

# BaCeO<sub>3</sub>钙钛矿型氧化物的储氮和抗硫性能研究\*

陈加福, 孟明, 林培琰\*\*, 李新刚, 高爱梅, 俞寿明

(中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

**摘要:** 采用改进的溶胶-凝胶法制备了钙钛矿结构的 BaCeO<sub>3</sub> 样品,在此基础上再用浸渍法制备了 Pt/BaCeO<sub>3</sub>、Rh/BaCeO<sub>3</sub>、Pt-Rh/BaCeO<sub>3</sub> 样品,并用机械混合  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,再浸渍贵金属的方法制备了 Pt/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Rh/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Pt-Rh/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品. 储氮量(NSC)结果表明:对未加  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的 BaCeO<sub>3</sub> 来说,贵金属的加入反而使 NSC 减小. 加入贵金属催化剂的储氮量(NSC)大小为:Pt 的最大,Rh 的次之,Pt-Rh 的最小. $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的加入对 BaCeO<sub>3</sub> 吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 没有影响.而对于 BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品,贵金属的加入使 NSC 值提高了 3 倍以上.讨论了贵金属加入到 BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品中显著提高样品储氮能力的原因.结合 XRD 结果表明,钙钛矿 BaCeO<sub>3</sub> 相是 Ba-Ce-O 样品主要的 NO<sub>x</sub> 储存活性中心.NSC 结果还表明,BaCeO<sub>3</sub> 和 Pt/BaCeO<sub>3</sub> 催化剂在 SO<sub>2</sub> 为  $\leq 0.006\%$  时具有较好的抗硫性能.而 Pt/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 催化剂不但具有较好的储氮能力而且具有更好的抗硫性能.

**关键词:** 氮氧化物阱;储氮性能;抗硫性能;钡铈钙钛矿型

中图分类号:O643 文献标识码:A

## The NO<sub>x</sub> Storage and Resistance of SO<sub>2</sub> Poison on the BaCeO<sub>3</sub> Perovskite Type Oxides\*

Chen Jiafu, Meng Ming, Lin Peiyan, Li Xingang, Gao Aimei, Yu Shouming

(Department of Chemical Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026)

**Abstract** The BaCeO<sub>3</sub> perovskite type samples are prepared by the improved sol-gel method. Besides, the Pt/BaCeO<sub>3</sub>, Rh/BaCeO<sub>3</sub>, Pt-Rh/BaCeO<sub>3</sub> and the Pt/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Rh/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Pt-Rh/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> are also prepared. The results show that adding precious metals, the NSC of the BaCeO<sub>3</sub> samples decrease. The sequence of NSC is the Pt > Rh > Pt-Rh. Adding only  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> has no effect on the NSC of the BaCeO<sub>3</sub> sample. However, the NSC of Pt/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sample increases more than three times as much as that of the BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. The reason of the NO<sub>x</sub> storage enhancement by adding precious metals is discussed. Combining with XRD analysis, the perovskite type of BaCeO<sub>3</sub> is the main active phase of NO<sub>x</sub> storage for the Ba-Ce-O sample. The results also indicate that the BaCeO<sub>3</sub> and Pt/BaCeO<sub>3</sub> samples keep the ability to resist poison produced by SO<sub>2</sub> at  $\leq 0.006\%$  SO<sub>2</sub>, and the Pt/BaCeO<sub>3</sub>/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sample possesses not only high capacity of NO<sub>x</sub> storage but also high ability to resist poison produced by SO<sub>2</sub>.

**Key words** NO<sub>x</sub> traps, NO<sub>x</sub> storage, BaCeO<sub>3</sub> perovskite type, Resistance of SO<sub>2</sub>

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (29973037) and EYTP.

\*\* Corresponding author. E-mail: fulin@ustc.edu.cn Received 16 January 2003; in final form 24 April 2003.

