

亚纳米尺度Pt₃金属团簇催化材料研究取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13928.html>

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

最近，中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家研究中心研究员刘洪阳和博士研究生陈晓雯等与北京大学教授马丁、香港科技大学教授王宁、中科院上海应用物理研究所研究员姜政、中科院山西煤炭化学研究所研究员温晓东等合作，通过对金属Pt团簇的配位数精准调控，在亚纳米尺度下成功构建全暴露Pt₃金属团簇催化材料，并实现其低温高效催化丁烷脱氢制烯烃。近日，《自然-通讯》（Nature Communications）在线发表了该研究成果。

丁烷直接脱氢是工业催化领域生产丁烯的重要过程之一，该过程的副反应（积炭、氢解和裂化）为结构敏感性反应，通常倾向于发生在平均Pt-Pt配位数较大的Pt纳米颗粒上。目前，抑制该过程副反应和提高催化性能的理想方案是降低Pt纳米颗粒的尺寸。理论上，将金属尺寸减小到亚纳米尺度时可得到原子级分散、全暴露金属团簇催化剂（Fully Exposed Cluster Catalyst, FECC）。FECC这一概念由马丁和刘洪阳在《美国化学学会核心科学》（ACS Cent. Sci. 2021, 7, 262）上提出。FECC是指由几个金属原子组成的原子级分散、全暴露金属团簇催化剂。通常，FECC的尺寸小于1 nm，是单原子层分散的，在催化反应中保证了所有的金属原子都参与反应物的吸附与活化。同时，FECC还具备不同于金属单原子和金属纳米颗粒的物理化学性质。例如，在某些反应中，金属单原子由于自身结构的限制无法活化某些反应物或中间体。此外，金属单原子通常被载体上的氧锚定，具有一定的氧化态，导致金属性部分缺失，在某些催化反应中活性下降。而FECC在催化反应中可以提供更多的活性位点。同时，由于存在金属与金属间配位，它的金属性强于金属单原子。因此，FECC在催化反应中不仅能够有效促进反应物活化，还可优化产物在活性位点上的吸/脱附行为，得到更高的催化效率和选择性。刘洪阳团队近年来致力于亚纳米尺度金属催化材料的设计与烷烃高效利用研究（ACS Cent. Sci. 2021, 7, 262；Nat. Commun. 2019, 10, 4431；J. Am. Chem. Soc. 2019, 141, 18921；ACS Catal. 2019, 9, 5998；J. Am. Chem. Soc. 2018, 140, 13142）。在前期研究中，该团队发现富缺陷纳米石墨烯稳定的原子级分散、全暴露金属PtSn催化剂，在烷烃脱氢反应中表现出优异的催化选择性（ACS Catal. 2019, 9, 5998）。

近期，陈晓雯通过改变原子分散Sn助剂的负载量，在亚纳米尺度下精准调控金属Pt的结构，并通

^{1.75n}/ND@G中Pt以原子级分散、全暴露的Pt₃团簇形式存在。此外，还比较了Pt单原子、Pt₃团簇和Pt纳米颗粒之间催化烷烃脱氢性能的差异。结合催化丁烷脱氢性能测试和密度泛函理论（DFT）模拟计算结果（图3），发现原子级分散、全暴露的Pt₃团簇相较于Pt单原子和Pt纳米颗粒可有效促进C-H键的活化和烯烃的脱附，表现出优异的丁烷脱氢性能。成功地在亚纳米尺度下构建了金属Pt活性中心与丁烷脱氢反应

的构效关系（图4），并进一步证明了FECC在脱氢反应中表现的优异性能，对未来设计开发高活性、高稳定性的工业脱氢催化材料提供了新思路。

研究工作得到国家重点研发计划纳米专项青年科学家项目、国家基金委碳基能源重大研究计划重点项目、国家基金委中港联合基金、辽宁省兴英才计划、沈阳材料科学国家研究中心青年人才项目与企业合作项目提供的支持，获得上海同步辐射光源的帮助。

