

文章编号: 1001-3555(2014)03-0227-07

表面活性剂对 Fe-Mn/ZSM-5/CC 整体式催化剂结构及 NO_x 催化还原性能的影响

刘鹏飞, 娄晓荣, 何凯*, 李哲*, 黎俊, 杨成武

(太原理工大学 化学化工学院, 山西 太原 030024)

摘要: 添加不同表面活性剂聚乙烯醇、聚乙二醇 4000、羧甲基纤维素配制涂覆浆液, 制备堇青石蜂窝陶瓷负载的 Fe-Mn/ZSM-5 整体式催化剂. 考察了不同表面活性剂及聚乙二醇 4000 添加量对 Fe-Mn/ZSM-5/CC 催化剂的涂覆率及 NO_x 催化还原性能的影响. 结果显示, 表面活性剂的种类和添加量对整体式催化剂的涂覆效果和催化活性均有明显的影响, 当聚乙二醇 4000 加入量为 15% 时, 浆料的涂覆率和稳定性均最好, 所制备的整体式催化剂在 160 ~ 430 °C 范围内 NO_x 转化率达到 95% 以上. 同时采用 XRD、N₂-吸附脱附、扫描电镜等技术对整体式催化剂涂层均匀性、微孔结构和表面形貌进行了分析. 结果表明, 在堇青石表面所形成的涂层均匀性和覆盖度与整体式催化剂的 SCR 催化活性有直接的关系, 同时, 较多的微孔结构也有利于催化剂活性的提高.

关键词: 表面活性剂; Fe-Mn/ZSM-5/CC; 整体式催化剂; 涂覆均匀性

中图分类号: O643.32 **文献标志码:** A

柴油车尾气中的氮氧化物(NO_x)已成为主要的空气污染源之一, 另外也是造成大气温室效应和臭氧层空洞的主要污染物^[1]. 在富氧条件下对 NO_x 的选择性催化还原(SCR)是一项有效脱除氮氧化物的技术^[2]. 目前关于 SCR 催化剂的研究主要是以 Fe、Sc、Cu、V、Ti、Cr、Mn、Zn、Ni、Co 等金属元素中的一种或几种制备成复合氧化物或混合物作为催化剂的活性组分, 其中有些催化剂显示出很好的催化活性^[2-7]. 但是如何将这些催化剂制备成可供工业化使用的整体式催化剂, 一直是一个重要的研究课题.

蜂窝状堇青石以其低压降、优良的机械强度和耐用性被广泛应用于柴油机尾气净化催化剂载体^[8-10]. 但堇青石比表面积通常很小(<1 m²/g), 为了使活性组分在其上充分分散, 目前通用的做法主要有在其表面负载一层多孔载体 TiO₂^[10-16]、Al₂O₃ 等^[16-18]. 但由于堇青石与 TiO₂、Al₂O₃ 的热膨胀系数不同^[19], 作为温度变化较频繁的柴油机汽车尾气净化装置, 其使用寿命受到影响. 表面活性剂以其优异的助溶性、分散性、增粘性等性能被广泛应用于化工生产的各个方面. 那秀辉等^[20]用聚乙烯醇 1799 在堇青石表面涂覆 OMS-2 涂层, 牢

固度和均匀性均较好, 用于催化二甲醚燃烧, 取得优异的催化性能. 但其应用于制备汽车尾气脱硝催化剂的研究尚未见报道. 为了直接在堇青石表面负载活性组分, 我们尝试在适宜的温度下, 用超声波辅助浸渍法, 采用不同的表面活性剂, 调节粉体催化剂与表面活性剂的用量, 配制适宜的涂覆浆料, 直接负载在堇青石表面, 减少了工艺流程, 并且获得了稳定性较好的整体式催化剂, 为以后整体式催化剂的工业化生产提供了理论依据.

1 实验部分

1.1 粉体催化剂 Fe-Mn/ZSM-5 的制备

分别称取 HZSM-5(Si/Al=38)和 FeCl₃(HZSM-5 和 FeCl₃ 质量比为 3:1), 加去离子水溶解, 搅拌 12 h, 将溶液在 80 ~ 90 °C 水浴蒸干, 110 °C 干燥 12 h, 研磨, 550 °C 焙烧 4 h, 得 Fe/ZSM-5.

