

熵驱动的原子级分散催化剂稳定性研究取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/41900.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！

熵驱动的原子级分散催化剂稳定性研究取得进展

。催化剂烧结是多相催化过程中常见的失活机制之一。传统烧结理论主要基于表面能降低所带来的焓驱动力，认为金属纳米颗粒在高温下具有自发长大的热力学趋势，而高度分散的单原子和原子簇则难以长期稳定。然而，原位实验观察到金属纳米颗粒在特定反应条件和高温环境下发生再分散，这一现象难以用传统以焓为主导的烧结模型统一解释。如何从基础热力学层面理解纳米颗粒与原子级分散态之间的动态平衡，是认识催化剂高温稳定性及其工作态演化的重要科学问题。

近日，中国科学院上海高等研究院联合上海应用物理研究所等科研团队，在熵驱动的原子级分散催化剂稳定性研究方面取得进展。

研究从吉布斯自由能出发，建立了全新普适热力学与动力学理论框架，将催化剂的烧结与再分散类比为二维溶解过程，推导出考虑构型熵的吉布斯自由能通用方程。实验表明，在适当负载量与金属—载体相互作用下，升温可通过构型熵驱动纳米颗粒再分散，实现“冷烧结、热分散”的可逆行为。

研究通过引入玻尔兹曼熵公式，推导出包含“烧结项（焓驱动）”与“分散项（熵驱动）”的吉布斯自由能差公式。分析发现，当表面分散原子浓度低于临界溶解度（ C_{ad} ）时，熵效应会反转自由能符号，使原子级分散状态在热力学上比纳米颗粒更稳定。基于这一发现，团队绘制了 C_{ad} 随焓变和温度变化的二维轮廓相图，明确了熵驱动分散发生的边界条件。

研究以 PdO/CeO_2

为研究对象，通过机器学习分子动力学模拟，直观展示了小尺寸颗粒在800K下迅速解离为分散原子（热分散）、在600K下重新聚合（冷烧结）的动态过程。团队基于Cs-STEM二次电子成像先进技术，在10Pa的 O_2 及 $\text{CO}+\text{O}_2$

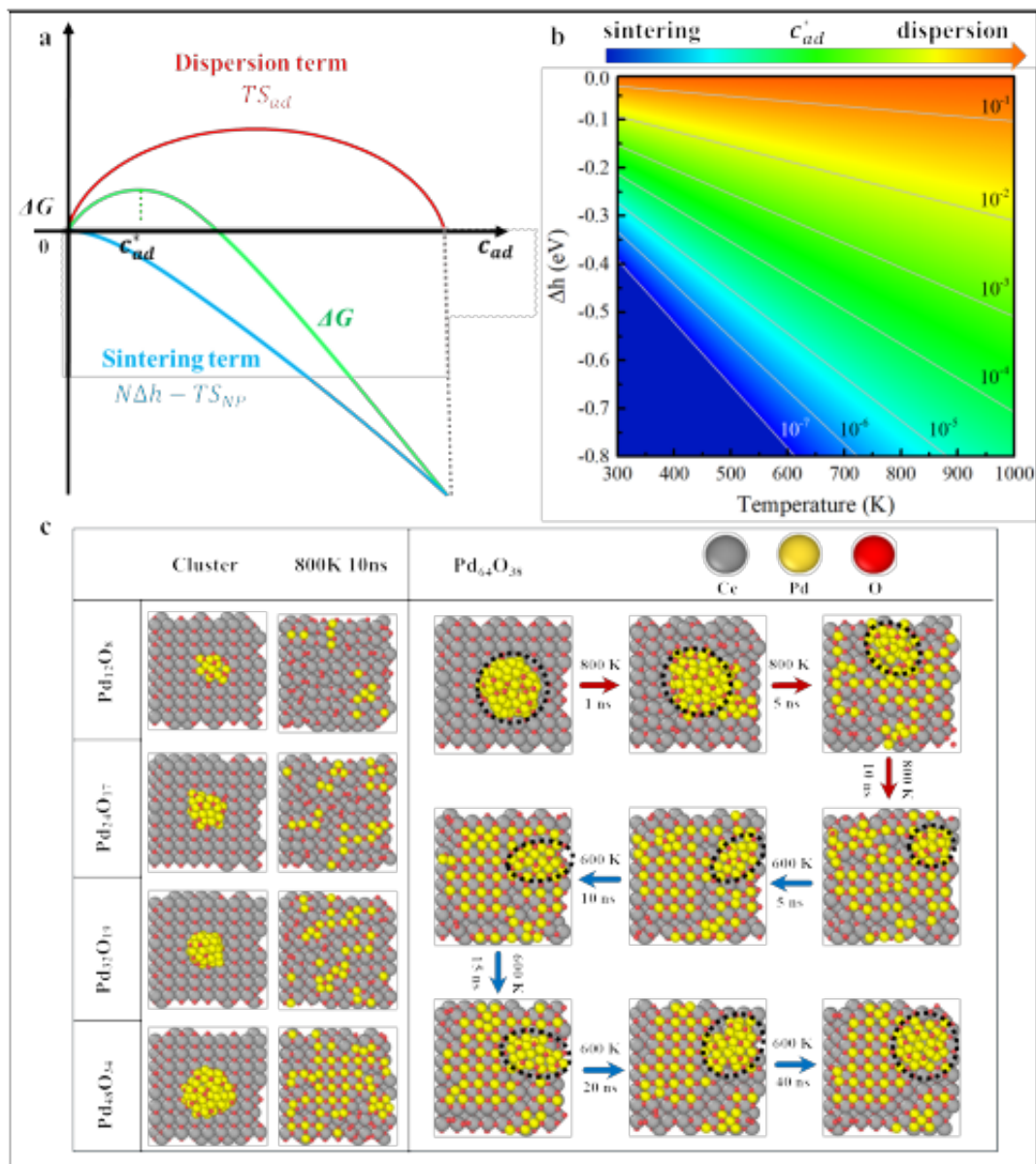
反应气氛下，实时捕捉到了Pd-CeO₂

体系中纳米颗粒在500°C时消失（转化为高分散态），在200°C至300°C时重新析出长大（冷烧结）的可逆循环图像。原位APXPS与同步辐射XAFS进一步提供了配位层面的电子结构证据，可排除单纯氧化还原造成的假象，证实该过程为纯熵驱动热力学可逆行为。

该研究改变了“高温必然导致催化剂烧结”的传统认知，证实存在本征热力学稳定的原子级分散催化剂，且其数量随温度升高而增加。这一成果为理解催化剂动态演化及抗烧结催化剂理性设计提供了新的理论基础，并发展出调控热冲击合成、增大载体比表面积以及引入外场扰动等稳定化策略。

相关研究成果发表在《美国化学会志》（*Journal of the American Chemical Society*）上。研究工作得到国家自然科学基金委员会、科学技术部等的支持。

[论文链接](#)



负载纳米颗粒烧结过程中熵效应的理论模型与模拟

研究团队单位：上海高等研究院

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