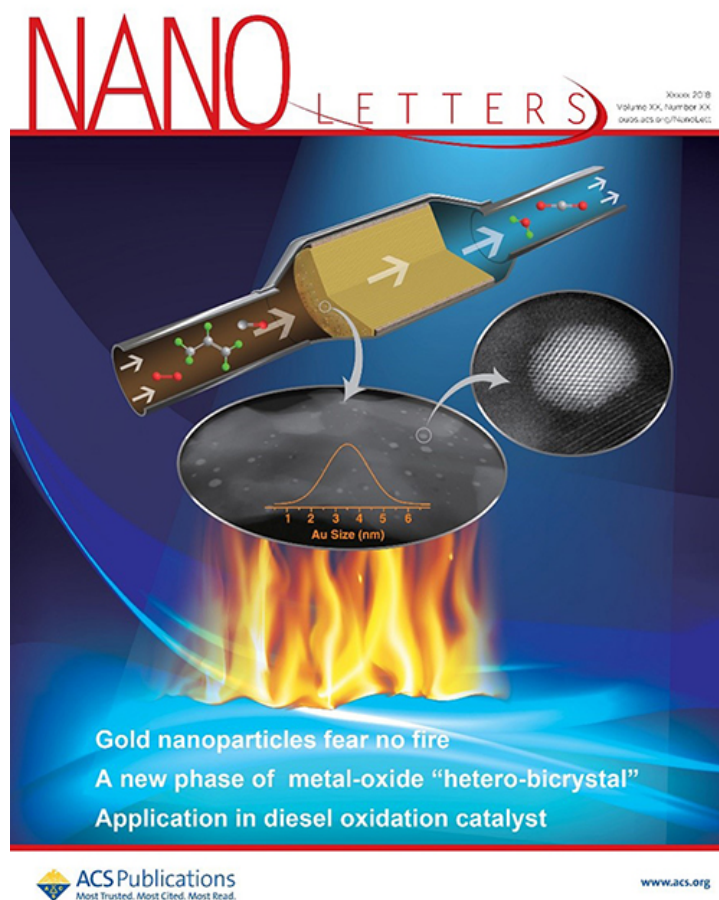


我所制备出抗1100°C高温的异质孪晶纳米金催化剂

www.dicp.cas.cn 发布时间: 2018-09-17 供稿部门: 十五室

【大】【中】【小】

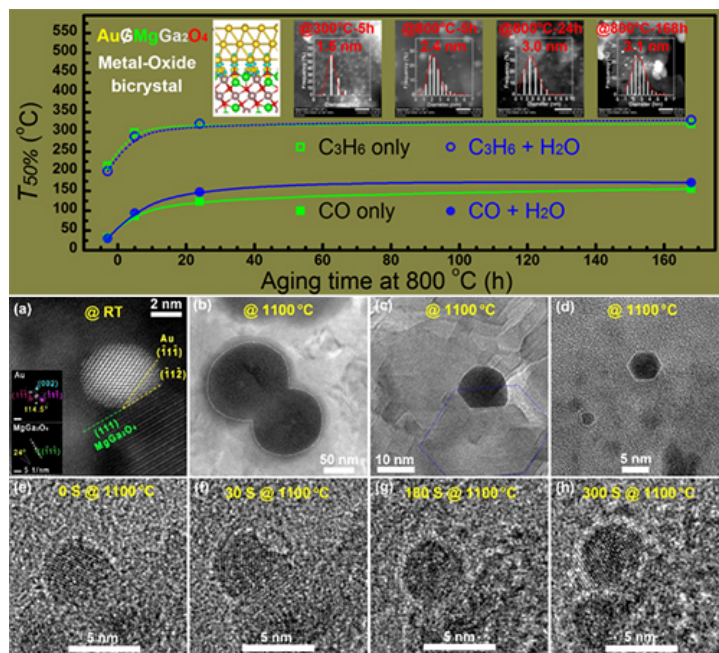
近日, 我所航天催化与新材料研究中心张涛院士和李为臻研究员团队与清华大学李隽教授团队合作, 报道了抗1100°C高温的纳米金催化剂研究工作, 该论文发表于《纳米快报》([Nano Letters](#)), 并被选为当期补充封面。



