

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： 夏梅涵

研究组： 509 组群

学科专业： 材料物理与化学

中国科学院大连化学物理研究所制

姓名	夏梅涵		性别	男
出生日期			民族	汉族
学历/学位	研究生/博士	授予博士学位时间	2024年6月30日	
博士毕业院校	中国科学院大学	专业	物理化学	
(拟)入站时间	2024年9月5日	入站性质	<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 从本科起	起止年月	所在单位/专业		所获学位
	2013年9月-2017年6月	厦门大学/化学		理学学士
	2017年9月-2024年6月	中国科学院大学/物理化学		理学博士
工作经历	起止年月	所在单位		职务
	2024年9月至今	中国科学院大连化物所		博士后
博士学位论文摘要				
	<p>本论文采用密度泛函理论计算,研究了杂原子掺杂对二维 CoOOH、二维 MoS<sub>2</sub> 等电催化活化水的催化活性调控与提升机制,以及温和条件下 Au/<math>\alpha</math>-MoC 直接活化解离水作为氢源对乙炔选择性加氢制乙烯的催化机理,为水分子高效活化与转化催化剂的开发提供了理论指导。取得的主要研究结果如下:</p> <p>(1) 针对过渡金属掺杂调控与促进二维 CoOOH 电催化析氧反应的活性位点和反应机理不明确的问题,基于密度泛函理论的计算,揭示了不同最高价态和配位能力过渡金属的调控和优化机理:高价态的金属 Cr 掺杂在边缘位点增强了 O*物种的吸附,降低了速控步 OH*到 O*的限制电位,从而优化了 OER 活性;金属 Ir 掺杂到 CoOOH 面内形成缺陷,能和 OH*、O*、OOH*等物种都形成较好的吸附,平均化各个电子转移步骤的限制电位,从而表现出优异活性;金属 Fe 和 Ni 掺杂到 CoOOH 面内时,其低价态的特性降低了面内晶格氧的稳定性,进而降低了速控步 O*到 OOH*的限制电位,优化了晶格氧介导机理的 OER 活性。</p> <p>(2) 针对二维 MoS<sub>2</sub> 电催化析氢边缘活性位点少,单元素掺杂过度活化边缘位点、双元素掺杂合成复杂的问题,通过掺杂半金属 Te 实现单元素掺杂活化 MoS<sub>2</sub>,但半金属 Te 掺杂调控的机制尚不明确。基于密度泛函理论的计算研究,发现半金属 Te 取代面内 Mo 原子,其弱金属性会高度活化与之相连的 S 原子,使其费米能级附近 3p 电子态密度更大,对氢吸附增强并更接近理想值;Te 取代边缘位点的 Mo 或者 S 也能提升边缘活性;此外,Te 掺杂后在边缘位点相对稳定性更高,能产生更多活性边缘结构。</p> <p>(3) 针对 Au/<math>\alpha</math>-MoC 低温直接活化水分子对乙炔选择性加氢制乙烯的活性位点、加氢机理和产物高选择性原因不明确的问题,基于密度泛函理论的计算研究,揭示了 Au 团簇与<math>\alpha</math>-MoC 的界面是该反应的活性位点,水分子在界面 Mo 位点上解离生成的 OH 上的活泼 H 能够将乙炔加氢到乙烯,吸附在 Au 团簇上的 CO 能移除 OH 加氢剩余的 O,使活性位点再生,计算得到生成乙烯更低的能垒以及乙烯更易脱附的特性,解释了产物乙烯的高选择性。</p>			

