

中国科学院大连化学物理研究所
优秀博士后奖励基金申请表

申请人: 康磊磊

研究组: 1502 组

学科专业: 工业催化

合作导师: 张 涛

填表日期: 2017 年 05 月 02 日

姓名	康磊磊	性别	男
出生日期	1986.04.20	民族	汉
学历/学位	博士研究生	专业技术职务	
毕业院校	哈尔滨工业大学	专业	化学工程与技术
(拟)入站时间	2017.03.27	入站性质	<input checked="" type="checkbox"/> 统招统分 <input type="checkbox"/> 在职人员
E-Mail	leikang@dicp.ac.cn	联系电话	18845099242
学习 简历	起止年月	所在单位/专业	所获学位
	2015.09.28 ~ 2016.09.27	南洋理工大学/化学	CSC 公派
	2012.09.01 ~ 2017.01.05	哈尔滨工业大学/化学工程与技术	博士
	2010.09.01 ~ 2012.07.01	哈尔滨工业大学/无机化学	硕士
	2006.09.01 ~ 2010.07.01	山西师范大学/化学	学士
博士 学位 论 文 摘 要	博士论文题目	原位 SERS 研究单颗粒 Ag 微球表面等离子体催化反应	
	指导教师姓名	韩喜江、徐平	
	<p>基于原位 SP-SERS 研究了 4-ATP 在空气中的表面等离子体催化偶合反应。为了研究空气中组分对 4-ATP 表面等离子体催化反应的影响，利用自制的反应气氛控制装置研究了不同反应气氛对该反应的影响。在反应气氛控制装置中通入 N₂ 时，经 532 nm 和 633 nm 激光分别长时间照射后，4-ATP 的 SERS 谱中均未出现“b₂”模，再次确认了“b₂”模是来自新生成的 DMAB 分子的拉曼峰。通过改变通入反应装置中不同氧化/还原性质的气体，可以实现表面等离子体作用下 4-ATP-DMAB 间的多次可逆转化。研究发现，4-ATP 到 DMAB 的偶合反应是由表面等离子体热效应引发的，其中，O₂ 是必需的氧化剂，H₂O 可以加速反应的进行。而其逆反应是由金属表面等离子体衰减产生的“热电子”引发的还原反应，H₂O 或 H₂ 可以在表面等离子体作用下提供质子。</p> <p>利用 SP-SERS 研究了 4-NTP 在不同气氛中的等离子体催化偶合反应。在相同激光条件下，4-NTP 在 N₂ 中的等离子体催化反应要比在空气中进行得快，而在纯 O₂ 中反应进行得比空气中慢。以上研究结果表明，O₂ 可以有效地淬灭金属表面产生的“热电子”，从而抑制了 4-NTP 偶合为 DMAB 的还原反应，也进一步印证了 4-ATP 的“b₂”模是来自于 DMAB 分子。此外，通过密度泛函理论计算得到了相关分子的电子云分布情况，并结合 SERS 谱很好地解释了 4-NTP 分子等离子体催化所得 SP-SERS 谱中 $\nu(\text{C-C})$ 峰的变宽和分裂现象，强调了该现象对原位 SERS 研究表面等离子体催化反应的重要性。基于以上理解，证明了 4-NTP 可以在还原性气氛中经由 DMAB 还原为 4-ATP。</p> <p>基于原位 SP-SERS 技术研究了 N719 的表面等离子体催化反应。结果发现，用较高能量的激光（488 nm 和 532 nm）照射可以使 N719 SERS 谱中 1545 cm⁻¹ 处的 $\nu(\text{C-C})$ 峰发生变宽和分裂。结合 4-NTP 等离子体催化反应研究结果和密度泛函理论计算，证明了 N719 的 SERS 谱中拉曼峰的变化与表面等离子体作用下 N719 发生脱羧反应有关，其很可能是 N719 染料敏化太阳能电池不稳定的原因之一，这为此类电池的应用研究提供了理论参考，也进一步说明原位表面等离子体反应可用于机理研究。</p>		

