

近期热点文章 Latest and Hot Papers

关键词 碱金属负极·分子尺度均匀光滑的 SEI 膜
Y. Gu, W. W. Wang, Y. J. Li, Q. H. Wu, S. Tang, J. W. Yan, M. S. Zheng, D. Y. Wu, C. H. Fan, W. Q. Hu, Z. B. Chen, Y. Fang, Q. H. Zhang, Q. F. Dong, B. W. Mao. Designable Ultra-Smooth Ultra-Thin Solid-Electrolyte Interphases of Three Alkali Metal Anodes, *Nat. Commun.*, 2018, 9, 1339.

厦门大学毛秉伟教授与董全峰教授合作,发展了电化学调控方法,实现了碱金属表面的电化学抛光和原位 SEI 成膜,不仅获得了大范围原子级平整的锂表面,而且构筑了分子尺度均匀光滑的 SEI 膜。AFM 力曲线、XPS 深度剖析、FTIR 和 EIS 等显微学、谱学和电化学方法等多尺度研究结果表明,该 SEI 膜呈现出无机物嵌入、有机物交联的软硬相间的多层膜结构特征,微观平整光滑,兼具刚性和弹性,能很好抑制锂枝晶;而且离子电导率高,具有优越的化学稳定性、电化学性能及充放电循环性能。

关键词 阴离子吸附·pH 效应
X. Q. Zuo, W. Chen, A. Yu, M. Le Xu, J. Cai, Y.-X. Chen. pH Effect on Acetate Adsorption at Pt(111) Electrode, *Electrochem. Commun.*, 2018, 89, 6-9.

中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室和化学物理系的陈艳霞教授课题组研究了醋酸在模型单晶电极 Pt(111) 上吸附行为,发现阴离子的吸附电位随着 pH 增加而正移,且吸附速率降低。他们证实前者是由于电化学吸附过程的平衡电位移动所致;并非通常认为的因吸附作用能降低而导致的吸附“减弱”现象。酸性介质中吸附速率高于碱性介质,则是由于吸附过程中去溶剂化能的差异所致。该研究进展纠正了对电催化体系中阴离子吸附 pH 效应的认识。

关键词 锂硫电池正极材料·多酸分子团簇
J. C. Ye, J. J. Chen, R. M. Yuan, D. R. Deng, M. S. Zheng, L. Cronin, Q. F. Dong. Strategies to Explore and Develop Reversible Redox Reactions of Li-S in Electrode Architectures Using Silver-Polyoxometalate Clusters, *J. Am. Chem. Soc.*, 2018, 140, 3134-3138.

厦门大学董全峰教授和英国格拉斯哥大学 Cronin 教授报道,在 POMs 分子团簇 ($K_3[H_3AgPW_{11}O_{39}]$) 的骨架结构中,杂金属离子 Ag(I) 可以调节整个系统对多硫化物的吸附以及端点氧原子对锂离子的吸附,以其作为骨架材料制备的锂硫电池表现出优异的电化学性能。

关键词 单原子电催化剂·通用设计原则
H. Xu, D. Cheng, D. Cao, X. C. Zeng. A Universal Principle for A Rational Design of Single-Atom Electrocatalysts, *Nat. Catal.*, 2018, 1, 339-348.

北京化工大学程道建和曹达鹏教授团队与内布拉斯加大学林肯分校曾晓成教授引入基于催化剂本征特性(配位数、金属电负性、配位原子)的结构描述符,定量描述催化中心结构对催化活性的影响,提出了石墨烯负载的金属单原子电催化剂的通用设计准则,并预测大环分子可以替代功能化石墨烯作为金属单原子电催化剂载体。

关键词 电化学固氮·富缺陷氮杂碳催化剂
S. Mukherjee, D. A. Cullen, S. Karakalos, K. Liu, H. Zhang, S. Zhao, H. Xu, K. L. More, G. Wang, G. Wu. Metal-Organic Framework-Derived Nitrogen-Doped Highly Disordered Carbon for Electrochemical Ammonia Synthesis Using N_2 and H_2O in Alkaline Electrolytes, *Nano Energy*, 2018, 48, 217-226.

美国纽约州大学布法罗分校的吴刚教授热处理富含氮、碳的 ZIF-8 为前驱体,制备出富缺陷氮掺杂碳催化剂,在碱性电解质中具有电化学还原 N_2 生成 NH_3 的能力。DFT 计算表明,电化学固氮的速率控制步骤是 N_2 分子的吸附与活化。该催化剂的碳缺陷中,包含 3 个吡啶氮的 N_3 位点是电化学活性中心,能有效吸附 N_2 分子并促进 $N\equiv N$ 键的断裂。

关键词 光解水制氢·双电子催化
Q. Zhang, W. Wang, J. Zhang, X. Zhu, Q. Zhang, Y. Zhang, Z. Ren, S. Song, J. Wang, Z. Ying, R. Wang, X. Qiu, T. Peng, L. Fu. Highly Efficient Photocatalytic Hydrogen Evolution by ReS_2 via A Two-Electron Catalytic Reaction, *Adv. Mater.*, 2018, 30, 1707123.

武汉大学付磊教授发现,在可见光照射下,多层 ReS_2 的自由电子会被光生的束缚激子捕获,产生大量的负电三激子(两个电子与一个空穴)并迅速地迁移至活性位点,其两个电子与质子结合产生氢气,同时空穴也被牺牲试剂逐渐消耗,从而实现了 $13.023 \text{ mmol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ 的光解水产氢效率。

关键词 HER 反应·表面应力调控电催化活性
T. Ling, D.-Y. Yan, H. Wang, Y. Jiao, Z. Hu, Y. Zheng, L. Zheng, J. Mao, H. Liu, X.-W. Du, M. Jaroniec, S.-Z. Qiao. Activating Cobalt(II) Oxide Nanorods for Efficient Electrocatalysis by Strain Engineering, *Nat. Commun.*, 2017, 8, 1509.

