

金属所在纳米碳材料负载金属催化剂研究中取得进展

负载型金属催化剂在整个工业催化领域发挥着十分重要的作用。然而，作为负载型金属催化剂，载体材料对活性金属纳米粒子催化性能的影响发挥着十分重要的作用。催化剂的载体能够影响金属纳米粒子在其表面的分散情况、粒径大小、暴露晶面等。同时，通过调变载体与金属纳米粒子之间的相互作用亦可以提高金属纳米粒子的催化活性、选择性和稳定性，进而提高金属纳米粒子的使用效率和循环使用能力。因此，寻求和制备具有特殊物性的催化载体材料一直是催化领域研究的热点之一。

近期，中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家（联合）实验室催化材料研究部研究员苏党生和副研究员刘洪阳带领的研究团队，首次利用石墨烯和纳米金刚石复合的核壳结构材料（ND@G）为载体制备一种高性能的钯/碳（Pd/C）催化剂。将这种Pd/C催化剂用于催化氧化CO时发现，与传统sp²杂化的洋葱碳（OLC）上的负载Pd纳米催化剂相比，ND@G负载的钯纳米催化剂（Pd/ND@G）表现出了更加优异的催化性能（图1）。

利用高分辨透射电子显微镜、球差分辨的高角度环形暗场-扫描透射电子显微镜以及同步辐射X-射线吸收精细结构谱等手段对催化剂进行了详细的表征。研究发现，与传统的碳载体相比，由于ND@G载体表面具有丰富石墨烯缺陷能够增强Pd纳米粒子与纳米碳载体之间的相互作用，进而改变了Pd纳米颗粒的几何形貌和结构（图2）并且能够显著提升Pd纳米粒子在碳载体表面的抗烧结能力（图3）。同时研究还发现，这种Pd/ND@G催化剂中强的金属-载体相互作用以及Pd纳米粒子特殊的几何结构能够明显减弱CO分子在Pd纳米粒子表面的吸附（图4），进而促进了O₂分子在Pd纳米粒子的吸附解离，提高了催化剂低温催化CO氧化的能力。该工作为设计合成高性能的纳米碳负载金属催化剂提供了一个新的思路。该工作以快讯的形式在Angewandte Chemie International Edition 在线发表（DOI: 10.1002/anie.201507821）。

近年来，催化材料研究部通过调控纳米碳载体的结构和性质来提升纳米碳负载金属催化剂的催化性能取得了系列进展，相关工作发表在Angewandte Chemie International Edition (2014, 53, 12634-12638)、ChemCatChem (2014, 6, 2600-2606)、Small (2015, 11, 5059-5064)、Catalysis Today (2016, 260, 55 – 59)等国际学术期刊上。

上述工作得到了国家重点基础研究发展计划“973”项目、国家基金委青年基金、国家基金委面上项目、国家基金委重大研究计划、国家基金委重点项目、中科院战略先导项目、中石化企业项目的资助以及上海同步辐射光源X射线吸收精细结构谱线站BL14W1提供的大力支持。

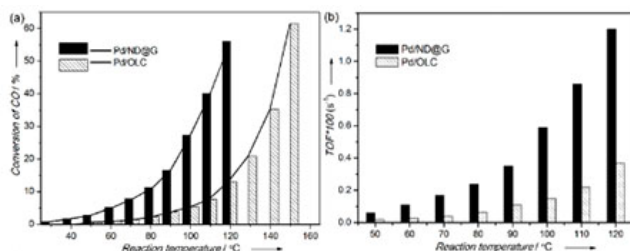


图1. Pd/ND@G和Pd/OLC在CO氧化反应中的催化性能: (a) CO转化率随温度的变化, (b) 不同温度下的TOF

值

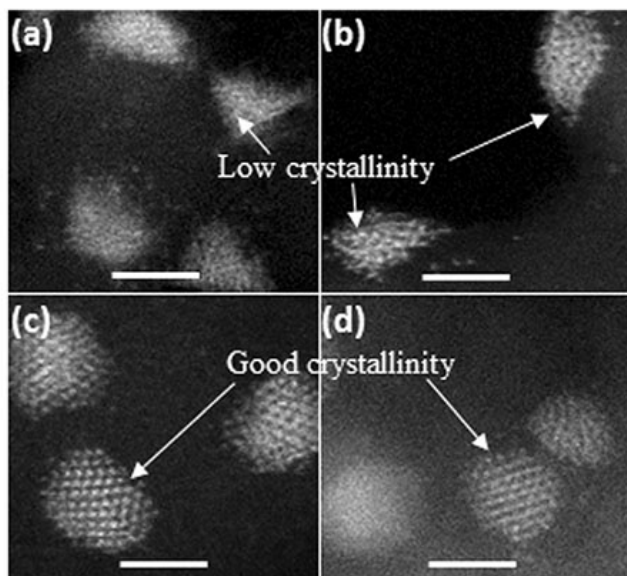


图2. 高分辨的HAADF-STEM电镜照片: (a, b)Pd/ND@G, (c, d)Pd/OLC, Scale bars: 2 nm

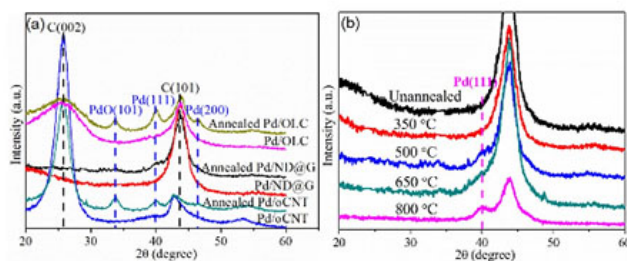


图3. (a) 不同催化剂在500°C下焙烧前后的XRD谱图, (b) Pd/ND@G在不同温度下焙烧6小时后的XRD谱图

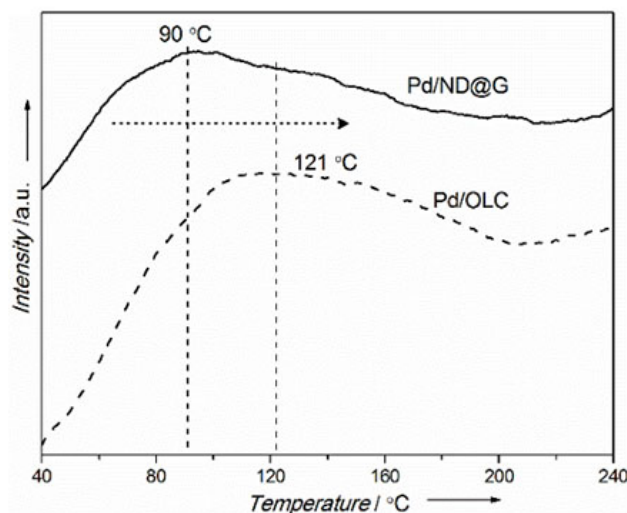


图4. 不同催化剂上吸附CO后的程序升温脱附谱图

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/87137.html>