

研究提出全新高活性产氢催化剂稳定策略

氢能被认为是未来全球能源体系的重要支柱。高效、稳定、低成本的氢能生产已成为能源科技发展的关键挑战。近日，中国科学院大学教授周武团队与北京大学教授马丁团队合作，在《自然》（Nature）上发表了题为Shielding Pt/ γ -Mo₂N by Inert Nano-overlays Enables Stable H₂ Production的研究成果。该研究报道了全新高活性产氢催化剂稳定策略。研究通过设计、构筑稀土氧化物纳米覆盖层，保护Pt/ γ -Mo₂N催化剂的高活性界面催化位点，提升催化剂在甲醇-水重整制氢反应中的稳定性，使其催化寿命突破1000小时，创造超过1500万的催化转化数，超过现有甲醇-水重整催化剂。这一成果拓宽了该类型催化剂的工业应用前景，并为氢能技术的可持续发展提供了重要支撑。

催化技术在现代化学工业中占据核心地位。作为催化反应的核心，催化剂的活性和选择性决定反应速率和目标产物的收率，是衡量新型催化剂性能的重要指标。同时，催化剂的稳定性直接影响生产的持续性和经济性，是决定其能否实现大规模应用的重要因素。在催化研究中，高活性与高稳定性难以兼得是科学家面临的核心挑战之一。较多高活性催化剂能够提升催化反应效率，但在反应过程中易发生结构退化和活性中心流失，最终加速失效。在甲醇-水重整产氢这一关键反应体系中，上述问题尤为突出。

此前，该团队发现，在较低温度下，贵金属铂（Pt）、金和碳化钼等活性载体构建的界面催化体系，能够高效制氢，展现出超高活性和选择性。但是，由于这类活性载体在水环境中易被氧化，使得催化中心的结构稳定性受到制约，导致催化剂快速失效，成为限制其工业化应用的瓶颈。如何在保持高活性的同时提升催化剂的稳定性，成为领域内最具有挑战性的难题之一。

为破解催化剂稳定性瓶颈，该团队提出了在Pt/ γ -Mo₂N催化剂表面构筑惰性稀土氧化物纳米覆盖层，形成纳米尺度“保护盾”，覆盖活性载体表面的冗余位点，从而实现对接面催化结构的精准保护的全新催化剂稳定策略。