论文链接

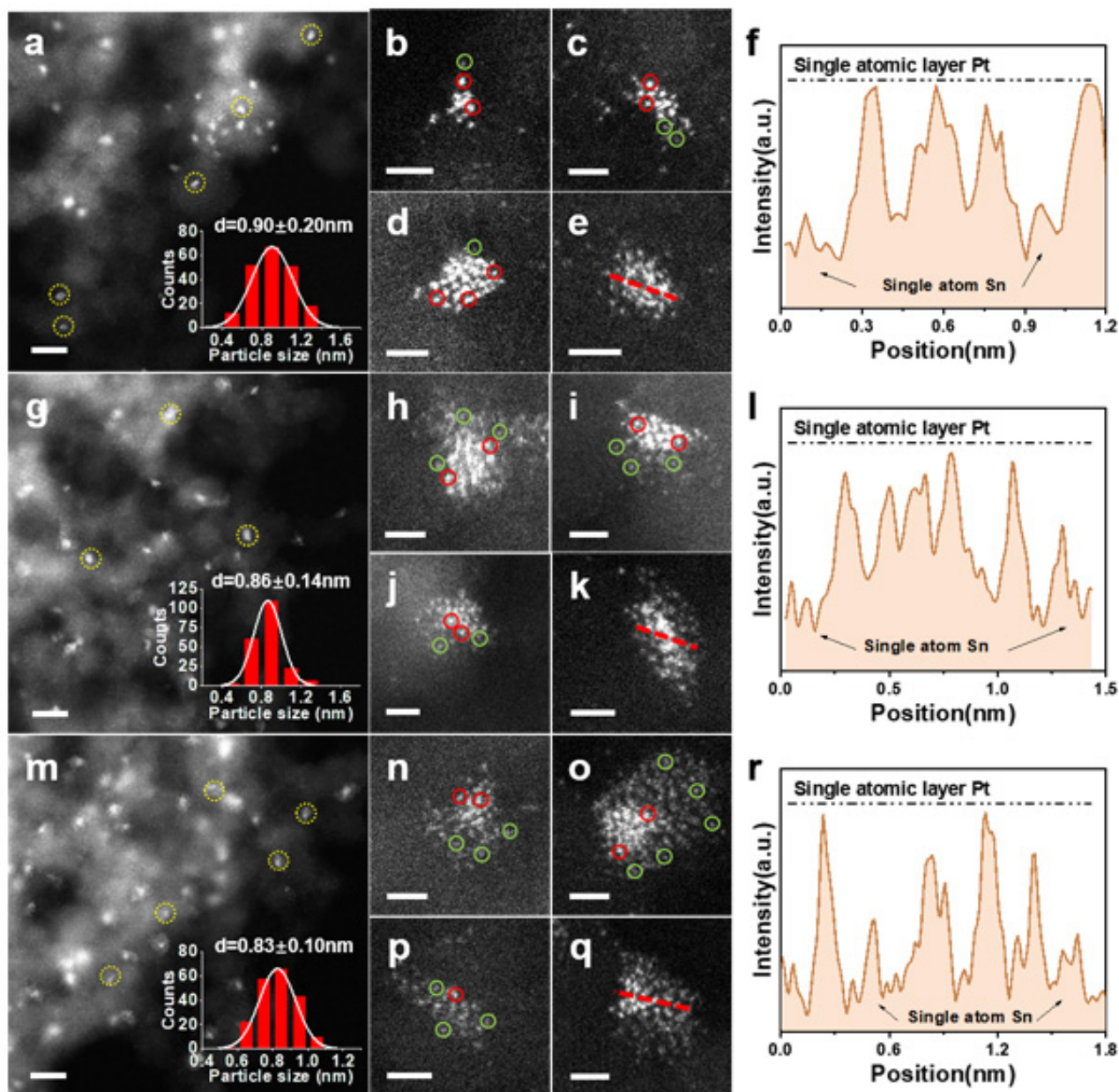


图1 Pt_3 团簇催化剂的球差电镜表征与分析：(a)-(f) $Pt_{1.7}Sn/ND@G$ ，(g)-(l) $Pt_{3.4}Sn/ND@G$ ，(m)-(r) $Pt_{6.8}Sn/ND@G$

