

PEG-2000 添加量对 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化氧化 NO 活性的影响

龚宥精, 田文珊, 赵光垒, 贾丽娟, 刘天成*
(云南民族大学化学与环境学院, 云南 昆明 650504)

摘要:采用溶胶-凝胶法制备了 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化剂, 并用于 NO 催化氧化。以聚乙二醇-2000(PEG-2000)为模板剂对催化剂进行改性, 研究了不同模板剂添加质量分数对 NO 催化氧化活性的影响。结果表明, 催化剂活性随 PEG-2000 添加质量分数的增加而降低; 在 300°C, PEG-2000 添加质量分数为 2% 时, $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的催化活性最高, NO 转化率达到 94.81%。利用 XRD、SEM、 N_2 吸附-脱附、XPS 及 FT-IR 对催化剂进行表征, 结果表明, 模板剂添加质量分数的变化不会改变催化剂 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 晶型; 催化剂为介孔结构, 质量分数为 2% 时的比表面积和孔容最大, 有利于催化氧化 NO。此外, 模板剂质量分数的增加会增强催化剂的亲水性。

关键词: 聚乙二醇; 催化氧化; 氮氧化物; $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$; 溶胶-凝胶法

中图分类号: X511

文献标志码: A

文章编号: 0253-4320(2024)06-0134-06

DOI: 10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2024.06.027

Effect of polyethylene glycol-2000 addition on catalytic activity of $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ for oxidation of NO

GONG You-jing, TIAN Wen-shan, ZHAO Guang-lei, JIA Li-juan, LIU Tian-cheng*
(School of Chemistry and Environment, Yunnan Minzu University, Kunming 650504, China)

Abstract: $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ catalyst is prepared through a sol gel method and served for NO catalytic oxidation. The catalyst is modified with polyethylene glycol-2000 (PEG-2000) as template agent, and the effect of different template dosages on the catalytic activity of the catalyst in NO oxidation is studied. Results show that the activity of catalyst decreases with the increase of PEG-2000 addition ratio. $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ has the highest activity when the dosage of PEG-2000 is 2% at 300°C, over which the conversion rate of NO reaches 94.81%. XRD, SEM, N_2 adsorption/desorption, XPS and FT-IR are employed to characterize the catalyst. It is shown that the change of template agent dosage does not change the crystal form of $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ catalyst. The catalyst has a mesoporous structure, and the largest specific surface area and pore volume when the dosage of template agent is 2%, which is conducive to catalytic oxidation of NO. In addition, the higher content of template agent can enhance the hydrophilicity of the catalyst.

Key words: polyethylene glycol; catalytic oxidation; nitrogen oxides; $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$; sol-gel method

氮氧化物(NO_x)作为主要的大气污染物之一, 对全球生态系统和人类健康的威胁日趋严重^[1-3]。因为 NO 占总 NO_x 的 90%, 因此, 消除 NO_x 的关键步骤是去除 NO^[4]。低体积分数的 NO (<1 000 $\mu\text{L/L}$) 主要由发电厂和移动源排放, 在环境空气中是稳定的, 几乎不会被 O_2 氧化或被水吸附^[5-6]。研究人员对这类污染物进行了广泛地研究, 许多技术已被用于控制 NO_x , 如选择性催化还原(SCR)、选择性非催化还原(SNCR)和选择性催化氧化(SCO)等^[7-9]。SCR 和 SNCR 虽脱硝活性好, 但二次污染、抗毒性等问题突出^[10]。SCO 被认为是最具工业应用前景的技术, 是在一定温度范围内利用烟气中剩余 O_2 作氧

剂, 将 NO 部分快速高效地氧化为 NO_2 , 再用水或碱液吸收脱硝, 达到近乎完全脱除 NO_x 的技术^[11]。当控制烟气中 NO 和 NO_2 的摩尔比为 1:1 时, 两者都可以通过水或碱性溶液完全去除^[12]。

SCO 本质上是催化氧化加吸收两部分, 选择合适的催化剂和强化吸收过程尤为关键。稀土金属 Pr 具有灵活的氧迁移性和强储氧性, 可显著增强催化活性^[13]。两性金属氧化物 ZrO_2 表面具有氧化还原特性, 在高温下非常稳定, 适合作为催化剂载体, 何人广等^[14]将 Mg 负载到 ZrO_2 载体上制备的催化剂表现出优异的脱硝性能。将 Pr 和 Zr 制备为二元稀土金属氧化物材料 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$, Pr^{4+} 进入到 Zr^{4+} 晶