金属纳米催化剂的热稳定性和催化活性通常表现出此消彼长的跷跷板关系, 这一现象在纳米金催化剂上尤为显著。三十多年前, 小尺寸(1-5nm)金纳米粒子在低温下优异的催化CO氧化活性的发现, 曾一度让人惊艳, 刷新了人们对化学惰性金的催化性能乃至纳米催化的认识, 并兴起了金催化的“淘金热”。至今, 科研人员已发现纳米金催化剂对氧化、加氢、氯化, 以及碳碳偶联等众多反应过程都具有良好的催化效果。然而, 由于小尺寸金纳米粒子熔点大约在330-380°C, 即使负载在载体上, 其热稳定性也较差, 很容易团聚失活, 这严重阻碍了纳米金催化剂的工业化应用。与金纳米粒子化学惰性高, 阻碍人们对其催化性能的认识类似, 块体金的熔点相对较低(1064°C)也显著影响了人们对稳定小尺寸纳米金颗粒的信心。

该团队通过前期工作发现, 由于尖晶石型氧化物的氧和贵金属原子都是密堆积结构, 铝系尖晶石载体可以有效地稳定晶格参数比尖晶石中氧亚晶格参数小的贵金属及合金纳米粒子(如Rh, Pd, Ir和Pt等), 而不能稳定晶格参数更大的Au和Ag([Nat. Commun.](#), [Chem. Mater.](#), [Appl. Catal. B-Environ.](#), [J. Catal.](#))。因此, 利用氧亚晶格参数更大的MgGa₂O₄尖晶石载体, 有望实现对金纳米粒子的稳定。本工作中, 科研人员通过理论计算证实Au在MgGa₂O₄(111)面上的确较在MgAl₂O₄(111)面上更为稳定; 利用简单浸渍法制备了MgGa₂O₄负载的尺寸约为1.5nm的金纳米粒子, 经过800°C高温焙烧5小时乃至28天后发现, 除少数金颗粒尺寸较大外, 多数金颗粒都是2-3nm的小尺寸纳米粒子了。研究发现, 即使在1100°C高温焙烧5小时后, 约3.6nm的小尺寸金纳米粒子仍稳定存在。对该超常稳定结构进行球差电镜分析发现, 二者的接触界面为Au(112)和MgGa₂O₄(111); 进一步进行1100°C原位加热高分辨电镜观察发现, 在一大颗粒金发生熔化的温度下, 小尺

寸金纳米粒子仍以可给出清晰晶格条纹的晶粒形式存在。熔点改变表明纳米金晶相发生了变化，即Au-MgGa₂O₄长在一起形成新的晶相，科研人员将其命名为金属-氧化物“异质孪晶”，并以“G”符号指代这一不同于常规负载型结构的特殊“growing on”结构。通过测定单位质量金的熔化热，可知1100°C焙烧后仍有80%以上的金以异质孪晶结构存在。该Au/MgGa₂O₄催化剂具有负载型纳米金催化剂的尺寸效应和载体效应，经800°C老化后，仍保持纳米金的高催化活性，催化CO和丙烯燃烧的起燃温度分别约为150°C和300°C，有望作为活性组分用于柴油发动机尾气氧化催化剂，解决冷启动期间铂族金属低温消除CO不力的问题。



纳米金颗粒能在高于块体金熔点温度下稳定存在，与其低温催化CO氧化一样，一方面让人惊异于其特殊性，另一方面也展现了金作为金属的共性：金其实像其他铂族金属一样，可被构筑为稳定的高活性催化剂。该工作中提出的金属-氧化物异质孪晶概念，可用于理解尖晶石族氧化物稳定贵金属纳米粒子的机制，也有望用于指导其他耐高温纳米贵金属及合金催化剂的制备。金属-氧化物异质孪晶界面组成与结构仍有待在原子尺度上被进一步揭示。

上述研究工作得到中科院“百人计划”、国家自然科学基金、中国科学院战略性先导科技专项和国家重点研发计划“纳米科技”重点专项等项目的资助。（文/图 任国庆）

【打印】 【关闭】 【返回】