

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： 宋 垚

研 究 组： 509 组

学科专业： 材料物理与化学

合作导师： 刘伟 研究员

填表日期： 2025 年 7 月 23 日

中国科学院大连化学物理研究所制

姓 名	宋 珪		性 别	男
			民 族	汉族
学历/学位	理学博士		授予博士学位时间	2025. 1
博士毕业院校	中国科学院大学		专 业	物理化学
入站时间	2025. 1		入站性质	☒ 统招统分 ☐ 在职人员
学习经历从本科起	起止年月	所在单位/专业		所获学位
	2011. 9-2015. 6	天津职业技术师范大学材料成型及控制工程		工学学士
	2015. 9-2018. 6	中南林业科技大学化学工程与技术		工学硕士
	2016. 5-2018. 3	中国科学技术大学化学与材料科学学院		联合培养
	2019. 9-2024. 12	大连化学物理研究所物理化学		理学博士
工作经历	起止年月	所在单位		职务
	2018. 7-2018. 11	复旦大学化学系		科研助理
	2025. 1-至今	大连化学物理研究所		博士后
博士学位论文摘要	博士论文题目	天然气中碳基小分子电催化转化研究		
	(限 800 字) 天然气主要组分的高效催化转化对天然气资源利用意义重大，但其 C-H/C=O 键的高惰性使温和转化极具挑战。电催化通过施加电压克服反应能垒，为小分子转化提供有效途径。本论文研究了天然气中碳基小分子 (CH₄、C₂H₆ 与 CO₂) 室温高效电催化转化过程，通过开发新型反应体系与催化材料，实现低碳烷烃 (CH₄ 和 C₂H₆) 与 O₂ 催化转化为含氧化学品，以及 CO₂ 还原为多碳 (C₂₊) 化学品，并利用原位谱学和理论计算揭示 C-H/C-O 键的活化及 C-C 键的偶联机理。 主要内容如下： (1) 开发高压-电芬顿驱动的 CH₄ 与 O₂ 催化转化新途径，在阴极区实现室温高效转化制甲酸。O₂ 首先在阴极银箔上经两电子还原生			

成双氧水 (H_2O_2), 随后与溶液中的 Fe^{2+} 发生均相芬顿反应, 生成 Fe^{3+} 和羟基自由基 ($\cdot\text{OH}$), $\cdot\text{OH}$ 连续活化 C-H 键将 CH_4 转化为甲酸, 同时 Fe^{3+} 在阴极还原再生为 Fe^{2+} 。提高 O_2 分压可促进 H_2O_2 生成, 增加 CH_4 分压能促进 CH_4 和 $\cdot\text{OH}$ 反应, 提高甲酸产率和法拉第效率。该体系在 0.38V 低过电位下实现了 81.4% 的甲酸法拉第效率和 $11.5 \text{ mmol h}^{-1} \text{ g}_{\text{Fe}}^{-1}$ 的甲酸产率。

(2) 利用电芬顿策略实现常温常压催化 C_2H_6 与 O_2 转化制 C_2 含氧化合物。酞菁钴催化剂高效电还原 O_2 生成 H_2O_2 , 经均相芬顿过程生成 $\cdot\text{OH}$, 进而将 C_2H_6 转化为 C_2 含氧化合物。利用流动相电解池改善 O_2 界面传质, 显著提升 H_2O_2 产率。在 -0.15 V vs. RHE 下, 电流密度达 58.8 mA cm^{-2} , C_2 含氧化合物产率 $3.5 \text{ mmol h}^{-1} \text{ g}_{\text{Fe}}^{-1}$ 。此外, 最高 C_2 含氧化合物法拉第效率达 35.3%。

(3) 开发高压气体扩散电极, 用于高压-电芬顿驱动 C_2H_6 与 O_2 催化转化, 在大电流下实现高 C_2 含氧化合物法拉第效率。该电极构建高压下稳定气/固/液三相界面, 增强 O_2 传质, 从而提升 O_2 还原为 H_2O_2 速率。同时提高 C_2H_6 分压增强 C_2H_6 和 $\cdot\text{OH}$ 反应, 有效抑制 C_2H_6 过度氧化为 CO_2 。在 150 mA 电流下, C_2 含氧化合物产率达 $16.0 \text{ mmol h}^{-1} \text{ g}_{\text{Fe}}^{-1}$, 选择性达 84.8%。此外, C_2 含氧化合物法拉第效率最高达 71%。

