

## 答辩委员会决议

答辩委员会对论文的学术评语（论文选题意义，论文创新性成果及学术水平；论文写作规范化和逻辑性；论文存在的主要不足之处，答辩情况。）：

论文题目：ZrO<sub>2</sub>负载的过渡金属催化甲烷选择性转化研究

学生姓名：刘华

甲烷作为十分重要的能源分子，结构稳定，活化困难，其 C-H 键的选择氧化一直是催化科学领域的重大挑战。该博士论文重点围绕甲烷水气重整制氢和甲烷直接氧化制甲醇两个反应，制备了 ZrO<sub>2</sub> 负载过渡金属催化剂，并采用多种表征技术结合理论计算，研究了甲烷转化的催化反应机理。论文选题具有重要的科学意义。取得的主要结果如下：

（1）针对甲烷蒸气重整制氢反应制备了不同负载量的 Ru/ZrO<sub>2</sub> 纳米催化剂，发现催化剂表面氧空位有效促进 Ru 与 ZrO<sub>2</sub> 之间电子转移，进而促进甲烷和水蒸气的吸附和活化，最终提高催化反应活性。

（2）以硫酸酸化的 ZrO<sub>2</sub> 为载体，制备了固体超强酸负载的 Ru 单原子催化剂（Ru/SZrO<sub>2</sub>），并以 H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 为氧化剂，在 70 °C 下催化甲烷制含氧化合物反应的 TOF 达到 80 h<sup>-1</sup>。硫酸化可使载体表面形成强酸性位，使 Ru<sup>δ+</sup> 单原子处于缺电子状态，从而促进其对甲烷 C-H 键的催化活化。

（3）制备了 Cu/ZrO<sub>2</sub> 单原子催化剂，发现 Cu<sup>2+</sup> 单分散在 ZrO<sub>2</sub> 表面的 Zr 缺陷位上。在固定床连续流气固相甲烷氧化制甲醇反应中，催化剂通过 Cu<sup>2+</sup> 与 Cu<sup>+</sup> 之间的循环转变，实现甲烷的高效转化（TOF: 2 h<sup>-1</sup>；甲醇选择性：100%），且催化性能在 220 h 内保持稳定。

上述研究结果具有创新性。

论文内容充实，文献总结全面，数据分析合理，结论可信。答辩过程中表达清楚，能够正确回答问题，表明该同学掌握了扎实的理论知识和实验技能，具有独立从事科研工作的能力，达到了博士学位论文的要求。经答辩委员会无记名投票表决，全票通过论文答辩，建议授予刘华同学工学博士学位。

答辩委员会主席（签字）：

2022 年 11 月 20 日