
山西煤化所在多相催化中溢流现象研究中取得系列进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/12908.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！

溢流现象在多相催化中广泛存在，备受关注。深入理解溢流效应或反应物种的运输规律，有助于阐明催化机理，是实现高效催化剂的理性设计，特别是反应选择性调控（加氢、氧化反应等）的前提

条件。近日，中国科学院山西煤炭化学研究所研究员覃勇、高哲团队撰写的综述性论文Spillover in heterogeneous catalysis: new insights and opportunities，在线发表在ACS Catalysis

上。论文对该领域近年来的研究进展进行了系统总结，包括溢流的表征、机制以及如何有效利用溢流效应提高催化性能，并对目前存在的难题和未来的发展方向进行展望。

近年来，随着先进表征技术及合成方法的发展，溢流相关研究取得了系列进展（Science, 2012, 335, 1209; Nature, 2017, 541, 68; Nat. Catal. 2020, 3, 834; Nat. Nanotechnol. 2020, 15, 848; Nat. Commun. 2014, 5, 3370; J. Am. Chem. Soc. 2014, 136, 9898; ACS Catal. 2017, 7, 1568; ACS Catal. 2018, 8, 6203; Angew. Chem. Int. Ed. 2019, 58, 7668等）。溢流现象中，氢溢流的研究最为广泛。氢溢流是指氢气在金属表面吸附解离成活性氢物种，通过金属-载体界面迁移到载体表面的过程。而载体本身在同样条件下并不能解离氢气。论文主要讨论了近年来原位表征技术对实时监测氢溢流效应的贡献，这些技术的发展为许多体系提供了溢流的证据；对可还原性载体、沸石分子筛、C材料、MOFs等不同载体上溢流的机制进行了详细讨论；阐述了H₂O或醇类等分子“共催化剂”对于氢溢流效应的影响；总结了其他物种的溢流效应（如氧溢流）对催化性能的影响。

原子层沉积（ALD）是一种原子/分子级别精准可控的高质量薄膜沉积技术，在精准调控微结构和构建高效催化剂方面具有独特优势。近年来，研究人员利用ALD技术在研究氢溢流效应方面取得了系列成果（Nat. Commun. 2020, 11, 4773; The Innovation, 2020, 1, 10029; Nat. Commun. 2019, 10, 4166; Appl. Catal. B, 2017, 218, 591-599; Chem. Eur. J. 2016, 22, 8438-8443; Angew. Chem. Int. Ed. 2016, 55, 7081-7085; Angew. Chem. Int. Ed. 2015, 54, 9006-9010）。

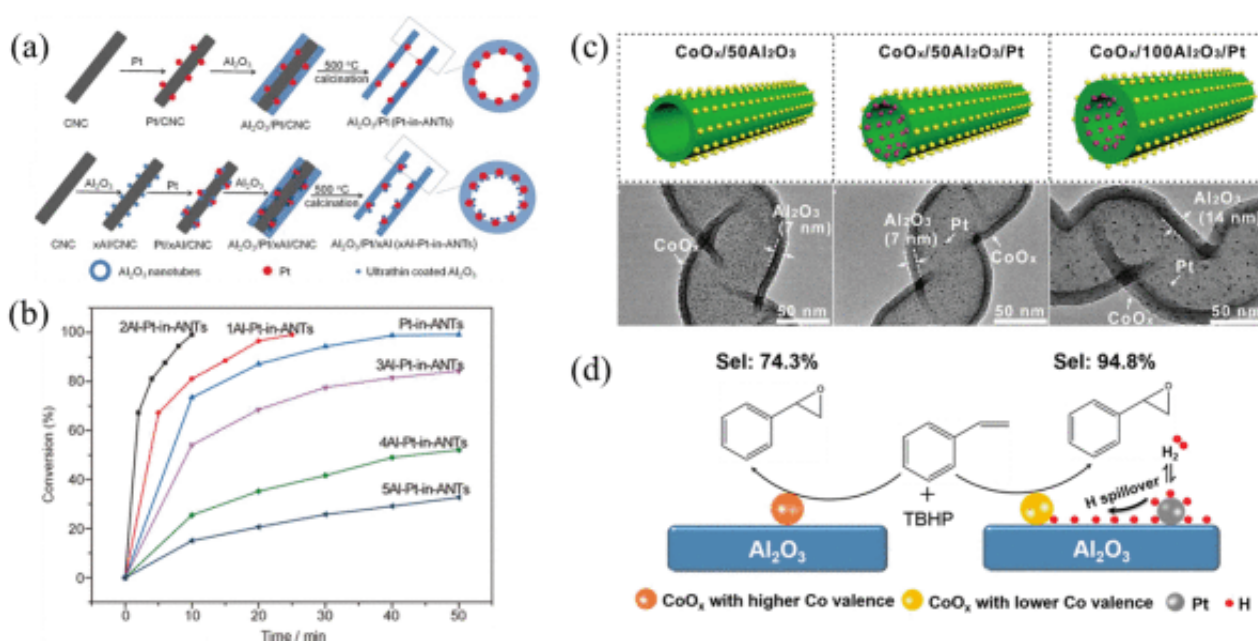
增加金属-载体界面可以增强氢溢流效应。研究人员利用ALD设计制备出多重限域的Ni基催化剂，相比未限域的催化剂，多重限域催化剂具有更多的Ni-Al₂O₃界面，体现出更高的加氢反应活性和稳定性。进一步地，为最大化Al₂O₃负载的Pt基催化剂的界面位点，利用ALD对Pt纳米粒子进行超薄

修饰，通过精确控制Al₂O₃的覆盖度，最优化Pt-Al₂O₃界面，大幅提高了加氢活性（图1a-b）。

将金属组分与氧化物组分进行空间分离，有助于阐明其作用机制。对于分离的双组分催化剂，在纳米尺寸内变化其距离可能导致不同的溢流行为。科研人员利用ALD精准调控双组分分离催化剂的距离，通过设计一系列单组份催化剂（TiO₂/Pt）、紧密接触的双组份催化剂（CoO_xPt/TiO₂）、双组分空间分离的催化剂（CoO_x/TiO₂/Pt）及选择性覆盖某一组分的催化剂（CoO_x/TiO₂/Pt/TiO₂和Al₂O₃/CoO_x/TiO₂/Pt），研究氢溢流促进的双组份催化剂协同效应。此外，进一步提出利用氢溢流原位精准调控催化活性中心电子结构的新方法，提高了催化剂对于环氧化反应的选择性。利用模板辅助的ALD方法制备了Pt和CoO_x纳米颗粒空间分离的CoO_x/yAl₂O₃/Pt催化剂（y为ALD循环数）。从Pt到CoO_x氢溢流的量可以通过改变Al₂O₃的厚度进行精准调控。对于CoO_x催化的苯乙烯环氧化反应，反应体系中引入氢溢流（Pt和H₂），大幅提高了环氧选择性。选择性的提高是由于可控氢溢流的引入导致反应中的钴物种处于更低的氧化态（图1c-d）。

上述研究为氢溢流的催化作用提供了证据，并为利用氢溢流设计先进催化剂提供了可能性。研究工作得到国家自然科学基金、国家杰出青年科学基金、山西省自然科学基金、中科院青年创新促进会等项目的资助。

论文链接



(a-b) 最大化Pt-Al₂O₃界面增强氢溢流效应提高加氢活性；(c-d) 利用氢溢流原位调控催化活性中心电子结构提高环氧选择性

研究团队单位：山西煤炭化学研究所

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