剂表面可以看到团聚的 $V_2O_5$ 颗粒.

3.1.2 BET结果 表1为不同 $V_2O_5$ 负载量和煅烧温度下 $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂的比表面积(BET).从表1中可以看出,由 $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ 煅烧获得的 $CeO_2$ 粉末的BET最大,增加 $V_2O_5$ 后,催化剂的BET有所下降;同一煅烧温度下( $400^\circ C$ ),催化剂的BET随 $V_2O_5$ 负载量的增大而下降; $V_2O_5$ 负载量不变时,催化剂的BET随煅烧温度的升高而下降.

表1  $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂的BET面积

Table 1 Specific surface area of the  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts

$V_2O_5$ 质量分数	煅烧温度/ $^\circ C$	$S_{BET}/(m^2 \cdot g^{-1})$
0	340	83
1%	400	80
5%	400	72
5%	500	60
5%	600	43
10%	400	56
15%	400	53
20%	400	48

3.1.3 XRD结果 图2是 $400^\circ C$ 下不同 $V_2O_5$ 负载量 $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂的X射线衍射(XRD)图谱.从图2可以看出,所有的催化剂样品均能够看到明显的 $CeO_2$ (JCPDS # 43-1002)立方萤石结构. $V_2O_5$ 负载

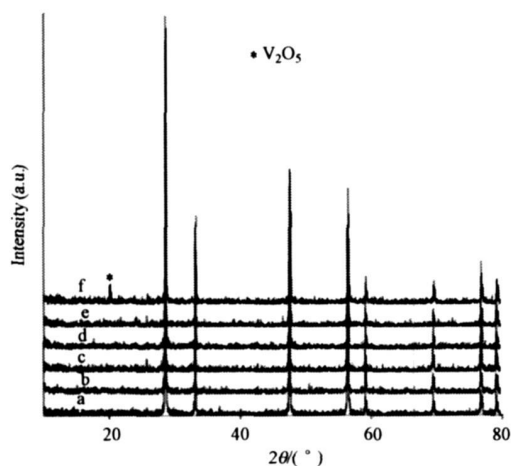


图2 不同 $V_2O_5$ 负载量的 $V_2O_5/CeO_2$ ( $400^\circ C$ )催化剂的XRD图谱 (a Pure  $CeO_2$ ; b  $w(V_2O_5) = 1\%$ ; c  $w(V_2O_5) = 5\%$ ; d  $w(V_2O_5) = 10\%$ ; e  $w(V_2O_5) = 15\%$ ; f  $w(V_2O_5) = 20\%$ )

Fig 2 XRD patterns of  $V_2O_5/CeO_2$  ( $400^\circ C$ ) catalysts with different  $V_2O_5$  contents (a Pure  $CeO_2$ ; b  $w(V_2O_5) = 1\%$ ; c  $w(V_2O_5) = 5\%$ ; d  $w(V_2O_5) = 10\%$ ; e  $w(V_2O_5) = 15\%$ ; f  $w(V_2O_5) = 20\%$ )

量低于15%时,催化剂样品均观察不到 $V_2O_5$ 晶体的特征峰;只有当 $V_2O_5$ 负载量增大到20%时,才能观察到微弱 $V_2O_5$ 晶体特征峰.

图3是 $V_2O_5$ 负载量为5%时,不同煅烧温度制备的 $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂的XRD图.从图3可以看出,随着煅烧温度的增加,钒酸铈( $CeVO_4$ )晶体的特征峰越来越明显, $V_2O_5$ 的特征峰逐渐消退.同时, $CeO_2$ 的特征峰也变得更加的尖锐,这主要是由 $CeO_2$ 烧结引起的,这一点与BET的观察结果也一致.

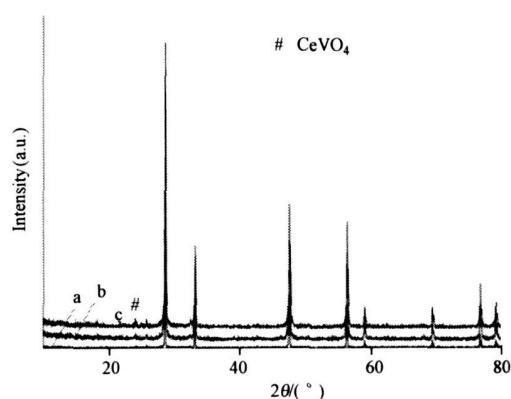


图3 不同煅烧温度下 $V_2O_5/CeO_2$ 催化剂的XRD图 (a  $400^\circ C$ ; b  $500^\circ C$ ; c  $600^\circ C$ )

Fig 3 XRD patterns of the 5%  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts at different calcination temperatures (a  $400^\circ C$ ; b  $500^\circ C$ ; c  $600^\circ C$ )