收稿日期: 2023-10-11; 修回日期: 2024-04-02

基金项目: 国家自然科学基金(51568068); 中青年学术和技术带头人后备人才项目(202105AC160054)

作者简介: 龚宥精(1996-), 男, 硕士生, 研究方向为大气污染控制, gongyoujing_cot@163.com; 刘天成(1976-), 男, 博士, 教授, 研究方向为大气污染控制, 通讯联系人, liutiancheng76@163.com。

格中形成缺陷结构而产生大量的氧空位,有利于提高催化氧化性能^[15]。超重力技术(HIGEE)是增强相间传质的典型技术之一,利用旋转填充床高速旋转产生的巨大离心力将吸收液分散为无数细小的液滴、液膜,从而大大增加气液接触面积和传质效率。此外,HIGEE 还可以实现更高层次的资源利用率^[16]。因此,SCO 联合超重力技术具有 NO_x 去除效率高、资源利用率高、二次污染少等优点^[17]。

在催化剂制备过程中,使用模板剂作为结构导向剂,可以影响催化剂颗粒的成核速率与生长速度,从而一定程度上调控催化剂形貌和粒径尺寸^[18]。因此,添加模板剂来改善催化剂的结构与性质、提高催化剂的活性是催化剂制备中常用的方法^[19]。常见模板剂如 PEG、聚乙烯吡咯烷酮(PVP)等。目前少有模板剂对 Pr/Zr 二元催化材料催化氧化 NO 性能的研究。笔者通过溶胶-凝胶法制备了添加不同比例 PEG-2000 的 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化剂用于催化氧化 NO,并协同超重力技术吸收脱除。通过 XRD、SEM、 N_2 吸附/脱附、XPS、FT-IR 等手段对催化剂进行了表征,探究不同 PEG-2000 添加质量分数对 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化氧化 NO 活性的影响。

1 实验方法

1.1 实验试剂

$\text{Pr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (AR)、 $\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (AR),上海麦克林生物化学有限公司生产;PEG-2000(CP),天津市精细化工研究所生产; $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$ (AR),国药集团化学试剂有限公司生产; NO (1.00%)、 N_2 ($\geq 99.999\%$)、 O_2 ($\geq 99.5\%$),昆明广瑞达特种气体有限责任公司生产。

1.2 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的制备

采用溶胶-凝胶法合成了 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化剂。在 60°C 水浴中将一定量的 $\text{Pr}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 和

$\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 溶于无水乙醇中,同时滴加一定量的 PEG-2000 和柠檬酸乙醇溶液,持续搅拌 1 h 后待溶液呈胶状后停止搅拌。随后,将溶胶-凝胶在 60°C 下老化 12 h,然后在 80°C 下干燥 12 h, 700°C 煅烧 5 h。最后,研磨并通过 40~60 目筛分得到 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化剂。

1.3 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的表征

利用 X 射线衍射仪(XRD, Bruker, Advance D8, 德国)分析了 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化剂的晶体结构,扫描电压为 40 kV,扫描电流为 40 mA, Cu 靶 $\text{K}\alpha$ 辐射, $\lambda = 1.5418 \text{ \AA}$, 2θ 扫描范围为 $10^\circ \sim 80^\circ$,扫描速率为 $6^\circ/\text{min}$,步长为 0.02° 。利用扫描电子显微镜(SEM, Nova Nano SEM450)观察催化剂的形貌。利用 BELSORP-max II 型物理化学吸附仪(Microtrac BEL.Crop, 日本)在 -196°C 下进行 N_2 吸附/脱附实验以测量催化剂的孔结构性质,采用 Brunauer-Emmett-Teller(BET)方程计算比表面积,孔径分布由 Barrett-Joyner-Halenda(BJH)模型计算。利用配备单 Al $\text{K}\alpha$ 辐射(12 kV, 6 mA)的 X-射线光电子能谱(XPS)(Thermo fisher scientific K-Alpha, 美国)对催化剂的基本化学环境和浓度进行表征,能量校准时,将污染物碳的 C 1s 峰($\text{BE} = 284.8 \text{ eV}$)作为内标。此外,利用傅里叶变换红外光谱仪(FT-IR, Thermo Nicolet, 美国)测定催化剂的分子结构和组成,扫描区域为 $4000 \sim 400 \text{ cm}^{-1}$ 。

