

# Journal of Electrochemistry

---

Volume 25 | Issue 6

---

2019-12-28

## Latest and Hot Papers

Dong-ping ZHAN

College of Chemistry and Chemical Engineering, Xiamen University;, dpzhan@xmu.edu.cn

---

### Recommended Citation

Dong-ping ZHAN. Latest and Hot Papers[J]. *Journal of Electrochemistry*, 2019 , 25(6): 802-803.

DOI: 10.61558/2993-074X.2603

Available at: <https://jelectrochem.xmu.edu.cn/journal/vol25/iss6/18>

This Latest and Hot Paper is brought to you for free and open access by Journal of Electrochemistry. It has been accepted for inclusion in Journal of Electrochemistry by an authorized editor of Journal of Electrochemistry.

## 近期热点文章 Latest and Hot Papers

**关键词:**壳层隔绝纳米粒子增强拉曼光谱·ORR 反应机理·纳米催化剂

Y. H. Wang, J. B. Le, W. Q. Li, J. Wei, P. M. Radjenovic, H. Zhang, X. S. Zhou, J. Cheng, Z. Q. Tian, J. F. Li. *In-situ* Spectroscopic Insight into the Origin of Enhanced Performance of Bimetallic Nanocatalysts towards ORR, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, 58, 16062-16066.

在分子水平实时揭示纳米电催化反应机理对科学设计高效催化剂具有重大意义,但也极富挑战.厦门大学李剑锋教授和程俊教授合作,利用卫星结构策略的壳层隔绝纳米粒子增强拉曼光谱技术(SHINERS)原位获得了不同 pH 下 Pt<sub>3</sub>Co 上 ORR 反应的重要中间物种直接光谱证据,并通过同位素取代及 DFT 计算确认了 Pt<sub>3</sub>Co 上 ORR 是经过 \*OOH 的联合反应机理(associative mechanism),揭示了削弱了 \*O 吸附会促进 ORR 性能.此工作表明 SHINERS 为纳米电催化的原位反应机理研究提供了一种新途径.

**关键词:**燃料电池·氧还原·FeN<sub>4</sub> 高效催化剂

N. Zhang, T. Zhou, M. Chen, H. Feng, R. Yuan, C. Zhong, W. Yan, Y. C. Tian, X. Wu, W. Chu, C. Wu, Y. Xie. High-Purity Pyrrole-Type FeN<sub>4</sub> Site as Superior Oxygen Reduction Electrocatalyst, *Energy Environ. Sci.*, 2019, DOI: 10.1039/C9EE03027A.

高效氧还原反应(ORR)是质子交换膜燃料电池(PEMFCs)商业化的关键. FeN<sub>4</sub> 是高效 ORR 催化剂,但在反应过程中因自由基攻击而质子化,导致 ORR 过电位高和稳定性差.中国科学技术大学吴长征教授课题制备的高纯度吡咯型 FeN<sub>4</sub> 催化剂显示了高 ORR 催化性能,在酸性介质中具有高活性表面电流密度(6.89 mA·m<sup>-2</sup>)、高开路电压(1.01 V)和大峰值功率密度(超过 700 mW·cm<sup>-2</sup>).理论计算结果表明,高纯度吡咯型配位优化了 FeN<sub>4</sub> 位点的原子与电子结构,具有较优的 O<sub>2</sub> 吸附能和四电子反应选择性,提升了反应的本征催化性能.

**关键词:**燃料电池·纳米有序组装提升催化性能

Q. Chen, Y. Liu, X. Qi, J. Liu, H. Jiang, J. Wang, Z. He, X. Ren, Z. Hou, S. Yu. Ordered Nanostructure Enhances Electrocatalytic Performance by Directional Micro-Electric Field, *J. Am. Chem. Soc.*, 2019, 141, 10729.

纳米催化剂的可控有效组装是实现其催化性能的关键.中国科学技术大学俞书宏教授团队,将 Pt 纳米管组装成周期排列的单层膜,在界面电场诱导下催化剂表面形成有序的周期性微电场,驱动极化的甲醇分子沿电场梯度方向聚集并最大限度的锚定在 Pt 纳米管催化剂表面,优化了传质过程,提升了催化性能.该策略具有一定的普遍性,纳米材料的有序组装将促进纳米催化剂效能的发挥.

**关键词:**燃料电池·氧还原反应·有序结构

J. Liang, N. Li, Z. Zhao, L. Ma, X. Wang, S. Li, X. Liu, T. Wang, Y. Du, G. Lu, J. Han, Y. Huang, D. Su, Q. Li. Tungsten-Doped L1<sub>0</sub>-PtCo Ultrasmall Nanoparticles as a High-Performance Fuel Cell Cathode, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, 131, 15617.

