



## 大化所反应条件下纳米催化材料稳定性理论取得新进展

文章来源：大连化学物理研究所

发布时间：2013-02-01

【字号：小 中 大】

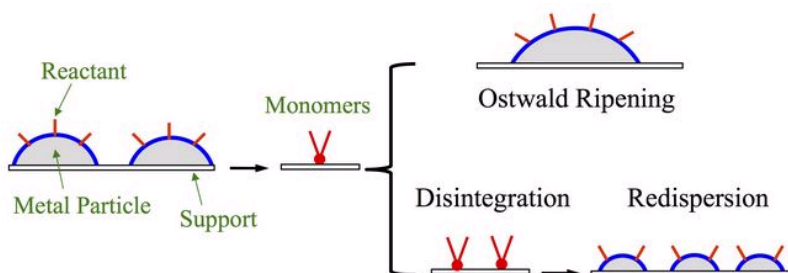
近日，中科院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室理论催化课题组李微雪研究员与博士研究生欧阳润海在反应条件下纳米催化剂稳定性理论研究方面工作取得最新进展，研究成果以全文在线发表在*Journal of the American Chemical Society* (DOI: 10.1021/ja3087054)。

纳米催化剂由于尺寸较小、比表面积高，稳定性差，在热力学上倾向于聚集和烧结。在实际反应条件下，催化剂的聚集和烧结可能会被进一步显著加快，并最终导致催化剂失活。因此如何提高反应条件下催化剂的稳定性、抑制催化剂的烧结，并且高效地实现烧结催化剂的分解与再生，是多相催化剂工业化过程中长期以来所面临的重大课题。

反应条件下催化剂的稳定性和烧结，不仅仅依赖于催化剂和载体的相互作用，还具体的依赖于催化剂组分、催化反应所涉及的分子和反应历程。催化剂的担载量、尺寸、分布、形貌、反应的温度和压力，也会显著地影响着催化剂的稳定性和烧结行为。烧结催化剂的分解与再生，因催化剂和载体的不同而不同。这些众多复杂因素的交织也使得催化剂制备、载体的选择和反应条件的优化设计变得极具挑战性。目前主要依赖于经验的方法来实现，缺乏有效、统一的微观理论指导。

理论催化课题组在全面考虑上述众多因素的基础上，以催化剂失活中经典的Ostwald熟化过程为对象，首次从微观上建立了描述实际反应条件下催化剂烧结和分解的一般性理论，具体包括纳米催化剂的能量、熟化中间体的形成与扩散、相应的催化剂烧结动力学方程。从理论上确定了影响催化剂烧结动力学的关键因素，推导出反应物促进催化剂熟化、诱导催化剂分解的热力学判据。在此基础上提出如何通过优化载体、反应条件、控制催化剂的尺寸和分布来抑制催化剂的烧结，以及如何选择载气实现催化剂再生的一般性策略。该工作以一氧化碳气氛下负载型铈纳米催化剂的熟化和分解为例展开详尽分析，计算所得的结果在很宽反应温度、压力和催化剂尺寸范围内都与实验结果相一致，证实了理论方法的正确性和实用性。该理论的一个显著特点是：理论所需的大部分参数都能够由第一性原理计算得到，借此可以通过数值模拟方便、快捷的进行催化剂烧结动力学和稳定性的优化设计，相关的理论研究工作正在进行中。

该工作得到国家自然科学基金和科技部973项目的资助，科学计算在天津国家超级计算中心“天河一号”上完成。

[论文链接](#)


反应条件下纳米催化材料稳定性理论取得新进展