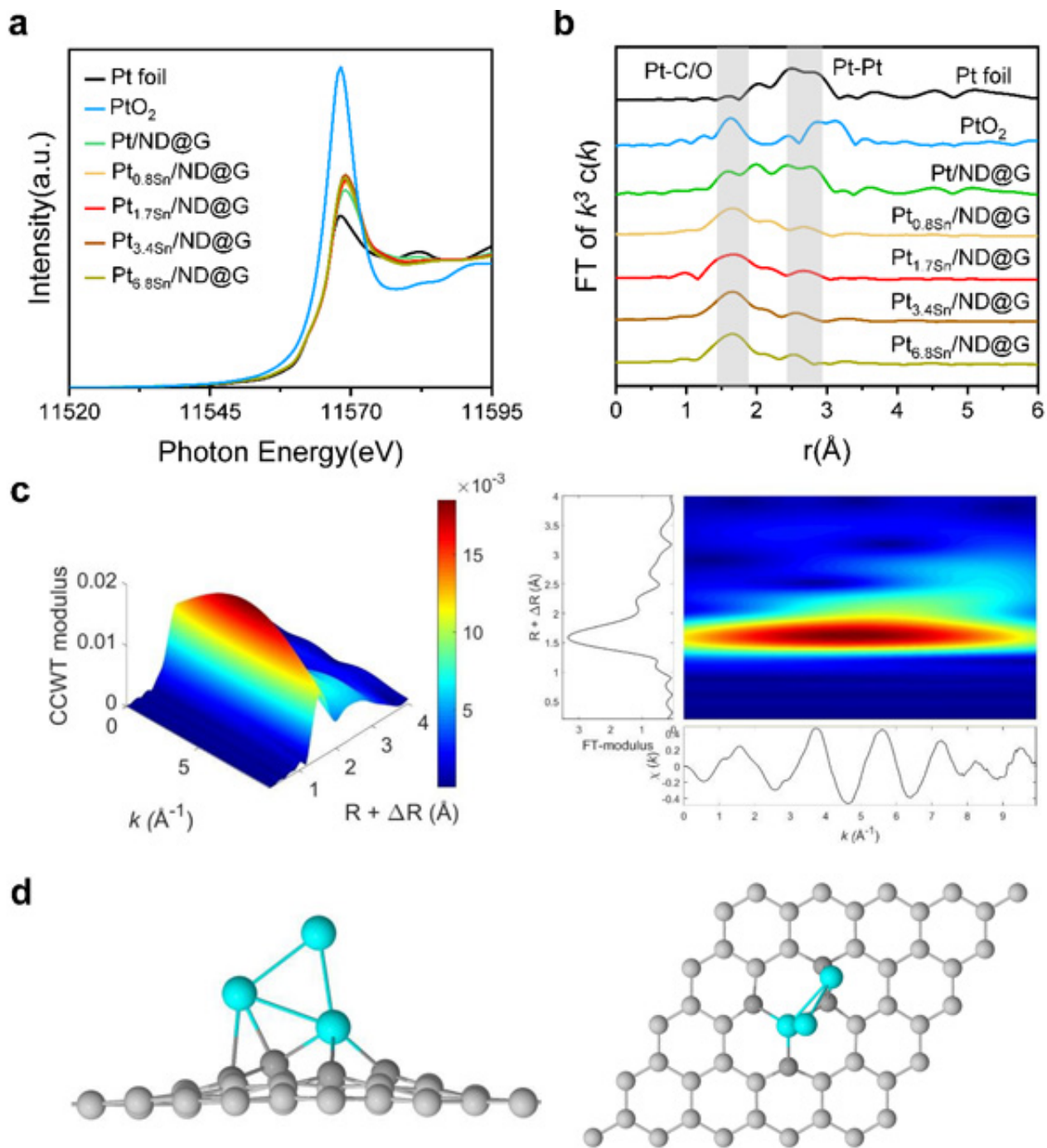


图2 (a-c)催化剂同步辐射 (XAFS) 表征结构, (d)Pt₃-Gr模型示意图 (左:侧视图, 右:俯视图)

