

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第33卷 第6期

Vol.33 No.6

2012

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

我国湖泊富营养化效应区域差异性分析 曹金玲,许其功,席北斗,李小平,杨柳燕,江立文,魏自民,吴献花(1777)

基于“源”“汇”景观格局指数的海河流域总氮流失评价 孙然好,陈利顶,王伟,王赵明(1784)

云蒙湖流域土地利用变化对非点源氮污染负荷的影响 孟晓云,于兴修,泮雪芹(1789)

深圳市沿岸表层海水中全氟化合物的残留特征及其分布规律 陈清武,张鸿,柴之芳,沈金灿,杨波(1795)

典型电器工业区河涌沉积物中多环芳烃的分布、来源和潜在生态风险 邓代永,邱孟德,孙国萍,郭俊,张宏涛,张琴,许玫英(1801)

珠江下游河段沉积物中重金属含量及污染评价 谢文平,王少冰,朱新平,陈昆慈,潘德博,洪孝友,尹怡(1808)

扎龙湿地南山湖沉积岩芯重金属污染特征及来源判别 苏丹,臧淑英,叶华香,孙丽,贾晓丹,李苗(1816)

汕头湾沉积物磷的形态分布与季节变化特征研究 赵建刚,乔永民(1823)

氮磷比对东海浮游植物群落生长影响的微宇宙实验 黄伟,朱旭宇,曾江宁,寿鹿,陈全震,江志兵(1832)

春季福建北部海域浙闽沿岸流消亡期浮游桡足类种类组成及其分布 王彦国,林景宏,王春光,林茂(1839)

滩涂红树林种植-养殖耦合系统中多环芳烃含量水平分析 陈冠秋,李耀初,黄晋沐,南燕,林茂宏(1846)

四溴双酚 A 在 5 种巢湖鱼类体内的组织分布与生物浓缩因子研究 杨苏文,王圣瑞,闫振广,张普青(1852)

五氯酚对稀有鮑肌卵黄蛋白原及 p53 的诱导效应 熊力,马永鹏,张晓峥,金帮明,李伟,苏永良,毛思予,刘堰(1858)

全氟辛烷磺酸 (PFOS) 对斑马鱼卵黄蛋白原 mRNA 水平的影响 程艳,崔媛,党志超,谢文平,李海山,殷缓缓,陈会明(1865)

水溶性有机物电子转移能力与荧光峰强度的关系研究 陶亚,袁田,周顺桂,袁勇,庄莉,王辉亮(1871)

MIEX 中试实验对二级出水中有机物去除的 3DEEM 解析 杨建,高金华,常江(1878)

XDLVO 理论解析钙离子对腐殖酸反渗透膜污染的影响机制 姚淑娣,高欣玉,郭本华,包南,谢慧君,梁爽(1884)

栅藻 LX1 在水产养殖废水中的生长、脱氮除磷和油脂积累特性 马红芳,李鑫,胡洪管,于茵,巫寅虎(1891)

氯化铁用于反硝化同步化学生物絮凝工艺研究 王宏杰,董文艺,刘莉莎,韩贵超(1897)

合成氨废水短程反硝化特性研究 李妍,李泽兵,马家轩,王晓毅,赵白航,李军(1902)

基于新型反应器的好氧颗粒污泥的稳定性控制 李志华,杨帆,李胜,谢磊,王晓昌(1907)

采用非生长能量代谢参数表征颗粒污泥稳定性 李志华,吴军,李胜,谢磊,王晓昌(1913)

酸-碱预处理促进剩余污泥厌氧消化的研究 袁光环,周兴求,伍健东(1918)

小回流比条件下污泥浓度分区试验研究 史思,王素兰,李瑞,邢传宏(1923)

非离子表面活性剂对污泥调理脱水效果的影响 侯海攀,濮文虹,时亚飞,于文华,樊明明,刘欢,杨昌柱,李野,杨家宽(1930)

中国空气污染指数变化特征及影响因素分析 李小飞,张明军,王圣杰,赵爱芳,马潜(1936)

南京 3 类不同大气污染过程下气溶胶水溶性无机离子的特征研究 张秋晨,朱彬,苏继峰,王红磊(1944)

深圳市郊区大气中 PM_{2.5} 的特征分析 戴伟,高佳琪,曹罡,欧阳峰(1952)

餐饮业油烟的颗粒物分析 谭德生,邝元成,刘欣,戴飞鸿(1958)

Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 低温催化还原 NO 性能研究 刘荣,杨志琴(1964)

自然型氨基酸及其钾盐的 CO₂ 吸收和再生特性 晏水平,陈竞翔,徐明亮,艾平,张衍林(1971)

耕作方式对紫色水稻土农田生态系统 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 张军科,江长胜,郝庆菊,唐其文,程炳红,李辉,陈璐豪(1979)

垄作覆膜条件下田间氨挥发及影响因素 上官宇先,师日鹏,李娜,韩坤,李会科,王林权(1987)

添加不同 N 源条件下典型除草剂对土壤呼吸和 N₂O 排放的影响 孙青,史淳星,石坤,言儒斌,蒋静艳,吴以中(1994)

某石墨阳极法氯碱生产场地二噁英污染特征分析 余立凤,魏文侠,田亚静,吴广龙,李培中,赵丹(2000)

脱硫石膏对酸化森林土壤短期修复效果的研究 罗遥,康荣华,余德祥,谭炳全,段雷(2006)

岩溶山地土壤氧化铁形态及其与成土环境的关系 张治伟,朱章雄,傅瓦利,文志林(2013)

废弃尾矿库 15 种植物对重金属 Pb、Zn 的积累和养分吸收 施翔,陈益泰,王树凤,李江川(2021)

铬胁迫对 3 种草本植物生长及铬积累的影响 王爱云,黄姗姗,钟国锋,徐刚标,刘志祥,申响保(2028)

湘西花垣矿区主要植物种类及优势植物重金属蓄积特征 杨胜香,田启建,梁士楚,周耀渝,邹慧成(2038)

增施 CO₂ 对 C3 和 C4 植物根际氯氰菊酯残留浓度的影响 慕楠,刁晓君,王曙光,王鹏腾,李攀峰(2046)

生物强化去除吡啶的特性及微生物种群动态变化分析 乔琳,赵宏,王建龙(2052)

A/O MBR 处理生活污水效率与菌群多样性的关系 邝斌宇,史青, Montcho Leon Monthero,丁嫄,温东辉(2061)

石油污染土壤生物修复过程中氮循环功能基因的动态检测 吴彬彬,卢滇楠,刘铮(2068)

武汉市儿童多途径铅暴露风险评估 郝汉舟,陈同斌,吴基良,雷梅,田辉,祖文普,钟学斌(2075)

电子鼻预处理装置的开发及适用性研究 卜凡阳,文晓刚,万梅,刘锐,陈吕军,张永明(2083)

ToxTell 生物传感器在 Cu²⁺、Cd²⁺ 冲击活性污泥系统分析中的应用 王学江,王鑫,刘免,吴真,杨连珍,夏四清(2090)

环境样品免疫检测基质效应分析与控制 盛建武,何苗,施汉昌(2095)

热等离子体熔融固化模拟医疗废物的研究 张璐,严建华,杜长明,陆胜勇,李晓东(2104)

城市生活垃圾组分低温干燥特性及模型研究 吴亚娟,刘红梅,陆胜勇,严建华,李晓东(2110)