1.4 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 催化氧化 NO 性能测试

催化剂活性测试装置如图 1 所示。将催化剂负载至石英管固定反应器中,混合烟气通入石英管反应器与催化剂反应,用烟气分析仪检测气体中的 NO_x (NO 、 NO_2) 体积分数。模拟烟气条件为: $800 \text{ mg}/\text{m}^3$ NO , 10% O_2 , N_2 为平衡气体,气体总流量为 $300 \text{ mL}/\text{min}$,空速比保持在 30000 h^{-1} 。测试温度范围为 $100 \sim 350^\circ\text{C}$,升温速率为 $5^\circ\text{C}/\text{min}$,温度

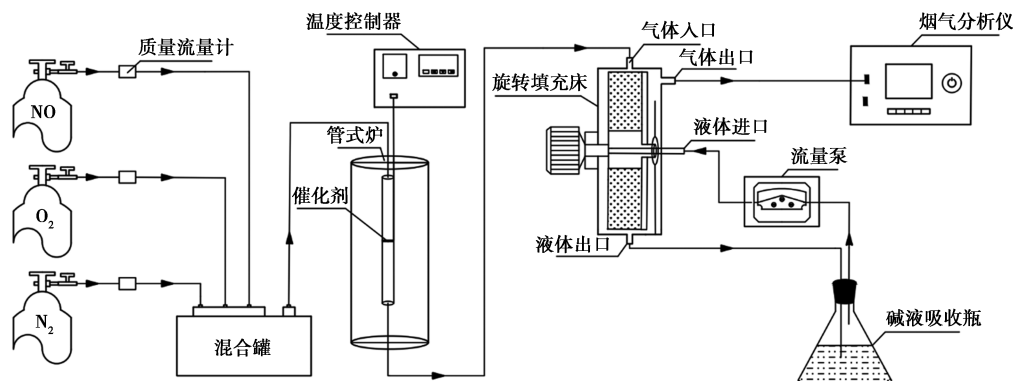


图 1 脱硝实验装置

间隔区间为 50℃。在每个测试温度下稳定 30 min 后进行浓度测试。NO_x 去除效率计算式为：

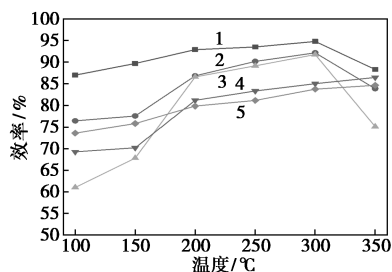
$$\eta_{\text{deNO}_x}(\%) = [(C_{\text{inlet}} - C_{\text{outlet}}) / C_{\text{inlet}}] \times 100\% \quad (1)$$

式中： η_{deNO_x} 、 C_{inlet} 、 C_{outlet} 分别代表脱硝效率、NO_x 入口浓度和 NO_x 出口浓度。

2 结果与讨论

2.1 催化剂活性测试结果

不同 PEG-2000 添加质量分数对 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 催化氧化去除 NO_x 效率的影响如图 2 所示。从图 2 中可以看出,催化剂的活性随着 PEG-2000 添加质量分数的增加呈逐渐下降趋势,尤其在 200~300℃ 温度区间内,催化剂活性与 PEG-2000 添加质量分数呈现反比关系。低添加质量分数的模板剂对 NO_x 具有更好的催化氧化去除效果,模板剂添加质量分数为 2% 时,在 300℃ 活性最佳可达 94.81%,继续增加模板剂添加质量分数,活性开始下降,添加质量分数为 10% 的催化剂在 300℃ 活性仅为 82.85%,结合 BET 分析原因是过量添加 (≥4%) 模板剂会导致催化剂的主要活性成分被模板剂分割挤出成聚集体,孔道变窄,孔体积减小,降低催化活性。



1—2%; 2—4%; 3—6%; 4—8%; 5—10%

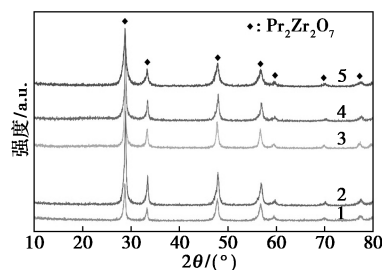
图 2 不同模板剂添加质量分数下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 催化氧化脱除 NO_x 效率的影响