入 站 前 期 科 研 情 况 简 介	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	原位拉曼光谱研究激光诱导化学反应及机理	国家自然科学基金	65 万元	2017.01-2020.12	参与
	2	以中间态过度态金属化合物为牺牲模板可控制备贵金属纳米催化材料	国家自然科学基金	75 万元	2016.01-2019.12	参与
	3	原位SERS 研究表面等离子体诱导化学反应及机理	国家自然科学基金	85 万元	2015.01-2018.12	参与
	2、论文发表情况: (已发表或已接收发表)					
	序号	论文题目	期刊名	影响因子	发表年度/卷期/页码	排序
	1	Laser wavelength-and power-dependent plasmon-driven chemical reactions monitored using single particle surface enhanced Raman spectroscopy	Chemical Communications	6.83	2013, 49(33): 3389-3391	1
	2	Amino acid-assisted synthesis of hierarchical silver microspheres for single particle surface-enhanced Raman spectroscopy	Journal of Physical Chemistry C	4.77	2013, 117(19): 10007-10012	1
	3	Mechanistic understanding of surface plasmon assisted catalysis on a single particle: cyclic redox of 4-aminothiopheno	Scientific Reports	5.58	2013, 3, 2997	1
	4	In situ surface - enhanced Raman spectroscopy study of plasmon - driven catalytic reactions of 4 - nitrothiophenol under a controlled atmosphere	ChemCatChem	4.73	2015, 7(6): 1004-1010	1
	5	Recent progress in the applications of graphene in surface-enhanced Raman scattering and plasmon-induced catalytic reactions	Journal of Materials Chemistry C	5.07	2015, 3(35): 9024-9037	1
	6	Recent advance in laser-induced chemical reactions investigated by in-situ Raman spectroscopy	中国科学: 化学	2.43	2017, doi: 10.1360/N032016 - 00241	1
	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
	1	一种贵金属纳米粒子的制备方法	授权	ZL 2013 1 0010907.1	2014-09-03	5
	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	无	中华人民共和国教育部	2015 年	1	
2	GE 基金会全国科技创新大赛	二等	GE 基金会	2013 年	1	
3	哈尔滨工业大学创业创新大赛	二等	哈尔滨工业大学	2013 年	1	
4	哈尔滨工业大学优秀团员	无	哈尔滨工业大学	2014 年	1	

博士后研究题目：基于等离激元高效部分氧化甲烷制备甲醇催化材料的研发

(简述研究计划的可行性、先进性和创新性，理论和现实意义)

一、研究背景

甲烷的众多转化技术中，将甲烷部分氧化为甲醇是最为理想的结果，其主要原因在于：(1) 甲烷的绝大多数能量可以在甲醇中得以保留；(2) 甲醇在常温常压下以液态形式存在，便于储存和输运；(3) 甲醇有很高的附加值，是非常重要的化工原料¹。然而，将甲烷直接转化为甲醇并非易事。众所周知，甲烷是非常稳定的化合物，呈对称的正四面体结构，其 C-H 键的键能高达 439 kJ/mol，而甲醇中 C-H 键的键能约为 389 kJ/mol。由此可见，在氧化体系中甲醇比甲烷更容易被进一步氧化，很难将最终反应中止于理想产物甲醇²。但前人的实验结果和热力学计算结果均表明这一反应路线的可行性³。目前，将甲烷直接转化为甲醇的传统工艺是通过蒸汽重整制成合成气，再把合成气催化转化为甲醇。但这种方法的能耗非常严重，大约 65% 的加热过程都需要在 800-1000 °C 的高温下进行，超过 25% 的原料气体都被用于燃烧提供热量，而且通常需要在高压条件下 (30 bar) 完成反应。因此，在过去数十年当中研究人员一直都致力于寻求一种绿色、温和的方法以实现甲烷到甲醇的直接转化，但到目前为止仍未发现令人满意的解决方案⁴。

之前的诸多研究都以过渡金属氧化物为催化剂进行甲烷的部分氧化制取甲醇，其中以 Mo 和 Fe 氧化物基催化剂的研究最为广泛，但以上体系通常需要在高温或高压下进行反应，有悖于绿色高效的合成理念。此外，该反应体系中甲烷的转化率和对产物的选择性都相对较差⁵。为了减少能量消耗，也为提高甲烷转化为甲醇的产率和选择性，光催化可能是最具发展潜力且适合大规模生产的研究体系⁶。在光催化体系中可以用光能取代热能来激活反应，从而在常温或较低温度下以较为温和的方式实现甲烷向甲醇的直接转化。在众多光催化材料中，WO₃ 由于具有较窄的带隙而倍受关注。Taylor 等人报道，在紫外光照射下，La-WO₃ 在 90 °C 条件下即可将甲烷持续转化为甲醇，与气相合成所需温度形成鲜明对比⁷。Gondal 等人研究发现，在可见光激光照射下 WO₃ 即可将甲烷转化为甲醇⁸。随后，该课题组发现，在紫外光照下 Ag⁺ 掺杂的 WO₃ 可以在 WO₃ 表面生成 Ag₂O，进而有效提高催化材料的光吸收能力，并延长甲烷激发态的寿命，其反应原理示意图如图 1 所示⁹。