## 1 引言

近年来,贫燃机或柴油机  $\text{NO}_x$  的排放已成为大气污染的主要原因之一. 利用  $\text{NO}_x$  储存-还原催化剂(NSRC)消除  $\text{NO}_x$  是当前一种很有前景的解决途径. 在贫燃条件下,  $\text{NO}$  先氧化成  $\text{NO}_2^-$  或  $\text{NO}_3^-$ , 在该类催化剂的碱性组分上(如: Ba、Sr、Ca、Li、K、La 等)被吸附或吸收<sup>[1-6]</sup>, 然后在富燃条件下,  $\text{NO}_x$  可还原成  $\text{N}_2$  释放出来<sup>[7]</sup>. 但它们的抗硫性能一般较差<sup>[8,9]</sup>. 具有高的储氮-放氮能力以及具有抗硫中毒能力是该类催化剂能否应用的关键所在. Hodjati 等提出钙钛矿结构的  $\text{BaSnO}_3$  具有较好的储氮性能和抗  $\text{SO}_2$  中毒性能<sup>[10-12]</sup>. 我们采用改进的溶胶-凝胶法制备了钙钛矿结构的  $\text{BaCeO}_3$  样品, 再用浸渍法制备了 Pt/ $\text{BaCeO}_3$ 、Rh/ $\text{BaCeO}_3$ 、Pt-Rh/ $\text{BaCeO}_3$  样品, 并用一种新的制备程序制备了 Pt/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、Rh/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、Pt-Rh/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  样品. 测定了在  $400^\circ\text{C}$  富氧条件下  $\text{NO}_x$  储存量(NSC)和氮氧化物吸收物种, 系统考察了钙钛矿结构  $\text{BaCeO}_3$  系列样品的  $\text{NO}_x$  储存性能, 并发现它们有较好的抗硫性能.

## 2 实验

### 2.1 样品的制备

采用改进的溶胶-凝胶法制备  $\text{BaCeO}_3$  样品. 在  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  中倒入柠檬酸( $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O}$ )溶液使其溶解, 然后与  $\text{Ce}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  溶液混合(摩尔比为 Ba: Ce:  $\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7 \cdot \text{H}_2\text{O} = 1: 1: 1$ ), 在  $120^\circ\text{C}$  搅拌烘干, 以程序升温至  $900^\circ\text{C}$ , 恒温 4 h.

用浸渍法制备了 Pt/ $\text{BaCeO}_3$ (Pt 的质量分数为 0.5%)、Rh/ $\text{BaCeO}_3$ (Rh 的质量分数为 0.5%)、Pt-Rh/ $\text{BaCeO}_3$ (Pt-Rh 的质量分数: 0.5%,  $w(\text{Pt}): w(\text{Rh}) = 3: 2$ )样品. 分别将 Pt 溶液、Rh 溶液和 Pt-Rh 溶液加入  $\text{BaCeO}_3$  中, 均放置 12 h, 烘干, 在  $500^\circ\text{C}$  焙烧 2 h, 然后在  $450^\circ\text{C}$  氢气还原 1 h.

用机械混合  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , 再浸渍贵金属的方法制备了 Pt/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Pt 的质量分数 0.5%)、Rh/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Rh 的质量分数: 0.5%)、Pt-Rh/ $\text{BaCeO}_3/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Pt-Rh 的质量分数: 0.5%,  $w(\text{Pt}): w(\text{Rh}) = 3: 2$ )样品. 先分别将  $\text{BaCeO}_3$  和  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  研磨至一定程度, 然后以  $w(\text{BaCeO}_3): w(\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3) = 1: 1$  的比例混合, 充分研磨. 然后用上述的浸渍法

加入贵金属.

### 2.2 X 射线衍射(XRD)的测定

在 D/MAX-RAX 型转靶 X 射线衍射仪上进行物相测定, 以  $\text{CuK}\alpha$  为辐射源. 采用粉体样品, 扫描范围为  $2\theta = 10^\circ \sim 70^\circ$ , 管电流 100 mA, 量程 2000 (CPS).