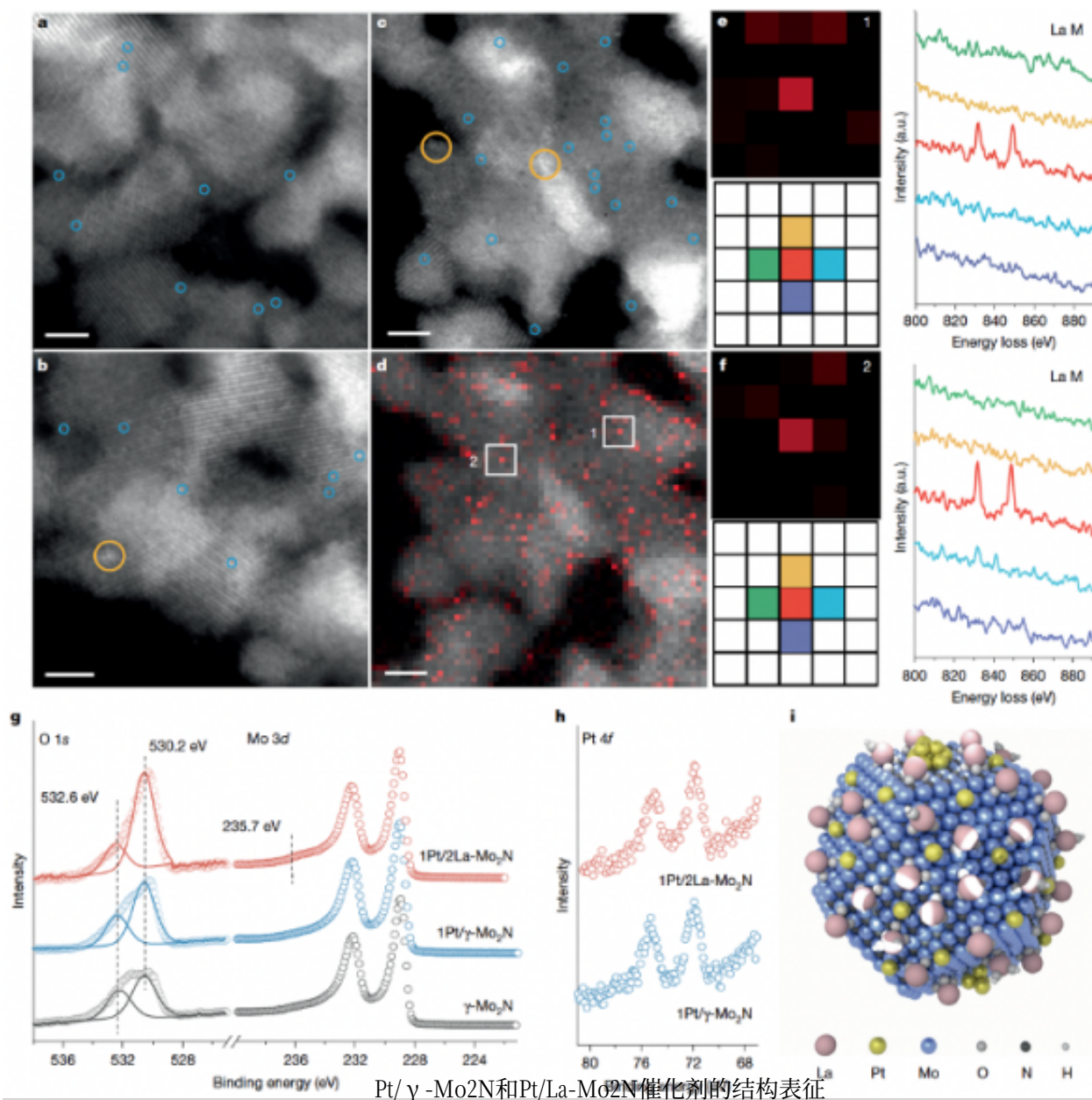
原子尺度扫描透射电子显微镜成像和电子能量损失谱分析显示，镧（La）物种在 γ -Mo₂N表面以原子级分散，呈现化学惰性的+3价，覆盖部分载体表面，并将其进行纳米尺度分割。同时，电镜表征证明，惰性稀土氧化物纳米覆盖层的加载未改变载体表面Pt物种的分散程度和结构，而催化剂中Pt物种主要以孤立单原子和少量亚纳米团簇的形式分散在Mo₂N表面，构成大量高活性的界面催化位点。原子尺度的电镜分析从结构角度验证了这一催化剂稳定策略在提升催化剂稳定性的同时不影响其催化活性。该策略的核心优势在于有效覆盖 γ -Mo₂N表面的冗余活性位点，阻止其在水环境中发生深度氧化；不损害催化剂的原有高活性和选择性，确保甲醇-水重整反应高效进行；提高催化剂的抗失活能力，延长使用寿命，为长期稳定制氢提供技术保障。

实验数据显示，在甲醇重整制氢反应中，新型Pt/La-Mo₂N催化剂展现出超过1000小时的稳定性而未有明显失活。同时，该催化剂可以保持超高活性和选择性，实现了超过1500万的超高催化转化数，创造了目前甲醇-水制氢催化反应的最高纪录。