### 3.2 $V_2O_5$ 负载量对催化剂活性的影响

图4是煅烧温度为 $400^\circ C$ 时制备的不同 $V_2O_5$ 负

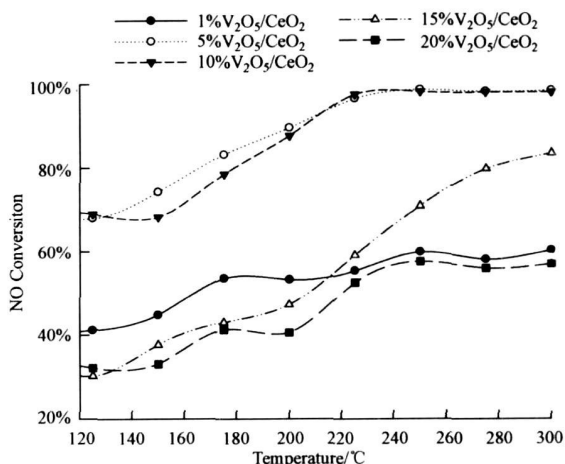


图4 不同 $V_2O_5$ 负载量 $V_2O_5/CeO_2$ ( $400^\circ C$ )催化剂对NO的转化率

Fig 4 NO conversion of catalysts with various  $V_2O_5$  loadings calcined at  $400^\circ C$

载量的  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂在低温 (120 ~ 300°C)  $NH_3$ -SCR 法中的 NO 转化率曲线。实验结果表明, 纯的氧化铈粉末具有很低的催化活性 (NO 转化率最高为 20% 左右), 因此, 本研究没有在图 4 中给出其 NO 的去除效率曲线。从图 4 可以看出, 随着  $V_2O_5$  负载量的增加, 催化剂的脱硝活性并没有呈现出与之相应的线性递增, 而是有一个负载量的上限。当  $V_2O_5$  负载量为 5% 和 10% 时,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂的脱硝活性差别较小, 且在反应温度为 200 ~ 300°C 时,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂对 NO 的转化率达到 90% 以上; 当  $V_2O_5$  的负载量达到 15% 以上时, NO 转化率出现明显的下降;  $V_2O_5$  的负载量为 15% 和 20% 时,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂在 300°C 时的 NO 转化率分别为 80% 和 50%。

### 3.3 煅烧温度对催化剂活性的影响

图 5 是  $V_2O_5$  负载量为 5% 时, 不同煅烧温度条件下制备的  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂对 NO 转化率的比较。从图 5 中可以看出, 催化剂的活性不会随煅烧温度的升高而增加。煅烧温度为 400°C 时,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂呈现出最宽的操作温度范围和最高的 NO 转化率 (在 250°C 达到 98%); 煅烧温度为 500°C 和 600°C 时,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂的 NO 转化率仅为 50% ~ 70%。这表明煅烧温度对催化剂的活性有着重要的影响。

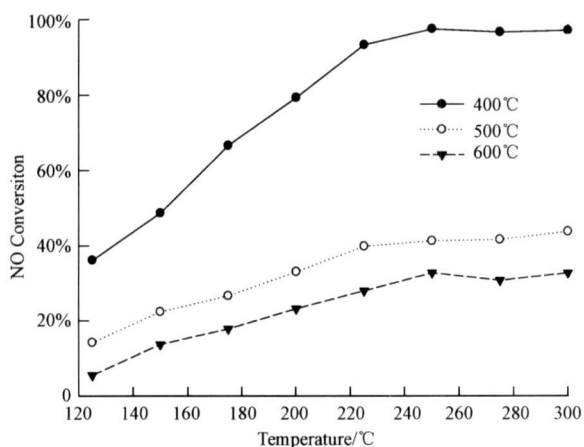


图 5 不同煅烧温度  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂活性 ( $V_2O_5$  负载量为 5%)

Fig 5 NO conversion of the 5%  $V_2O_5/CeO_2$  catalysts calcined at 400°C, 500°C, 600°C

## 4 讨论 (Discussion)

### 4.1 催化剂的表征

表 1 中的数据表明,  $V_2O_5$  负载量和催化剂煅烧

温度对催化剂的 BET 都产生了影响, 而通常引起负载型催化剂的 BET 下降的原因可能如下: (1) 载体的部分孔隙被负载物堵塞; (2) 载体与负载物之间发生了反应。Daniel 等 (2002) 研究发现, 当温度达到 450°C 以上时,  $VO_x$  和  $CeO_2$  间能发生反应生成钒酸铈 ( $CeVO_4$ )。



因此, 造成本实验中催化剂 BET 下降原因可能分为两种: 煅烧温度为 400°C 时, 不同负载量催化剂的 BET 下降, 是由上述原因 (1) 引起; 而负载量不变, 煅烧温度增加, 催化剂 BET 下降归咎于载体与负载物之间发生了反应, 生成  $CeVO_4$  而导致催化剂 BET 下降。

