

研究揭示分子筛纳米孔道金属团簇限域迁移-团聚理论机制

近日，中国科学院大连化学物理研究所叶茂与刘中民团队，联合福州大学教授鲍晓军与朱海波团队，在分子筛纳米孔道传递领域取得重要进展。

大量工业催化研究与实践表明，分子筛限域纳米孔道能够精准调控客体分子的扩散与迁移动力学，从而提高催化剂的活性、选择性与稳定性。深刻理解并定量描述分子筛孔道内客体分子的限域传递与反应耦合过程，是工业分子筛催化剂设计和优化的关键。

传统的理论计算方法如密度泛函理论或分子动力学模拟仅能够模拟有限局域空间内客体分子的限域传递过程，难以反映催化剂载体的尺寸效应。针对分子筛催化剂，建立限域纳米孔道传递与反应耦合的理论模型，不仅能够精准描述纳米孔道中客体分子的传递与反应动态历程，还能够揭示宏观分子筛载体性质对催化反应性能的影响机制。然而，构建这一理论模型需要对客体分子限域传递过程进行精确表征，这是当前研究的瓶颈。

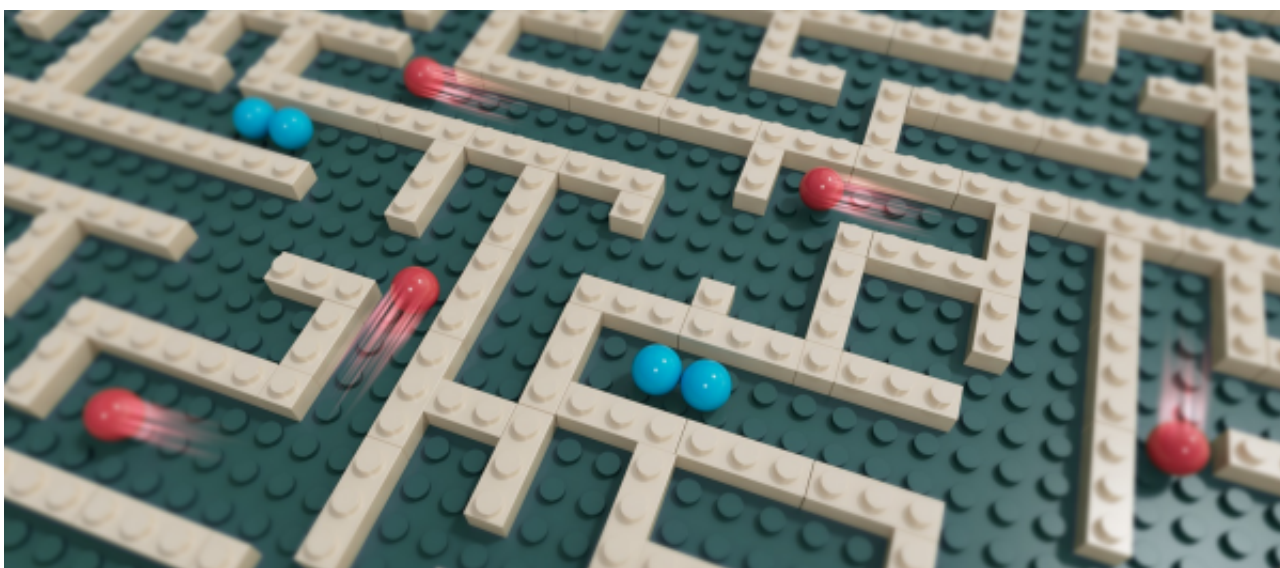
近年来，叶茂和刘中民团队发展了一系列具有高时空分辨率的分子筛纳米孔道内客体传质与传热的原位表征技术，并在理解限域分子与热量传递机制的基础上，建立了具有一定普适性的纳米孔道“传递-反应”耦合模型。