厌氧-准好氧联合型生物反应器填埋场产气规律的研究 韩智勇,刘丹,李启彬(2118)

处理垃圾渗滤液的 Fe/C 空气阴极 MFC 性能研究 唐玉兰,彭漫,于燕,何亚婷,傅金祥,赵玉华(2125)

基于冗余分析的典型喀斯特山区土壤-石漠化关系研究 龙健,廖洪凯,李娟,陈彩云(2131)

北京市能源消费与经济增长关系的协整检验分析 陈操操,张妍,刘春兰,王海华,李铮(2139)

《环境科学》征稿简则(1877) 《环境科学》征订启事(1890) 信息(1822,1857,1896,2138)

Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 低温催化还原 NO 性能研究

刘荣, 杨志琴

(南京师范大学地理科学学院, 南京 210046)

摘要: 以纳米 ZrO₂ 为载体, 用浸渍法制备出 Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂, 考察了活性组分配比和助剂负载量对催化剂低温 NH₃ 选择性催化还原 NO 活性的影响, 并对催化剂进行了 XRD、SEM、EDS 和 BET 表征; 探讨了温度、H₂O 和 SO₂ 对 Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂低温下 NH₃ 选择性催化还原 NO 的影响, 结果表明, 无 SO₂ 和 H₂O 条件下, 8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂具有良好的催化活性和稳定性. 120℃ 时, 催化剂的脱硝效率为 85.23%, 当温度升至 180℃ 时, 脱硝效率可达到 92.0%. SO₂ 和 H₂O 共存条件下, 催化剂易失活, 采用傅立叶变换红外光谱对各反应阶段的催化剂进行了表征, 对其失活机制进行深入研究, 结果表明, 催化剂失活的主要原因是催化剂表面硫酸铵盐的沉积和催化剂本身活性成分的硫酸盐化.

关键词: 纳米 ZrO₂; 催化剂; 低温选择性催化还原; 一氧化氮; 失活机制

中图分类号: X701 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2012)06-1964-07

Low-Temperature Catalytic Reduction of NO over Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ Catalyst

LIU Rong, YANG Zhi-qin

(School of Geography Science, Nanjing Normal University, Nanjing 210046, China)

Abstract: Fe-MnO_x-CeO₂/ZrO₂ catalysts were prepared through impregnation method with nanometer ZrO₂ as a carrier and used in selective catalytic reduction of NO with NH₃ at low temperature. Effects of active component ratio and loading of promoter on the catalyst activity were investigated. The catalysts were characterized by means of XRD, SEM, EDS and BET. The effects of temperature, SO₂ and H₂O on NO conversion were studied and the results showed that in the absence of SO₂ and H₂O, the catalyst of 8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ had good activity and stability as well as the NO_x removal efficiency reached 85.23% at 120℃ and 92.0% at 180℃. The presence of SO₂ and H₂O results in the catalyst deactivated. Properties of the catalyst on different reaction stages were characterized by FT-IR to study the inactivation mechanism of the catalyst. The results showed that the catalyst deactivation was due to the deposition of ammonium sulfate on the catalyst and the sulphation of the catalyst.

Key words: nanometer zirconia; catalyst; low temperature selective catalytic reduction; nitric oxide; deactivation mechanism

氮氧化物(NO_x)是主要的大气污染物之一, 严重危害生态系统和人类健康. 以 NH₃ 为还原剂的选择性催化还原(SCR)法是目前工业应用最广和最高效的烟气脱硝技术^[1,2], 其商用催化剂多为钒系催化剂, 包括 V₂O₅/TiO₂^[3,4]、V₂O₅-WO₃/TiO₂^[5,6] 和 V₂O₅-MoO₃/TiO₂^[7] 等, 脱硝效率都在 80% 以上. 但是钒系催化剂的操作温度一般在 300 ~ 400℃, SCR 反应器需置于锅炉省煤器之后空气预热器之前的高温、高尘区, 高浓度烟尘对催化剂的磨损和孔道堵塞会影响催化剂的寿命; 另外, 高温条件下容易发生 NH₃ 氧化成 NO 或 N₂ 的副反应, 影响脱硝效果. 因此, 开发低温(120 ~ 200℃)、高效且性能稳定的 SCR 催化剂成为主要研究方向.

目前负载型金属氧化物催化剂成为国内外低温 SCR 催化剂的研究热点, 大量研究多以活性炭^[8,9]、TiO₂^[10,11]、Al₂O₃^[12]、分子筛^[13] 作为 SCR 催化剂载体. 沈伯雄等^[14] 利用活性炭纤维制备的 Mn-CeO_x/ACFN 复合催化剂在 80 ~ 150℃ 低温范围具有很高的催化活性.

纳米 ZrO₂ 化学性能稳定, 比表面积大, 同时具有表面酸性位和碱性位, ZrO₂ 是 P 型半导体, 易于产生氧空穴, 作为催化剂载体, 可以与催化剂的活性组分产生较强的相互作用, 可大大提高催化剂的催化性能, 是一种优越的催化剂载体材料. ZrO₂ 作为催化剂或催化剂载体, 在催化氢化、FT 反应催化、聚合和氧化反应的催化及超强酸催化剂方面, 均获得了广泛的应用研究. 李晓伟等^[15] 研究了 MnO/ZrO 纳米催化剂的 CO-SCR-NO 催化还原活性, 发现在 300℃ 附近催化剂的效果最好. 林涛等^[16] 采用共沉淀法制备了载体材料 ZrO₂-TiO₂-CeO₂, 并以钒为活性组分, 钨为助剂, 考察了在过量 O 存在下 NH₃-SCR 反应中的催化活性, 发现在 275℃ 时, NO 的转化率接近 100%, 具有好的催化活性.

但是, 相对于其他载体材料, 有关将纳米 ZrO₂

收稿日期: 2011-08-23; 修订日期: 2011-11-12

基金项目: 江苏省高校自然科学基金项目(008112TSJ0125)

作者简介: 刘荣(1965 ~), 女, 博士, 副教授, 主要研究方向为环境材料的制备及应用, E-mail: liurongle@163.com

作为低温 NH₃-SCR 用催化剂载体的应用研究较少. 本研究采用纳米 ZrO₂ 作为催化剂载体, 以 Mn、Ce 氧化物为活性组分, 同时添加 Fe 氧化物为催化剂助剂, 制备出一种新型的低温 SCR 催化剂, 对其 NH₃-SCR 催化活性及抗 H₂O 和 SO₂ 毒化性能进行了分析, 以期获得该催化剂的最佳制备工艺条件, 并探究其抗毒化机制.

1 材料与方法

1.1 催化剂的制备

实验以共沉淀法制备的纳米 ZrO₂ (粒径为 ~50 nm) 为载体, 以 Mn(NO₃)₂ 和 Ce(NO₃)₃ 作为活性组分前驱体, 用等体积浸渍法制备 MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂, 经 120℃ 干燥 12 h, 500℃ 煅烧 4 h, 制得 MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂样品. 催化剂活性组分配比为: MnO_x 质量分数分别为 5%、8%、10% 和 15%, Mn/Ce 摩尔比为 2^[17].

通过脱硝性能测试筛选出最佳的活性组分负载量, 再以 Fe(NO₃)₃·9H₂O 作为助剂前驱体在催化剂中添加助剂 Fe, 浸渍法步骤同上. 助剂 Fe 的质量分数分别为 2%、5%、8%.

