

近期热点文章 Latest and Hot Papers

关键词: Arrhenius 公式的物理内涵·反应动力学

W. Schmickler, Y. X. Chen, E. Santos, Z. He. The Pre-Exponential Factor in Electrochemistry, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2018, DOI: 10.1002/anie.201800130. 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陈艳霞教授课题组与德国 Ulm 大学的 Schmickler 教授课题组, 在系统分析了文献中探究电催化反应的活化能与指前因子的理论和实验研究成果的基础上, 基于 Kramer 理论给出了针对不同电荷转移反应的活化能与指前因子的理论表达式, 分析了它们随电位的变化规律; 并用析氢反应和甲酸氧化等模型电催化反应作为实例展示了如何通过理论与实验的比对来揭示特定电化学反应的机理与动力学, 给后续同类型研究提供了范例, 也为正确利用反应的温度效应揭示电催化反应的机理与活性的影响规律提供了依据。

关键词: 空间位阻·选择性催化

T. Wang, Z.-X. Chen, S. Yu, T. Sheng, H.-B. Ma, L.-N. Chen, M. Rauf, H.-P. Xia, Z.-Y. Zhou, S.-G. Sun. Constructing Canopy-Shaped Molecular Architectures to Create Local Pt Surface Sites with High Tolerance to H₂S and CO for Hydrogen Electrooxidation, *Energy Environ. Sci.*, 2018, 11, 166. 厦门大学周志有教授在 Pt 表面修饰二乙酰基吡啶构筑立体位阻, 倾斜吸附的吡啶环下方存在受保护的 Pt 局域活性位, 分子尺寸较小的 H₂ 可以接触这些位点而发生氧化, 而尺寸较大的 CO 和 H₂S 分子却无法吸附, 由此显著提高了铂催化剂抗 CO 和 H₂S 毒化性能。

关键词: 纳米催化剂·钝化现象

Z. P. Xiang, H. Q. Deng, P. Peljo, Z. Y. Fu, S. L. Wang, D. Mandler, G. Q. Sun, Z. X. Liang. Electrochemical Dynamics of a Single Platinum Nanoparticle Collision Event for the Hydrogen Evolution Reaction, *Angew. Chem. Int. Ed.* 2018, 57, 3464. 耶路撒冷希伯来大学邓海强博士、华南理工大学梁振兴教授和中科院大连化物所孙公权研究员合作, 采用碰撞模式在惰性基底微电极上测定单个 Pt 纳米粒子上析氢反应(HER)的动态机理, 发现在氢气氛围下电流响应随过电位增加逐渐由尖峰过渡到平台状; 在氢气氛围下电流响应始终呈平台状, 而电流大小则低于氢气氛围下的 20%。研究者发现的纳米催化剂的钝化现象值得关注。

关键词: 单颗粒光电化学·反应动力学

Y.-Y. Peng, H. Ma, W. Ma, Y.-T. Long, H. Tian. Single Nanoparticle Photoelectrochemistry at a Nanoparticulate TiO₂-filmed Ultramicroelectrode, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2018, DOI: 10.1002/anie.201710568. 华东理工大学田禾院士和龙亿涛教授采用 TiO₂ 膜修饰的 Au 超微电极, 记录了 N719 分子修饰 TiO₂ 纳米催化剂的单颗粒碰撞事件的光电流响应, 发现电子传递时间从 ps 级延长至 ms 级, 单个 N719 分子的电子转移效率为 $51 \pm 4\%$, 电子在 Au 表面 TiO₂ 膜中的表观扩散系数约为 $2.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 。由单颗粒碰撞事件提取反应动力学参数, 奠定了该团队在这一领域的优势地位。

关键词: 表面缺陷提升催化性能·CO₂ 还原

K. Sun, T. Cheng, L. Wu, Y. Hu, J. Zhou, A. MacLennan, Z. Jiang, Y. Gao, W. A. Goddard, Z. Wang. Ultrahigh Mass Activity for Carbon Dioxide Reduction Enabled by Gold-Iron Core-Shell Nanoparticles, *J. Am. Chem. Soc.*, 2017, 139, 15608. 哈尔滨工业大学王志江教授与加州理工学院合作发现, Au/Fe 合金纳米粒子表面 Fe 的溶解导致表面 Au 壳产生大量空位缺陷, 而次外层的 Fe 则可以稳定 Au 壳层的缺陷, 因而提高了该材料对 CO₂ 还原的催化性能及稳定性。

关键词: SEI 膜调控金属锂纳米结构·电沉积

X. Q. Zhang, X. Chen, R. Xu, X. B. Cheng, H. J. Peng, R. Zhang, J. Q. Huang, Q. Zhang. Columnar Lithium Metal Anodes, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2017, 56, 14207. 清华大学张强教授课题组报道了一种 LiPF₆ 水溶液的预处理方法, 在电沉积金属锂时得到均匀的富含 LiF 的 SEI 膜, 该 SEI 膜具有优良的锂离子传输特性。在膜内传质空间受限的条件下, 生成了直径和周期可调的柱状结构金属锂, 可用于构筑超薄锂金属负极。该工作对于金属纳米结构的无掩模可控电沉积具有借鉴意义。

关键词: 简单有效·锂硫电池隔膜

F. Pei, L. Lin, A. Fu, S. Mo, D. Ou, X. Fang, N. Zheng. A Two-Dimensional Porous Carbon-Modified Separator for High-Energy-Density Li-S Batteries, *Joule*, 2018, 2, 323. iChEM 研究员、厦门大学郑南峰教授与方晓亮副