### 2.3 比表面积(BET)的测定

在美国产的 Micrometics ASAP2000 比表面-孔径测定仪上进行测定, He 作载气,  $\text{N}_2$  作吸附气.

### 2.4 FT-IR 的测定

在德国 Bruker 公司生产的 VECTOR-22 型傅里叶变换红外光谱仪上, 对于分别在  $200$  和  $400^\circ\text{C}$  下含  $\text{O}_2$  为 5.3%、 $\text{NO}$  为 0.08% 和不同含量的  $\text{SO}_2$  的  $\text{N}_2$  气流中吸附和吸收 0.5 h 后的 Ba-Ce-O 样品进行氮氧化物吸收物种的测定, 分辨率为 1 或  $0.5 \text{ cm}^{-1}$  (可选), 信噪比优于  $3 \times 10^4: 1$ .

### 2.5 $\text{NO}_x$ 储存量(NSC)的测定

在连续流动微型反应器中进行测定, 样品用量 0.5 mL, 被吸附及吸收气中体积分数  $\text{NO}$  为 0.08%,  $\text{O}_2$  为 5.3% 和不同含量的  $\text{SO}_2$ , 其余为  $\text{N}_2$ , 空速  $2.52 \times 10^4 \text{ h}^{-1}$ . 样品均先在  $450^\circ\text{C}$  用高纯氮气吹扫 1 h, 在  $400^\circ\text{C}$  进行  $\text{NO}$  和  $\text{O}_2$  吸收, 记录时间均为 21 min.  $\text{NO}_x$  浓度采用北京分析仪器厂生产的 8840 型化学发光式氮氧化物分析仪测定.

## 3 结果与讨论

### 3.1 XRD 结果

图 1 是 Ba-Ce-O 在  $900^\circ\text{C}$  焙烧样品的 XRD 谱, 图中标以 1、2 的两组衍射峰分别对应  $\text{BaCeO}_3$ 、 $\text{CeO}_2$  相的衍射. 由图可知, 样品中主要为钙钛矿结

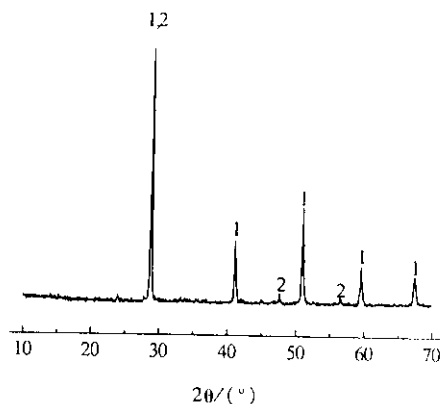


图 1  $900^\circ\text{C}$  焙烧 Ba-Ce-O 样品的 XRD 谱  
Fig. 1 XRD patterns of the Ba-Ce-O sample calcined at  $900^\circ\text{C}$   
(1):  $\text{BaCeO}_3$ ; (2):  $\text{CeO}_2$

构的 BaCeO<sub>3</sub> 相并有少量的 CeO<sub>2</sub>.

### 3.2 FT-IR 结果

图 2 是 BaCeO<sub>3</sub> 新鲜样品在不同条件下吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 后的 FT-IR 谱. 图中 1383.6、1348.9、816.6、729.8 cm<sup>-1</sup> 对应硝酸盐的吸收峰, 1422.0、857.0、693.2 cm<sup>-1</sup> 对应碳酸盐的吸收峰, 1170.0、