XRD 图对上述催化剂 BET 降低进行了进一步的验证分析。在图 2 中, 只有  $w(V_2O_5) = 20%$  时, 才能观测到  $V_2O_5$  的特征峰, 这说明当  $V_2O_5$  负载量较小时,  $V_2O_5$  在  $CeO_2$  载体上存在着很高的分散性; 随着负载量的增大,  $V_2O_5$  晶体在  $CeO_2$  载体上形成大的颗粒团聚, 其特征峰也随之显现。而在图 3 中, 随着煅烧温度的增加,  $CeVO_4$  特征峰越来越明显, 这说明钒离子进入到了  $CeO_2$  晶格中, 在载体表面生成了更多的  $CeVO_4$ 。这一点与 SEM 和 BET 的观察结果较为一致。

### 4.2 $V_2O_5$ 负载量对催化剂活性的影响

$V_2O_5$  负载量对催化剂活性有很重要的影响。随着  $V_2O_5$  负载量的增加, 催化剂活性增加, 但是  $V_2O_5$  负载量超过 10% 后, 催化剂活性下降。这是由于  $V_2O_5$  负载量较低时, 虽然钒的活性位少, 但  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂对  $NH_3$  吸附也较少, 表面沉积覆盖的硝酸铵盐也相应较少, 因而催化剂的脱硝活性要更高些。随着  $V_2O_5$  负载量的增加,  $V_2O_5/CeO_2$  催化剂对  $NH_3$  的吸附增多, 形成的硝酸铵盐沉积覆盖在催化剂表面, 造成催化剂活性位的减少, 催化活性下降。另外,  $V_2O_5$  负载量增加时, 过多的  $V_2O_5$  在催化剂表面形成团聚, 堵塞催化剂空隙, 对催化剂的催化活性也造成一定影响, 这一点与 SEM、BET 和 XRD 结果一致。由此可知,  $V_2O_5$  是催化剂的主要活性成分。

### 4.3 煅烧温度对催化剂活性的影响

从图 5 可以看到, 煅烧温度对催化剂活性有明显的影 响。煅烧温度升高, 催化剂活性下降。这是因为随着煅烧温度的提高, 形成的  $CeVO_4$  使得  $Ce^{4+}$  转化成  $Ce^{3+}$ , 并以更稳固的价态与  $V^{5+}$  和  $O^{2-}$  结合, 导致催化剂活性组分  $V_2O_5$  的减少, 催化剂的催化活性

随之降低。Gu等(2006)研究证明,  $\text{CeVO}_4$ 的形成能使催化剂的氧化还原能力减弱。

## 5 结论 (Conclusions)

1)  $\text{V}_2\text{O}_5$ 的负载能有效地提高了  $\text{CeO}_2$ 催化剂的活性, 但过高的 $\text{V}_2\text{O}_5$ 负载量反而会抑制催化剂的脱硝活性。当负载量为 5% ~ 10% 时,  $\text{V}_2\text{O}_5/\text{CeO}_2$ 催化剂显示出最好的脱硝活性。

2) 煅烧温度对 $\text{V}_2\text{O}_5/\text{CeO}_2$ 催化剂的脱硝活性产生一定的影响, 随着煅烧温度的提高, 催化剂的脱硝活性反而会降低, 这与 $\text{V}_2\text{O}_5$ 和  $\text{CeO}_2$ 间反应生成的  $\text{CeVO}_4$ 有关。

3) 采用浸渍法制备的  $\text{V}_2\text{O}_5/\text{CeO}_2$ 催化剂在煅烧温度为 400°C、 $\text{V}_2\text{O}_5$ 负载量为 5% 时, 操作温度范围最低最宽, 在 200~ 300°C 间, NO 转化率最高可达 90%。

责任作者简介: 李彩亭(1964—), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事大气污染控制技术研究。E-mail: cll@hnu.cn

