
中国科大提出纳米催化剂抗烧结的稳定性理论

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/16465.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！

近日，中国科学技术大学教授李微雪所领导的理论与计算催化团队经过八年攻关，提出并建立了界面作用调控纳米催化剂生长动力学理论和双功能载体高通量筛选策略，为理性设计和筛选稳定的抗烧结纳米催化剂提供了参考。研究成果11月5日在线发表于《科学》(Science)上。

高活性、高选择性、高稳定性的催化剂的设计研发对于提高催化反应效率、节能降耗并对我国实现双碳目标具有重要意义，迫切需要先进催化理论的发展和指导。其中，纳米催化剂因其高的原子利用率和量子效应的存在，作为多相催化研究前沿长期以来受到广泛关注并取得巨大进展。然而，包括纳米催化剂在内的稳定性问题正成为催化剂面向产业化以实现高效的化工生产、能源和环境催化转化以及实现双碳目标过程中至关重要的主要瓶颈之一。目前，纳米催化剂稳定性研究仍缺乏一般性原理和基础理论指导，导致催化剂寿命试错实验成本高且耗时，制约了高活性、高选择性纳米催化剂的工业化进程。

李微雪和团队成员胡素磊使用以人工智能和大数据分析为代表的驱动科学发现研究范式，积极探索控制纳米材料生长的基本原理，以热诱导和化学诱导纳米催化剂生长动力学为着眼点，揭示了金属与载体界面作用的线性标度关系和相应的描述符，建立了界面作用控制纳米催化剂生长动力学和抗烧结性的理论方法。该理论被基于第一性原理神经网络势函数大规模分子动力学模拟和大量已发表实验数据证实。在此基础上，进一步提出了利用双功能载体打破标度关系限制的高通量筛选策略，为改进纳米催化剂的抗烧结稳定性提供了理论研究方法。

具体来说，该团队在数据驱动分析1252组金属催化剂与载体界面作用能的基础上，揭示了金属原子与载体表面上吸附能分别与金属原子扩散能垒、金属纳米粒子粘附能之间的线性标度关系，确定了金属与载体相互作用的描述符，建立了考虑界面作用和尺寸效应的金属纳米粒子化学势的准确计算方法，为大规模计算研究纳米催化剂生长动力学奠定了基础。

该团队结合研究了323种单组分载体负载的纳米催化剂生长速率和金属与载体界面作用强度之间的关系，揭示存在有一般性的火山型依赖关系，由此提出了界面作用调控纳米催化剂抗烧结的Sabatier作用原理：界面作用既不能太强，否则会导致以熟化的方式失活；也不能太弱，否则会导致以粒子迁移碰撞的机制失活。在单组分载体上，由于界面作用标度关系的限制，仅当界面作用强度取值适中时，纳米催化剂稳定性达到最优，其耐烧结温度为金属熔点一半，即长期以来经验发现的所谓塔曼温度。

该团队以纳米金Au催化剂为例，检索收集了大量已发表的实验数据，实验结果与理论预测高度一致。此外还展开了基于第一性原理神经网络势函数的大规模分子动力学模拟，从微观理论模拟上直接证明了界面作用调控纳米催化剂抗烧结性的调控原理，进一步确认了该作用原理的正确性

。在对贵金属Pt、Rh研究中，已发表的实验也很好地验证了理论的正确性。

对于高温催化反应和小尺寸纳米催化剂，稳定性问题变得更为严峻，单组分载体无法满足相应的要求。该团队提出将强和弱两种不同界面相互作用强度的载体组合起来，分别抑制纳米粒子迁移碰撞和熟化两个过程，从而打破了金属与载体界面作用标度关系和火山图的限制。以纳米金催化剂为例，研究人员高通量筛选了6724种双功能载体，预测了大量双功能载体使该催化剂耐烧结温度远超其塔曼温度。这一研究策略为利用双功能载体稳定纳米催化剂的提供了可能。由于双功能载体与纳米催化剂之间存在有大量丰富、多样的界面活性位点，这也有助于同时优化催化剂活性和选择性。

该工作得到了国家重点研发计划、国家自然科学基金、中科院前沿重点项目、中科院王宽诚率先人才计划卢嘉锡国际团队、中国博士后科学基金等的资助，中国科大超算中心和郑州国家超算中心为该项研究提供了机时。

[论文链接](#)

烧结机理和标度关系。(A)粒子迁移团聚与熟化示意图；(B)金属原子在载体上的扩散能垒与金属原子在载体上吸附能间的标度关系；(C)约化的金属原子吸附能和金属纳米粒子与载体的粘附能间的标度关系；(D)负载金属纳米粒子的化学势随尺寸的变化关系。

纳米催化剂稳定性的Sabatier作用原理。(A)纳米催化剂烧结开启温度对原子吸附能的火山型依赖关系。(B)开启温度对约化的界面相互作用描述符的火山型关系。(C)用金属体相材料熔点约化的开启温度与接触角间的普适火山关系图。

抗烧结性Sabatier原理的实验和理论证明。(A)负载Au纳米催化剂的模拟烧结开启温度及其实验数据对比。(B-G)第一性原理神经网络势函数分子动力学模拟。

超越火山型关系双功能载体的设计和高通量筛选。(A)强和弱界面相互作用组成的双功能载体。(B) $\text{CeO}_{2-x}\text{@ZrO}_2(111)$ 双功能载体稳定Au团簇。(C)高通量筛选6724种双功能载体。

研究团队单位：中国科学技术大学

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](https://www.iikx.com)转发