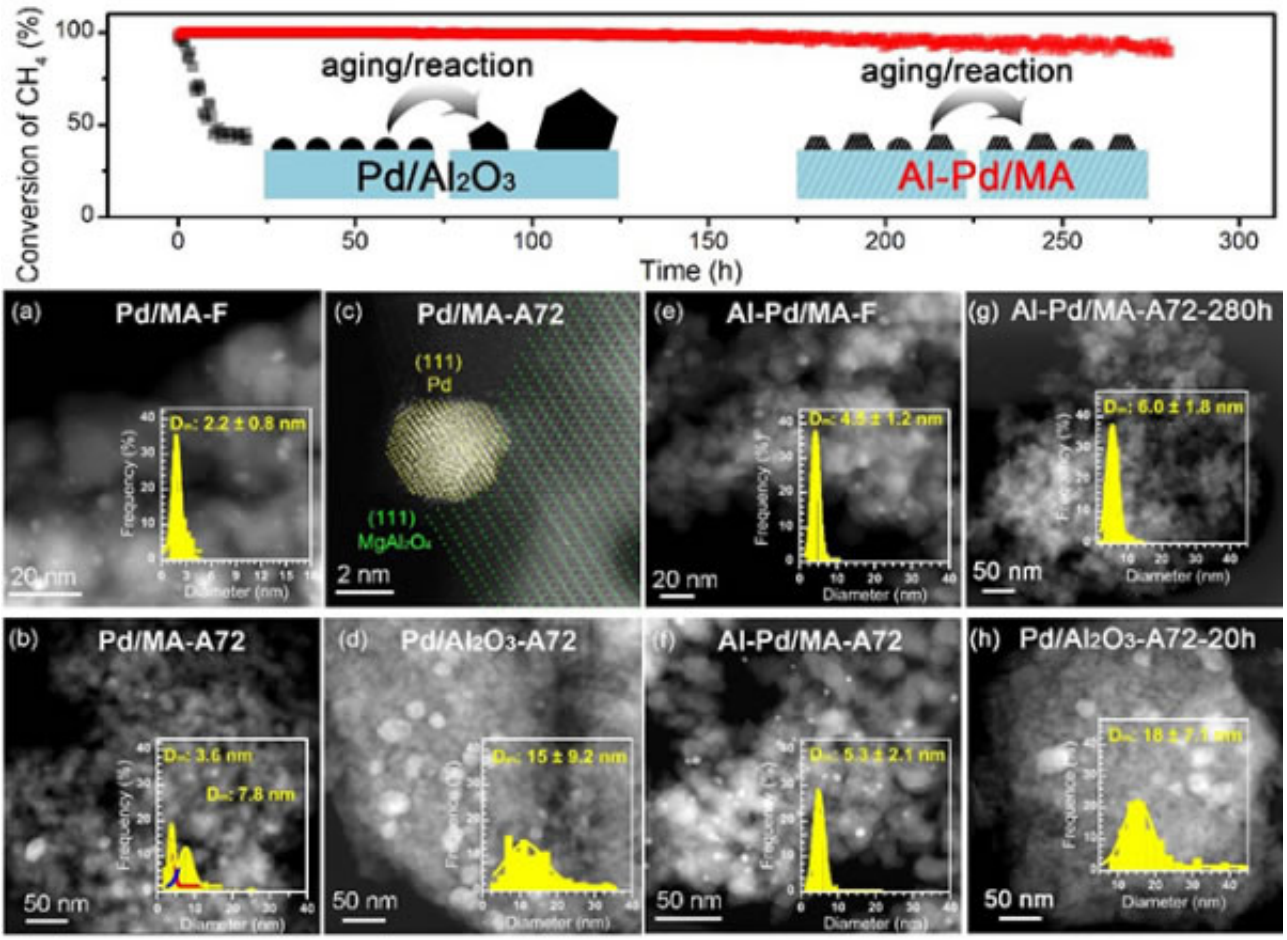
大连化物所开发高水热稳定性Pd基催化剂用于甲烷燃烧



近日，中国科学院大连化学物理研究所催化与新材料研究室研究员李为臻、乔波涛和中科院院士张涛团队，与北京大学教授马丁合作，在高稳定Pd基甲烷燃烧催化剂制备研究中取得新进展，以镁铝尖晶石（$MgAl_2O_4$）为载体，通过添加非还原性氧化物（Al_2O_3、ZrO_2、SiO_2）抑制Pd的过度氧化，实现Pd纳米粒子的高水热稳定性。

甲烷催化燃烧因在洁净能源转化与利用及环境保护方面的重要应用而受到广泛关注。负载Pd催化剂在该反应中具有优异的催化活性，但是该催化剂实际使用过程中经常面临高湿反应气体以及高温反应条件，导致Pd纳米颗粒烧结长大，降低催化剂性能。因此，开发具有高活性、高水热稳定性的甲烷催化燃烧材料颇具挑战。该团队致力于高热稳定贵金属纳米颗粒催化剂的制备，前期研究发现Pt和Au纳米颗粒与界面匹配的尖晶石可以形成外延结构，使负载的Pt和Au纳米颗粒可以经受800-1200°C的高温而不明显长大（Nature Communications, 2013；Nano Letters, 2018）。Pd与Pt具有相近的晶格常数，理论上可以采用相同策略提高负载Pd催化剂的热稳定性。然而，由于Pd纳米颗粒在空气中极易被氧化，导致金属-载体界面的失配度增加，从而失去抗烧结的能力。

为解决这一问题，该团队通过惰性氧化物修饰，有效抑制Pd的过度氧化，改善Pd纳米粒子的稳定性，并提升Pd基催化剂的催化活性。高分辨电镜揭示Pd纳米颗粒在$MgAl_2O_4$ {111}晶面上可以形成外延生长结构。然而，当Pd发生过度氧化后，晶格间距扩大，破坏金属-载体间的稳定结构。非

$_2O_3$的修饰可以促进Pd在2+和0价之间发生氧化-还原循环，提高催化剂的低温活性。而可还原性氧化物由于与Pd的强相互作用以及较强的氧溢流能力，使Pd2+更难以还原成Pd0，甚至导致部分Pd在氧气气氛中被进一步氧化成Pd4+。该策略具有很好的普适性，有望在众多涉及高温反应过程的化工环保领域中得到应用。

相关研究成果发表在《德国应用化学》（Angewandte Chemie International Edition）上。研究工作得到国家自然科学基金、国家重点研发计划、中科院略性先导科技专项（B类）“ 能源化学转化的本质与调控 ”等的资助。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/163249.html