结构有序的铂基纳米晶氧还原催化剂具有优异的结构稳定性,但通常纳米粒子在高温相转化过程中会发生团聚,导致性能下降.华中科技大学李箐教授和中科院物理所苏东研究员团队采用了一种核/壳结构前驱体,成功制备了 W 掺杂的 3 nm L1<sub>0</sub>-PtCo 纳米粒子.在燃料电池测试中,该催化剂初始质量活性达到 0.57 A·mg<sub>Pt</sub><sup>-1</sup>,同时在循环 30000 次和 50000 次后,活性仅下降 17.5%和 30%,高于美国能源部 2020 年目标.研究发现,无序到有序的结构相变以及 W 掺杂能够有效调控纳米晶表面应力,优化 Pt 与 O 中间体的结合能,从而提高催化活性;而 W 掺杂能够进一步降低表面能,提高催化剂稳定性.

**关键词:**水系“摇椅型”锌离子电池·嵌入型负极

W. Li, K. Wang, S. Cheng, K. Jiang. An Ultrastable Presodiated Titanium Disulfide Anode for Aqueous “Rocking-Chair” Zinc Ion Battery, *Adv. Energy Mater.*, 2019, 9, 1900993.

发展基于嵌入式机制的储锌负极,有望解决金属锌枝晶生长和水系锌基电池库仑效率低等问题.华中科技大学蒋凯教授和王康丽教授团队首次报道了一种钠掺杂的二硫化钛(Na<sub>0.14</sub>TiS<sub>2</sub>),具有 0.3 V (Zn<sup>2+</sup>/Zn) 的嵌锌电位,140 mAh·g<sup>-1</sup> 的可逆容量和 5000 周稳定循环性.研究发现,钠掺杂占据二硫化钛的八面体中心,不仅增加了结构热力学稳定性,同时扩张层间距、降低锌离子扩散势垒,提高了锌离子脱嵌的可逆性.非原位 XRD 分析揭示了锌离子嵌脱过程涉及四相转变.在此基础上,作者首次构建了水系“摇椅型”锌离子电池.这一研究结果为发展高安全水系锌基电池提供了新的思路和方法.

**关键词:** 超级电容器·多级多孔碳电极·快速充放

Y. Lu, J. Liang, S. Deng, Q. He, S. Deng, Y. Hu, D. Wang. Hypercrosslinked Polymers Enabled Micropore-Dominant N, S Co-Doped Porous Carbon for Ultrafast Electron/Ion Transport Supercapacitors, *Nano Energy*, 2019, 65, UNSP103993.

构建与电解液离子匹配的分级多孔结构是实现碳基超级电容器能量密度提升的关键因素之一. 华中科技大学王得雨团队以廉价的有机小分子为前驱体, 通过一步超交联聚合获得了多活性位点、微孔孔径分布可调的超交联聚合物, 进而衍生出超高比表面积( $> 1200 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ )和微孔占比( $> 70\%$ )的分级多孔碳材料. 作为超级电容器电极材料, 其丰富的微孔贡献了大量双电层电容, 并且大孔的存在有利于电解液的存储, 中孔结构促进电解液离子的传输, 从而提升了活性位点的利用率, 使得大多数赝电容贡献不受电荷转移或扩散控制, 最终实现快速的能量存储.

**关键词:**  $\text{N}_2$  还原转化· $\text{N}_2$  吸附· $\text{Au}^+$  催化中心

J. Zheng, Y. Lyu, M. Qiao, J. P. Veder, R. D. Marco, J. Bradley, R. Wang, Y. Li, A. Huang, S. P. Jiang, S. Wang. Tuning the Electron Localization of Gold Enables the Control of Nitrogen-to-Ammonia Fixation, *Angew. Chem. Int. Ed.*, DOI: 10.1002/anie.201909477.

建立和理解催化剂在 NRR 反应中的活性位点是极其必要的. 湖南大学王双印教授等人通过引入  $\text{CoO}_x$  层形成局域氧化 Au 纳米粒子, 而经过同步辐射和准原位角分辨 XPS、电化学测试以及 DFT 计算证实  $\text{Au}^+$  为 NRR 反应活性中心, 能有效提升  $\text{N}_2$  吸附和降低反应能垒. 此项调控 Au 粒子局部电子结构的研究将为设计高效 NRR 催化体系提供了新的借鉴.