(4) 采用机械抛光法处理商业铜箔, 制备表面具丰富纳米腔结构 (深度 10-20 nm、宽度 50-150 nm) 的铜箔用于 CO_2 电还原制 C_2+ 化学品。-1.3 V vs. RHE 下, 纳米腔铜箔电流密度达 18.3 mA cm^{-2} ,

	C_{2+}产物法拉第效率为 65.7%，是商业铜箔的 1.7 倍。电化学抛光实验表明，纳米腔结构通过富集 C_1 物种显著促进 C-C 偶联反应。					
入站前期及入站后科研情况简	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	甲烷与氮气电催化 C-N 偶联合成有机含氮化合物	博士后科学基金会-国家资助博士后研究人员计划 C 档	24 万元	2025-2027 年	主持
	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	High-pressure electro-fenton driving CH_4 conversion by O_2 at room temperature	Journal of the American Chemical Society	15.6	2024, 146(9): 5834-5842	共同一作（第一）	

介	2	Tailoring the d-Band centers enables Co ₄ N nanosheets to be highly active for hydrogen evolution catalysis	Angewandte Chemie International Edition	16.1	2018, 57(18): 5076-5080	共同一作（第二，导师共一第一）
	3	N-induced lattice contraction generally boosts the hydrogen evolution catalysis of P-rich metal phosphides	Science Advances	11.7	2020, 6(1): eaaw8113	共同一作（第二）
	4	Mechanically induced Cu active sites for selective C-C coupling in CO ₂ electroreduction	Journal of Energy Chemistry	14.9	2022, 74: 198-202	共同一作（第二）
	5	Regulating local charges of atomically dispersed Mo ^{δ+} sites by nitrogen coordination on cobalt nanosheets to trigger water dissociation for boosted hydrogen evolution in alkaline media	Journal of Energy Chemistry	14.9	2022, 72: 125-132	共同一作（第三）
	其他论文发表情况					
	1	Direct electroconversion of air to nitric acid under mild conditions	Nature Synthesis	17.5	2024, 3: 76-84	5
	2	Mild-condition conversion of methane to acetic acid over MoS ₂ -confined Rh-Fe sites	Journal of the American Chemical Society	15.6	2025, 147: 14530-14540	6
	3	MoS ₂ -confined Rh-Zn atomic pair boosts photo-driven methane carbonylation to acetic acid	Nature Communications	15.7	2025, 16: 487	8
	4	Three-dimensional CoOOH nanoframes confining high-density Mo single atoms for large-current-density oxygen evolution	Journal of Materials Chemistry A	9.5	2022, 10: 6242	4

博士	3、专利情况：				
	序号	专利名称	授权/申请	授权/申请号	起始日期
	1	一种电催化甲烷和氧气转化制备甲酸的方法	申请	202410013790.0[P]	2024-01-04
	4、获奖情况：				
	序号	奖励名称	奖励等级	授奖单位	奖励年度
	1	博士研究生国家奖学金	国家级	教育部	2024 年
	2	渤海化工研究生奖学金三等奖	所级	大连化物所	2024 年
	3	第十三届国际天然气转化研讨会“最佳海报奖”（“Best Poster Award”）	国际级学术会议奖	第十三届国际天然气转化研讨会	2024 年
	4	第二届大连催化+国际峰会“SCINEXT 青年奖”	国际级学术会议奖	第二届大连催化+国际峰会	2024 年
	5	高教社杯全国大学生数学建模竞赛本科组一等奖	国家级	教育部高等教育司、中国工业与应用数学学会	2013 年
	6	天津市普通高校大学数学竞赛本科组理工类特等奖	省级	天津市教育委员会	2012 年
	博士后研究题目：电催化甲烷与氮气共转化制备胺类化合物				
	（简述研究计划的可行性、先进性和创新性，理论和现实意义） （1）研究计划内容： a. 拟设计一种串联电催化策略，将 CH₄ 和 N₂ 直接电化学生成有机含氮化合物的复杂反应解耦为两个步骤：（1）通过高压-电芬过程实现 CH₄ 和 N₂ 的高效同步活化，生成含碳和含氮反应中间产物；（2）通过电化学共还原这些中间体，实现高效的 C-N 偶联反应。并设计 Cu-贵金属双金属合金及复合物催化剂，利用多活性位点协同作用实现高压-电芬顿与电化学 C-N 偶联的高效耦合。 b.拟设计阴阳双极协同催化的新反应过程，利用阳极实现同步活化 CH₄ 和 N₂，生成含碳/氮中间体，同时通过在阴极上电化学共还原这些中间体，实现高效的 C-N 偶联反应。 （2）研究计划的理论和现实意义： 甲烷作为储量丰富、成本低廉的非石油绿碳资源，是化工领域备受关注的工业原料。发展 CH₄ 与 N₂ 直接催化转化制备胺等有机含氮化合物的新技术，既可突破传统路线对 NH₃ 和 H₂ 的依赖，解决流程冗长、能耗高及碳排放量大等问题，又能实现 CH₄ 资源的高附加值利用。然而，该过程涉及 CH₄ 的 C-H 键活化，N₂ 的 N≡N 键活化和 C-N 偶联三个关键反应步骤，极具挑战性。截至目前，尚未有研究报道能够实现 CH₄ 和 N₂ 直接电催化合成有机含氮化合物。因此，本研究具有重要的研究意义。 （3）本项目的先进性和创新性体现在两个方面： a.以 CH₄ 和 N₂ 为原料直接合成胺类化合物。 b.设计串联电催化、阴阳双极协同催化的新反应过程，实现 CH₄ 和 N₂ 直接合成有机含氮				