注:Na₂CO₃ 溶液浓度为 0.02 mol/L,气体流速为 300 mL/min,气液比为 5:1,RPB 转子转速为 800 r/min。

2.2 XRD 分析

不同 PEG-2000 添加质量分数的催化剂的 XRD 分析结果如图 3 所示。从图 3 中可以看出,所有谱线均在 2θ 为 28.87、33.54、48.13、56.98、70.42、77.85° 处出现 Pr₂Zr₂O₇ (PDF#00-019-1021) 的晶峰,未出现多余的杂峰。此外,每个特征峰的峰形尖锐,不同谱线仅峰强略有变化,表明催化剂的结晶度高,模板剂添加质量分数的变化不会影响催化剂的晶型。添加质量分数为 4% 时催化剂具有更强的峰强,表明该催化剂具有更好的晶体结构。与其

他条件相比,添加质量分数为 2% 时催化剂的峰宽更窄,具有更大的晶粒尺寸,活性测试结果表明,该条件下的颗粒尺寸更有利于催化氧化 NO。



1—2%; 2—4%; 3—6%; 4—8%; 5—10%

图 3 不同模板剂添加质量分数下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的 XRD 图谱

2.3 SEM 分析

通过 SEM 观察不同模板剂添加质量分数的 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的微观形貌,结果如图 4 所示。从图 4 中可以看出,当添加质量分数为 2% 时,催化剂因团聚呈现为不规则的块状结构,表面分布大量均匀致密的小孔,小孔大大增加了催化剂的比表面积,提高了催化剂的吸附能力。随着添加质量分数增加到

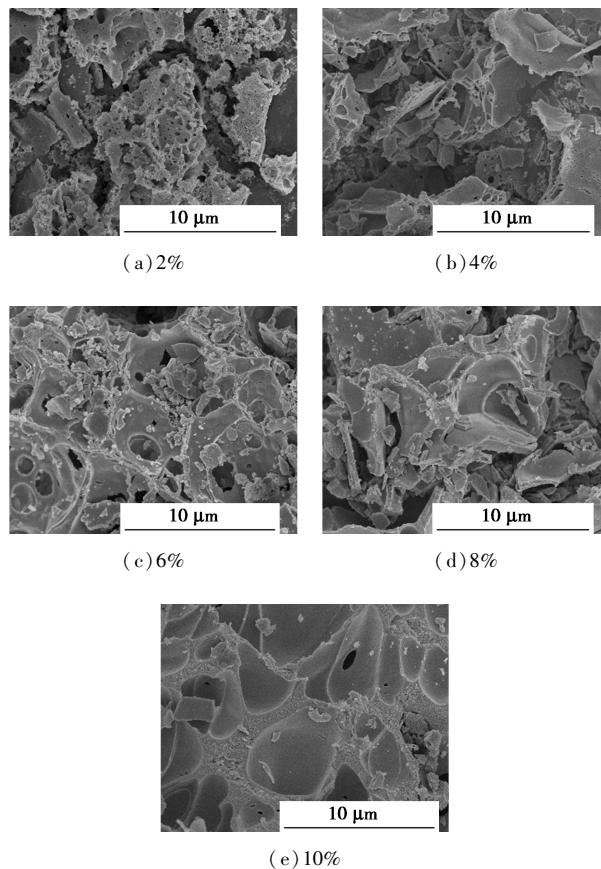
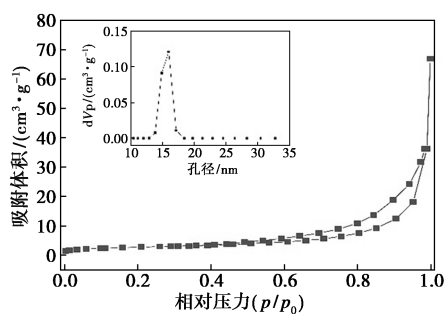


