

中国科学院大连化学物理研究所  
优秀博士后支持计划申请表

申请人： 林乐

研究组： 0502 组

学科专业： 物理化学

合作导师： 傅强

填表日期： 2022 年 5 月 6 日

中国科学院大连化学物理研究所制

姓名	林乐	性别	男
出生日期	1992. 03. 01	民族	汉
学历/学位	博士	授予博士学位时间	
博士毕业院校	中国科学院大学	专业	物理化学
(拟) 进站时间	2021. 12. 26	进站性质	<input checked="" type="checkbox"/> 统招统分 <input type="checkbox"/> 在职人员
E-Mail		联系电话	
学习经历	起止年月	所在单位/专业	所获学位
	2011. 09-2015. 06	青岛科技大学 化学与分子工程学院	理学学士
	2015. 09-2022. 01	中科院上海高等研究院、上海科技大学、中科院大连化学物理研究所联培	理学博士
工作经历	起止年月	所在单位	职务
博士学位论文摘要	博士论文题目	金属氧化物活化 CO <sub>x</sub> 和 H <sub>2</sub> 等能源小分子的理论研究	
	指导教师姓名	包信和 (第一导师)、傅强 (第二导师)	
	(限 800 字)		
<p>本论文从理论模拟的角度出发, 借助密度泛函理论计算, 通过构建模型催化体系, 研究了三种金属氧化物的结构特征及其与 CO<sub>x</sub> 和 H<sub>2</sub> 等能源小分子的反应特性, 探讨了金属氧化物基催化剂中存在的应变、载体、晶相以及界面限域效应:</p> <p>(1) 构建了不同厚度、载体和应变的氧化锌薄膜, 发现: (i) 载体通过界面电子转移作用促使了类石墨烯相 (G-ZnO) 向类纤锌矿相 (W-ZnO) 的结构转变; (ii) 张应变和活泼载体皆可调控 Zn 的电子结构, 促进 Zn 还原, 促进 CO 等的吸附; (iii) W-ZnO 比 G-ZnO 薄膜有更强的 H 结合能力, 其差异有 2 eV (无载体) 或 1 eV (有载体) 之大, 结合 BEP 关系, 这意味 0.5 eV 以上的能垒调变; W-ZnO 块体的表面利于氧空位形成而促进 CO 氧化。</p> <p>(2) 构建了 Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (001) 表面、MnO (100) 表面和 MnO<sub>1-x</sub>/Au (111) 界面等模型, 发现: (i) 沿 Mn<sub>3</sub>O<sub>4</sub>[001]晶向, 氧空位浓度从表面到体相逐渐增加, 此梯度源于氧在不同深度的稳定性差异, 可用氧填充能来标度, 而且与总的氧缺陷浓度密切相关; (ii) MnO<sub>1-x</sub>/Au (111) 可提供界面限域的二配位 Mn 用于 CO 吸附, 进一步通过 CO 二聚和 CCO* 中间体实现 C-O 断键。</p> <p>(3) 构建了 Ni 和 Co 掺杂的 Sr<sub>2</sub>Fe<sub>1.5</sub>Mo<sub>0.5</sub>O<sub>6-δ</sub> (SFM) 和 Sr<sub>3</sub>FeMoO<sub>7</sub> (RP-SFM) 等模型, 发现: (i) Ni 优先偏析到 SFM 表面同时促进 Fe 的偏析而形成 FeNi<sub>3</sub> 合金纳米粒子, 原位构建的 FeNi<sub>3</sub>/SFM 结构能提供界面限域位点 (周界金属协同表面氧空位), 其能显著增强 CO<sub>2</sub> 的吸附和活化, 提高 CO<sub>2</sub> 电解性能。(ii) 类似地, Co 优先偏析留下阳离子空位可促进旁边的 Fe 偏析而形成 CoFe 合金纳米粒子, 以此构筑的 CoFe/RP-SFM 界面能增强 CO<sub>2</sub> 的吸附, 实现 CO<sub>2</sub> 高效电解。</p>			

入站前期及入站后科研情况简介	<b>1、主持或参与项目情况：</b>					
	序号	项目名称	项目来源	项目金额	起止年度	角色
	1	二维材料封装金属的电子传递机制及催化调控效应的第一性原理研究	国家自然科学基金委员会	66 万元	2019-01-01 至 2022-12-31	参与
	<b>2、代表性论文（5 篇以内）</b>					
	注：“作者排序”中，如为通讯作者请填写“C”。					
	序号	论文题目	期刊名	影响因子	发表年度/卷期/页码	排序
	1	Achieve Flexible Large-Scale Reactivity Tuning by Controlling Phase, Thickness and Support of Two-Dimensional ZnO	Chemical Science	9.825	2021, 2, 15284-15290	第一
	2	Strain and Support Effects on Phase Transition and Surface Reactivity of Ultrathin ZnO Films: DFT Insights	AIP Advances	1.548	2020, 10, 125125.	第一
	3	Promoting Exsolution of RuFe Alloy Nanoparticles on Sr <sub>2</sub> Fe <sub>1.4</sub> Ru <sub>0.1</sub> Mo <sub>0.5</sub> O <sub>6-δ</sub> via Repeated Redox Manipulations for CO <sub>2</sub> electrolysis	Nature Communications	14.919	2021, 12, 5665.	共一 (第二)
4	In Situ Investigation of Reversible Exsolution/Dissolution of CoFe Alloy Nanoparticles in a Co-Doped Sr <sub>2</sub> Fe <sub>1.5</sub> Mo <sub>0.5</sub> O <sub>6-δ</sub> Cathode for CO <sub>2</sub> Electrolysis	Advanced Materials	30.849	2020, 32, 1906193.	共一 (第二)	