博士
后工
作研
究计
划

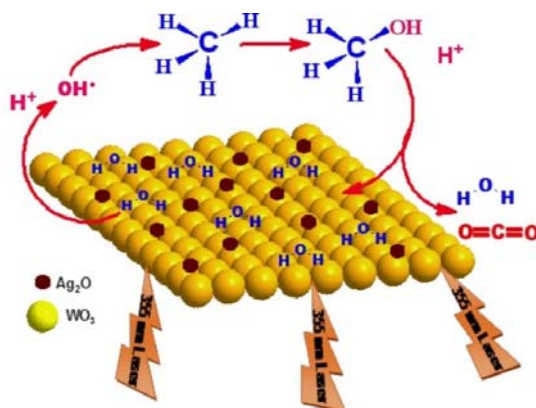


图 1 Ag⁺掺杂 WO₃ 在激光照射条件下部分氧化甲烷制备甲醇原理示意图⁹。

Andreu 等人对比了 Bi_2WO_6 、 BiVO_4 及 $\text{Bi}_2\text{WO}_6/\text{TiO}_2\text{-P25}$ 等 Bi 基催化剂对甲烷部分氧化制备甲醇的光催化性能。研究表明，与其它催化剂相比 BiVO_4 展现了最好的光催化性能，而且对产物甲醇的选择性更高且材料的稳定性更好。尽管光催化部分氧化甲烷制备甲醇已经取得了长足的进步，可以在相对温和的条件下利用光能突破热力学势垒获取目标产物。然而，目前报道的大部分催化材料对甲烷的转化率较低，能效也不高，还远不能满足大规模工业应用的需求，而表面等离激元（Surface plasmon, SP）的引入有可能会改善这一局面¹⁰。

在外电场的作用下，金属纳米颗粒电子云趋向于非对称地分布于纳米结构表面附近。此时，带负电的电子云与带正电的原子核间库仑作用会产生回复力，导致电子云在原子核附近产生一系列振荡。当入射电磁场（光子或电子）的频率与金属纳米颗粒表面自由电子的振荡频率匹配时即产生局域表面等离激元共振（Localized surface plasmon resonance, LSPR）¹¹。由于太阳光能量中绝大部分是由紫外-可见光组成，其中可见光占太阳光辐射总能量的 40% 以上，所以大多数研究都以在可见光区域有共振吸收的 Au、Ag、Cu 为研究对象¹²。事实上，这种现象并不只局限于 IB 族元素，LSPR 效应是许多金属纳米结构都共有的特性。图 2 是以 20 nm 不同金属半球体在蓝宝石表面为模型计算得到的最大远场吸收效率 ($Q_{\text{abs}}^{\text{max}}$) (a) 和近场电磁增强 ($|E|^2_{\text{max}}$) (b)。可见，利用 SP 研究甲烷部分氧化制备甲醇有非常广阔的研究空间。之所以传统的光催化材料未选用金属单质作为催化剂是由于甲烷在金属表面容易发生过氧化生成 CO 或 CO_2 ¹³。而纳米金属表面的 SP 效应一方面可以在其表面形成还原性氛围，对部分氧化产物形成保护；另一方面可以增加催化体系对光的利用率，促进催化材料的电子-空穴分离，提高光催化反应效率。