**关键词:** 电化学合成氨·金属掺杂  $\text{TiO}_2$  纳米催化剂

T. Wu, X. Zhu, Z. Xing, S. Mou, C. Li, Y. Qiao, Q. Liu, Y. Luo, X. Shi, Y. Zhang, X. Sun. Greatly Improving Electrochemical  $\text{N}_2$  Reduction over  $\text{TiO}_2$  Nanoparticles by Iron Doping, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, DOI: 10.1002/anie.201911153.

和 Haber-Bosch 法相比, 电催化固氮可在常温常压下合成氨, 且氮气和水作为原料来源广泛, 这在温和条件下绿色合成氨带来了契机. 基于 Fe 在工业和生物固氮中起着关键作用, 孙旭平教授课题组提出以 Fe 为金属掺杂剂, 制备 Fe 掺杂  $\text{TiO}_2$  纳米颗粒, 用于高效电催化氮还原合成氨, 其催化性能高于目前报道的所有 Fe 和 Ti 基催化材料. 理论计算表明,  $\text{TiO}_2$  表面引入 Fe 可以产生更多氧空位, 氧空位和  $\text{bi-Ti}^{3+}$  协同作用促进了氮还原反应.

**关键词:**  $\text{CO}_2$  电催化还原·串联反应机理

H. Zhang, X. Chang, J. G. Chen, W. A. Goddard, B. Xu, M. J. Cheng, Q. Lu. Computational and Experi-

mental Demonstrations of One-Pot Tandem Catalysis for Electrochemical Carbon Dioxide Reduction to Methane, *Nat. Commun.* 2019, 10, 3340.

利用可再生电能将  $\text{CO}_2$  转化为高附加值化学品是降低温室的合理办法, 高效可靠的催化剂是其瓶颈. 清华大学化学工程系陆奇教授团队通过密度泛函计算、构建实验模型并结合原位红外光谱, 论证了  $\text{CO}_2$  电化学还原的串联反应机制: 先用高选择性的金、银等催化剂将  $\text{CO}_2$  还原为  $\text{CO}$ , 再通过负载在催化剂上的铜将  $\text{CO}$  还原为需要的化学产品. 该研究为  $\text{CO}_2$  电化学还原催化剂设计、反应机理研究和反应器优化提供了新的思路.

**关键词:** 单颗粒光电化学·高灵敏度·高时间分辨

W. Ma, H. Ma, Y. Y. Peng, Y. T. Long, H. Tian. Ultrasensitive Photoelectrochemical Platform for Quantifying Photoinduced Electron Transfer Properties of a Single Entity, *Nat. Protoc.*, 2019, 14, 2672-2690.

单颗粒光电化学测量因能摒除整体体系中平均效应而广受关注. 然而, 精准测量单颗粒水平的光电化学行为一直是该领域存在的挑战. 针对该难题, 华东理工大学研究团队通过自主搭建超灵敏单颗粒光电化学测量平台, 发展单颗粒电化学大数据深度特征分析方法对特征信号进行智能提取, 实现对单颗粒动态光电化学行为的实时测量, 从而定量获得光电转换过程动力学信息. 该方法相较传统光电化学测量, 将电流分辨提高到皮安级, 时间分辨提高到微秒级.

**关键词:** 纳米孔·离子电流整流·空间固定电荷

J. C. Cai, Q. F. He, L. B. Song, L. H. Han, B. Liu, Y. D. Zhao, W. Chen, D. P. Zhan. Ion Current Rectification Behavior of Conical Nanopores Filled with Spatially Distributed Fixed Charges, *J. Phys. Chem. C*, 2019, 123, 43, 26299-26308.

通常用于离子整流特性理论或应用研究的锥形纳米孔具有内壁电荷, 但在实际情况中, 用于修饰纳米孔的分子或基团可能会延伸至纳米孔的内空间, 而不仅仅限于内壁表面或其附近. 因此, 华中科技大学陈威教授建立了一种完全基于空间固定电荷填充的纳米孔模型, 并使用基于 Poisson-Bohmann 方程和 Nernst-Planck 方程的数值仿真研究了电荷密度、纳米孔几何尺寸、外加电压等参数对该种纳米孔整流以及离子选择性的影响, 并发现此类纳米孔结构具有不同于常规内壁电荷纳米孔的整流特性. 该研究提供了一种使用空间固定电荷纳米孔材料在大口径管口实现离子整流效应的途径, 具有的潜在理论和应用价值.

詹东平

(厦门大学化学化工学院)

编于 2019 年 11 月 26 日