用共沉淀法负载第 2 组分 Mn: 称取质量比为 3:4 的 Fe/ZSM-5 和乙酸锰, 加去离子水溶解搅拌 12 h. 然后在不断搅拌下缓慢加入浓氨水, 至溶液 pH=12, 搅拌 1 h, 抽滤, 110 °C 干燥 12 h, 研磨, 500 °C 焙烧 5 h, 即得 Fe-Mn/ZSM-5 催化剂.

收稿日期: 2014-12-19; 修回日期: 2014-02-17.

基金项目: 国家自然科学基金项目(项目编号: 21073131)和山西省科技攻关项目(项目编号: 20100321023)资助.

作者简介: 刘鹏飞(1987-), 男, 硕士.

* 通讯联系人, E-mail: lizhe@tyut.edu.cn.

1.2 蜂窝状催化剂的制备

按表 1 配制不同表面活性剂的涂覆浆料, 将 $\phi 15 \times 20$ mm 的蜂窝状堇青石圆柱体放入涂覆浆料

中, 40 °C 下超声波辅助浸渍 5 min, 取出, 吹净孔道残液, 110 °C 烘干 2 h, 500 °C 焙烧 5 h. 制得蜂窝状 Fe-Mn/ZSM-5 催化剂系列样品.

表 1 涂覆浆料编号及用量

Table 1 The number and dosage of coating slurry

Number	Surfactant	$m(\text{Surfactant})/\text{g}$	$m(\text{Fe-Mn/ZSM-5})/\text{g}$
PVA-15	Polyvinyl alcohol	0.45	3.0
CMC-15	Carboxy methyl cellulose	0.45	3.0
PEG-10	Polyethylene glycol 4000	0.30	3.0
PEG-15	Polyethylene glycol 4000	0.45	3.0
PEG-20	Polyethylene glycol 4000	0.60	3.0
PEG-25	Polyethylene glycol 4000	0.75	3.0
Without Surfactant	—	0	3.0

催化剂的脱落率的测量采用泉州市华达机械有限公司生产的直连便携式空气压缩机, 整体式催化剂在气压为 20 MPa 的高空速下吹扫 5 min, 测定其前后质量变化.

1.3 催化剂涂覆效果评价

催化剂涂覆率按公式(1)计算:

$$\omega(\%) = [(m_i - m_0) / m_i] \times 100\% \quad (1)$$

式中, ω 为催化剂涂覆率, m_0 为空白载体质量, m_i 为整体式催化剂质量.

催化剂脱落率按公式(2)计算:

$$\eta(\%) = [(1 - m') / m_i] \times 100\% \quad (2)$$

式中, η 为催化剂脱落率, m' 为高空速吹扫后整体式催化剂的质量.

1.4 催化剂活性评价

催化剂活性的评价在内径 20 mm, 长 400 mm 的固定床反应器中进行. 进气组成为: 4.4% O_2 (体积比), 0.8 mL/L NO 和 0.8 mL/L NH_3 , 平衡气为 N_2 , 气体总流量为 400 mL/min. 反应前后混气中 NO、 NO_2 及 O_2 的浓度经烟气分析仪(英国 Kane-9106 型)在线分析. NO_x 转化率按公式(3)计算:

$$X = [(\varphi_0 - \varphi_i) / \varphi_0] \times 100\% \quad (3)$$

式中, X 为 NO_x 转化率, φ_0 为 NO_x 反应前的浓度, mL/L; φ_i 为 NO_x 反应后的浓度, mL/L.

1.5 催化剂的表征

XRD 测定在日本理学 Rigaku D/max2500 型衍

射仪上进行, $\text{CuK}\alpha$, Ni 滤波, 管电压 40 kV, 管电流 100 mA, 扫描速率 $8^\circ \cdot \text{min}^{-1}$, 扫描范围 $5^\circ \sim 85^\circ$. 比表面积及孔径分布等采用 N_2 吸附脱附法在北京贝士德仪器公司 Sorp-tomatic 1900 型吸附仪上进行测试, 根据 BET 和 BJH 公式计算蜂窝状催化剂的比表面积和内部孔道平均孔径. 采用日本电子公司生产的 JSM-7001F 热场发射扫描电子显微镜对整体式催化剂表面形貌进行分析.