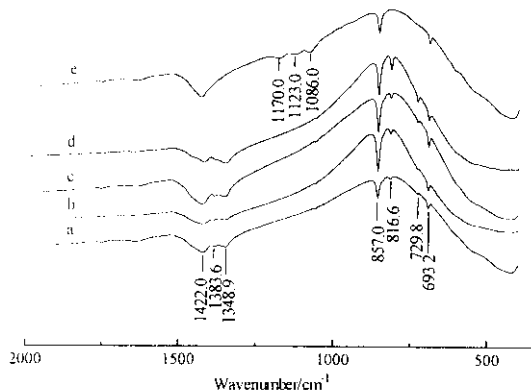


图 2 在 400°C 下 BaCeO<sub>3</sub> 样品的 FT-IR 谱

- a. 吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 持续 0.5 h ;
- b. 吸收 NO ,O<sub>2</sub> 和 0.006 % SO<sub>2</sub> 持续 0.5 h ;
- c. 吸收 NO ,O<sub>2</sub> 和 0.01% SO<sub>2</sub> 持续 0.5 h ;
- d. 吸收 NO ,O<sub>2</sub> 和 0.01% SO<sub>2</sub> 持续 1 h ;
- e. 60 mL/min 下吸收 NO、O<sub>2</sub> 和 0.67% SO<sub>2</sub> 持续 0.5 h 再程序升温脱附至 750°C.

Fig.2 The FT-IR spectra of the BaCeO<sub>3</sub> sample under the different conditions at 400°C

- a. Absorbing NO and O<sub>2</sub> for 0.5 h ;
- b. Absorbing NO ,O<sub>2</sub> and 0.06%SO<sub>2</sub> for 0.5 h ;
- c. Absorbing NO ,O<sub>2</sub> and 0.1%SO<sub>2</sub> for 0.5 h ;
- d. Absorbing NO ,O<sub>2</sub> and 0.1%SO<sub>2</sub> for 1 h ;
- e. Having absorbed NO ,O<sub>2</sub> and 6.7%SO<sub>2</sub> for 0.5 h with a flow velocity of 60 mL/min , and desorping up to 750°C.

1123.0、1086.0 cm<sup>-1</sup> 对应硫酸盐的吸收峰. 由 a、b 和 c 的吸收峰可看出, 加入 SO<sub>2</sub> 后硝酸盐的吸收峰没有减弱; 从 d 的吸收峰可知, 在 0.01% SO<sub>2</sub> 条件下吸收 1 h 后硝酸盐的吸收峰反而有所增强, 而未出现硫酸盐的吸收峰; e 样品为含 0.67% SO<sub>2</sub> 的 NO + O<sub>2</sub> 气氛中吸收并程序升温至 750°C 脱附后, 出现了硫酸盐的吸收峰, 说明 BaCeO<sub>3</sub> 只有在 SO<sub>2</sub> 含量很高, NO 含量较低条件下才生成了硫酸盐. 图 3 是 Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 新鲜样品和新鲜样品在不同条件下吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 后的 FT-IR 谱. 图中 1358.0、1384.4 cm<sup>-1</sup> 对应硝酸盐的吸收峰, 1415.6 cm<sup>-1</sup> 对

应碳酸盐的吸收峰, 1633.3 cm<sup>-1</sup> 对应水的吸收峰. 可看出, 新鲜样品中有碳酸盐和水存在, 这可能是由于样品长期置于空气中所致. 在 400°C 吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 后均有较强的硝酸盐吸收峰, 且随着 SO<sub>2</sub> 的加入和其含量的增加, 硝酸盐的吸收峰也反而有所增强, 在图 3 中未发现有硫酸盐的吸收峰. 这是一个很有意义的结果. 有可能是 SO<sub>2</sub> 将 NO 氧化成 NO<sub>2</sub> 促进了硝酸盐的生成. 此过程尚需进一步研究,

