

高分散超细铂/二氧化锡/还原石墨烯复合催化材料研究取得新进展

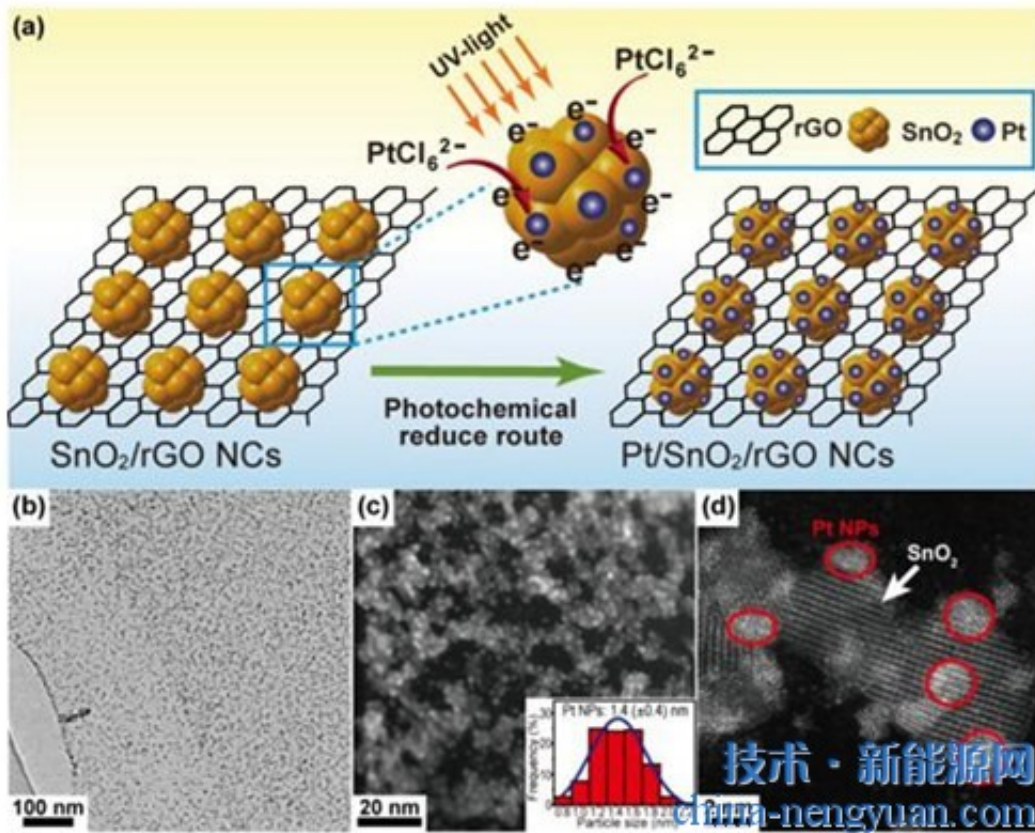


图1.Pt_{0.89}/SnO₂/rGO催化剂：(a) 形成过程示意图；(b) 低倍TEM照片，(c和d) HAADF-STEM照片，(c) 中的插图为Pt纳米颗粒的粒径分布直方图。