1.2 脱硝性能测试

催化剂的脱硝性能测试装置及流程如图 1 所示.

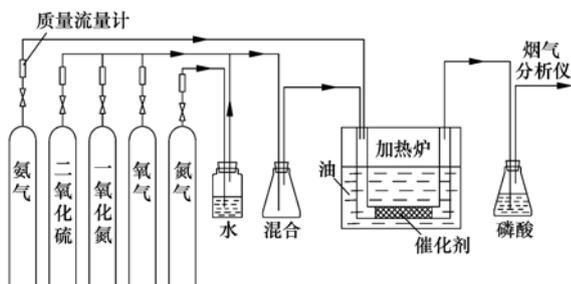


图 1 实验装置流程示意

Fig. 1 Flow diagram for experimental equipments

催化脱硝反应在恒温油浴锅反应器中进行, 反应器的石英管为 S 型盘管, 管径 25 mm, 催化剂用量为 10 g, 均匀分散于盘管中以增加反应气与催化剂的接触面积. 测试过程中, 气体流量由质量流量计控制. 在进行非抗 H₂O 和 SO₂ 实验时, 将 SO₂ 气瓶关闭, 将盛水的增湿瓶取出, N₂ 直接与混合瓶相连, 使 SO₂、H₂O 的进气量为零. N₂、O₂、NO 预先流经一个混合瓶, 按一定比例混合后进入反应器, 还原剂 NH₃ 单独直接加入反应器. NO_x 浓度由烟气分析仪进行在线检测.

本实验的 SCR 反应条件如下. 进口反应气成分: NO 体积分数为 650 × 10⁻⁶, NH₃/NO 摩尔比为 1.1, O₂ 体积分数为 6%, 其余都为平衡气体 N₂, 烟气流量为 1.4 L·min⁻¹ (空速为 10 000 h⁻¹), 反应温度为 100 ~ 180℃.

根据反应前后 NO 的浓度值, 可计算出该反应温度下的 NO 转化率, 以此作为衡量催化剂脱硝效率的指标.

$$\text{NO 转化率} = \frac{\text{NO}_1 - \text{NO}_2}{\text{NO}_1} \times 100\% \quad (1)$$

式中, NO₁ 为反应前 NO 的浓度; NO₂ 为反应后 NO 的浓度.

1.3 催化剂的表征

XRD 物相分析采用 DX2500 型 X 射线衍射仪; 采用 JSM-5610LV 型扫描电子显微镜-X 射线能谱仪观察分析催化剂样品的表面形貌、负载情况及 EDS 表面微区元素组成; BET 测试采用 NOVA1000e 型比表面积分析仪; 采用美国尼高力公司 NEXUS670 型傅里叶变换红外光谱仪对催化剂进行 FTIR 表征, 分析催化剂的中毒机制.

2 结果与讨论

2.1 催化剂的表征结果

2.1.1 X 射线衍射分析

图 2 为不同 MnO_x-CeO₂ 活性组分负载量的 XRD 图谱; 图 3 为添加助剂 Fe 的 XRD 图谱.

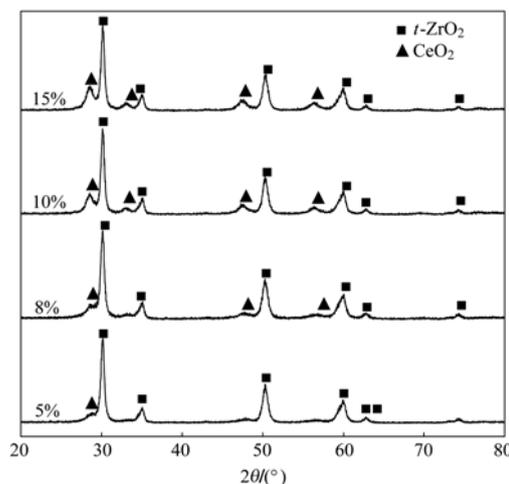
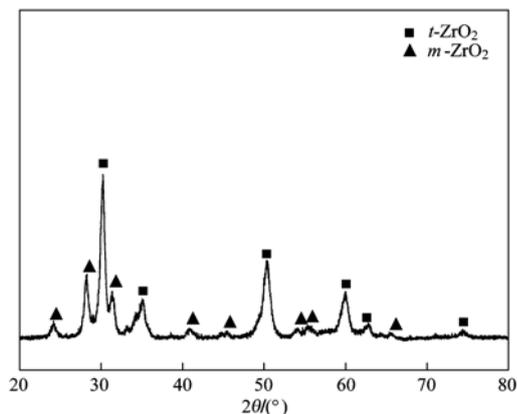


图 2 不同活性组分配比催化剂的 XRD 图谱

Fig. 2 XRD picture of catalysts at different active component ratios

由图 2 可以看出, 各催化剂谱线中都存在四方 (tetragonal) 氧化锆 *t*-ZrO₂ 晶体的衍射峰, 没有 MnO_x 的衍射峰, 而随着 MnO_x-CeO₂ 负载量的增加, CeO₂ 的衍射峰逐渐增强. 说明在纳米 ZrO₂ 载体上的活性

图 3 8%Fe-10%MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂 XRD 图谱Fig. 3 XRD picture of 8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ catalyst

组分 MnO_x 以无定形的非晶相存在,未被烧结,分散性好; CeO₂ 经 500℃ 煅烧出现部分烧结的结晶相.

由图 3 可以看出,催化剂谱线中只有 *t*-ZrO₂ 和少量单斜 (monoclinic) 氧化锆 *m*-ZrO₂ 晶体的衍射峰,没出现助剂 Fe 相应的金属氧化物衍射峰,表明在 8% 的负载量下,Fe 组分以无定形状态存在. 同时与图 2 比较可以看出,催化剂图谱中没有 MnO_x 和 CeO₂ 的衍射峰出现,说明助剂的添加抑制了 CeO₂ 的烧结,使得催化剂中活性组分 MnO_x 和 CeO₂ 均以无定形的非晶相存在. 由此分析得出,在纳米 ZrO₂ 载体上活性组分和助剂的负载分散性好,有利于催化剂的催化活性.

2.1.2 扫描电镜及 EDS 分析

各催化剂样品的 EDS 表面微区成分分析如图 4 所示. 各催化剂样品的 SEM 照片如图 5 所示.

由图 4 可以看出,各催化剂中主要元素成分为 Zr、O、Mn、Ce. 图 4 (d) 中出现了元素 Fe,由此说明 EDS 能谱分析结果与对应催化剂的负载组分相一致.

由图 5 可以看出,在 MnO_x 负载量 < 10% 时,活性组分在 ZrO₂ 载体表面的分布均匀分散,随着催化剂活性组分负载量的增加,载体表面的 Mn、Ce 氧化物逐渐增多,利于催化活性的提高. 但是,当 MnO_x 含量为 15% 时,负载的 Mn、Ce 金属氧化物团聚现象加重,降低了催化剂表面的催化活性,影响催化反应的进行; 比较图 5 (d) 和 (f) 可以看出,添加 8% 助剂 Fe 后,负载成分的分散性更好,负载颗粒大小更均匀,这有利于提高催化剂的表面活性,增强催化剂的催化性能.

2.1.3 比表面积分析

各催化剂样品的比表面积测试结果如表 1 所示.