图 4 不同模板剂添加质量分数下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的 SEM 图

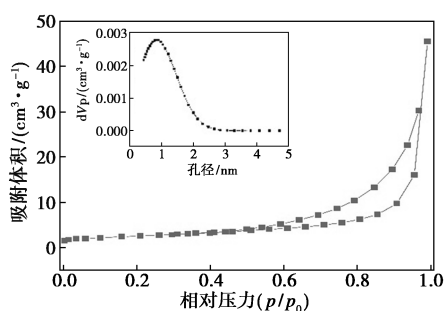
4%,小孔的数量减少,催化剂呈现“片状”。当添加质量分数为6%时,催化剂表面的小孔数进一步减少,催化剂表面出现大直径孔隙,“片状”的形貌也相互连接成为褶皱。当添加质量分数为8%时,催化剂表面的小孔隙几乎不存在,褶皱也减少。当添加质量分数为10%时,褶皱堆叠在催化剂表面形成不同大小的凹坑和不均匀的凹坑。呈现出不同的形貌是因为不同的模板剂添加质量分数对催化剂的微观形貌的改造作用不同。当 PEG-2000 添加质量分数较少(2%)时,模板剂对催化剂有一定的改善作用,在催化剂表面形成大量细小的孔隙,提高了吸附能力,促进了催化剂的活性的提高。随着 PEG-2000 添加质量分数的增加($\geq 4\%$),模板剂对催化剂的改造作用变得更强烈,表面的小孔逐渐减小甚至消失,取而代之的是较大的孔洞和凹坑,孔洞均匀变差削弱了其吸附性能,导致催化活性下降。

2.4 N_2 吸附/脱附分析

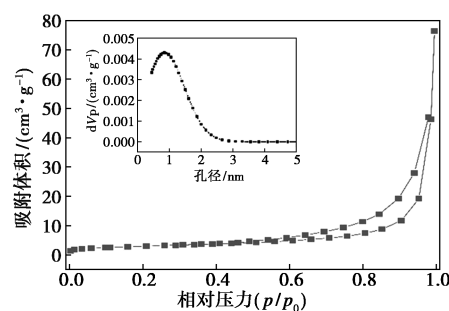
不同 PEG-2000 添加质量分数 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的 N_2 吸附/脱附等温线和孔径分布如图 5 所示。所有这些催化剂的等温线都表现为介孔材料的 V 典型值^[20]。这些催化剂中呈现出 H3 滞后环,表明催化剂孔由片状颗粒或狭缝组成。此外,除添加质量分数为 4% 和 6% 外,其余添加质量分数的催化剂孔径主要集中在 15~20 nm 处,而添加质量分数为 4% 和 6% 的催化剂的孔径主要分布在 1~2 nm 处,这与 SEM 中显示的孔隙转变有关。



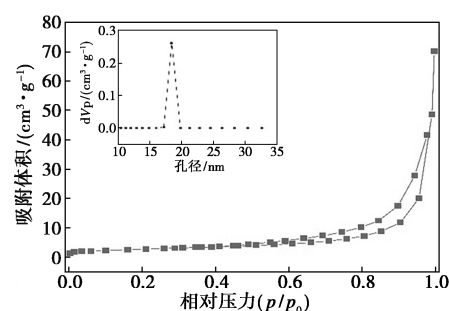
(a) 2%



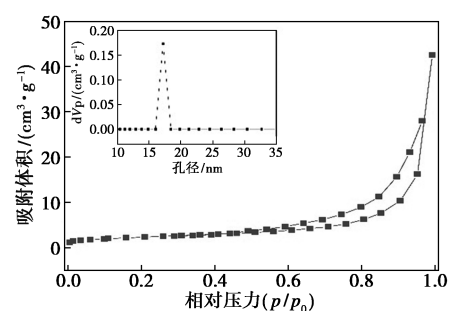
(b) 4%



(c) 6%



(d) 8%



(e) 10%

图 5 不同模板剂添加质量分数下 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的 N_2 吸附/脱附等温线和孔径分布

不同模板剂添加质量分数下 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的孔结构参数如表 1 所示。

表 1 不同模板剂添加质量分数下 $\text{Pr}_x\text{Zr}_{1-x}\text{O}_{2-\delta}$ 的孔结构参数

添加质量分数/ %	比表面积/ ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)	平均孔径/ nm	孔容/ ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)
2	16.01	15.97	0.27
4	14.95	0.73	0.05
6	10.64	0.73	0.08
8	10.06	18.43	0.23
10	13.41	17.16	0.17

从表 1 可以看出,随着模板剂质量分数的增加,催化剂的比表面积从 $16.01 \text{ m}^2/\text{g}$ 逐渐减小到 $10.06 \text{ m}^2/\text{g}$,孔径与比表面积呈现为一定的负相关,

但添加质量分数为 4% 和 6% 例外,这是由于在该添加质量分数下,催化剂发生孔道改变和孔结构稳定性降低导致非真实微孔隙率的发生^[21]。添加质量分数为 2% 时催化剂拥有最大的比表面积 (16.01 m²/g) 和孔容 (0.27 cm³/g), 能为活性物质提供更多的附着点, 故拥有最佳的反应活性。