2 结果与讨论

2.1 不同表面活性剂对整体式催化剂的影响

表 2 表示不加表面活性剂及添加不同表面活性剂制备的整体式催化剂的涂覆率和脱落率的比较. 从图中可以看出样品的涂覆率为: $\text{CMC-15} > \text{PEG-15} > \text{PVA-15} > \text{Without Surfactant}$. 相比于不添加表面活性剂的样品, 3 种表面活性剂均可大幅提高整体式催化剂的涂覆率. 但是, 添加不同表面活性剂的涂覆率相差较大. 虽然 CMC-15 有最大的涂覆率, 但其脱落率较大, 影响其使用寿命, 不适于工业生产. 而 PEG-15 不仅具有较高的涂覆率, 其脱落率也最小. 由于 PEG 具有高水溶性、分散性、增溶性和较强的粘度调节能力, 这些性质可能会使不溶于水的催化剂与堇青石蜂窝载体之间形成一种较强的结合力, 从而提高催化剂的涂覆率, 降低其脱落率.

表 2 不加表面活性剂及不同表面活性剂的涂覆率和脱落率

Table 2 The coating rate and expulsion rate with different surfactant and without surfactant

	CMC-15	PEG-15	PVA-15	Without Surfactant
Coating rate / %	14.7	13.1	10.6	5.6
Expulsion rate / %	4.5	0.8	0.9	1.2
γ^* / %	30.6	6.1	8.5	21.4

* γ = Expulsion rate / Coating rate

图 1 表示添加不同表面活性剂制备的整体式催化剂及不加表面活性剂样品上 NO_x 的选择性催化还原性能. 由图可知, 催化剂活性顺序为: PEG-15 >

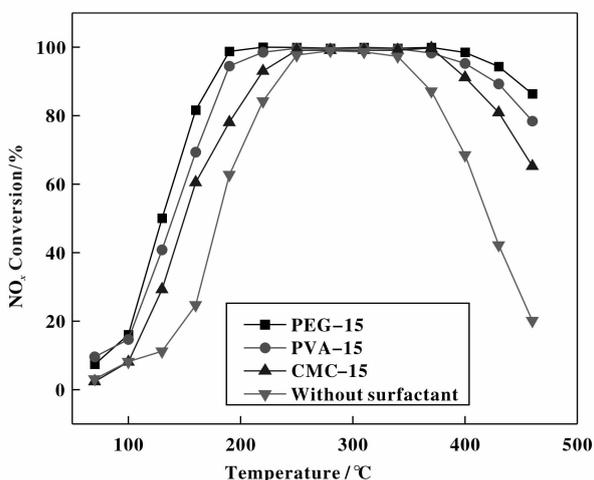


图 1 不加表面活性剂及不同表面活性剂制备的整体式催化剂的催化活性

Fig. 1 Catalytic activity of the monolith catalyst with different surfactant samples and without surfactant

PVA-15 > CMC-15 > Without Surfactant. 与不加表面活性剂的样品相比, 添加不同表面活性剂均显著提高整体式催化剂的催化活性. 尤其是样品 PEG-15 显示出良好的催化活性, 在 160 ~ 430 °C 温度范围内 NO_x 的转化率达到 95% 以上. 另外, PVA-15 的涂覆率虽然小于 CMC-15, 但是其催化活性却优于 CMC-15, 这可能是由于活性组分在堇青石表面的分散均匀度对整体式催化剂的活性产生影响.

2.2 PEG 含量对整体式催化剂负载效果的影响

由于 PEG 是一种性能优异的粘度调节剂, 故其含量对所制备的涂覆浆料影响很大. 表 3 显示随着 PEG 含量的升高, 活性组分的涂覆率逐渐升高, 但上升速率逐渐减缓, 而涂层脱落率上升速度明显加快, 这是由于随着涂层厚度的增加, 表面活性剂在高温分解过程中, 随着气体挥发, 对涂层层产生较大冲击作用, 与堇青石的结合作用减弱, 故结合牢固度降低, 影响产品的使用寿命. 综合比较可知, 当 PEG 含量为 15% 时, 涂覆率达到 13.1%, 涂层脱落率也相对较小.