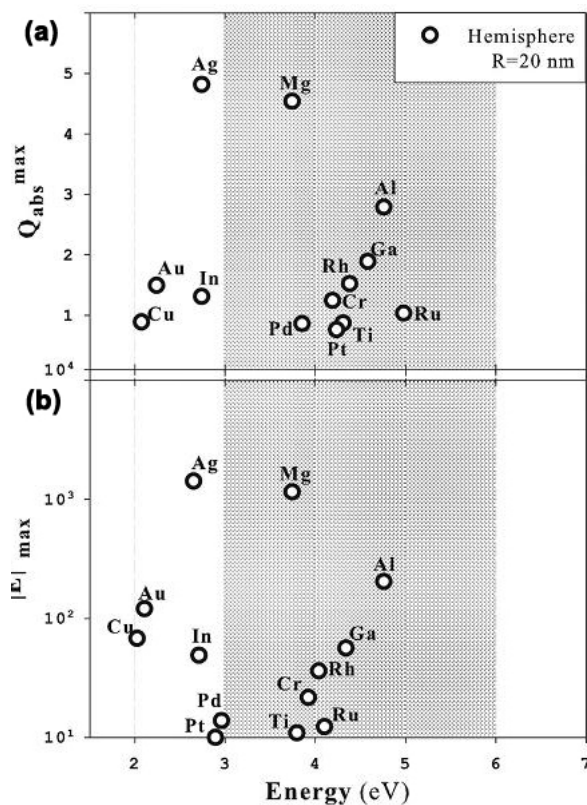


图 2 多种金属的最大 (a) 远场吸收效率 ($Q_{\text{abs}}^{\text{max}}$) 和 (b) 近场电磁增强 ($|E|^2_{\text{max}}$)¹⁴。

尽管将金属的 SP 效应应用于甲烷的部分氧化制备甲醇的报道还较少,但已经被广泛地应用于其它化学反应,如有机污染物的分解、裂解水、CO₂ 制备甲烷等研究领域¹⁵。如图 3 所示,天津大学-日本国家材料研究所叶金花教授课题组报道,在 532 nm 激光照射下 Au 纳米颗粒产生的 SP 效应可以有效提高 Ni(OH)₂-Au 复合材料的 O 还原性能¹⁶;美国密歇根大学 Linic 教授课题组研究发现,对 Cu 纳米颗粒进行光照后产生的 SP 效应可以有效提高丙烯环氧化的选择性,开创了金属 SP 效应在有机合成领域应用的新篇章¹⁷。

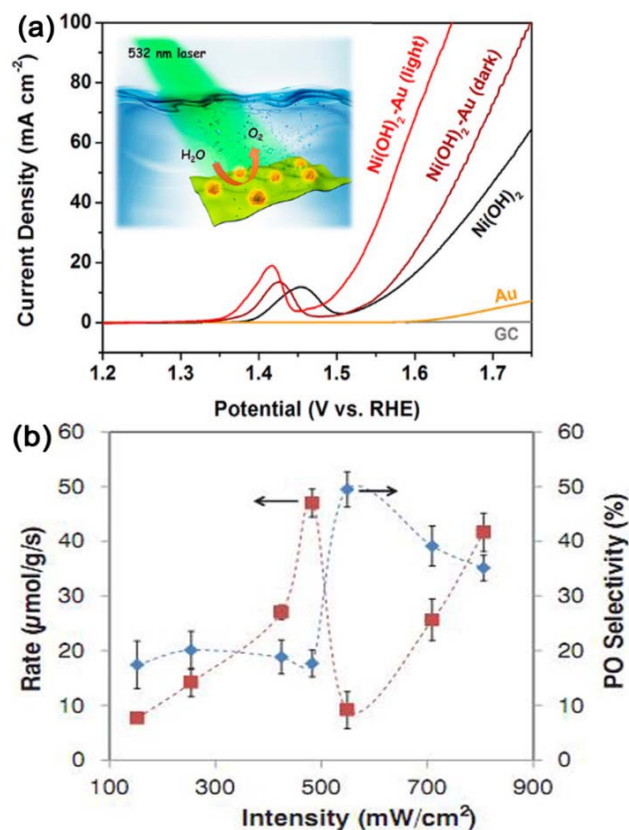


图 3 (a) 天津大学-日本国家材料研究所叶金花教授课题组报道的 SP 效应增强 Ni(OH)₂-Au 复合材料的电催化 O 还原效率¹⁶; (b) 美国密歇根大学 Linic 教授课题组报道的 Cu SP 效应增强丙烯环氧化效率和选择性¹⁷。