1、主持或参与项目情况：					
序号	项目名称	项目来源	项目金额	起止年度	角色
1	二硫化钼限域硫空位催化二氧化碳加氢制碳二产物的理论研究	国家自然科学基金-面上基金	54 万	2023 年至 2026 年	参与
2	二维硫化钼基酸性析氢催化剂理论预测和智能开发	国家自然科学基金-面上基金	50 万	2025 年至 2028 年	参与
2、代表性论文（5 篇以内）					
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	Acetylene hydrogenation to ethylene by water at low temperature on a Au/ $\alpha$ -MoC catalyst	Nature Catalysis	42.8	2023/6/1005-1015	2/15(共同一作)
2	Single-Atomic Ir and Mo Co-Confined in a Co Layered Hydroxide Nanobox Mutually Boost Oxygen Evolution	ACS Catalysis	11.3	2022/12/13513-13522	2/10(共同一作)
3	Operando identification of active sites in Co-Cr oxyhydroxide oxygen evolution electrocatalysts	Nano Energy	16.8	2022/101/107562	2/10(共同一作)
其他论文发表情况					
3、专利情况：					
序号	专利名称	授权/申请	授权/申请号	起始日期	排序
4、获奖情况：					
序号	奖励名称	奖励等级	授奖单位	奖励年度	排序
1	博士研究生国家奖学金		教育部	2023 年	
2	延长石油优秀博士生奖学金三等奖		大连化物所	2024 年	
3	中国科学院大学三好学生		中国科学院大学	2021 年	

入 站 前 期  
及 入 站 后  
科 研 情 况  
简 介

	4	中国科学院大学优秀学生干部		中国科学院大学	2021年	
	5	中国科学院大学三好学生		中国科学院大学	2018年	
博士后的研究计划	博士后研究题目：杂原子掺杂二硫化钼析氢反应性能的理论研究 （简述研究计划的可行性、先进性和创新性，理论和现实意义）					
	<p><b>1. 研究计划：</b></p> <p>聚焦于杂原子掺杂对二维 MoS<sub>2</sub> 的析氢反应活性的调控，研究不同杂原子掺杂时，对二维 MoS<sub>2</sub> 面内和边缘析氢活性的影响，进而寻找掺杂原子对析氢活性影响的相关描述符，探索普适性的掺杂 MoS<sub>2</sub> 析氢催化剂的设计策略。具体地，通过密度泛函理论计算获取大量掺杂二维 MoS<sub>2</sub> 结构和掺杂结构不同位点的析氢活性（H 原子吸附自由能）数据，通过筛选合适的机器学习算法，建立不同掺杂结构的特征描述符（电负性，价层电子数，原子半径，离子半径等）和析氢活性的关系；进而，筛选和确定掺杂原子性质和掺杂二维 MoS<sub>2</sub> 析氢活性的数学模型，实现对掺杂结构对调控析氢活性的本质理解和对不同位点析氢活性的预测。</p> <p><b>2. 可行性、先进性和创新型：</b></p> <p>通过构建模型进行 DFT 计算模拟是一种比较成熟的基础研究方法，二维 MoS<sub>2</sub> 的结构简单，杂原子掺杂的结构也相对明确，大批量的 DFT 计算模拟较容易实现。已有的研究表明，析氢反应活性可以通过计算得到的 H 原子吸附自由能直接体现，因此可以将 DFT 计算的掺杂结构中掺杂位点的性质和析氢活性关联，并利用机器学习算法进行高通量分析。申请人已在 MoS<sub>2</sub> 掺杂结构上做了一些工作，综上，该研究计划是可行的。该研究的创新性在于：结合机器学习方法，可以从大量的计算数据中分析掺杂原子和掺杂结构的多维度性质和析氢活性的相关性，进而得到更具普适性的掺杂调控的构效关系；该研究有望确定与掺杂原子物理化学性质直接相关的析氢活性调控的描述符，进而实现高效析氢的掺杂二维 MoS<sub>2</sub> 催化剂的预测和设计。</p> <p><b>3. 理论和现实意义：</b></p> <p>析氢反应是电解水制氢中重要的反应，同时也与其他重要的碳氮化合物的电还原密切相关，研究掺杂原子对析氢活性的调控的规律对非贵金属基析氢反应催化剂的设计具有重要意义。通过理论计算和机器学习可以提炼出重要的特征结构参数，实现高效析氢催化剂的理性筛选并预测几种高效的析氢反应催化剂，并为掺杂二维 MoS<sub>2</sub> 催化其他加氢和电还原过程的研究提供思路。</p>					
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：夏梅涵 2024年9月24日					