表 3 不同 PEG 含量对涂覆率的影响

Table 3 The effect of PEG content on coating rate

PEG content / %	PEG-10	PEG-15	PEG-20	PEG-25
Coating rate / %	8.7	13.1	15.4	16.4
Expulsion rate / %	0.3	0.8	2.3	6.4
γ^* / %	3.5	6.1	14.9	39.0

* γ = Expulsion rate / Coating rate

图 2 显示添加不同含量的 PEG 制备的整体式催化剂脱硝活性比较. 从图中可以看出, 随着 PEG 含量的增加, 催化剂的活性出现了一个从上升到最大值, 又下降的变化规律. 当添加 15% PEG 时, 催化剂的活性最佳, 同时显示出较好的高温稳定性.

当添加 PEG 量较小时, 其反应活性在高温段下降明显, 这可能由于 PEG 的添加量较少, 催化剂在堇青石表面的覆盖度不够, 影响了催化剂的活性. 当 PEG 量过大时, 催化剂的活性反而降低, 这可能是由于较多的 PEG 在表面形成堆积, 使得催化剂表

面的活性位数目减少,同时较多的 PEG 在分解时改变了涂层原来较稳定的孔道结构,导致催化剂活性下降.

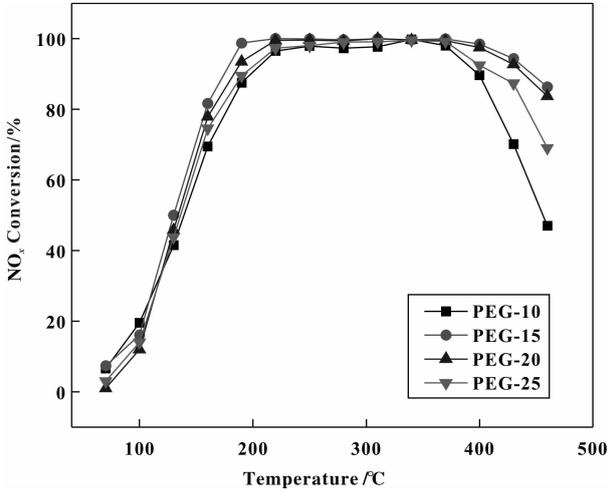


图2 不同 PEG 含量对催化活性的影响

Fig. 2 The effect of PEG content on activity for SCR of NO_x

2.3 XRD 表征结果

图3为空白堇青石、粉末 Fe-Mn/ZSM-5 和添加不同表面活性剂制备的整体式催化剂样品的 XRD 谱图. 其中, 11° 、 18° 、 22° 、 27° 、 29° 、 30° 、 54° 、 70° 为堇青石的特征衍射峰,而 8° 、 9° 、 $23^\circ \sim 25^\circ$ 位置的峰归属于 HZSM-5 型分子筛的特征峰^[21]. 3种表面活性剂制备的整体式催化剂中,堇青石的衍射峰都有不同程度的减弱,均出现了 HZSM-5 的衍射峰,其中 PEG-15 归属于堇青石的峰强减弱最明显,并且在 HZSM-5 型分子筛处出现了较强的衍射峰,