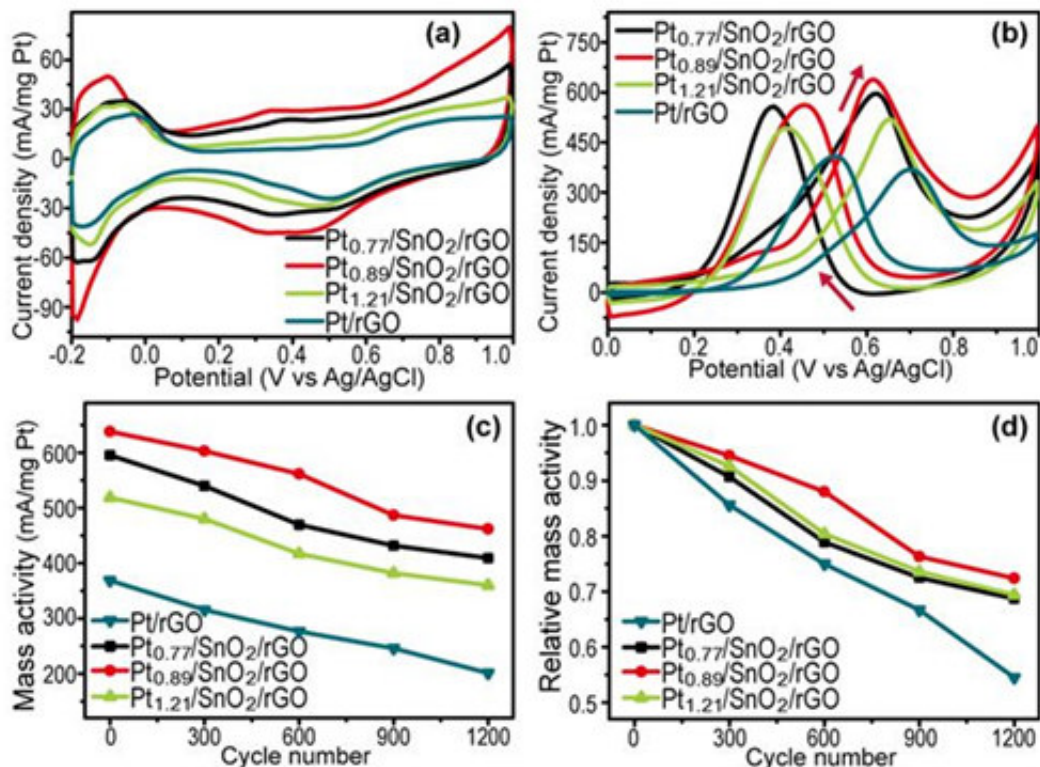


图2 各催化剂在 (a) 0.5 M 氮气饱和的H₂SO₄溶液以及 (b) 0.5 M H₂SO₄ + 0.5 M CH₃OH溶液中的循环伏安特性曲线; (c和d) 各催化剂对甲醇氧化催化稳定性的测试结果。

近期, 中国科学院合肥物质科学研究院固体物理研究所研究员梁长浩课题组在高分散超细铂/二氧化锡/还原石墨烯复合材料 (Pt/SnO₂/rGO) 研究方面取得新的进展, 相关论文已在 Nano Energy 上发表 (Nano Energy, 2016, 26, 699-707)。

燃料电池作为高效、安全、清洁的化学能源而受到众多研究者的广泛关注。其中, 直接甲醇燃料电池 (DMFC) 以液态的甲醇为燃料, 在室温下就可将甲醇的化学能直接转化为电能。DMFC中常用的Pt基催化剂却面临着催化活性低、稳定性差、制作成本高与易CO中毒的困局。

科研人员通过不断的努力, 发展了可有效提高Pt基催化剂催化效率的途径, 包括以下几种: (1) 合理调节Pt基催化剂的尺寸, 在一定范围内, 降低Pt基催化剂的粒径, 不但其比表面积和边/角原子的数量会随之增加, 有助于实现Pt催化效率的最大化, 而且能减少催化剂中贵金属Pt的使用量, 进而降低催化剂的制作成本; (2) 加入金属氧化物 (TiO₂、SnO₂、SiO₂、CeO₂等), 氧化物的表面能吸附大量的含氧基团 (如: 羟基), 有利于甲醇氧化过程中含C中间产物的进一步氧化, 从而提高Pt基催化剂的抗CO中毒能力, 同时金属氧化物的添加可以促进Pt的分散, 增加单位质量Pt的活性位点并降低制备成本; (3) 选择合适的催化剂载体, 石墨烯 (Graphene) 是具有二维蜂窝状结构的碳纳米材料, 其独特的物理化学性质使其成为优良的Pt基催化剂载体, 其大的比表面积有利于提高Pt基催化剂的分散度, 优良的导电性能很好地促进电子的传输, 特殊的网状结构有利于物质的流动, 稳定的物理化学性质有利于催化剂稳定性的提升。考虑到超细Pt颗粒增大的表面自由能会导致Pt颗粒的团聚, 同时金属氧化物的电传导性差, 人们开始尝试将这几种方法结合在一起。然而, 在制备过程中, 总是存在Pt颗粒被石墨烯吸附优先生长, 或者Pt颗粒表面附着有大量表面活性剂的问题。因此, 若是既可以实现金属氧化物在石墨烯上的均匀分散, 同时实现超细Pt颗粒选择性地金属氧化物上均匀分散, 将有可能发展更加高效的适用于DMFC阳极的Pt基催化剂。

循着这个思路, 研究人员基于课题组多年发展的液相激光熔蚀 (Laser ablation in liquids, LAL) 技术, 设计了独特且绿色的构筑策略, 获得高分散超细铂/二氧化锡/还原石墨烯复合材料催化剂。该合成方法具有以下优点: (1) 在整个合成过程中, 无需加入其它的还原剂、稳定剂以及表面活性剂, 避免了传统还原剂还原贵金属离子易产生副产物污染的缺点, 也避免了催化剂表面因吸附表面活性剂而导致催化活性降低的缺点; (2) 原位界面反应使得Pt特异性地在SnO₂表面发生还原, 形成的Pt-SnO₂接触更加有利于发挥其界面处的协同作用, 进而有效提高催化剂的抗CO中毒能力; (3) 制备的Pt纳米颗粒具有很高的分散度和超细的粒径, 通过改变反应前驱体中PtCl₆²⁻的浓度, 可实现SnO₂表面Pt纳米颗粒尺寸和负载量的有效调控, 从而得到一系列的Pt/SnO₂/rGO纳米复合材料。

得益于Pt纳米颗粒均匀的分布和超细的粒径（1-2 nm），合成的Pt/SnO₂/rGO催化剂具有很大的电化学活性面积（图2a），且对甲醇氧化展现出很高的催化活性（图2b）。此外，通过该合成方法得到的Pt催化剂与SnO₂载体界面处的协同作用能有效提高Pt催化剂的抗CO中毒能力。因此，与Pt/rGO催化剂相比，Pt/SnO₂/rGO催化剂对甲醇氧化均展现出更好的循环性能（图2c和d）。该方法为超细贵金属催化剂的发展提供了新的研究思路。

该项研究得到了国家重点基础研究发展计划和国家自然科学基金的支持。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/96549.html>