参考文献

- 1 J. A. Rodriguez, D. C. Grinter, Z. Liu, R. M. Palomino and S. D. Senanayake, *Chem. Soc. Rev.*, 2017, DOI: 10.1039/c6cs00863a.
- 2 R. A. Periana, D. J. Taube, S. Gamble, H. Taube, T. Satoh and H. Fujii, *Science*, 1998, **280**, 560-564.
- 3 S. Betteridge, C. R. A. Catlow, D. H. Gay, R. W. Grimes, J. S. J. Hargreaves, G. J. Hutchings, R. W. Joyner, Q. A. Pankhurst and S. H. Taylor, *Top. Catal.*, 1994, **1**, 103-110.
- 4 V. Arutyunov, *Direct Methane to Methanol: Foundations and Prospects of the Process*, Elsevier, 2014.
- 5 B. Han, Y. Yang, Y. Xu, U. J. Etim, K. Qiao, B. Xu and Z. Yan, *Chinese J. Catal.*, 2016, **37**, 1206-1215.

- 6 L. Yuliati and H. Yoshida, *Chem. Soc. Rev.*, 2008, **37**, 1592-1602.
- 7 C. Taylor and R. Noceti, *Catal. Today*, 2000, **55**, 259-267.
- 8 M. Gondal, A. Hameed and A. Suwaiyan, *Appl. Catal. A: Gen.*, 2003, **243**, 165-174.
- 9 A. Hameed, I. M. Ismail, M. Aslam and M. Gondal, *Appl. Catal. A: Gen.*, 2014, **470**, 327-335.
- 10 K. Villa, S. Murcia-Lopez, J. Ramon Morante and T. Andreu, *Appl. Catal. B-Environ.*, 2016, **187**, 30-36.
- 11 P. Zhang, T. Wang and J. Gong, *Adv. Mater.*, 2015, **27**, 5328-5342.
- 12 X. Meng, T. Wang, L. Liu, S. Ouyang, P. Li, H. Hu, T. Kako, H. Iwai, A. Tanaka and J. Ye, *Angew. Chem. Int. Edit.*, 2014, **126**, 11662-11666.
- 13 W. Feng, F. C. Knopf and K. M. Dooley, *Energ. Fuel.*, 1994, **8**, 815-822.
- 14 J. Sanz, D. Ortiz, R. Alcaraz De La Osa, J. Saiz, F. González, A. Brown, M. Losurdo, H. Everitt and F. Moreno, *J. Phys. Chem. C*, 2013, **117**, 19606-19615.
- 15 W. Hou and S. B. Cronin, *Adv. Funct. Mater.*, 2013, **23**, 1612-1619.
- 16 G. Liu, P. Li, G. Zhao, X. Wang, J. Kong, H. Liu, H. Zhang, K. Chang, X. Meng and T. Kako, *J. Am. Chem. Soc.*, 2016, **138**, 9128-9136.
- 17 A. Marimuthu, J. Zhang and S. Linic, *Science*, 2013, **339**, 1590-1593.

二、主要研究内容

本研究着眼于甲烷部分氧化制备甲醇领域存在的问题，结合甲烷光催化领域的研究经验，通过在原有催化材料体系中引入金属的 SP 效应，以期在温和条件下实现甲烷向甲醇的高效转化。主要研究内容包括二元半导体（如 WO_3 、 Fe_2O_3 、 TiO_2 ）和三元半导体（如 BiVO_4 、 Bi_2WO_6 、 SrTiO_3 ）与等离激元金属（Au、Ag、Cu、Pt、Pd 等）纳米复合材料的设计合成，对相应材料进行掺杂或表面改性，并通过研究照射波长、温度、压力和其它相关因素对甲烷部分氧化制取甲醇的影响机制。

（1）等离激元金属-半导体纳米复合材料的设计合成

通过选取能带结构适当的半导体作为光催化材料主体，通过物理溅射或化学还原方法实现半导体与金属纳米颗粒的有效复合，通过 TEM、XPS、XRD 等技术加以表征复合材料的微观结构，再在光催化体系中检测所得材料部分氧化甲烷制备甲醇的性能，从而建立催化材料组成结构与性能之间的构效关系，进而指导光催化材料的设计合成，如图 4 所示。