## 参考文献 (References):

- Bosch H, Janssen F. 1988. Formation and control of nitrogen oxides [J]. *Catal Today*, 2: 369—532
- Cousin R, Capelle S, Abi-Aad E, *et al*. 2007. Copper-Vanadium-Cerium oxide catalysts for carbon blank oxidation [J]. *Applied Catal B: Env*, 70: 247—253
- Daniell W, Ponchel A, Kuba S, *et al*. 2002. Characterization and catalytic behavior of  $\text{VO}_x\text{-CeO}_2$  catalysts for the oxidative dehydrogenation of propane [J]. *Topics in Catalysis*, 20: 64—74
- Djerad S, Crocoll M, Kureti S, *et al*. 2006. Effect of oxygen concentration on the  $\text{NO}_x$  reduction with ammonia over  $\text{V}_2\text{O}_5/\text{WO}_3/\text{Tl}_2\text{O}_3$  catalyst [J]. *Catal Today*, 113: 208—214
- Drent P, J Worldendrop J W. 1989. Acid rain and eggshells [J]. *Nature*, 339: 431
- Fabrizio Li P, Buergi T, Baker A. 2002. Environmental catalysis on iron oxide-silica aerogels: selective oxidation of  $\text{NH}_3$  and Reduction of NO by  $\text{NH}_3$  [J]. *J Catal*, 206: 143—154
- Gu X D, Ge J Z, Zhang H L, *et al*. 2006. Structural redox and acid-base properties of  $\text{V}_2\text{O}_5/\text{CeO}_2$  catalysts [J]. *The Journal of Catalysis*, 45: 84—93
- Ha H P, Jung S H, Lee J Y, *et al*. 2006. Study on SCR De NO<sub>x</sub> mechanism through in situ electrical conductivity measurements on  $\text{V}_2\text{O}_5\text{-WO}_3/\text{Tl}_2\text{O}_3$  catalysts [J]. *Rare Metals*, 25: 77—83
- Kasaoka S, Sasaoka E, Iwasaki H, *et al*. 1989. Vanadium oxides ( $\text{V}_2\text{O}_x$ ) catalysts for dry-type and simultaneous removal of sulfur oxides and nitrogen oxides with ammonia at low temperature [J]. *Chem Soc Jpn*, 62: 1226—1232
- Kasepar J, Fomasiero P, Graziani M. 1999. Use of  $\text{CeO}_2$ -based oxides in the three-way catalysis [J]. *Catal Today*, 50: 285—298
- Kijstra W S, Brands D S, Smith J, *et al*. 1997. Mechanism of the selective catalytic reduction of NO with  $\text{NH}_3$  over  $\text{MnO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Reactivity of adsorbed  $\text{NH}_3$  and NO complexes [J]. *J Catal*, 171: 219—230
- Kijstra W S, Daamen J C M L, Graaf J M, *et al*. 1996. Inhibiting and deactivating effects of water on the selective catalytic reduction of nitric oxide with ammonia over  $\text{MnO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$  [J]. *Appl Catal B: Env*, 7: 337—357
- Machida M, Uto M, Kurogi D, *et al*. 2000.  $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2$  binary oxides for catalytic  $\text{NO}_x$  sorption at low temperatures: sorptive removal of  $\text{NO}_x$  [J]. *Chem Mater*, 12: 3158—3164
- Qi Gongshin, Yang T R, Chang R. 2004.  $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2$  mixed oxides prepared by co-precipitation for selective catalytic reduction of NO with  $\text{NH}_3$  at low temperatures [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 51: 93—106
- Qi Gongshin, Yang T R. 2004. Characterization and FTIR Studies of  $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2$  catalyst for low-temperature selective catalytic reduction of NO with  $\text{NH}_3$  [J]. *J Phys Chem B*, 108: 15738—15747
- Ram S G, Yi L, Busca G, *et al*. 1995. Adsorption, activation, and oxidation of ammonia over SCR catalysts [J]. *J Catal*, 157: 523—535
- Richter M, Trunschke A, Bentrup U, *et al*. 2002. Selective catalytic reduction of nitric oxide by ammonia over egg-shell  $\text{MnO}_x/\text{NaY}$  composite catalysts [J]. *J Catal*, 206: 98—113
- Severino F, Brito J L, Laine J, *et al*. 1998. Nature of copper active sites in the carbon monoxide oxidation on  $\text{CuAl}_2\text{O}_4$  and  $\text{CuCr}_2\text{O}_4$  spinel type catalysts [J]. *Journal of Catalysis*, 177: 82—95
- Tikhonov K, Krcher O, Elsener M, *et al*. 2006.  $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2$  mixed oxides for the low-temperature oxidation of diesel soot [J]. *Appl Catal B: Env*, 64: 72—78
- Trovarelli A. 1996. Catalytic properties of ceria and  $\text{CeO}_2$ -containing materials [J]. *Cata Rev Sci Eng*, 34(4): 439—520
- Wllner A, Lange F, Schmelz H, *et al*. 1993. Characterization of mixed copper-manganese oxides supported on titania catalysts for selective oxidation of ammonia [J]. *Appl Catal A*, 94: 181—203
- Wood S C. 1994. Select the right  $\text{NO}_x$  control technology [J]. *Chem Eng Progr*, 90: 32—38
- Zhu Z P, Liu Z Y, Ni H X, *et al*. 1999. Promoting effect of  $\text{SO}_2$  on activated carbon-supported vanadia catalyst for NO reduction by  $\text{NH}_3$  at low temperature [J]. *J Catal*, 187: 245—248