天津大学凌涛教授与阿德莱德大学乔世璋教授利用气相阳离子交换法在导电基底上大面积可控制备 CoO 纳米线阵列,发现阳离子交换可诱导 CoO 纳米棒表面产生晶格拉伸应变,在 CoO{111} 表面形成大量的活性氧空位,同时减弱氢吸附,促进碱性环境中的 HER 催化活性。

关键词 :HER 反应·过渡元素 d 带中心调控

Z. Chen, Y. Song, J. Cai, X. Zheng, D. Han, Y. Wu, Y. Zang, S. Niu, Y. Liu, J. Zhu, X. Liu, G. Wang. Tailoring the d-Band Centers Enables Co₄N Nanosheets to Be Highly Active for Hydrogen Evolution Catalysis, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, 2018, 57, 5076-5080.

中国科学技术大学王功名教授提出了 d 带中心调控机制,论证了钒、钨掺杂能够调控 Co₄N 纳米片中 Co 的 d 带中心位置,从而降低了 HER 反应的过电位,提高了 HER 催化活性。

关键词 :二氧化碳还原·金属活性位的配位化学

X. Wang, Z. Chen, X. Zhao, T. Yao, W. Chen, R. You, C. Zhao, G. Wu, J. Wang, W. Huang, J. Yang, X. Hong, S. Wei, Y. Wu, Y. Li. Regulation of Coordination Number over Single Co Sites: Triggering the Efficient Electroreduction of CO₂, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2018, 57, 1944.

中国科学技术大学的吴宇恩教授课题组制备了一系列不同氮配位数的原子级分散的钴催化剂,发现低氮配位数的钴催化剂更能稳定反应中间体 CO₂, 表现出更高的 CO₂ 电还原为 CO 的活性。

关键词 :Fenton 反应·光电协同催化

M. Xing, W. Xu, C. Dong, Y. Bai, J. Zeng, Y. Zhou, J. Zhang, Y. Yin. Metal Sulfides as Excellent Co-catalysts for H₂O₂ Decomposition in Advanced Oxidation Processes, *Chem*, 2018, DOI: 10.1016/j.chempr.2018.03.002.

华东理工大学张金龙教授与加州大学河滨分校的殷亚东教授通过表面缺陷态硫化物 MoS₂ 的协同光催化实现了 Fenton 反应中铁离子的高效循环以及 H₂O₂ 的快速分解。

关键词 :现场谱学电化学·OER 催化剂的相变

Z. Chen, L. Cai, X. Yang, C. Kronawitter, L. Guo, S. Shen, B. E. Koel. Reversible Structural Evolution of NiCoO_xH_y during the Oxygen Evolution Reaction and Identification of Catalytically Active Phase, *ACS Catal.*, 2018, 8, 1238.

西安交通大学沈少华教授与普林斯顿大学的 Koel

教授,采用原位 Raman 光谱表征技术研究了 Ni 掺杂对 CoO_xH_y 在 OER 过程中的相变以及催化活性,阐释了催化剂组成和结构之间的协同作用。

关键词 :OER 反应 Ni-Fe 分子异质结催化

J. Wang, L. Gan, W. Zhang, Y. Peng, H. Yu, Q. Yan, X. Xia, X. Wang. *In situ* Formation of Molecular Ni-Fe Active Sites on Heteroatom-Doped Graphene as a Heterogeneous Electrocatalyst toward Oxygen Evolution, *Sci. Adv.*, 2018, 4, eaap7970.

新加坡南洋理工大学王新教授团队在杂原子掺杂的石墨烯异质界面处产生分子层面上的 Ni 位点,HO⁻ 离子的吸附作用为 Ni 位点向 Ni-Fe 位点的转变提供配体,制备出含 Ni-Fe 双位点的分子异质结,显著增强了 OER 反应的催化性能。

关键词 :单原子催化·表层与亚表层的协同作用

J. Zhang, J. Liu, L. Xi, Y. Yu, N. Chen, S. Sun, W. Wang, K. M. Lange, B. Zhang. Single-Atom Au/NiFe Layered Double Hydroxide Electrocatalyst: Probing the Origin of Activity for Oxygen Evolution Reaction, *J. Am. Chem. Soc.*, 2018, 140, 3876-3879.

天津大学张兵教授与南开大学王卫超教授等人设计了 0.4wt% 的单原子 Au/NiFe LDH 纳米片复合材料,单原子 Au 有利于 OER 中间产物在 Fe 位点上的吸附,同时亚表层阴离子和水能维持表层 NiFeOOH 的电荷平衡,从而增强了 OER 催化活性。

关键词 :多相催化剂·尺寸效应

L. Liu, A. Corma. Metal Catalysts for Heterogeneous Catalysis: From Single Atoms to Nanoclusters and Nanoparticles, *Chem. Rev.*, 2018, 118, 4981-5079.

西班牙 UPV-CSIC 化学技术研究所 Avelino Corma 教授撰写综述,从单原子到团簇到纳米粒子的催化行为,讨论了多相金属催化剂的尺寸效应。

关键词 :气体电极体系催化剂设计·多尺度原则

C. Tang, H. F. Wang, Q. Zhang. Multiscale Principles to Boost Reactivity in Gas-Involving Energy Electrocatalysis, *Acc. Chem. Res.*, 2018, 51, 881-889.

清华大学化工系张强教授从电子结构调控、多级形貌构筑和电极界面优化 3 个方面系统综述了能源体系中气体电极催化剂的设计原则和合成策略。

詹东平
(厦门大学化学化工学院)
编于 2018 年 5 月 24 日