2.5 XPS 分析

不同模板剂添加质量分数下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的 XPS 谱图如图 6 所示。从图 6(a) 中可以看出, XPS 光谱显示催化剂中主要元素 Pr、O、Zr 的特征峰位置。从图 6(b) 中可以看出, 所有催化剂均具有 Pr 3d_{3/2} 和 Pr 3d_{5/2} 两个峰, 归属于 Pr³⁺ 信号峰, 其结合能在 (953.58±0.46) eV 和 (932.89±0.78) eV, 且同时具有因自旋轨道分裂造成的 2 个卫星峰, 结合能分别为 (949.08±0.56) eV 和 (928.57±0.48) eV, 属于 Pr⁴⁺ 特征信号值。表明 Pr 元素在 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 中主要以 Pr³⁺ 和 Pr⁴⁺ 的价态存在, 而 Pr⁴⁺ ↔ Pr³⁺ 的氧化还原性能提高了催化剂的脱硝活性。从图 6(c) 中可以看出, 存在 O α (529.45±0.37 eV)、O β (531.11±0.40 eV)、O γ (533.21±0.32 eV) 3 个峰, 分别归属于晶格氧、表面吸附氧和吸附分子氧。O β 和 O γ 可以在催化剂表面促进氧空位 (V_o) 的产生^[22], 且氧化物中的氧迁移率随着 V_o 浓度的增加而增加, 能够给催化剂提供更多的活性位点, 更利于催化氧化 NO^[23]。从图 6(d) 中可以看出, 仅存在结合能为

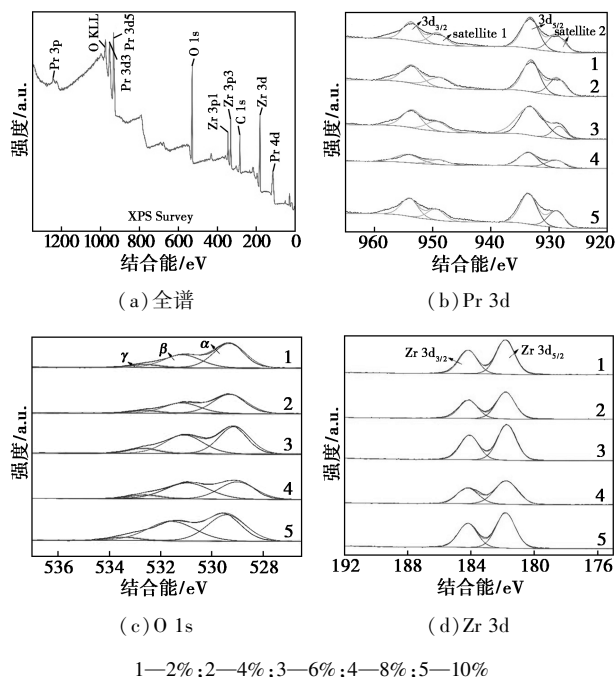


图 6 不同模板剂添加质量分数下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的 XPS 谱图

181.9 eV 和 184.3 eV 的双峰, 属于典型的 ZrO₂ 峰, 表明 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 中 Zr 仅以 Zr⁴⁺ (ZrO₂) 的形式存在。ZrO₂ 作为催化剂载体, 不直接参与催化氧化 NO, 其能促进 NO 氧化的原因在于 ZrO₂ 对 NO_x 的吸附能力较强。

2.6 FT-IR 分析

利用 FT-IR 分析 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的分子组成和结构, 结果如图 7 所示。从图 7 中可以看出, 所有催化剂均在 3425 cm⁻¹ 附近出现游离的 O—H 伸缩振动, 属于游离水的羟基吸收峰, 并且 PEG-2000 添加质量分数和吸收峰的强度呈正相关。1624 cm⁻¹ 处的吸收峰为催化剂表面吸附水的羟基振动峰, 也随 PEG-2000 添加质量分数的增加而有一定的增强, 说明 PEG-2000 添加质量分数的增大会导致催化剂亲水性提升, 从而吸附更多的水。添加质量分数为 2% 的催化剂在 1384 cm⁻¹ 附近的硝酸盐振动峰比较微弱, 表明在制备过程中, 原材料中的硝酸分解的比较充分。1048 cm⁻¹ 附近的峰归属于 Zr=O 键的伸缩振动峰^[24]。在红外光谱中未检测到 Pr—O 的特征峰, 表明 Pr 以无定形状态均匀分散在 ZrO₂ 载体表面, 与 XRD 表征结果一致。