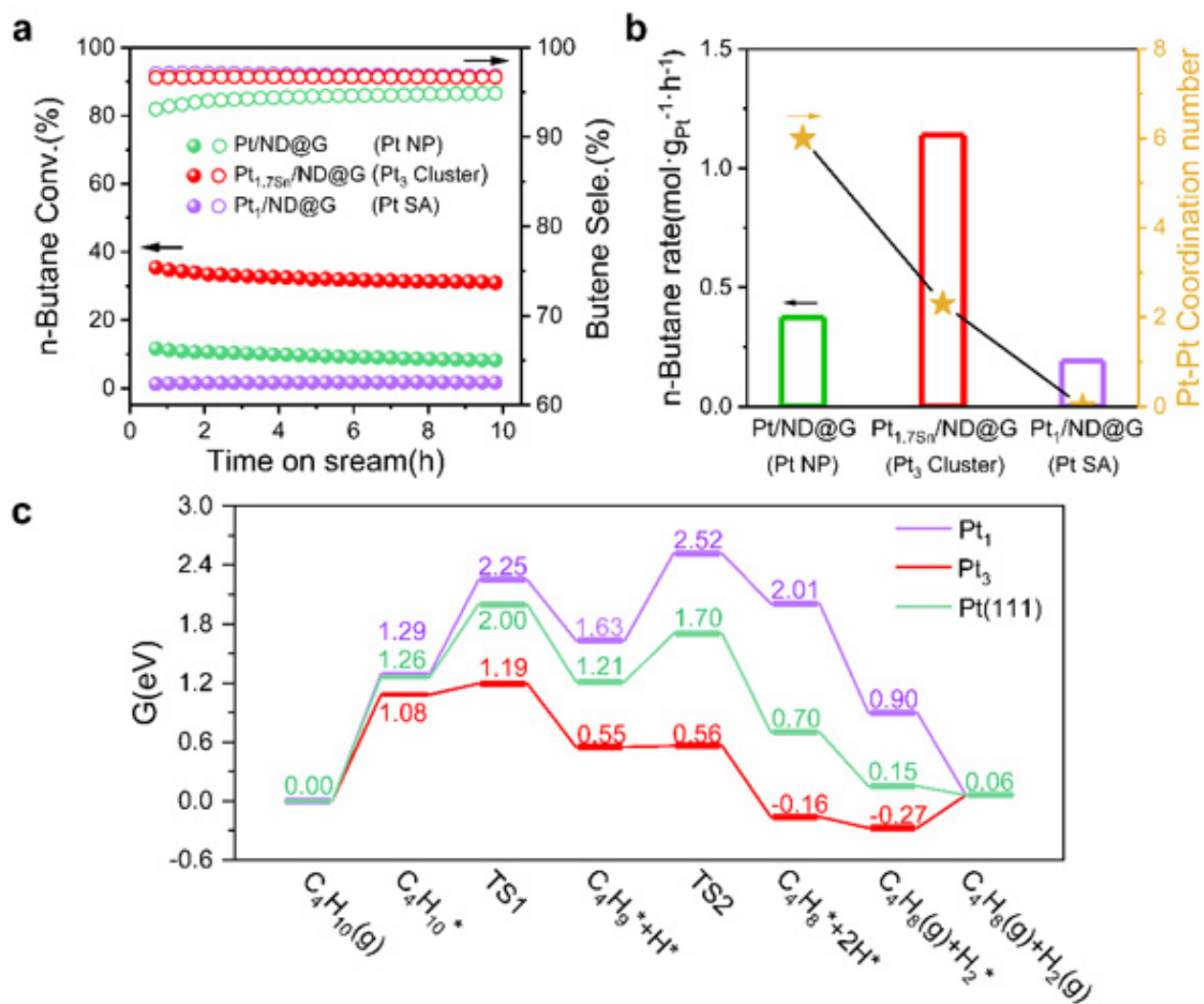


图3 (a, b)催化剂脱氢催化活性，(c)在Pt₁-Gr、Pt₃-Gr和Pt(111)结构模型上丁烷脱氢能量变化曲线

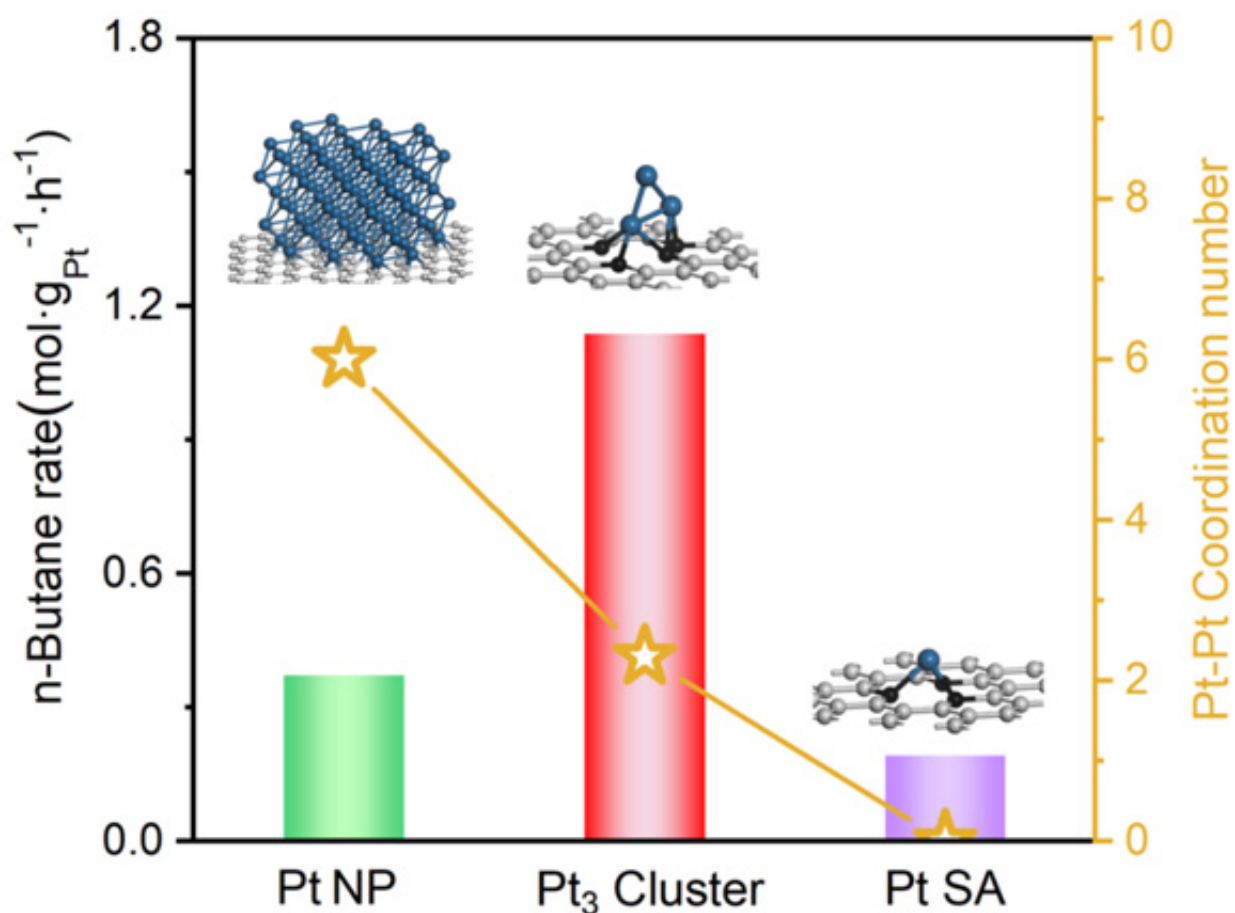


图4 亚纳米尺度下Pt活性中心结构与烷烃脱氢活性的构效关系

研究团队单位：金属研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://www.iikx.com)转发