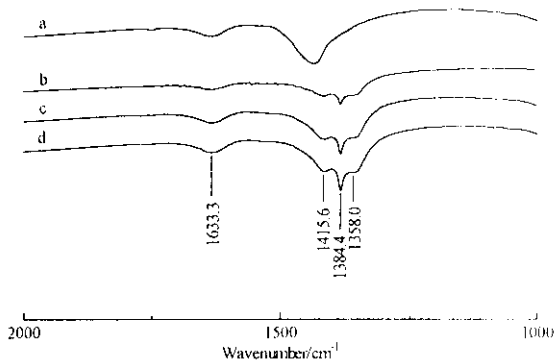


图 3 在 400°C 下 Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品的 FT-IR 谱

- a. 新鲜样品 ;
- b. 吸收 NO 和 O<sub>2</sub> 持续 0.5 h ;
- c. 吸收 NO ,O<sub>2</sub> 和 0.06%SO<sub>2</sub> 持续 0.5 h ;
- d. 吸收 NO ,O<sub>2</sub> 和 0.1%SO<sub>2</sub> 持续 0.5 h

Fig.3 The FT-IR spectra of the Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sample under the different conditions at 400°C

- a. Fresh sample ;
- b. Absorbing NO and O<sub>2</sub> for 0.5 h ;
- c. Absorbing NO and O<sub>2</sub> and 0.06 %SO<sub>2</sub> for 0.5 h ;
- d. Absorbing NO and O<sub>2</sub> and 0.1%SO<sub>2</sub> for 0.5 h.

### 3.3 样品的储氮量( NSC )和比表面( SA )

表 1 和表 2 为根据吸收曲线积分得到的 NSC 值和 BET 比表面值. 由表 1 可以看出, 对 BaCeO<sub>3</sub> 来说, 贵金属的加入没有促进对 NO 和 O<sub>2</sub> 的吸收, 反而使 NSC 减小. 就加入贵金属的 BaCeO<sub>3</sub> 催化剂的 NSC 来说, Pt 的最大, Rh 的次之, Pt-Rh 的最小. 与 γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 机械混合的 BaCeO<sub>3</sub> 系列样品的 NSC 大小顺序为: Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> > Rh/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> > Pt-Rh/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> >> BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. 由表中 BaCeO<sub>3</sub>、γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 和 BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 三种样品的 NSC 值可看出, NSC( BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ) = NSC( BaCeO<sub>3</sub> )/2 + NSC( γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> )/2, 又因 BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品中 w( BaCeO<sub>3</sub> ) : w( γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ) = 1 : 1, 可见 γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的加入对 BaCeO<sub>3</sub> 样品吸收 NO<sub>x</sub> 没有影响, NSC 值只是两者简单的加和. 但可以看出, 贵金属的加入大大促进了 BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 样品对 NO<sub>x</sub> 的吸

表1 在400℃吸收时的NO<sub>x</sub>储存量(NSC)和BET比表面Table1 The NO<sub>x</sub> storage capacity( NSC ) and BET surface area when NO<sub>x</sub> is absorbed at 400℃

| Catalyst   | NO <sub>x</sub> storage |  |
|--|-------------------------|--|
|  | capacity/( μmol/g )     | BET surface area/( m <sup>2</sup> /g ) |
| BaCeO <sub>3</sub>   | 92.3                    | 6.6                                    |
| Pt/BaCeO <sub>3</sub>                                      | 82.4                    |  |
| Rh/BaCeO <sub>3</sub>                                      | 53.8                    |  |
| Pt-Rh/BaCeO <sub>3</sub>                                   | 52.6                    |  |
| BaCeO <sub>3</sub> /γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>       | 61.0                    | 56.8                                   |
| Pt/BaCeO <sub>3</sub> /γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>    | 201.6                   |  |
| Rh/BaCeO <sub>3</sub> /γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>    | 184.9                   |  |
| Pt-Rh/BaCeO <sub>3</sub> /γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 179.4                   |  |
| γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>                           | 30.7                    |  |