教授采用抽滤工艺,在锂硫电池 PP 隔膜上涂覆一层重量和厚度仅为 $0.075 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$ 和 $0.9 \mu\text{m}$ 的氮掺杂二维多孔碳纳米片,简单有效地抑制 Li-S 电池充放电过程中多硫化物中间体的“穿梭效应”。

关键词: 激子弛豫·提升光催化性能

H. Wang, D. Yong, S. Chen, S. Jiang, X. Zhang, W. Shao, Q. Zhang, W. Yan, B. Pan, Y. Xie. Oxygen-Vacancy-Mediated Exciton Dissociation in BiO-Br for Boosting Charge-Carrier-Involved Molecular Oxygen Activation, *J. Am. Chem. Soc.*, 2018, 140, 1760.

iChEM 研究员、中国科学技术大学谢毅教授与张群教授合作,从理论和实验阐释了缺陷结构对半导体材料光激发过程中激子效应的影响,通过缺陷工程促进激子弛豫,提高光生载流子生成效率,进而提升光电催化效率。

关键词: 核-壳金属气凝胶· O_2 还原

B. Cai, R. Hubner, K. Sasaki, Y. Zhang, D. Su, C. Ziegler, M. B. Vukmirovic, B. Rellinghaus, R. R. Adzic, A. Eychmuller. Core-Shell Structuring of Pure Metallic Aerogels towards Highly Efficient Platinum Utilization for the Oxygen Reduction Reaction, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2018, 57, 2963.

德国德累斯顿工业大学和美国布鲁克海文国家实验室合作制备了一种核-壳结构金属气凝胶,其壳层为单原子层 Pt,使氧还原的 Pt 利用率提高了 18 倍;而且催化活性与核层组分密切相关,对核-壳结构催化剂的设计具有借鉴意义。

关键词: 二维铋片· CO_2 还原

F. Li, M. Xue, J. Li, X. Ma, L. Chen, X. Zhang, D. R. MacFarlane, J. Zhang. Unlocking the Electrocatalytic Activity of Antimony for CO_2 Reduction by Two-Dimensional Engineering of the Bulk Material, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2017, 56, 14718.

澳大利亚 Monash 大学的学者采用电化学剥离法制备了二维铋片和二维铋片/石墨烯复合材料,对 CO_2 电化学还原具有良好的催化性能。该方法提供了一种制备复合二维催化剂的新思路。

关键词: “燃烧法”制备高振实密度电池材料

G. Tan, R. Xu, Z. Xing, Y. Yuan, J. Lu, J. Wen, C. Liu, L. Ma, C. Zhan, Q. Liu, T. Wu, Z. Jian, R. Shahbazian-Yassar, Y. Ren, D. J. Miller, L. A. Curtiss, X. Ji, K. Amine. Burning Lithium in CS_2 for High-Performing Compact Li_2S -Graphene Nanocapsules for Li-S Batteries, *Nature Energy*, 2017, 2, 17090.

美国 Argonne 国家实验室研究人员在 CS_2 蒸汽中“燃烧”金属锂制备了 $\text{Li}_2\text{S}@$ graphene 纳米复合材

料,其核层 Li_2S 含量高、结晶度好,因而振实密度高;壳层石墨烯不仅电子和离子导电性好,而且能有效地抑制多硫化物的流失。

关键词: 电池隔膜研发的“4S”理念

Y. Pan, S. Chou, H.-K. Liu, S.-X. Dou. Functional Membrane Separators for Next-Generation High-Energy Rechargeable Batteries, *Natl. Sci. Rev.*, 2017, 4, 917.

澳大利亚 Wollongong 大学窦士学教授团队提出新型电池隔膜研发的 4S 理念:Stable、Safe、Smart、Sustainable。

关键词: 能源存储与转化中的 MOF 策略

B.-Y. Guan, X.-Y. Yu, H.-B. Wu, X.-W. Lou. Complex Nanostructures from Materials based on Metal-Organic Frameworks for Electrochemical Energy Storage and Conversion, *Adv. Mater.*, 2017, 29, 1703614.

新加坡南洋理工大学楼雄文教授团队综述了近年来 MOF 材料衍生复杂纳米结构的合成策略及其在能源存储与转化中的应用。

关键词: 二维材料·三维结构

B. Qiu, M. Xing, J. Zhang. Recent Advances in Three-Dimensional Graphene based Materials for Catalysis Applications, *Chem. Soc. Rev.*, 2018. DOI: 10.1039/C7CS00904F.

华东理工大学张金龙教授和邢明阳副教授团队综述了石墨烯三维结构材料的制备及其在能源与环境领域中的应用。

关键词: 二维材料· CO_2 还原

Z. Sun, T. Ma, H. Tao, Q. Fan, B. Han. Fundamentals and Challenges of Electrochemical CO_2 Reduction Using Two-Dimensional Materials, *Chem.*, 2017, 3, 560.

北京化工大学孙振宇教授与中科院化学研究所韩布兴院士团队综述了二维纳米材料在电催化还原 CO_2 领域的最新进展。

关键词: 高效廉价的电催化剂

M.-R. Gao, Y.-R. Zheng, J. Jiang, S.-H. Yu. Pyrite-Type Nanomaterials for Advanced Electrocatalysis, *Acc. Chem. Res.*, 2017, 50, 2194.

中国科学技术大学俞书宏教授系统总结了黄铁矿型纳米材料在电催化领域的发展和应用。

詹东平

(厦门大学化学化工学院)

编于 2018 年 3 月 18 日