



中国科学院大学

University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文评阅书

论文题目 尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO

转化研究

作者姓名 陈洋

学位类别 工学博士

学科（专业） 工业催化

研究所（院系） 中国科学院大连化学物理研究所

中国科学院大学制

学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	95
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	92
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	95
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	94
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	95
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	93
总体评价			总分	94

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目： 尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者姓名： 陈 洋

是否同意组织学位论文答辩
（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

论文题目：尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者姓名：陈 洋

评语：

负载型 Pt 基催化剂在许多反应中表现出优异的活性和选择性，成为研究最广泛和最深入的贵金属催化剂。由于传统的湿化学法所合成的 Pt 基催化剂金属粒子尺寸不均匀（由纳米颗粒到亚纳米团簇甚至单原子），这使得活性位点的识别变得极其困难，催化活性中心的确定一直是研究的重点方向。本论文以负载特定尺寸的铂基催化剂为研究对象，制备了纳米、亚纳米和单原子 Pt 基催化剂，进而研究 Pt 中心状态对催化反应的影响，这对反应中心的认识和机理的理解都具有重要的指导意义。

该选题在催化剂活性中心的确定以及反应机理认识方面具有重要的价值，对于贵金属催化的研究具有重要的科学参考价值，论文研究方法得当，结合多种表征手段和理论计算，探究 Pt 基催化剂在 CO（选择）氧化反应中活性中心以及 Pt 粒子尺寸对水煤气变换反应机制的影响。发现

（1）在 Al_2O_3 负载的纳米 Pt 上实现超低温条件下 CO 完全氧化，研究发现 $\text{Pt}(\text{OH})$ 的存在以及 Pt 扭折位和平台位之间的协同作用是该催化剂具有低温高活性的原因。

（2）通过改变预处理条件对 Pt 物种局部结构进行调控，研究了 Pt 物种局部结构与 PROX 反应性能的关联。提出 $\text{Pt}(\text{OH})$ 和金属 Pt 耦合的活性高于 PtO_x 或单 Pt，实现在较宽的温度区间（ $-30\sim 120^\circ\text{C}$ ）内 CO 转化率和选择性均为 100%。

（3）在 Pt/FeO_x 催化体系中，制备的 Pt 粒子尺寸从纳米到单原子分散的催化剂，结合原位表征手段探究尺寸效应对水煤气变换反应机制的影响。Pt 纳米粒子中心更偏金属态，其对 CO 吸附能力更强，反应通过甲酸盐缔合机理进行；而 Pt 单原子中心与 FeO_x 具有更强的金属载体相互作用，更大程度促进界面处氧空位的形成，反应通过氧化还原机理进行。

（4）在单原子 Pt_1/CeO_2 催化体系中，制备得不同形貌的 CeO_2 负载的单原子 Pt 催化剂，考察了载体的形貌效应。载体形貌影响单原子 Pt 的电子状态，纳米棒 CeO_2 负载的单原子 Pt 呈正价态，有利于削弱 CO 吸附，并且纳米棒表面含有丰富的氧空位，有利于 O_2 活化，从而提高反应活性。

论文思路清晰，得到的结果以及数据可靠，图表规范，达到博士学位论文要求。

建议：

1 存在一些笔误，建议认真再看看

2. P88, “ H_2 的存在可以维持 OH 物种稳定...”，依据是什么？如何维持？

学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	9
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	14
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	39
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	9
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	14
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	9
总体评价			总分	94

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目：尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者：陈 洋

可控合成特定的金属尺寸催化剂对于反应活性中心的认识和机理理解是催化研究的一个重要方面。开展尺寸可控合成的高分散 Pt 基催化剂及其 CO 氧化和水汽变换反应的反应性能的构效关系的研究，具有重要的理论价值和潜在的应用前景。

CO 的强吸附抑制了 O₂ 的吸附活化，因此，Pt 基催化剂的低温氧化性能差。当 Pt/Al₂O₃ 的粒径为 1nm 左右，其 -20°C 的 CO 能完全氧化。表征结果表明：kink 位 Pt 上吸附的 CO 与 terrace 位 Pt 上的 OH 物种反应产生 CO₂，O₂ 容易在 terrace 位上以 OH 形式活化。

不同的预处理对 Pt 尺寸的影响有限，其中 200°C 还原的催化剂可在 -30~120°C 的宽温窗口内实现 CO 转化率和选择性均可达 100%。研究表明：Pt(OH) 和金属 Pt 共存有利于 O₂ 活化，CO 吸附被削弱 H₂ 吸附被抑制。

Pt₁/FeOx 的纳米，亚纳米和单原子 Pt 催化剂水汽变换反应的性能研究发现，单原子催化剂的活化能低于纳米催化剂一个数量级，达到 33KJ/mol。因此，0.05%Pt 的单原子催化剂成为目前报道的最活泼的催化剂之一。

Pt₁/CeO₂ 纳米棒催化剂具有更高的 CO 氧化活性。

以上研究结果具有创新性。

该博士论文总体来说，工作量大，工作较为系统，论文书写文字通顺，推理合理，表明作者有较扎实的理论基础和实验技能，具备独立进行科研工作的能力。建议组织博士论文答辩。

是否同意组织学位论文答辩
(请在相应栏内打“√”)