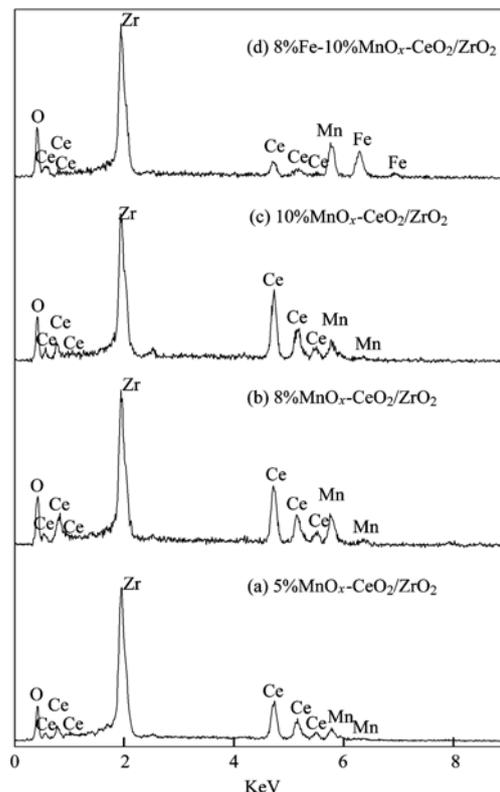


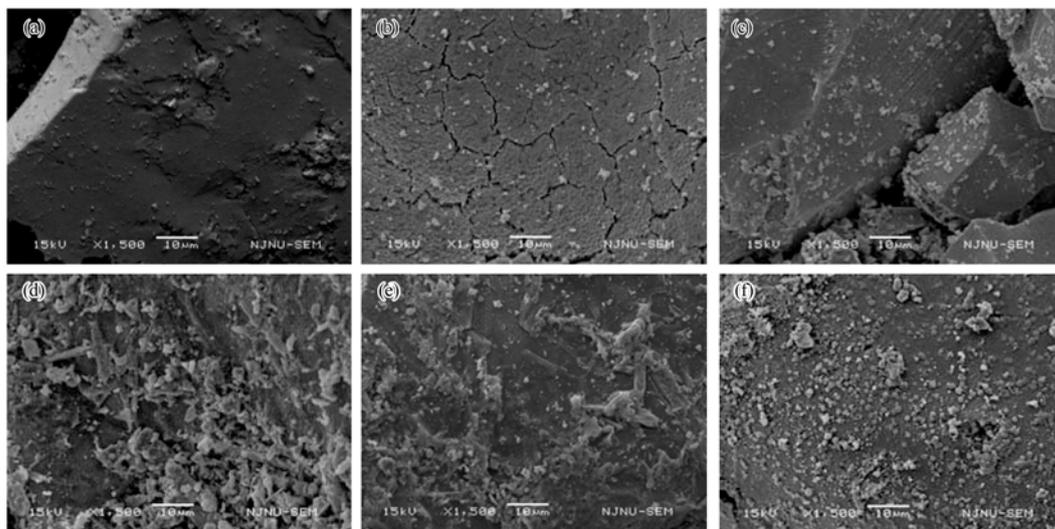
图 4 催化剂的 EDS 元素定性分析

Fig. 4 EDS elemental analysis of catalysts

表 1 催化剂的比表面积及孔结构特征

催化剂样品	比表面积 /m ² ·g ⁻¹	平均孔径 /nm	孔体积 /cm ³ ·g ⁻¹
纳米 ZrO ₂	26.63	2.009	0.07
5% MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂	35.37	2.747	0.05
8% MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂	37.37	3.148	0.06
10% MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂	38.42	3.151	0.08
15% MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂	42.04	3.256	0.09
8% Fe-10% MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂	49.51	2.758	0.09

由表 1 看出,随着活性组分负载量的增加,各催化剂试样的比表面积和孔容逐渐增大,各催化剂试样的孔径变化较小,均属于有利于气体吸附的中孔结构 ($d_2 \sim 50$ nm). 结合 SEM 分析,当 MnO_x 负载 ≤ 10% 时,催化剂表面的 Mn、Ce 氧化物负载量逐渐增多,活性组分的分散性良好,有利于催化活性的提高; 而当 MnO_x 的负载量为 15% 时,尽管催化剂的比表面积有所增加,但由于 CeO₂ 烧结结晶相的量相对较多,分散性差, Mn、Ce 氧化物呈团聚状附着在催化剂表面,使得催化剂的实际活性表面积减少^[18],导致催化剂的反应活性降低. 同时相对于 10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂对比试样,添加 8% 助剂 Fe 后的催化剂,其比表面积明显增大,孔容略有



(a) ZrO₂; (b) 5% MnO_x-CeO₂/ZrO₂; (c) 8% MnO_x-CeO₂/ZrO₂; (d) 10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂;
(e) 15% MnO_x-CeO₂/ZrO₂; (f) 8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂

图 5 催化剂的 SEM 图

Fig. 5 SEM images of catalysts

增加,孔径稍有减小,已有研究发现比表面积增大^[19,20],将有利于进一步增大反应气体与催化剂的接触面积,减小反应气内扩散的阻力,提高宏观反应速率,使催化剂的催化活性提高,有利于催化反应过程的进行。

2.2 脱硝性能测试结果

2.2.1 活性组分对脱硝性能的影响

在载体 ZrO₂ 上负载不同含量的 Mn、Ce 活性组分,研究活性组分负载量的变化对催化剂脱硝性能的影响.实验结果如图 6 所示。

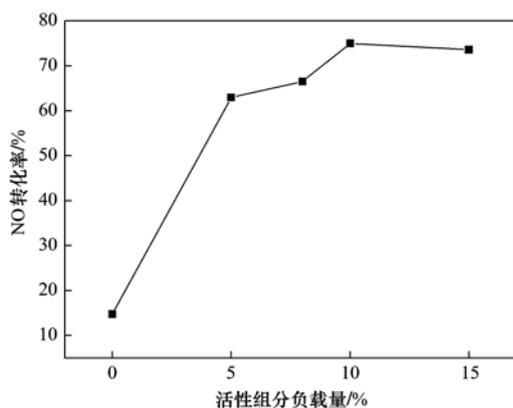


图 6 活性组分负载量对脱硝性能的影响(120℃)

Fig. 6 Effect of active component ratio on NO conversion

从图 6 中可以看出,没有负载活性组分的 ZrO₂ 载体在低温下的催化活性很低,而负载后的 4 种 MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂样品,在测试温度 120℃ 下,脱硝效率均在 60% 以上.且随着负载量的增加,

催化剂的脱硝效率出现先增加后降低的趋势,当 MnO_x 含量为 10% 时,催化剂的脱硝效率最高达到 74.92%,而 MnO_x 含量为 15% 时,脱硝效率有所降低.原因如 2.1.2 节的 SEM 表征所示,当 MnO_x 含量为 15% 时,CeO₂ 烧结结晶相的量相对较多,分散性差,负载的 Mn、Ce 金属氧化物团聚现象加重,降低了催化剂表面的催化活性,不利于催化反应的进行。

催化剂的活性组分负载情况研究结果表明,浸渍法制备的 10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂具有最佳的低温脱硝性能。

2.2.2 助剂对脱硝性能的影响

大量的研究表明,在低温 SCR 催化剂中添加适当的助剂(如 Fe、Co、Cr 等元素),可有效地提高催化剂的活性,其原因是由于这些元素存在多种化合价态,能在催化反应中起到传递电子、离子和贮氧的作用;此外,在催化剂中添加适当的金属元素还可以有效地减少烧结现象,对催化剂的热稳定性和使用寿命也有一定程度的改善。