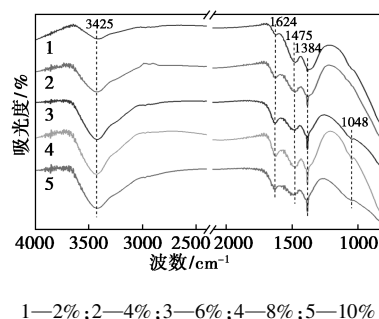


图 7 不同模板剂添加量下 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 的 FT-IR 谱图

3 结论

模板剂最适宜添加质量分数为 2%, 此时制备的 Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 催化剂活性最佳, 在 300℃ 时达到 94.81%, 且此时催化剂具有最大的比表面积和孔容。过量添加催化剂 (质量分数 ≥ 4%) 会减小比表面积和孔容, 从而降低催化剂活性。Pr_xZr_{1-x}O_{2-δ} 催化剂晶型为 Pr₂Zr₂O₇, 模板剂添加质量分数的变化不会影响催化剂 Pr₂Zr₂O₇ 活性晶体。Pr⁴⁺ ↔ Pr³⁺ 的转化和 V_o 是影响催化活性的主要因素, 模板剂添加质量分数的增加会增强催化剂的亲水性。

参考文献

- [1] Granger P, Parvulescu V I. Catalytic NO_x abatement systems for mobile sources: From three-way to lean burn after-treatment technologies [J]. *Chemical Reviews*, 2011, 111(5): 3155–3207.
- [2] 刘经纬, 孟杰, 朱伟, 等. 低温 SCR 烟气脱硝催化剂的研究进展 [J]. *现代化工*, 2023, 43(6): 98–102.
- [3] Zhang R, Liu N, Lei Z, *et al.* Selective transformation of various nitrogen-containing exhaust gases toward N_2 over zeolite catalysts [J]. *Chemical Reviews*, 2016, 116(6): 3658–3721.
- [4] Liu Y, Gao F, Yi H, *et al.* Recent advances in selective catalytic oxidation of nitric oxide (NO-SCO) in emissions with excess oxygen: A review on catalysts and mechanisms [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2021, 28(3): 2549–2571.
- [5] Ghafari M, Atkinson J D. Catalytic NO oxidation in the presence of moisture using porous polymers and activated carbon [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, 50(10): 5189–5196.
- [6] Mochida I, Kawabuchi Y, Kawano S, *et al.* High catalytic activity of pitch-based activated carbon fibres of moderate surface area for oxidation of NO to NO_2 at room temperature [J]. *Fuel*, 1997, 76(6): 543–548.
- [7] Chen L, Wang X, Cong Q, *et al.* Design of a hierarchical Fe-ZSM-5@ CeO_2 catalyst and the enhanced performances for the selective catalytic reduction of NO with NH_3 [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 369(8): 957–967.
- [8] Zhao Y, Feng J, Chen Y, *et al.* Thermal process and NO emission reduction characteristics of a new-type coke oven regenerator coupled with SNCR process [J]. *Fuel*, 2021, 305: 121510–121521.
- [9] You F T, Yu G W, Xing Z J, *et al.* Enhancement of NO catalytic oxidation on activated carbon at room temperature by nitric acid hydrothermal treatment [J]. *Applied Surface Science*, 2019, 471: 633–644.
- [10] Zhe H, Wang Z, Li X B. Catalytic oxidation of nitric oxide (NO) over different catalysts: An overview [J]. *Catalysis Science and Technology*, 2017, 7: 3440–3452.
- [11] Liu W M, Xu J, Feng D P, *et al.* The research status and prospect of synthetic lubricating oils [J]. *Tribology*, 2013, 33(1): 91–104.
- [12] 童志权. 工业废气净化与利用 [M]. 北京: 化学工业出版社, 2001: 301–302.
- [13] Nakatsuji T, Kunishige M, Li J, *et al.* Effect of CeO_2 addition into Pd/Zr-Pr mixed oxide on three-way catalysis and thermal durability [J]. *Catalysis Communications*, 2013, 35: 88–94.
- [14] 何人广, 李秋瑾, 赵光全, 等. 焙烧温度对 MgO/ZrO_2 固体碱低温催化氧化 NO 性能的影响 [J]. *现代化工*, 2023, 43(6): 118–121, 128.
- [15] 李维勇, 陈曦, 赵月昌, 等. 汽车尾气催化剂用稀土储氧材料的研究进 [J]. *稀土*, 2010, 31(3): 75–81.