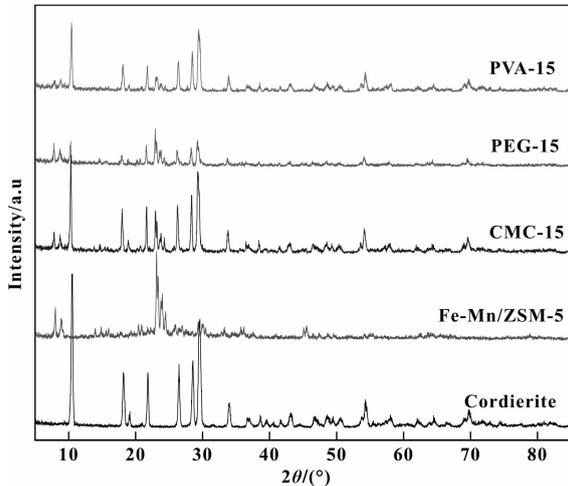


图3 不同表面活性剂制备的整体式催化剂的 XRD 谱图

Fig. 3 XRD patterns for monolithic catalysts with different surfactant

说明活性组分 Fe-Mn/ZSM-5 在堇青石表面分散均匀,几乎完全覆盖了堇青石的表面,这也与 PEG-15 的涂覆率相对较高、催化活性最好相一致. 样品 PVA-15 的 XRD 图中,堇青石的衍射峰减弱明显,但 HZSM-5 的衍射峰也比较弱,这说明虽然 PVA-15 涂覆率较低,但活性组分涂覆均匀,较大程度的覆盖了堇青石表面. 而 CMC-15 的 XRD 衍射图谱中,同时出现了较强的堇青石衍射峰和 HZSM-5 衍射峰,这说明虽然 CMC 作为表面活性剂,使整体式催化剂的涂覆率较高,但是由于负载不均匀,有较多的堇青石表面未能负载上活性组分而裸露在外面,在 XRD 图上就表现出了较高的堇青石衍射峰.

值得注意的是,在 XRD 图上并没有出现活性组分 MnO_x 和 Fe_2O_3 的特征衍射峰,这可能是由于 MnO_x 和 Fe_2O_3 的含量较小,在 HZSM-5 表面处于高度分散状态,未能形成结晶结构.

图4为添加不同含量 PEG 制备的整体式催化剂的 XRD 谱图,样品 PEG-10 的谱图中,归属于堇青石的特征衍射峰非常明显,而归属于 ZSM-5 的特征峰相对较弱,这可能是由于表面活性剂 PEG 的含量过少,活性组分未能很好的在堇青石表面涂覆完全,这也解释了其催化活性较差,特别是高温段催化活性下降明显的原因. 样品 PEG-15 中有较强的 ZSM-5 特征峰,但归属于堇青石的特征峰减弱明显,说明堇青石表面几乎被活性组分覆盖. PEG-20、PEG-25 谱图中均有较强的 ZSM-5 特征峰,并且强度几乎相同,这与其活性组分涂覆率较大有关. 但堇青石的特征峰却出现了逐渐增强的趋势,

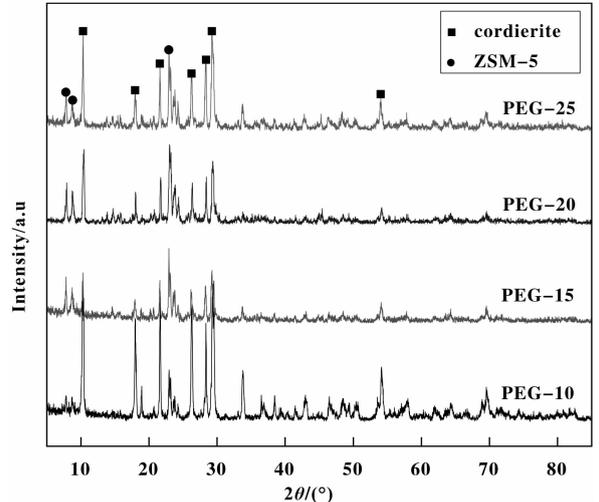


图4 不同含量 PEG 制备的整体式催化剂的 XRD 谱图

Fig. 4 XRD patterns for monolithic catalysts with different contents of PEG

这是由于 PEG 有增稠作用,导致堇青石表面的活性组分涂层出现了分布不均匀的情况,堇青石部分表面未被活性组分覆盖.并且随着 PEG 含量的增加,分布不均匀的情况逐渐加剧,这也与之前所测的其脱落率逐渐增大、催化活性逐渐降低相印证.

2.4 比表面积及孔分布测试

表 4 列出了不同样品的比表面积和孔分布信息.由表可知,堇青石表面几乎没有孔结构,负载活性组分后,比表面积和孔体积都显著增加.3 种不同表面活性剂制备的整体式催化剂的比表面积为:PEG-15>PVA-15>CMC-15;这与其催化活性相一致,说明比表面积是影响整体式催化剂的一个重要因素.PVA-15 与 CMC-15 的比表面积差别不大,

但其催化活性要比后者提高很多,这可能是由于较多的微孔结构,有利于 NO_x 的 SCR 反应在其表面进行.

不同 PEG 含量制备的整体式催化剂的比表面积为:PEG-15>PEG-10>PEG-25;与其催化活性相一致.值得注意的是,当 PEG 含量达到 25% 时,虽然其总孔体积增大,但是微孔体积急剧减少,平均孔径也增大到 8.69 nm,这可能是由于在高温焙烧时,表面活性剂分解,产生强烈的冲孔作用,形成较多的大孔结构,结合催化活性测试结果,可知大孔结构并不利于 SCR 反应的进行.而微孔最多的 PEG-15 催化活性最好,进一步印证了微孔可促进 NO_x 的选择性催化还原反应的进行.