研究助剂 Fe 的负载量变化对催化剂脱硝性能的影响,有研究表明,当 Fe/Mn 比达 1:1 时,活性不再增加.当 Fe/Mn = 1.4 时,活性反而有所下降^[21].因此本实验助剂 Fe 的负载量为 ≤8%. 催化剂的脱硝效率如图 7 所示。

从图 7 中可以看出,助剂的添加对催化剂脱硝性能的影响较大.添加助剂 Fe 后,随着添加量的增加,催化剂脱硝效率出现先降低后增加的变化趋势。

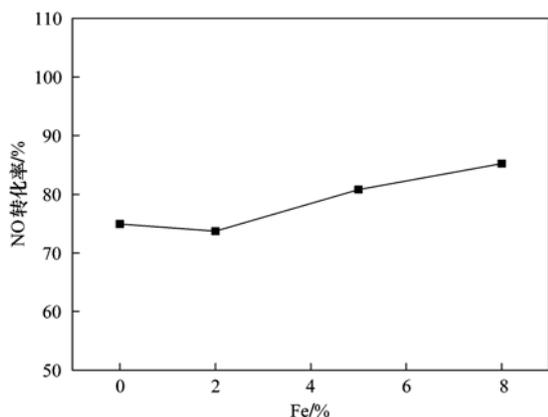


图 7 助剂负载量对脱硝性能的影响(120℃)

Fig. 7 Effect of loading of promoter on NO conversion

当 Fe 添加量 < 2% 时, 催化剂的催化活性不如 10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$, 其脱硝效率略有下降; 当 Fe 添加量 > 2% 时, 催化剂活性逐渐显著提高. 在 120℃ 下, Fe 含量为 8% 时, 催化剂脱硝效率达到 85.23%, 比未浸渍 Fe 的催化剂脱硝效率提高了近 10%. 结合 2.1 节的分析结果说明: 催化剂的催化效率与催化剂的表面负载特性、比表面积和吸附性能成一定的线性关系, 8% Fe-10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$ 催化剂具有较大的比表面积, 适宜的孔结构使催化剂的吸附性能提高, 同时活性组分和助剂在催化剂表面形成了分散度高的表面负载特征, 有利于催化剂脱硝活性的提高.

2.2.3 反应温度对脱硝性能的影响

对 8% Fe-10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$ 催化剂做升温实验, 研究反应温度对其脱硝性能的影响, 升温范围为 100 ~ 180℃. 脱硝性能测试结果如图 8 所示.

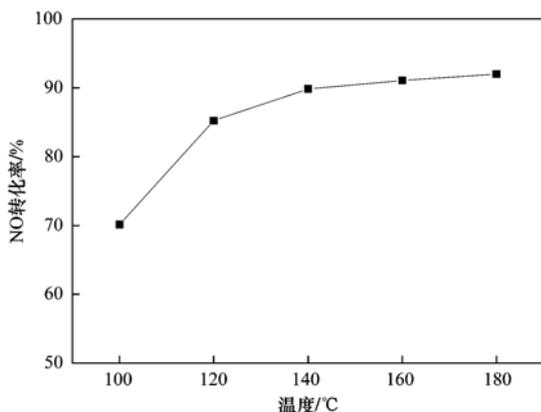


图 8 反应温度对脱硝性能的影响

Fig. 8 Effect of temperature on NO conversion

从图 8 中可以看出, 在 100 ~ 180℃ 温度范围内, 8% Fe-10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$ 催化剂的脱硝效率随着反应温度的升高而提高. 100℃ 时, 催化剂的

脱硝效率为 70.15%, 升温至 180℃ 时, 脱硝效率可达到 92.0%. 从反应动力学上看, 提高反应温度可以加快反应速率, 促进催化反应的进行, 使 NO 转化率提高, 催化剂的脱硝活性增大.

2.3 催化剂的抗毒性

2.3.1 SO_2 和 H_2O 对活性的影响

为研究 8% Fe-10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$ 催化剂的抗毒化性能, 采用 $\text{NH}_3\text{-SCR}$ 反应在 120℃ 下稳定进行 120 min 后, 通入 $\text{H}_2\text{O}/\text{SO}_2$ 气体, 进行同时抗 H_2O 和 SO_2 的暂态响应实验, SO_2 体积分数分别为 100×10^{-6} 、 300×10^{-6} 、 500×10^{-6} , 测试结果如图 9 和图 10 所示.

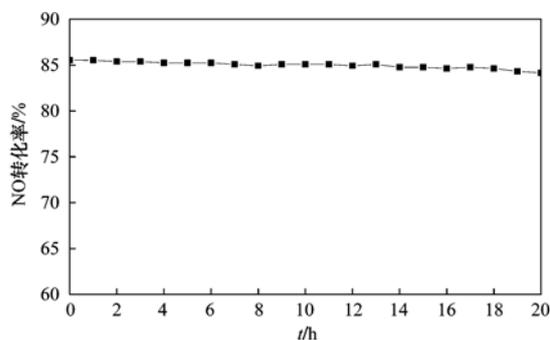
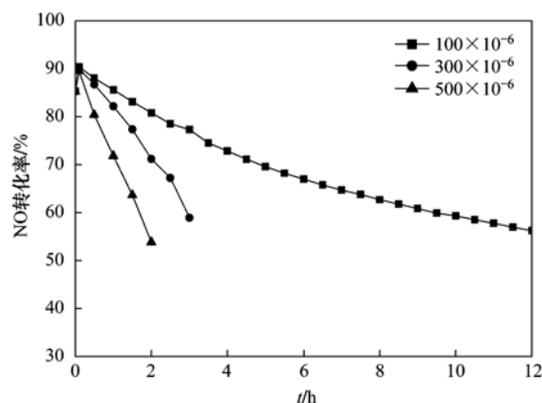


图 9 催化剂的稳定性测试

Fig. 9 Stability evaluation of the catalyst

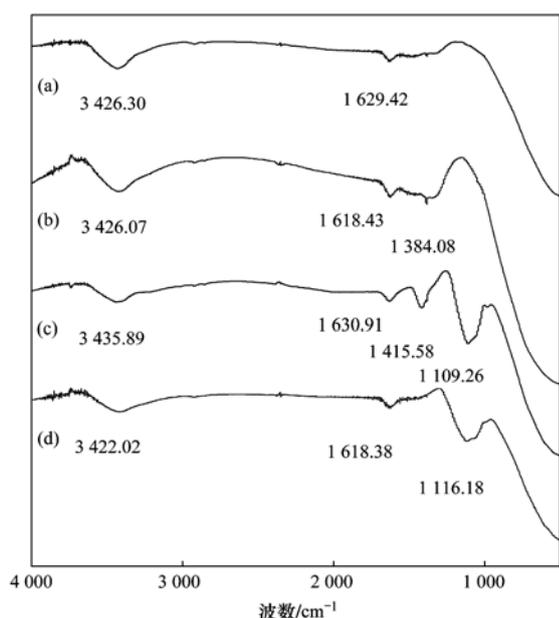
图 10 SO_2 和 H_2O 对催化剂脱硝性能的影响(120℃)Fig. 10 Effect of SO_2 and H_2O on NO conversion

由图 9 看出, 在无 SO_2 和 H_2O 条件下, 120℃ 时 8% Fe-10% $\text{MnO}_x\text{-CeO}_2/\text{ZrO}_2$ 催化剂的脱硝效率稳定在 85% 左右; 当通入 SO_2 和 H_2O 后, 图 10 所示, 在 3 种 SO_2 进气浓度下, 催化剂的脱硝效率在短时间内 (约 5min 左右) 均有所提高, 根据 Zhu 等^[22] 的研究, 低浓度 SO_2 使催化剂表面形成 SO_4^{2-} 及相应的表面酸性增强对催化活性具有一定的促进作用, 导致脱硝效率增大; 之后随着 SO_2 吸附时间的延

长,脱硝效率又立即下降.同时,可以看出,反应气中 SO₂ 浓度越高,催化剂失活越快.这表明反应气中 SO₂ 的浓度对催化剂的使用寿命影响甚大.