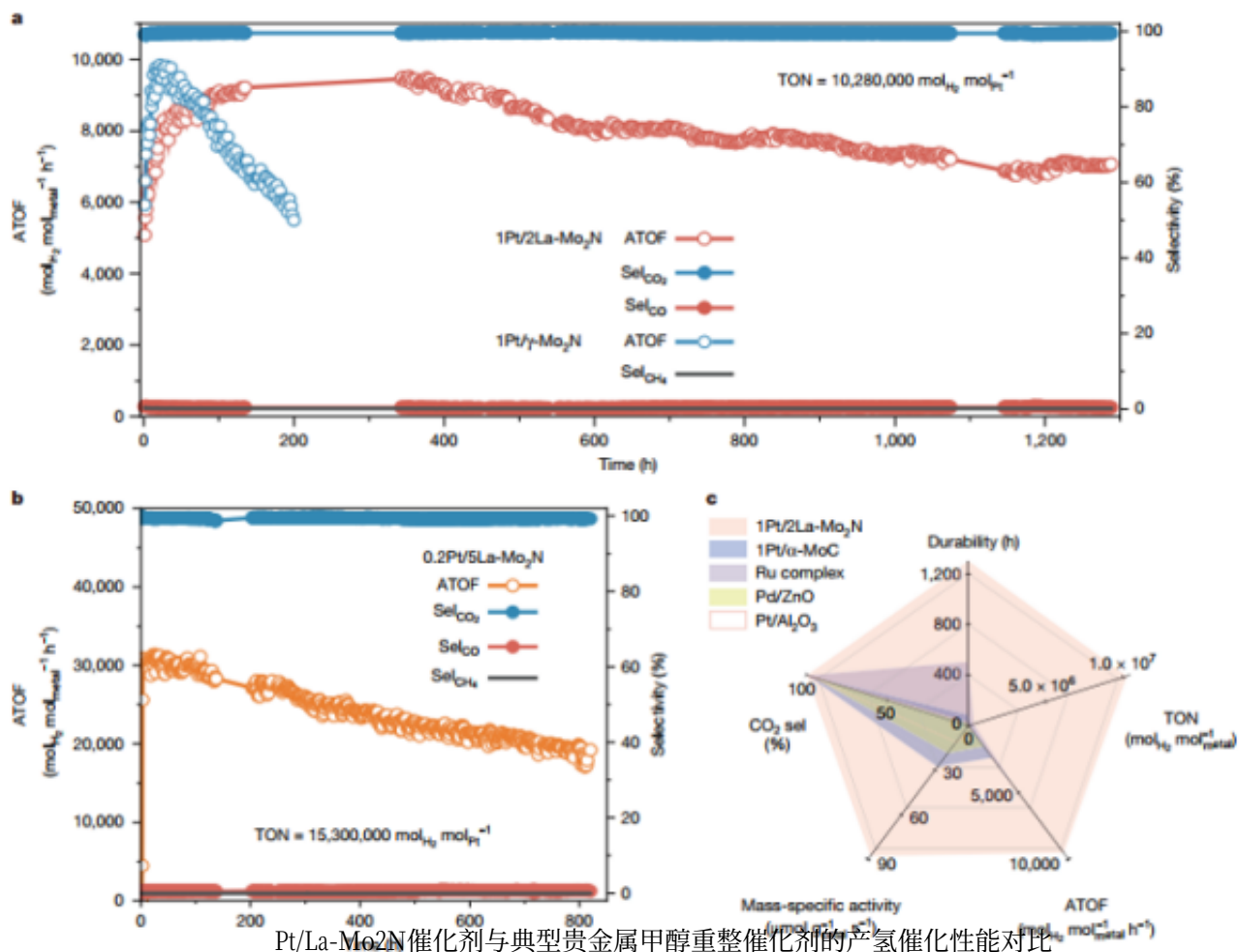
进一步，研究发现，这一策略具有良好的普适性，适用于La，可拓展至其他稀土元素，甚至适用于部分惰性非稀土元素，展现出广泛的适用性，并为未来兼具“高活性、高选择性和高稳定性”的高性能高催化剂的设计提供了全新思路。

这一研究基于单原子分辨的低电压球差校正STEM成像和EELS化学成像分析，剖析了一系列加载不同惰性氧化物纳米覆盖层的Pt/Mo₂N催化剂，揭示了La纳米覆盖层在提升催化剂稳定性方面的作用机制。其中，单原子精度的STEM-EELS分析解析了原子级分散La物种在催化剂表面的空间分布，提供了其化学价态的信息，为探讨La纳米覆盖层在Pt/ γ -Mo₂N界面保护中的结构基础提供了支持。该功能性化学成像技术可在单原子尺度上探究负载型催化剂表面物种的分散状态及电子结构，已成为推动催化剂设计与优化的重要研究手段。

研究工作国家重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划、北京高等学校卓越青年科学家计划项目等的支持。



Pt/γ-Mo₂N和Pt/La-Mo₂N催化剂的结构表征



Pt/La-Mo₂N催化剂与典型贵金属甲醇重整催化剂的产氢催化性能对比

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/221043.html>