



新闻动态

科技新闻

通知公告

支部活动

学习园地

信息公开

科技新闻

当前位置: 首页 | 新闻动态 | 科技新闻

中国科大成功量化抑制催化剂烧结的临界颗粒距离

来源: 科研部 发布时间: 2021-08-12 浏览次数: 193

近日, 中国科大梁海伟教授课题组与李微雪教授课题组等开展实验和理论合作研究, 成功量化抑制催化剂烧结的临界颗粒距离, 在此基础上提出了制备高负载量纳米催化剂的有效策略。该研究成果以“Quantification of critical particle distance for mitigating catalyst sintering”为题, 发表在国际期刊Nature Communications上。

在多相催化领域, 负载型金属纳米颗粒催化剂的烧结问题一直是研究热点。特别是在高温下, 由于表面能随着粒径的减小而急剧增加, 金属纳米颗粒有很强的烧结倾向。这种烧结不可避免地会导致活性金属表面积损失, 从而导致催化剂失活。催化剂烧结的机制包括颗粒迁移和聚集(PMC)和Ostwald熟化两种, 无论通过哪种路径, 纳米颗粒或者其上原子物种都需要跨越颗粒间距建立接触才能发生。由此可见, 颗粒间距在催化剂烧结中起到关键作用, 但迄今为止没有引起足够的关注, 并缺少相关的量化研究。

在该项工作中, 研究人员首先使用具有不同比表面积的碳载体, 通过调控金属负载量构建出不同颗粒间距的催化剂体系, 并考察他们在高温900°C下的烧结情况(图1)。高角环形暗场透射电镜和X射线衍射表征发现存在明显的抑制金属烧结的临界负载量和临界颗粒距离。基于此, 研究人员量化出抑制催化剂烧结的临界颗粒距离(图2)。

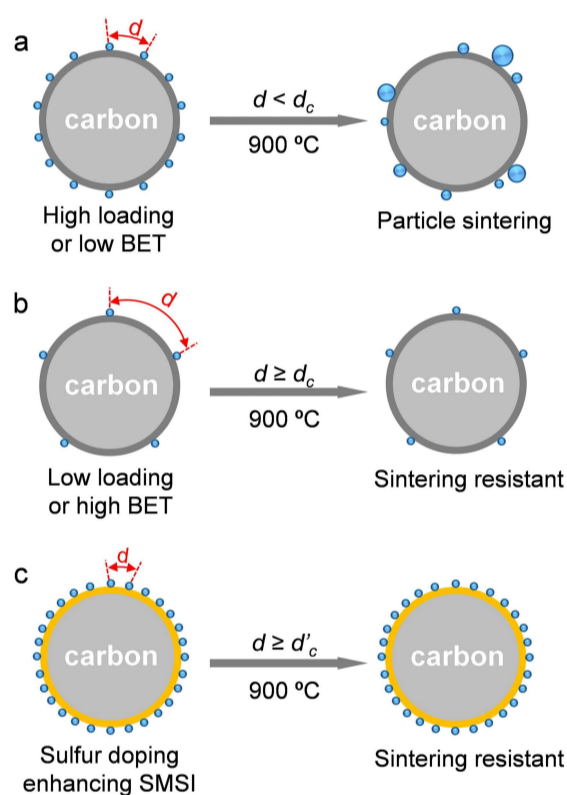


图1. 量化抑制催化剂烧结的临界颗粒距离示意图

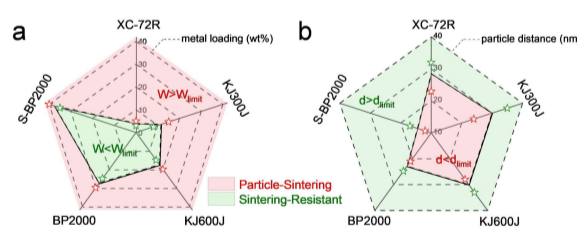


图2. 临界负载量和临界颗粒距离分析

原位高温球差电镜研究发现, 存在临界颗粒距离的原因是颗粒距离依赖的烧结机制现象: 在颗粒间距较小的催化剂中, 颗粒相距较近, 主要通过PMC机制发生烧结, 并且聚集引起的粒径分布宽化会增加不同颗粒尺寸和表面能的差异, 从而加剧颗粒Ostwald熟化; 而在颗粒间距较大的催化剂中, 颗粒相距较远, PMC机制被很大程度上抑制, 同时Ostwald熟化也会减缓(图3)。

研究人员通过测量金属与碳载体之间的接触角而计算出界面粘附能, 进一步计算出金属颗粒表面化学势; 结合烧结动力学理论研究, 研究人员得到颗粒在载体表面扩散的动力学关系, 并发现临界颗粒距离取决于金属和载体相互作用的强度(图4)。进一步, 研究人员探索了该类催化剂在高温丙烷脱氢催化反应中的抗烧结特性, 说明了临界颗粒距离的量化研究对实际催化反应的意义。

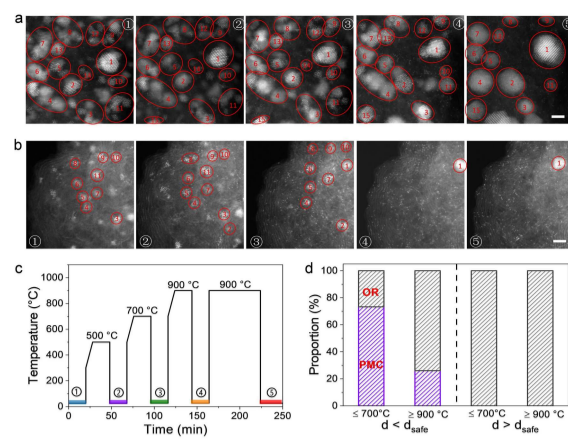


图3.原位球差电镜研究烧结机制

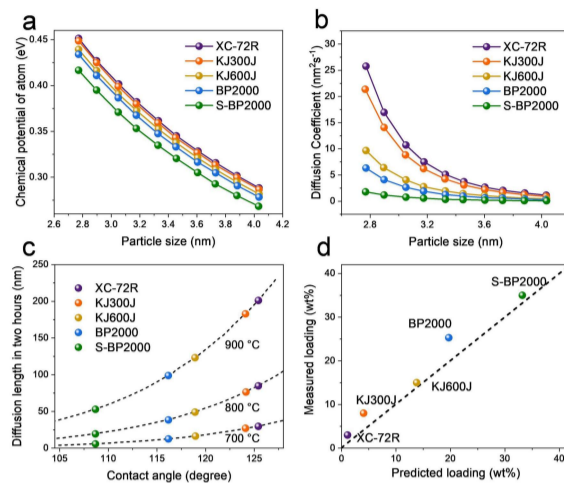


图4.抑制金属烧结临界距离的理论研究

该项工作提供了一种对于给定催化剂载体预测最高担载量的方法，并提供了一种通过调节金属和载体相互作用以及载体比表面积来系统地提高抗烧结催化剂最大担载量的有效策略。

中国科大博士研究生尹鹏和特任副研究员胡素磊为论文共同第一作者。梁海伟教授和李微雪教授为论文共同通讯作者。本项工作的合作者还包括中国科大黄伟新教授、干坤副教授，以及厦门大学熊海峰教授。该项研究得到了国家重点研发计划基金、中科院前沿重点项目、国家自然科学基金、中央高校基本科研业务费专项基金、中科院青促会、以及中科大同步辐射联合基金的资助。

文章链接: <https://www.nature.com/articles/s41467-021-25116-2>

(微尺度物质科学国家研究中心、化学与材料科学学院、科研部)