2.3.2 催化剂的 FT-IR 表征结果及中毒机制分析

为研究 8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂的中毒机制,分析催化剂表面生成的毒物种类,本实验分别对新鲜催化剂、无 H₂O 和 SO₂ 条件下经 SCR 反应后催化剂、抗 H₂O 和 SO₂ 测试后以及经 400℃ 加热活化再生处理后催化剂进行 FT-IR 分析,表征前,所有经过脱硝性能测试过的样品都用 N₂ 气流在相应的 SCR 反应温度下吹扫 4 h 以脱除反应过程中物理吸附的杂质,冷却至室温后取样进行分析.结果如图 11 所示.



(a)新鲜催化剂;(b)在无 H₂O 和 SO₂ 条件下经 SCR 反应后的催化剂;(c)抗 H₂O 和 SO₂ 测试后的催化剂;(d)活化再生后的催化剂

图 11 催化剂在不同阶段下的 FT-IR 图谱

Fig. 11 FT-IR spectra of the catalyst at different stages

图 11 所示,谱线(a)中只在 1 630 cm⁻¹和 3 430 cm⁻¹附近出现 H₂O 的特征峰^[23,24];谱线(b)中在 1 384 cm⁻¹附近出现 NO₃⁻ 的特征峰^[25];谱线(c)中在 1 415 cm⁻¹附近出现 NH₄⁺ 的特征峰,在 1 109 cm⁻¹附近出现 SO₄²⁻ 的特征峰,由此可以看出,经过抗 H₂O 和 SO₂ 测试后,催化剂表面有硫酸铵盐的存在;谱线(d)中存在 1 116 cm⁻¹附近的 SO₄²⁻ 特征峰,NH₄⁺ 的特征峰消失,说明经 400℃ 活化再生后,沉积在催化剂表面的硫酸铵盐已经完全分解,而谱

线中 SO₄²⁻ 特征峰的强度略有减弱但仍然存在,这是因催化剂中的 Mn、Ce 或 Fe 部分被硫酸盐化,且 400℃ 活化再生并不能使这部分硫酸盐分解^[26,27].

综上所述,8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂在同时抗 SO₂ 和 H₂O 测试中催化剂失活的主要原因:一是反应生成的硫酸铵盐在催化剂表面沉积,堵塞了催化剂孔道;二是催化剂的部分活性组分被硫酸盐化.

3 结论

(1)通过脱硝性能测试发现 MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂在低温下具有一定的催化活性,在反应温度 120℃ 下,成分比为 10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂具有最佳的低温脱硝性能,其脱硝效率为 74.92%.

(2)通过对 10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂添加助剂进行掺杂改性,发现助剂 Fe 的加入可提高催化剂的脱硝性能.8% Fe-10% MnO_x-CeO₂/ZrO₂ 催化剂具有良好的 NH₃-SCR 活性,反应温度在 120℃ 时,NO 转化率为 85.2%;反应温度为 180℃ 时,NO 转化率可达到 92.0%.

(3)在 SO₂ 和 H₂O 共存条件下,催化剂易失活,且 SO₂ 的浓度对催化剂的使用寿命影响甚大,反应气中 SO₂ 浓度越高,催化剂失活越快.

(4)经 FT-IR 表征发现催化剂失活的原因:一是 SO₂ 和 NH₃ 反应生成了 NH₄HSO₄ 或 (NH₄)₂SO₄ 沉积在催化剂表面,堵塞催化剂表面的孔道,使其活性降低;二是 SO₂ 与催化剂中的活性组分 Mn、Ce 或 Fe 反应生成硫酸盐,使催化剂的活性降低.

参考文献:

- [1] 伍斌,童志权,黄妍. MnO₂/NaY 催化剂上 NH₃ 低温选择性催化还原 NO_x[J]. 石油化工,2006,35(2):178-182.
- [2] 唐晓龙,郝吉明,徐文国,等. 固定源低温选择性催化还原 NO_x 技术研究进展[J]. 环境科学学报,2005,25(10):1297-1305.
- [3] Reiche M A, Ortelli E, Baiker A. Vanadia grafted on TiO₂-SiO₂, TiO₂ and SiO₂ aerogels: structural properties and catalytic behaviour in selective reduction of NO by NH₃[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 1999, 23(2-3):187-203.
- [4] Long R Q, Yang R T. Selective catalytic reduction of NO with ammonia over V₂O₅ doped TiO₂ pillared clay catalysts[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2000, 24(1):13-21.
- [5] 孙克勤,钟秦,李明波,等. V₂O₅-WO₃/TiO₂ 脱硝催化剂的制备及其性能研究[J]. 环境科学研究,2007,20(3):124-127.
- [6] Jung S M, Grange P. Characterization and reactivity of V₂O₅-WO₃ supported on TiO₂-SO₄²⁻ catalyst for the SCR reaction[J]. Applied Catalysis B: Environmental, 2001, 32(1-2):123-131.