表 4 样品的孔结构参数

Table 4 Parameters of porosity for cordierite and with different surfactant samples

Samples	BET Surface Area /(m ² · g ⁻¹)	Total Pore Volume /(cm ³ · g ⁻¹)	Micropore Volume /(cm ³ · g ⁻¹)	Average Pore Diameter /nm
cordierite	0.18	0.0003	—	6.80
PVA -15	87.79	0.0384	0.0188	5.16
CMC-15	84.30	0.0502	0.0065	5.75
PEG-10	94.94	0.0547	0.0149	4.35
PEG-15	102.62	0.0632	0.0236	4.24
PEG-25	83.33	0.0730	0.0003	8.69

3 种整体式催化剂的孔径分布如图 5 所示,它们的孔分布都集中在 5 nm 左右,说明所形成的孔

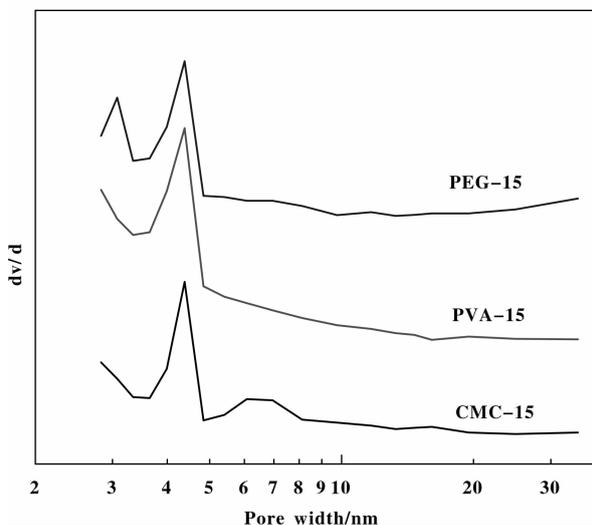


图 5 不同整体式催化剂的孔径分布曲线

Fig. 5 Pore size distributions of different cordierite

都是比较小的介孔,并且有一定的微孔存在,特别是样品 PEG-15,在 3 nm 左右还形成了一个比较大的微孔分布峰,结合图 1 活性数据可推测,这种微孔结构可能有利于提高整体式催化剂上 NO_x 的催化还原性能.而 CMC-15 在 6~8 nm 处形成一个较大的孔分布峰,这可能是其催化活性较低的一个原因.

2.5 整体式催化剂的表面形貌

图 6 (a)、(b)、(c)分别为样品 PEG-15、CMC-15、PVA-15 的 SEM 扫描照片,对比可以发现,样品 PEG-15 的表面分布着丰富的、孔径均匀的小孔,并且催化剂在堇青石表面分布均匀,覆盖度较好,未发生堆积;而 CMC-15 中存在较多的大孔结构,其中小孔分布较少,并且堇青石表面平整度较差,催化剂在部分区域产生堆积;PVA-15 样品中孔结构既有大孔,也有数量较多的小孔.这与表 4 的孔分布测试结果相一致,也进一步说明较多的微孔结构可以促进整体式催化剂上的 NO_x 性能的提高.