☒ √ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	
总体评价			总分	94

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目： 尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者姓名： 陈 洋

负载 Pt 催化剂广泛应用于许多重要催化过程中，提高 Pt 的催化活性一直是 Pt 催化的一个重要挑战。本论文研究尺寸可控的高分散 Pt 催化剂，并用于 CO 氧化反应和水煤气变换反应中，得到以下创新性成果。利用胶体沉淀法制备 Al_2O_3 负载的 1nm 尺寸的 Pt 催化剂，实现 Pt 基催化剂在零下 20 度条件下完全氧化；表征结果表明该催化剂中存在金属 Pt 和 $\text{Pt}(\text{OH})$ 两种物种，两者协同作用，使得 CO 与台面上 OH 反应生成 CO_2 ，而 O_2 在平台位活化生成 OH，这一催化过程反应能垒大大降低。考察了 Pt 物种的局域环境，制备了活性中心为 $\text{Pt}(\text{OH})$ 、Pt、 PtO_x 等不同结构，发现 $\text{Pt}(\text{OH})$ 在催化循环中的关键作用。研究了 FeO_x 负载的 Pt 催化剂，发现随着 Pt 粒子尺寸减小反应速率基 TOF 都增加；Pt 纳米粒子上水煤气变换反应以缔合机制进行，而在 Pt 单原子催化剂上该反应以氧化还原机制进行。论文研究内容丰富、数据分析合理、研究层次清晰、论文书写规范；符合博士论文要求，推荐进行博士论文答辩。

是否同意组织学位论文答辩
（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	9
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	15
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	37
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	9
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	15
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	9
总体评价			总分	94

注: “分数”栏每项均按百分制整数评分, 各项满分均为 100 分。评分分为四档: 大于等于 90 分为优秀; 大于等于 75 分小于 89 分为良好; 大于等于 60 分小于 74 分为一般; 小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目：尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者姓名：陈 洋

铂基催化剂的可控合成与制备无论对于基础研究还是实际应用均具有重要意义。本论文以尺寸可控的铂基催化剂为研究对象，主要进行了以下几方面的研究：① 负载铂负载的 1 nm 左右的铂纳米粒子，发现其可以暴露特殊晶面，从而提升 CO 转化率。② 在此基础上拓展至 PROX 反应，取得良好结果。③ 制备了高分散的铂纳米颗粒，展现出高的水煤气变换活性。

该论文对相关领域文献进行了较全面的综述，书写较为规范，逻辑结构清晰，数据图表齐全，分析合理，达到了硕士学位论文要求，建议组织对该论文的答辩。最后一点建议：认真检查错漏。

是否同意组织学位论文答辩
（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩

学术道德评价

(一票否决)

评价要素	评价意见 (请在相应栏内划“√”)
是否存在剽窃他人成果、伪造数据、由他人代写等严重作假行为	<input type="checkbox"/> 是 (具体说明存在的问题)
	<input checked="" type="checkbox"/> 否

评阅意见

评 价 要 素			权重	具体得分 (百分制)
1	论文选题	选题的理论意义、实用价值	10%	95
2	文献综述	反映该学科及相关领域的前人成果和前沿动态	15%	95
3	创新成果	论文成果创新性, 对学科发展、技术进步、经济建设、国家安全等方面产生的影响和贡献	40%	92
4	基础理论和专门知识	基础理论的宽厚度、坚实度, 专门知识的系统性、深入性	10%	93
5	科研能力	论文体现科研潜质与独立科研能力	15%	92
6	论文写作	论文结构、撰写规范性; 文字表达准确、清晰和流畅性; 引文严谨、规范性	10%	93
总体评价			总分	93

注：“分数”栏每项均按百分制整数评分，各项满分均为 100 分。评分分为四档：大于等于 90 分为优秀；大于等于 75 分小于 89 分为良好；大于等于 60 分小于 74 分为一般；小于 60 分为差。

对学位论文的学术评语：（请对论文的学术水平、创新性做出简要评述，包括选题意义，文献资料的掌握，论文创新之处，写作规范和逻辑性等。还须明确指出论文中存在的问题和不足之处。可另附页）

论文题目：尺寸可控铂基催化剂的活性中心及催化 CO 转化研究

作者姓名：陈 洋

论文以Pt基催化剂为研究对象，通过制备方法的调变、处理温度和气氛的调变、载体的改变等，设计与调控Pt中心的电子和几何结构，实现对反应过程的控制。论文选题具有明确的应用背景和理论意义，取得了系列创新成果。

- 1) 通过溶胶凝胶法制备出Al₂O₃负载1nm尺寸的Pt催化剂，实现了Pt基催化剂-20℃时CO的完全氧化。
- 2) TeO₂载体上单原子铂Pt中心具有量高的WGS活性。
- 3) 不同形貌氧化铜上负载单原子Pt，调控了Pt的电子状态，从而调控了反应路径。

论文结构完整，条理清晰，撰写规范，数据丰富，分析合理，结论可信。建议组织答辩，并授予工学博士学位。

是否同意组织学位论文答辩

（请在相应栏内划“√”）

☒ 同意答辩

☐ 修改后答辩

☐ 不同意答辩