- [16] Chen L, Xu Z W, He C, *et al.* Gas-phase total oxidation of nitric oxide using hydrogen peroxide vapor over Pt/ TiO_2 [J]. *Applied Surface Science*, 2018, 457: 821–830.
- [17] Cheng X X, Bi X T. A review of recent advances in selective catalytic NO_x reduction reactor technologies [J]. *Particuology*, 2014, 16: 1–18.
- [18] 郭亚飞, 赵佳祎, 姚曦, 等. 模板剂辅助水热合成 CuO 催化剂及其 CO_2 电化学还原性能 [J]. *洁净煤技术*, 2022, 28(8): 50–58.
- [19] 王梦雪, 王丽, 王颖, 等. 多级孔 $\text{La}_{(0.9)}\text{Ce}_{(0.1)}\text{Fe}_{(1-x)}\text{Co}_x\text{O}_3$ 的制备、表征及对 CO+NO 的催化活性 [J]. *中国稀土学报*, 2020, 38: 451–459.
- [20] Yao Y Q, Ying Y F, Luo M F, *et al.* Mesoporous structure of praseodymium-stabilized zirconia [J]. *Materials Letters*, 2007, 61(1): 192–195.
- [21] 薛用芳. 固体催化剂的研究方法: 分析电子显微镜 (下) [J]. *石油化工*, 2000, 12: 303–314.
- [22] Wu X, Feng Y, Du Y, *et al.* Enhancing DeNO_x performance of Co-Mn-Al mixed metal oxides in low-temperature NH_3 -SCR by optimizing layered double hydroxides (LDHs) precursor template [J]. *Applied Surface Science*, 2019, 467–468(11): 802–810.
- [23] Jiang H, Wang J, Zhou J, *et al.* Effect of promoters on the catalytic performance and $\text{SO}_2/\text{H}_2\text{O}$ resistance of $\alpha\text{-MnO}_2$ catalysts for low temperature NH_3 -SCR [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2019, 58(4): 1760–1768.
- [24] Barbara H S. *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Applications* [M]. Wiley: Chichester, 2004. ■
- [11] Mgbemena C O, Iiekwe N O, Ukumar R, *et al.* Characterization of kaolin intercalates of oleochemicals derived from rubber seed (*Hevea brasiliensis*) and tea seed (*Camelia sinensis*) oils [J]. *Journal of King Saud University-Science*, 2013, 25: 149–155.
- [12] Shilova S V, Romanova K A, Galyametdinov Y G, *et al.* Characteristics of the complexing of chitosan with sodium dodecyl sulfate, according to IR spectroscopy data and quantum-chemical calculations [J]. *Russ J Phys Chem A*, 2016, 90: 1181–1184.
- [13] Yuan S, Li Y, Han Y, *et al.* Effects of carbonaceous matter additives on kinetics, phase and structure evolution of coal-series kaolin during calcination [J]. *Appl Clay Sci*, 2018, 165: 124–134.
- [14] Valaskova M, Rieder M, Matejka V, *et al.* Exfoliation/delamination of kaolinite by low-temperature washing of kaolinite-urea intercalates [J]. *Appl Clay Sci*, 2007, 35: 108–118. ■

(上接第 133 页)

- [7] 闫雷, 张涛, 黎佳全, 等. 微波辐照煤系高岭土及其吸油性能 [J]. *硅酸盐通报*, 2021, 40(2): 527–533.
- [8] Heidarian M, Shishesaz M R, Kassiriha S M, *et al.* Characterization of structure and corrosion resistivity of polyurethane/organic lay nanocomposite coatings prepared through an ultrasonication assisted process [J]. *Progress in Organic Coatings*, 2010, 68(3): 180–188.
- [9] 徐中, 刘金钊. 超声波振荡法制备高岭土/DMSO 插层复合物 [J]. *表面技术*, 2012, 3: 16–18, 50.
- [10] Wang Y J, Luo S, Chen A W, *et al.* Environmentally friendly kaolin-coated meshes with superhydrophilicity and underwater superoleophobicity for oil/water separation [J]. *Separation and Purification Technology*, 2020, 239: 116541.