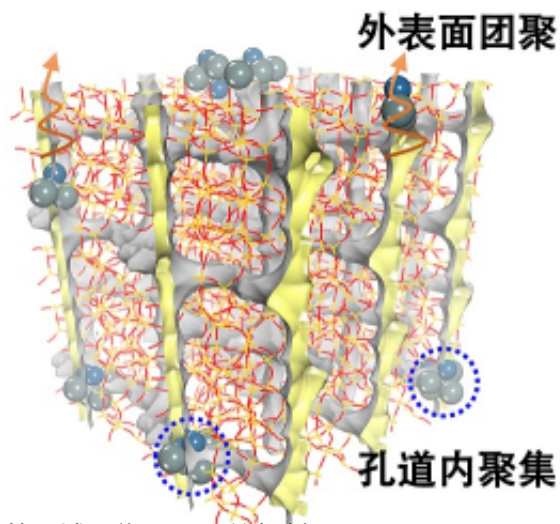
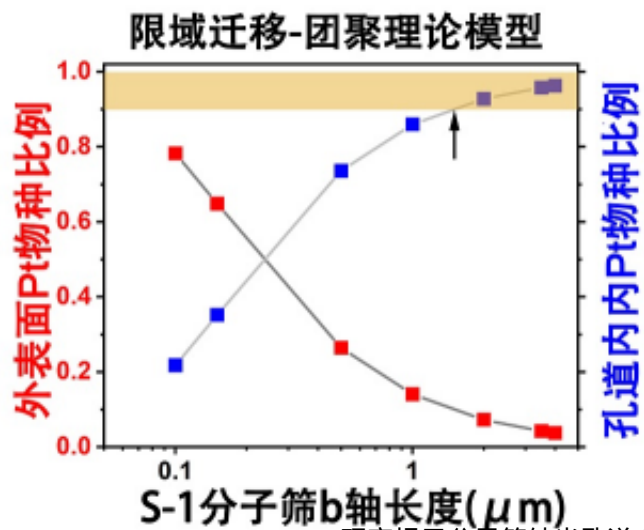
基于限域纳米孔道传递与反应耦合模型的研究基础，本研究中，叶茂和刘中民团队建立了分子筛尺度下金属团簇限域迁移-团聚理论模型：通过第一性原理模拟获得分子筛纳米孔道中金属团簇的迁移与团聚动力学，结合分子筛限域“传递-反应”理论模型框架，首次建立了分子筛限域纳米孔道内金属团簇的迁移与团聚模型。该模型可揭示分子筛微区纳米孔道内金属团簇迁移与团聚的动态历程，定量描述分子筛尺寸对金属团簇时空分布的影响。

进一步，叶茂和刘中民团队与鲍晓军和朱海波团队等合作，借助多种原位高时空分辨谱学表征技术，证明了这一模型的可靠性。研究发现，分子筛载体尺寸是调控金属团簇“外表面团聚”与“孔道内聚集”两种竞争机制的关键。同时，合作团队通过调控Silicate-1(S-1)分子筛载体的b轴长度发现，当S-1载体b轴长度大于2 μm 时，迁移路径的延长迫使Pt物种在分子筛孔道内定向发生“孔道内聚集”并形成亚纳米Pt团簇，实现了将其锁定于纳米孔道中，避免了Pt物种形成团聚导致的催化剂不可逆失活。基于这一发现，合作团队提出通过增加分子筛载体尺寸实现Pt物种的“扩散-聚集-自锁”机制，创制出具有超高稳定性的丙烷脱氢Pt-Sn@MFI催化剂。

这一研究首次实现了分子筛尺度下金属团簇迁移与团聚历程的定量描述，为通过准确调变分子筛载体性质来精准调控限域金属团簇迁移-团聚过程奠定了理论基础。

相关研究成果以Pt migration-lockup in zeolite for stable propane dehydrogenation catalyst为题，发表在《自然》(Nature)上。研究工作得到国家自然科学基金和国家重点研发计划等的支持。





研究揭示分子筛纳米孔道金属团簇限域迁移-团聚理论机制

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/227848.html>