（2）等离激元金属-半导体复合材料的光学工程管理

金属-半导体复合材料的光学工程管理主要包括对金属纳米颗粒的调控和对半导体材料的掺杂。

金属纳米颗粒的组成、尺寸、形状都会对其表面产生的 SP 效应有所影响。因此，通过选择不同的金属前驱体、改变等离激元金属纳米颗粒的尺寸和形貌等方法可以达到对入射光吸收波长的调控。已有研究表明，对半导体掺杂可以有效调节半导体的能带结构。可以通过掺杂 N 原子、过渡金属离子 Ag^+ 、 Fe^{3+} 、 La^{3+} 、 Nb^{5+} 等调节半导体的吸光范围和禁带宽度，进而提高对入射光的利用率。基于以上调控，获取最佳光催化性能的等离激元金属-半导体复合材料，最终实现甲烷部分氧化制备甲醇的高效转化。

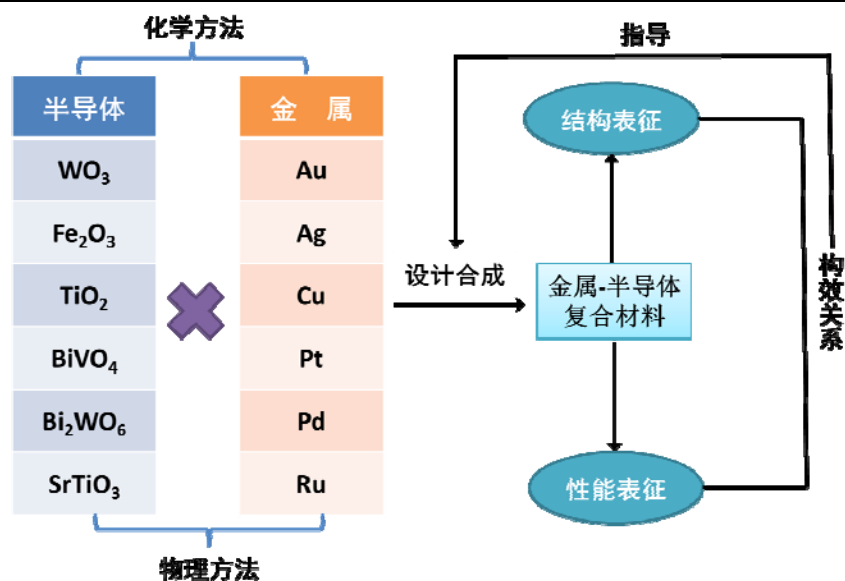


图 4 等离子激元金属-半导体纳米复合材料的设计合成示意图

(3) 等离子激元金属-半导体复合材料的界面工程管理

催化过程实则是一个界面反应过程，界面效应对于光催化材料的性能有非常重要的影响。催化材料的最理想状态为：催化材料表面与反应物有相对较强的亲和能力，以便激活反应物分子，但又不能太强，以防止催化剂“中毒”失效；而催化产物则需要与催化材料表面有较弱的相互作用，以便生成后迅速脱附。

基于以上理解，需要对等离子激元金属-半导体催化剂的表面进行改性。选取能够与催化材料表面有强作用力官能团的配体作为改性剂，如等离子激元金属可以与巯基(-SH)和卡宾类配体有强相互作用，通过改变配体分子自由端基团的极性(如-NH₂ 给电子、-NO₂ 吸电子)，以使催化剂表面能与反应物甲烷及产物甲醇间有适当的亲和力。

(4) 甲烷部分氧化制备甲醇的光催化机理研究

对于反应机理的深入理解是科学研究的核心内容，本项目将致力于对甲烷部分氧化制备甲醇的光催化机理进行深入研究。通过密度泛函理论(DFT)模拟、反应中间体的获取及相关实验结果的表征与分析，系统研究光催化条件下甲烷部分氧化为甲醇的反应历程，以期揭示其内在反应机制，为催化材料的设计提供帮助。

三、创新点

本项目所含研究内容的主要创新点包括：

(1) 等离子激元金属 SP 诱导化学反应可以实现一些在常温常压下不能进行的反应，或者使相关化学反应的反应速率或选择性有所提高。本项目将等离子激元金属引入甲醇部分氧化制备甲醇的催化体系具有较强的创新性，可为甲烷的高效转化提供新的研究方法。

