
科学家实现Rh基催化剂的全尺寸调控与精准创制

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21833.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！

科学家实现Rh基催化剂的全尺寸调控与精准创制。

近日，中国科学院大连化学物理研究所副研究员杨冰等与大连理工大学研究员周思合作，在气氛诱导动态调控催化剂再分散研究方面取得新进展。团队揭示了气氛、载体双重作用下金属原子的缓释迁移机制，实现了Rh基催化剂全尺寸调控与精准创制，并进一步阐明了甲烷选择性氧化反应中的尺寸特异性。相关成果发表在ACS Catalysis上。

负载型Rh基催化剂广泛应用于氢甲酰化、选择加氢等尺寸敏感性反应。在实际反应过程中，Rh原子的动态迁移对催化剂的烧结、再分散、金属流失都具有重要影响。特别是通过可控原子迁移，实现对于活性物种尺寸分布的精准调控仍然具有挑战。

本工作中，研究团队进一步阐释了金属动态分散过程中气氛、载体的双重调控作用，借助气氛诱导和二维分子筛(ZSM-5-2D)的孔道限域效应，精准控制Rh原子的迁移速率，实现Rh活性物种从单原子(SA)到纳米颗粒(NP)($>2\text{nm}$)的尺寸连续可逆调控。

综合运用原位电子显微成像与原位谱学表征观察，不同处理气氛下(H_2 或 CO)，Rh催化剂在ZSM-5-2D上聚集/再分散的可逆转化；并通过比较多种氧化物载体，揭示了分子筛孔道限域效应能够有效减缓Rh原子的迁移速率，从而在更大的尺寸范围(从单原子、原子簇到纳米颗粒)、更宽的温度区间($100\text{--}500^\circ\text{C}$)实现对催化剂粒径的连续调控。同时，在低温甲烷选择氧化反应中，研究团队发现Rh物种尺寸与反应活性呈现火山型关系：负载Rh亚纳米团簇($\sim 0.9\text{nm}$)的Rh/ZSM-5-2D催化剂呈现出最优异的催化活性，具有高的TOR($39.7\text{molCH}_3\text{OOH}^*/\text{molRh}\cdot\text{h}$)和高选择性73.2%，远远超过Rh SA和Rh NP催化剂。理论计算与EPR实验结果均证明，Rh亚纳米团簇更有利于 $\cdot\text{OH}$ 自由基的形成从而促进 CH_4 活化转化。

本工作提出了基于气氛诱导和分子筛限域的单原子缓释机制，实现了从单原子、原子簇到纳米颗粒的全尺寸调控，对于催化剂精准制备、类酶甲烷活化催化剂的开发具有启发性。(来源：中国科学报 孙丹宁)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/acscatal.2c05463>

作者：杨冰等 来源：《ACS催化》

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