- [7] Casagrande L, Lietti L, Nova I, *et al.* SCR of NO by NH₃ over TiO₂-supported V₂O₅-MoO₃ catalysts: reactivity and redox behavior [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 1999, **22** (1): 63-77.
- [8] 唐晓龙, 郝吉明, 易红宏, 等. 活性炭改性整体催化剂上低温选择性还原 NO_x [J]. *中国环境科学*, 2007, **27**(6): 845-850.
- [9] 张武英, 黄碧纯, 周广英, 等. 低温等离子体改性对 Fe₂O₃/ACF 低温选择性催化还原 NO 的影响 [J]. *环境科学学报*, 2009, **29**(10): 2025-2032.
- [10] Xu W Q, Yu Y B, Zhang C B, *et al.* Selective catalytic reduction of NO by NH₃ over a Ce/TiO₂ catalyst [J]. *Catalysis Communications*, 2008, **9**(6): 1453-1457.
- [11] Wu Z B, Jin R B, Liu Y, *et al.* Ceria modified MnO_x/TiO₂ as a superior catalyst for NO reduction with NH₃ at low-temperature [J]. *Catalysis Communications*, 2008, **9**(13): 2217-2220.
- [12] 郭静, 李彩亭, 路培, 等. CeO₂ 改性 MnO_x/Al₂O₃ 的低温 SCR 法脱硝性能及机制研究 [J]. *环境科学*, 2011, **32**(8): 2240-2246.
- [13] 丁艳敏, 李彩亭, 曾光明, 等. Mn/Fe-Mn 改性 HZSM-5 在 NH₃-SCR 中的催化性能 [J]. *环境科学学报*, 2009, **29** (12): 2572-2577.
- [14] 沈伯雄, 史展亮, 施建伟, 等. 基于 Mn-CeO_x/ACFN 的低温 SCR 脱硝 [J]. *化工进展*, 2008, **27**(1): 87-91.
- [15] 李晓伟, 赵惠忠, 汪厚植, 等. MnO_x/ZrO₂ 纳米催化剂的制备及 CO-SCR-NO 性能研究 [J]. *材料科学与工程学报*, 2005, **23**(6): 883-886.
- [16] 林涛, 李伟, 龚茂初, 等. ZrO₂-TiO₂-CeO₂ 的制备及其在 NH₃ 选择性催化还原 NO 中的应用 [J]. *物理化学学报*, 2007, **23**(12): 1851-1856.
- [17] Qi G S, Yang R T. Performance and kinetics study for low-temperature SCR of NO with NH₃ over MnO_x-CeO₂ catalyst [J]. *Journal of Catalysis*, 2003, **217**(2): 434-441.
- [18] 邓景发. 催化作用原理导论 [M]. 吉林: 吉林科学技术出版社, 1984. 226-283.
- [19] Eigenmann F, Maciejewski M, Baiker A. Selective reduction of NO by NH₃ over manganese-cerium mixed oxides: relation between adsorption, redox and catalytic behavior [J]. *Applied Catalysis B: Environmental*, 2006, **62**(3-4): 311-318.
- [20] Li J H, Chen J J, Ke R, *et al.* Effects of precursors on the surface Mn species and the activities for NO reduction over MnO_x/TiO₂ catalysts [J]. *Catalysis Communications*, 2007, **8** (12): 1896-1990.
- [21] 黄继辉. Mn-Fe/MPS 低温催化处理 NO_x 活性及抗毒性性能研究 [D]. 湘潭: 湘潭大学, 2008. 21.
- [22] Zhu Z P, Liu Z Y, Niu H X, *et al.* Mechanism of SO₂ promotion for NO reduction with NH₃ over activated carbon-supported vanadium oxide catalyst [J]. *Journal of Catalysis*, 2001, **197** (1): 6-16.
- [23] 罗晶, 童华, 童志权, 等. Cr-Ce/TiO₂ 低温催化还原 NO 性能研究 [J]. *石油化工*, 2010, **39**(9): 1046-1051.
- [24] 黄昕, 黄碧纯, 张春菊, 等. 等离子体改性对活性炭纤维低温选择性催化还原脱除 NO 的影响 [J]. *化工进展*, 2010, **29**(11): 2187-2192.
- [25] 黄继辉, 童华, 童志权, 等. H₂O 和 SO₂ 对 Mn-Fe/MPS 催化剂用于 NH₃ 低温还原 NO 的影响 [J]. *过程工程学报*, 2008, **8**(3): 517-522.
- [26] Shen B X, Liu T. Deactivation of MnO_x-CeO_x/ACF Catalysts for Low-Temperature NH₃-SCR in the Presence of SO₂ [J]. *Acta Physico-Chimica Sinica*, 2010, **26**(11): 3009-3016.
- [27] 肖勇, 刘振宇, 邢新艳, 等. V₂O₅/AC 催化剂吸附 NH₃ 及其选择性还原脱硝活性 [J]. *过程工程学报*, 2008, **8**(3): 460-465.