后 工 作 的 研 究 计 划	化合物。 (4) 本项目的可行性: a. 高压-电芬顿过程同步活化 CH_4 和 N_2 的可行性 申请人开发了由高压-电芬顿驱动的 CH_4 与 O_2 催化转化新途径, 在电解池的阴极区实现室温下高效转化制 HCOOH。该体系在 0.38 V 的低过电位下实现了高达 81.4% 的 HCOOH 法拉第效率 (J. Am. Chem. Soc., 2024)。同时, 申请人与合作者基于电芬顿策略, 在电解池的阴极区实现了空气 ($\text{N}_2 + \text{O}_2$) 直接转化制 HNO_3 (Nat. Synth., 2024)。这些成果表明高压-电芬顿过程同步活化 CH_4 和 N_2 是可行的。 b. 电化学共还原含碳/氮中间体合成有机含氮化合物的可行性 电化学 C-N 偶联是实现 CH_4 和 N_2 直接电化学生成有机含氮化合物的关键步骤。近期天津大学张兵团队首次实现了常温常压条件下电催化共还原 HCOOH 和 NO_2^- 合成甲酰胺, -0.4 V vs RHE 的电位下, 甲酰胺的法拉第效率达到了 29.7% (J. Am. Chem. Soc., 2022, 144, 16006)。湖南大学王双印团队成功实现了电催化 NO_3^- 和 HCHO 的 C-N 偶合环化反应, 高效合成乌洛托品 (J. Am. Chem. Soc., 2024, 146, 19572)。青岛科技大学赖建平团队实现了电催化共还原 HCOOH 和 NO_3^- 合成尿素 (Adv. Mater., 2025, 2419738)。这些研究说明, 高压-电芬顿过程活化 CH_4 和 N_2 生成的两类中间产物—C1 含氧化合物 (HCOOH、HCHO 等) 和含氮氧化物 (NO_3^-、NO_2^- 等), 可通过电化学共还原策略实现原位 C-N 偶联, 高效合成有机含氮化合物, 该技术路线具备充分的可行性。 c. 实验技术层面的可行性 申请人所在团队长期从事 CH_4、N_2 等能源小分子的低温催化转化研究, 较早地在国际上发现石墨烯限域的单铁中心在室温条件下, 以双氧水为氧化剂可直接将 CH_4 催化转化为 C_1 含氧化合物 (Chem, 2018)。团队进一步实现了 CH_4 与 O_2 室温直接催化转化制 C_1 含氧产物 (Nat. Catal., 2023)。此外, 申请人与合作者成功拓展了电芬顿策略的应用范围, 实现了电芬顿驱动的空气 ($\text{N}_2 + \text{O}_2$) 直接转化制 HNO_3 (Nat. Synth., 2024)。这些研究基础为本项目实现 CH_4 和 N_2 的高效同步活化提供了直接技术支撑和理论支持。因此, 本项目在实验技术层面具有充分的可行性。
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: 2025 年 7 月 23 日