(2) 与已有的甲烷光催化材料的单一调控不同，本项目结合表面等离子激元和半导体的相关特性，通过对等离子激元金属和半导体的双重光学调控实现电子和空

穴在等离激元金属-半导体当中的有效转移，有望为甲烷的高效部分氧化制备甲醇开辟新道路。

(3) 本项目从界面分子间相互作用的角度出发，提出对催化剂进行表面工程管理。通过分别对甲烷和甲醇分子极性的研究，可以筛选自由端极性恰当的配体进行表面修饰，为提高甲烷光催化材料的转化效率提供了新的研究思路。

四、可行性分析

本项目将依托于中科院大连化物所张涛院士课题组来执行。张院士课题组多年来致力于工业催化的研究，负责研制的新型催化剂已经应用于我国航天、航空、石油化工领域，三次获国家技术发明二等奖。近期主要从事航天无毒推进剂催化分解技术、环保催化及催化新材料等方面的研究。于 2011 年首次制备出 Pt/FeO_x 单原子催化剂，提出了“单原子催化 (Single-Atom Catalysis)”的概念，相关研究结果发表于化学领域顶级期刊 (*Nat. Chem.* 2011, 3, 634)。近年来，单原子催化得到了迅速发展，国际上多个研究组跟进研究，张院士课题组也在该领域不断取得新进展：相继制备出 Ir₁/FeO_x 单原子催化剂并应用于水汽变换反应 (*J. Am. Chem. Soc.* 2013, 135, 15314)；受邀撰写了单原子催化的综述文章 (*Acc. Chem. Res.* 2013, 46, 1740)。张院士课题组在能源催化领域也颇有建树，如生物质转化 (*Angew. Chem. Int. Edit.*, 2017, DOI: 10.1002/anie.201610964; *Chem. Rev.*, 2015, 115, 11559-11624)、选择性氢化 (*Angew. Chem. Int. Edit.*, 2017, 56, 2709-2713) 和光催化 (*Nano Res.*, 2013, 6, 720-725) 等。由此可见，张院士课题组在催化领域有非常深厚的底蕴，积累了丰富的理论基础和科研经验，能够在项目进行过程中给予充分的指导和帮助。此外，大连化学物理研究所公共测试平台有非常先进的科学仪器，可以提供优良的样品测试与表征条件，为项目的开展提供了保障。

本人自博士入学以来一直从事表面等离激元辅助催化反应研究，相关研究结果以第一学生作者发表 SCI 论文 6 篇，其中 1 篇发表于 *Sci. Rep.* (**Nature publish group** 旗下期刊)，文中首次详细阐述了各种气氛对表面等离激元辅助催化反应研究的影响，受到研究领域内小同行的高度评价，目前已被引用 116 次；1 篇以封面文章刊登在英国皇家化学会 (RSC) 的旗舰期刊 *Chem. Commun.* 上，目前已经引用 64 次；其余 4 篇分别发表于 *J. Phys. Chem. C*、*Chemcatchem*、*J. Mater. Chem. C* 和 *中国科学：化学*。基于以上研究，对表面等离激元辅助催化反应的特性有较为深入的了解，为开展本项目“基于等离激元高效部分氧化甲烷制备甲醇催化材料的研发”奠定了基础。此外，我们已经尝试了 Ag-TiO₂ 复合材料体系上的激光诱导化学反应，通过调控 TiO₂ 的能带结构以及 Ag 颗粒的尺寸和分布，可以使对氨基苯硫酚的激光诱导反应瞬间完成 (图 5)，比以往在纯金属基底上的反应更为高效，这足以证实等离激元金属-半导体复合材料的优异催化性能。此外，张院士课题组拥有配备多种激光波长的显微共聚焦拉曼光谱仪，而且可以进行变温拉曼光谱测试。这恰是本人在博士期间开展“原位拉曼光谱研究等离激元催化反应”的主要仪器设备，将来也可能应用于对甲烷催化制备甲醇的原位研究，为利用原位拉曼光谱研究甲烷制备甲醇光催化机理提供了条件。