CONTENTS

Regional Heterogeneity of Lake Eutrophication Effects in China	CAO Jin-ling, XU Qi-gong, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (1777)
Correlating Landscape Pattern with Total Nitrogen Concentration Using a Location-weighted Sink-source Landscape Index in the Haihe River Basin, China	SUN Ran-hao, CHEN Li-ding, WANG Wei, <i>et al.</i> (1784)
Impact of the Land-use Change on the Non-point Source Nitrogen Load in Yunneng Lake Watershed	MENG Xiao-yun, YU Xing-xiu, PAN Xue-qin (1789)
Residue Characteristics and Distributions of Perfluorinated Compounds in Surface Seawater Along Shenzhen Coastline	CHEN Qing-wu, ZHANG Hong, CHAI Zhi-fang, <i>et al.</i> (1795)
Distribution and Potential Ecological Risk of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Sediments from Typical Electronics Industrial Zone	DENG Dai-yong, QIU Meng-de, SUN Guo-ping, <i>et al.</i> (1801)
Residues and Potential Ecological Risk Assessment of Metal in Sediments from Lower Reaches and Estuary of Pearl River	XIE Wen-ping, WANG Shao-bing, ZHU Xin-ping, <i>et al.</i> (1808)
Character and Sources Identification of Heavy Metals Contamination in Sediment from the Core Sediment in Nanshan Lake, the Zhalong Wetland	SU Dan, ZANG Shu-ying, YE Hua-xiang, <i>et al.</i> (1816)
Distribution Characteristics of Phosphorus Forms in Surface Sediments of the Shantou Bay in China	ZHAO Jian-gang, QIAO Yong-min (1823)
Microcosm Experiments on the Influence of Different N/P Ratios on Phytoplankton Community Growth in the East China Sea	HUANG Wei, ZHU Xu-yu, ZENG Jiang-ning, <i>et al.</i> (1832)
Species Composition and Distribution Characteristics of Pelagic Copepods in the Northern Sea of Fujian During Withdraw of Zhe-Min Coastal Current	WANG Yan-guo, LIN Jing-hong, WANG Chun-guang, <i>et al.</i> (1839)
PAHs Concentrations in Aquatic Products and Food Safety Evaluation in the Coupled Mangrove Planting-Aquaculture Ecological System	CHEN Guan-qiu, LI Yao-chu, HUANG Jin-mu, <i>et al.</i> (1846)
Tissue Distribution and Bioconcentration Factors of Tetrabromobisphenol A in Five Fishes in Lake Chaohu	YANG Su-wen, WANG Sheng-rui, YAN Zhen-guang, <i>et al.</i> (1852)
Induction Effects of Pentachlorophenol on Vitellogenin and p53 in Chinese Rare Minnow (<i>Gobiocypris rarus</i>)	XIONG Li, MA Yong-peng, ZHANG Xiao-zheng, <i>et al.</i> (1858)
Effects of Perfluorooctane Sulfonate (PFOS) Exposure on Vitellogenin mRNA Level in Zebrafish (<i>Brachydanio rerio</i>)	CHENG Yan, CUI Yuan, DANG Zhi-chao, <i>et al.</i> (1865)
Relationship Between Electron Transfer Capacity and Fluorescence Characteristics of Dissolved Organic Matter	TAO Ya, YUAN Tian, ZHOU Shun-gui, <i>et al.</i> (1871)
Characterization of the Change in DOM During Municipal Secondary Effluent Treatment with Magnetic Ion Exchange Resin by 3DEEM	YANG Jian, GAO Jin-hua, CHANG Jiang (1878)
Reverse Osmosis Membrane Fouling by Humic Acid Using XDLVO Approach; Effect of Calcium Ions	YAO Shu-di, GAO Xin-yu, GUO Ben-hua, <i>et al.</i> (1884)
Growth, Removal of Nitrogen and Phosphorus, and Lipid Accumulation Property of <i>Scenedesmus</i> sp. LX1 in Aquaculture Wastewater	MA Hong-fang, LI Xin, HU Hong-ying, <i>et al.</i> (1891)
Iron Chloride for Simultaneous Denitrification and Chemical-Biological Flocculation Process	WANG Hong-jie, DONG Wen-yi, LIU Li-sha, <i>et al.</i> (1897)
Characteristic Research of Shortcut Denitrification in Synthetic Ammonia Industrial Wastewater Treatment Process	LI Yan, LI Ze-bing, MA Jia-xuan, <i>et al.</i> (1902)
Stability Control of Aerobic Granules Using an Innovative Reactor	LI Zhi-hua, YANG Fan, LI Sheng, <i>et al.</i> (1907)
Description of the Stability of Granules Using Nongrowth-related Parameters	LI Zhi-hua, WU Jun, LI Sheng, <i>et al.</i> (1913)
Enhancement of Anaerobic Digestion of Excess Sludge by Acid-Alkali Pretreatment	YUAN Guang-huan, ZHOU Xing-qiu, WU Jian-dong (1918)
Pilot Validation of Sludge Concentration Partition at Small Reflux Ratio Condition	SHI Si, WANG Su-lan, LI Rui, <i>et al.</i> (1923)
Influence of Non-ionic Surfactants on Sludge Dewaterability	HOU Hai-pan, PU Wen-hong, SHI Ya-fei, <i>et al.</i> (1930)
Variation Characteristics and Influencing Factors of Air Pollution Index in China	LI Xiao-fei, ZHANG Ming-jun, WANG Sheng-jie, <i>et al.</i> (1936)
Characteristics of Aerosol Water-Soluble Inorganic Ions in Three Types Air-Pollution Incidents of Nanjing City	ZHANG Qiu-chen, ZHU Bin, SU Ji-feng, <i>et al.</i> (1944)
Characterization of Atmospheric PM _{2.5} in the Suburb of Shenzhen	DAI Wei, GAO Jia-qi, CAO Gang, <i>et al.</i> (1952)
Analysis on Oil Fume Particles in Catering Industry Cooking Emission	TAN De-sheng, KUANG Yuan-cheng, LIU Xin, <i>et al.</i> (1958)
Low-Temperature Catalytic Reduction of NO over Fe-MnO _x -CeO ₂ /ZrO ₂ Catalyst	LIU Rong, YANG Zhi-qin (1964)
CO ₂ Absorption and Regeneration Performance of a Natural Amino Acid and Its Potassium Salt	YAN Shui-ping, CHEN Jing-ao, XU Ming-liang, <i>et al.</i> (1971)
Effects of Tillage-Cropping Systems on Methane and Nitrous Oxide Emissions from Agro-Ecosystems in a Purple Paddy Soil	ZHANG Jun-ke, JIANG Chang-sheng, HAO Qing-ju, <i>et al.</i> (1979)
Factors Influencing Ammonia Volatilization in a Winter Wheat Field with Plastic Film Mulched Ridges and Unmulched Furrows	SHANGGUAN Yu-xian, SHI Ri-peng, LI Na, <i>et al.</i> (1987)
Effects of Typical Herbicides on Soil Respiration and N ₂ O Emissions from Soil Added with Different Nitrogen Fertilizers	SUN Qing, SHI Chun-xing, SHI Kun, <i>et al.</i> (1994)
Analysis of Characteristics of Dioxin Contamination in the Chlor-alkali Site that Uses Graphite Anode for Production	YU Li-feng, WEI Wen-xia, TIAN Ya-jing, <i>et al.</i> (2000)
Effect of Flue Gas Desulfurization Gypsum Application on Remediation of Acidified Forest Soil	LUO Yao, KANG Rong-hua, YU De-xiang, <i>et al.</i> (2006)
Morphology of Soil Iron Oxides and Its Correlation with Soil-Forming Process and Forming Conditions in a Karst Mountain	ZHANG Zhi-wei, ZHU Zhang-xiong, FU Wa-li, <i>et al.</i> (2013)
Pb, Zn Accumulation and Nutrient Uptake of 15 Plant Species Grown in Abandoned Mine Tailings	SHI Xiang, CHEN Yi-tai, WANG Shu-feng, <i>et al.</i> (2021)
Effect of Cr(VI) Stress on Growth of Three Herbaceous Plants and Their Cr Uptake	WANG Ai-yun, HUANG Shan-shan, ZHONG Guo-feng, <i>et al.</i> (2028)
Bioaccumulation of Heavy Metals by the Dominant Plants Growing in Huayuan Manganese and Lead/Zinc Mineland, Xiangxi	YANG Sheng-xiang, TIAN Qi-jian, LIANG Shi-chu, <i>et al.</i> (2038)
Effect of CO ₂ Fertilization on Residual Concentration of Cypermethrin in Rhizosphere of C3 and C4 Plant	MU Nan, DIAO Xiao-jun, WANG Shu-guang, <i>et al.</i> (2046)
Bioaugmented Removal of Pyridine and the Microbial Community Dynamic Analysis	QIAO Lin, ZHAO Hong, WANG Jian-long (2052)
Relationship Between Sewage Treatment Efficiency and Bacterial Community Diversity in an A/O MBR	KUANG Bin-yu, SHI Qing, Montcho Leon Monthero, <i>et al.</i> (2061)
Dynamic Changes in Functional Genes for Nitrogen Cycle During Bioremediation of Petroleum-Contaminated Soil	WU Bin-bin, LU Dian-nan, LIU Zheng (2068)
Risk Assessment of Lead Exposure from Different Intake Pathways for Children in Wuhan City	HAO Han-zhou, CHEN Tong-bin, WU Ji-liang, <i>et al.</i> (2075)
Implementation of a Pretreatment Device for an Electronic Nose	BU Fan-yang, WEN Xiao-gang, WAN Mei, <i>et al.</i> (2083)
Copper and Cadmium Toxicities to Activated Sludge Investigated with ToxTell Biosensor	WANG Xue-jiang, WANG Xin, LIU Mian, <i>et al.</i> (2090)
Matrix Effect and Control of Immunoassay for Environmental Samples	SHENG Jian-wu, HE Miao, SHI Han-chang (2095)
Study on Vitrification of Simulated Medical Wastes by Thermal Plasma	ZHANG Lu, YAN Jian-hua, DU Chang-ming, <i>et al.</i> (2104)
Study on the Low Temperature Drying of Components of Municipal Solid Waste and Its Model Analysis	WU Ya-juan, LIU Hong-mei, LU Sheng-yong, <i>et al.</i> (2110)
Aerogenesis Evolution of the Anaerobic-semiaerobic Bioreactor Landfill	HAN Zhi-yong, LIU Dan, LI Qi-bin (2118)
Performance of Microbial Fuel Cells with Fe/C Catalyst Carbon Felt Air-Cathode for Treating Landfill Leachate	TANG Yu-lan, PENG Man, YU Yan, <i>et al.</i> (2125)
Relationships Between Soil and Rocky Desertification in Typical Karst Mountain Area Based on Redundancy Analysis	LONG Jian, LIAO Hong-kai, LI Juan, <i>et al.</i> (2131)
Energy Consumption and GDP Growth in Beijing: Cointegration and Causality Analysis	CHEN Cao-cao, ZHANG Yan, LIU Chun-lan, <i>et al.</i> (2139)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2012年6月15日 33卷 第6期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 33 No. 6 Jun. 15, 2012

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel: 010-62941102, 010-62849343; Fax: 010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 70.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行