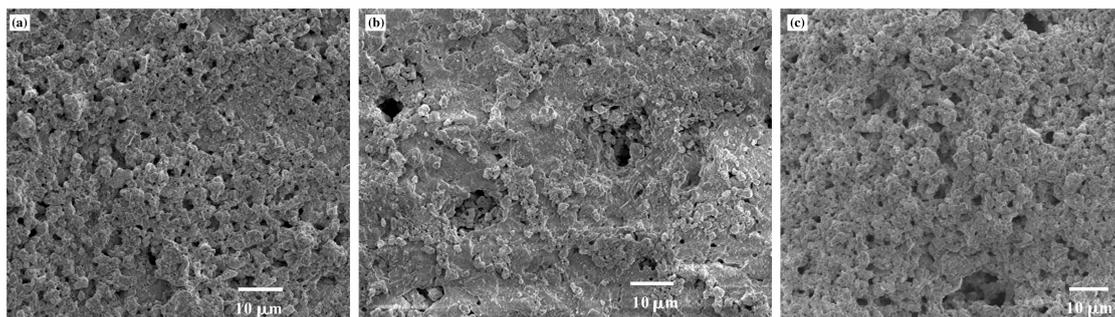


图6 不同整体式催化剂的SEM照片

Fig. 6 SEM photos of different cordierite honeycomb catalysts

(a) PEG-15; (b) CMC-15; (c) PVA-15

3 结论

添加表面活性剂的种类和含量对所制备的整体式催化剂的结构和催化性能均有影响。研究表明,在粉体 Fe-Mn/ZSM-5 中加入 15% 的 PEG 制备成涂层浆液,用超声波辅助浸渍在堇青石表面,可形成涂层分布均匀、稳定性好的整体式蜂窝催化剂,在 160 ~ 430 °C 的温度范围内 NO_x 转化率达到 95% 以上。

XRD 分析可知,活性组分 Mn、Fe 等元素由于含量少,在 HZSM-5 表面处于高度分散状态。PEG-15 样品在堇青石表面所形成的涂覆层的均匀性和覆盖度都明显好于其它样品,这有助于所制整体式催化剂的活性提高。

比表面积和微孔结构是影响整体式催化剂活性的重要因素,PEG-15 样品含有较多的微孔结构,这有利于提高其 SCR 催化活性,而较多的大孔结构会使其催化活性有所降低。

参考文献:

[1] van Setten B A A L, van Dijk R, Jelles S J, *et al.* The potential of supported molten salts in the removal of soot from diesel exhaust gas [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 1999, **21**: 51-61.

[2] Lee K J, Kumar P A, Maqbool M S, *et al.* Ceria added Sb-V₂O₅/TiO₂ catalysts for low temperature NH₃ SCR: Physico-chemical properties and catalytic activity [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2013, **142/143**: 705-717.

[3] Devadas M, Krocher O, Elsener M, *et al.* Characterization and catalytic investigation of Fe-ZSM5 for urea-SCR [J]. *Catalysis Today*, 2007, **119**: 137-144.

[4] Casapu M, Krocher O, Elsener M. Screening of doped MnO_x-CeO₂ catalysts for low-temperature NO-SCR [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2009, **88**: 413-419.

[5] Metkar P S, Harold M P, Balakotaiah V. Selective catalytic reduction of NO_x on combined Fe and Cu zeolite monolithic catalysts: Sequential and dual layer configurations [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2012, **111/112**: 67-80.

[6] Li Zhe(李哲), Jin Ying(靳英), Liu Zhen-yu(刘振宇). Catalytic reduction of NO_x over metaloxide- and perovskite-ZSM-5 catalysts in presence of water vapour[J]. *Journal of Molecular Catalysis (China)* (分子催化), 2000, **14**(5): 354-358.

[7] Li Jian-guang(李建光), Huang Yan(黄妍), Peng Li-li(彭丽丽). Performance of a novel CeO₂/HBEA catalyst for NO reduction with NH₃ and its property against the effect of H₂O and SO₂[J]. *Journal of Molecular Catalysis (China)* (分子催化), 2012, **26**(1): 52-61.

[8] Li Wei(李伟), Lin Tao(林涛), Zhang Qiu-lin(张秋林), *et al.* Low-temperature selective catalytic reduction of NO with NH₃ over MnO_x-CeO₂/ZrO₂-TiO₂ monolith catalyst [J]. *Chinese Journal of Catalysis* (催化学报), 2009, **30**(2): 104-110.

[9] Lisi L, Pirone R, Russo G, *et al.* Cu-ZSM-5 based monolith reactors for NO decomposition [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2009, **154**: 341-347.

[10] Lin Tao(林涛), Xu Hai-di(徐海迪), Li Wei(李伟), *et al.* Preparation of Mn-Fe/ZrO₂-TiO₂ monolith catalyst and its properties for low-temperature NH₃-SCR reaction [J]. *Chemical Research in Chinese Universities* (高等学校化学学报), 2009, **30**(11): 2240-2246.

[11] Williams J L. Monolith structures, materials, properties and uses [J]. *Catalysis Today*, 2001, **69**: 3-9.