基于以上原因，有理由相信本项目提出的研究内容一定能够顺利开展，并取得预期成果。

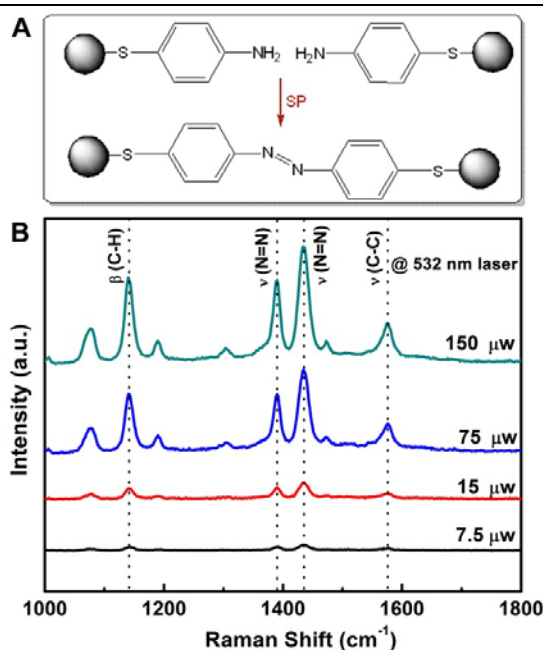


图 5 Ag-TiO₂ 纳米复合材料上可在瞬间将对氨基苯磺酰胺转化为偶氮苯

五、研究意义

随着煤炭和石油的大量消耗，人类正面临着资源枯竭以及日趋严重的环境污染问题，寻找新的替代能源已经成为世界各国亟待解决的首要问题¹。甲烷作为最简单的有机物，其具有碳含量小、氢含量大的特点。与传统的化石燃料（煤炭和石油）相比，甲烷具有储量巨大且燃烧更清洁、更高效等优点。自然界中甲烷的分布非常广泛，是天然气、煤层气、沼气、可燃冰等的主要成分，在世界能源结构格局中发挥着越来越重要的作用。然而，天然气、煤层气等大都分布于偏远山区等远离消费市场的地域，一般需要采取管道运输或者加压液化运输。该过程工艺繁杂、安全系数低、成本较高，使其在能源市场中的竞争力有所削弱²。因此，从上世纪起，如何将甲烷转化为更容易运输且附加值更高的燃料或化工原料已经成为能源领域的热门课题^{3,4}。

如研究内容部分所述，在甲烷的众多转化技术中，将甲烷部分氧化为甲醇是最为理想的结果，其主要原因在于：（1）甲烷的绝大多数能量可以在甲醇中得以保留；（2）甲醇在常温常压下以液态形式存在，便于储存和运输；（3）甲醇有很高的附加值，是非常重要的化工原料⁵。因此，甲醇除了可以作为燃料外，其在基本有机原料中也占据着重要地位。甲醇的年平均消耗量仅次于乙稀、丙烯和苯，可用于甲酸、塑料、医药、纤维、染料等工业生产。然而，目前甲烷向甲醇的制备需要在高温高压下进行，不但耗能高而且甲醇的转化率也相对较低。通过甲烷制备甲醇的光催化技术虽然有所发展，但还远远不能满足工业生产的需要。

如果拟开展的研究项目“基于等离激元高效部分氧化甲烷制备甲醇催化材料的研发”能够顺利实施，则可深入了解甲烷部分氧化制备甲醇的光催化反应机制，有望制备得到高性能的催化材料。一旦甲烷能够在相对温和的条件下转化为甲醇，我国乃至世界的能源和化工原料供给格局将发生巨变，也将对人们的生产、生活 and 环境保护产生深远影响。

	<p>参考文献</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 C. A. Floudas, A. M. Niziolek, O. Onel and L. R. Matthews, <i>AIChE J.</i>, 2016, 62, 602-623. 2 K. Müller, F. Fabisch and W. Arlt, <i>Green</i>, 2014, 4, 19-25. 3 A. S. Chellappa, S. Fuangfoo and D. S. Viswanath, <i>Ind. Eng. Chem. Res.</i>, 1997, 36, 1401-1409. 4 R.-S. Liu, M. Iwamoto and J. H. Lunsford, <i>J. Am. Chem. Soc., Chem. Commun.</i>, 1982, 78-79. 5 J. A. Rodriguez, D. C. Grinter, Z. Liu, R. M. Palomino and S. D. Senanayake, <i>Chem. Soc. Rev.</i>, 2017, DOI: 10.1039/c6cs00863a.
<p>本人承诺</p>	<p>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。</p> <p>本人签字：_____ 年 月 日</p>