5	Interfacial Enhancement by $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> of Electrochemical Oxidative Dehydrogenation of Ethane to Ethylene in Solid Oxide Electrolysis Cells	Angewandte Chemie International Edition	15.336	2019, 131, 16189-16192.	共一(第二)
其他论文发表情况					
1	Pd Single Site-anchored Perovskite Cathode for CO <sub>2</sub> Electrolysis in Solid Oxide Electrolysis Cells	Nano Energy	17.881	2020, 71, 104598.	共一(第二)
2	CO and H <sub>2</sub> Activation over g-ZnO Layers and w-ZnO(0001)	ACS Catalysis	13.084	2019, 9, 1373-1382.	共一(第二)
3	Activation of CO over Ultrathin Manganese Oxide Layers Grown on Au(111)	ACS Catalysis	13.084	2021, 11, 849-857.	共一(第二)
4	Modulating the formation and evolution of surface hydrogen species on ZnO through Cr addition	ACS Catalysis	13.084	已接收	共一(第二)
5	In Situ Exsolved FeNi <sub>3</sub> Nanoparticles on Nickel Doped Sr <sub>2</sub> Fe <sub>1.5</sub> Mo <sub>0.5</sub> O <sub>6-<math>\delta</math></sub> Perovskite for Efficient Electrochemical CO <sub>2</sub> Reduction Reaction	Journal of Materials Chemistry A	12.732	2019, 7, 11967-11975.	共一(第二)

6	Dynamic transformation between bilayer islands and dinuclear clusters of Cr oxide on Au(111) through environment and interface effects	Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America	11.205	已接收	共一(第二)
7	Design of Lewis Pairs via Interface Engineering of Oxide-Metal Composite Catalyst for Water Activation	The Journal of Physical Chemistry Letters	6.475	2021, 12, 1443-1452.	共一(2第二)
8	Predominance of Subsurface and Bulk Oxygen Vacancies in Reduced Manganese Oxide	The Journal of Physical Chemistry C	4.126	2021, 125, 7990-7998.	共一(第二)
<b>3、专利情况:</b>					
序号	专利名称	授权/申请	授权/申请号	起始日期	排序
<b>4、获奖情况:</b>					
序号	奖励名称	奖励等级	授奖单位	奖励年度	排序
1	上海科技大学三好学生		上海科技大学	2019	1
2	中国科学院大学三好学生		中国科学院大学	2020	1
3	延长石油优秀博士生奖学金二等奖		大连化物所	2019	1
4	岛津奖学金三等奖		大连化物所	2020	1

博士 后 工 作 的 研 究 计 划	<b>博士后研究题目：</b> 界面限域和气氛诱导下的 Zn 基氧化物催化剂的界面结构演变及其 CO <sub>x</sub> 加氢反应影响的理论研究					
	（简述研究计划的可行性、先进性和创新性，理论和现实意义）  <b>1. 研究计划：</b> 聚焦于 Zn 基金属氧化物催化剂的结构对 CO <sub>x</sub> 加氢催化性能的影响，研究界面限域和气氛诱导两种效应对 Zn 基氧化物/氧化物界面结构的调控规律及其对 CO <sub>x</sub> 加氢反应的作用规律，一方面，明确条件下的氧化物界面的结构演变，找到界面限域在氧化物/氧化物界面体系的定量描述符，探究普适性的界面构建策略；另一方面，研究氧化物/氧化物界面结构对 CO <sub>x</sub> 加氢反应的影响，建立构效关系的微观理解。具体地，以 Zn 基金属氧化物为中心，通过改变衬底氧化物种类、晶面等因素，研究从单原子/离子到几个原子团簇再到薄膜或者颗粒的 ZnO <sub>x</sub> 盖层的结构性质；通过改变温度、压力，尤其关注反应条件下的负载 ZnO <sub>x</sub> 的动态演变；进而，研究这些模型上的 CO <sub>x</sub> 加氢中的关键分子及中间体的反应性以及反应路径、势能面等内容，找到界面限域和气氛诱导两因素的作用机制和规律。  <b>2.可行性、先进性和创新性：</b> 通过构建模型体系进行 DFT 计算模拟和 STM、XPS 等表面科学研究是一套比较成熟的基础研究的解决方案。结合 DFT 计算和表面科学手段，能够实现对金属氧化物/氧化物界面体系及其 CO <sub>x</sub> 加氢反应的构效关系的分析和理解。因此，上述研究计划从技术来看是可行的。另外，结合机器学习、巨正则蒙特卡洛模拟等理论研究方法以及近常压或高压原位的实验表征方法，也是有先进性和创新性的，据此有望获得全温度压力范围的真实界面结构，实现对金属氧化物/氧化物界面结构演变及其在 CO <sub>x</sub> 加氢反应作用机制的理解。  <b>3. 理论和现实意义：</b> 金属氧化物/氧化物界面在 CO <sub>x</sub> 加氢转化等多相催化反应中发挥着重要作用，研究其微观机制对于优化反应性能具有重要意义。通过理论计算结合表面科学研究，能够实现基于原子尺度的氧化物/氧化物界面与 CO <sub>x</sub> 加氢反应的构效关系理解。不仅能够建立基于描述符基的理论理解，而且为进一步的金属氧化物/氧化物界面设计以实现 CO <sub>x</sub> 加氢反应性调控的实验研究提供了思路。					
本人 承 诺	本人承诺：申请表所填内容均真实可靠。对因虚报、伪造等行为引起的后果及法律责任均由本人承担。  本人签字：  2022年 5 月 5 日					