- [12] Zhu Chong-bing (朱崇兵), Jin Bao-sheng (金保升), Zhong Zhao-ping (仲兆平), *et al.* Selection of carrier for V₂O₅-WO₃/TiO₂ De-NO_x catalyst [J]. *Proceedings of the CSEE* (中国电机工程学报), 2008, **28** (11): 41-47.
- [13] Motonobu K, Katsunori M. WO₃-TiO₂ monolithic catalysts for high temperature SCR of NO by NH₃: influence of preparation method on structural and physical-chemical properties, activity and durability [J]. *Applied Catalysis B: environmental*, 2007, **72**(3/4): 253-261.
- [14] Jiang X, Chen X M. Crystallization behavior and hydrophilic performances of V₂O₅-TiO₂ films prepared by sol-gel dip-coating [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2004, **270**(3/4): 547-552.
- [15] Feng Yu (封煜), Liu Xin-yong (刘新勇), Jiang Zhi (江治), *et al.* Photocatalysis activity of Pt/TiO₂ toward low concentration NO abatement [J]. *Journal of Molecular Catalysis (China)* (分子催化), 2013, **27**(1): 76-82.
- [16] Blanco J, Avila P, Suárez S, *et al.* Alumina- and titania-based monolithic catalysts for low temperature selective catalytic reduction of nitrogen oxides [J]. *Applied Catalysis B: environmental*, 2000, **28**: 235-244.
- [17] Liu Qing-ya (刘清雅), Liu Zhen-yu (刘振宇). Honeycomb cordierite-based CuO/Al₂O₃ catalyst for simultaneous SO₂ and NO removal from flue gas [J]. *Journal of Fuel Chemistry and Technology* (燃料化学学报), 2004, **32**(3): 257-262.
- [18] Byoung-Wan S, In-Sik N. Effect of support morphology on the sulfur tolerance of V₂O₅/Al₂O₃ catalyst for the reduction of NO by NH₃ [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2003, **42** (13): 2975-2986.
- [19] Avila P, Montes M, Miro E E. Monolithic reactors for environmental applications a review on preparation technologies [J]. *Chemical Engineering Journal*, 2005, **109**: 11-36.
- [20] Na Xiu-hui (那秀辉), Yu Lin (余林), Sun Ming (孙明), *et al.* Preparation of OMS-2/cordierite monolithic catalysts and their catalytic performance for dimethyl ether combustion [J]. *Chinese Journal of Catalysis* (催化学报), 2010, **31**(8): 1019-1024.
- [21] Rachapudi R, Chintawar P S, Greene H L. Aging and structure/activity characteristics of Cr-ZSM-5 catalysts during exposure to chlorinated VOCs [J]. *Journal of Catalysis*, 1999, **185**(1): 58-72.

Effects of Surfactants on the Structure and Catalytic Performance of Fe-Mn/ZSM-5/CC Monolithic Honeycomb Catalyst

LIU Peng-fei, LOU Xiao-rong, HE Kai*, LI Zhe*, LI Jun, YANG Cheng-wu

(School of Chemistry and Chemical Engineering, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

Abstract: Fe-Mn/ZSM-5 slurries were added with different surfactants such as PVA, PEG4000 and CMC, and coated on cordierite honeycomb carriers to prepare Fe-Mn/ZSM-5 monolithic catalysts. The effects of different surfactants and additive amount of PEG4000 on the coating efficiency and the SCR performance of Fe-Mn/ZSM-5 monolithic catalysts were investigated. The results indicated that the coating efficiency and the catalytic activities of monolithic catalysts were significantly affected by the types and contents of surfactants. When adding 15% PEG4000, the coating efficiency and the coating stability of slurry reached the best level. The monolithic catalyst also exhibited the best catalytic activity, with NO_x conversion of more than 95% in the reaction temperature range of 160 ~ 430 °C. Moreover, the surface morphology, micropore structure and coating uniformity of the honeycomb monolithic catalyst were analyzed by XRD, nitrogen adsorption desorption and SEM techniques. It can be found that the SCR catalytic activity of monolithic catalyst is correlated to the uniformity and coverage of coating layer formed on cordierite surface, and the presence of micropore structure also can improve the activity of the honeycomb monolithic catalysts.

Key words: surfactant; Fe-Mn/ZSM-5/CC; monolith catalyst; coating uniformity