表2 新鲜样品在不同含量的SO<sub>2</sub>存在下400℃吸收时的NO<sub>x</sub>储存量Table 2 The NO<sub>x</sub> storage capacity of the fresh samples when NO<sub>x</sub> is absorbed at 400℃ with different concentration of SO<sub>2</sub>

| Catalyst  | NO <sub>x</sub> storage capacity/( μmol/g ) |                      |                     |
|---|---|----------------------|---------------------|
|   | 0.045%SO <sub>2</sub>                       | 0.06%SO <sub>2</sub> | 0.1%SO <sub>2</sub> |
| BaCeO <sub>3</sub>                                      | 93.5  | 92.9                 | 61.7                |
| Pt/BaCeO <sub>3</sub>                                   | 88.6  | 93.2                 | 52.9                |
| Pt/BaCeO <sub>3</sub> /γ-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 202.8                                       | 199.2                | 195.5               |

收,具有较大的NSC值,其中,样品Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的NSC最大,为201.6 μmol/g.这是贵金属、BaCeO<sub>3</sub>和γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>三者共同作用的结果.有可能是贵金属主要高度分散在比表面较大的γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>上,它促使NO氧化成NO<sub>2</sub>和NO<sub>3</sub><sup>-</sup>.而非负载的Pt/BaCeO<sub>3</sub>类样品上相同的贵金属量只能堆积在比表面很小的BaCeO<sub>3</sub>上,因而影响了NO氧化效率和储氮量.结合XRD结果表明,钙钛矿BaCeO<sub>3</sub>相是BaCeO<sub>3</sub>样品主要的NO<sub>x</sub>储存活性中心.表2是新鲜

样品在不同浓度的SO<sub>2</sub>存在下的NSC.可以看出,随着SO<sub>2</sub>含量增至0.01%时,各样品的NSC均有减小的趋势.较低含量(0.0045%和0.006%)SO<sub>2</sub>对NSC的大小影响不明显.结合表1中的NSC值比较可知,BaCeO<sub>3</sub>和Pt/BaCeO<sub>3</sub>催化剂在SO<sub>2</sub>浓度较低时具有较好的抗硫性能.而Pt/BaCeO<sub>3</sub>/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>催化剂不但具有较好的储氮能力而且比前者具有更好的抗硫性能.

## 参 考 文 献

- [1] European patent :0 857 510 A1 ,1997.
- [2] European patent :0 845 289 A1 ,1997.
- [3] Japanese patent :特开平 10-286462 ,1998.
- [4] Fridell E , Skoglundh M , Westerberg B , Johansson S , Smedler G. *J. Catal.* ,1999 ,**183** :196
- [5] Li Xingang ( 李新刚 ) , Meng Ming ( 孟明 ) , Lin Peiyan ( 林培琰 ) *et al. Chin. J. Mole. Catal.* ( 分子催化 ) ,2001 ,**15** :165
- [6] Li Xingang ( 李新刚 ) , Meng Ming ( 孟明 ) , Lin Peiyan ( 林培琰 ) , Wang Wendong ( 汪文栋 ) . *Chin. J. Chem. Phys.* ( 化学物理学报 ) ,2001 ,**14** :501
- [7] Takahashi N , Shinjoh H , Iijima T , Suzuki T , Yamazaki K , Yokota K , Suzuki H , Miyoshi N , Matsumoto S , Tanizawa T , Tanaka T , Tateishi S , Kasahara K. *Catal. Today* ,1996 **27** :63
- [8] Fridell E , Persson H , Olsson L , Westerberg B , Amberntsson A and Skoglundh M. *Top. Catal.* 2001 ,**16-17** :133
- [9] Sedlmair Ch , Seshan K , Jentys A , Lercher J. A. *Catal. Today* ,2002 ,**75** :413
- [10] Hodjati S , Vaezzadeh K , Petit C , Pitchon V , Kienemann A. *Appl. Catal. B* ,2000 ,**26** :5
- [11] Hodjati S , Vaezzadeh K , Petit C , Pitchon V , Kienemann A. *Appl. Catal. B* ,2000 ,**27** :117
- [12] Hodjati S , Petit C , Pitchon V , Kienemann A. *Appl. Catal. B* ,2001 ,**30** :247