

# Journal of Electrochemistry

---

Volume 25

Issue 3 *Special Issue: Electrochemical Analysis  
and Sensing (II)*

---

2019-06-25

## Latest and Hot Papers

Dong-Ping ZHAN

dpzhan@xmu.edu.cn

---

### Recommended Citation

Dong-Ping ZHAN. Latest and Hot Papers[J]. *Journal of Electrochemistry*, 2019 , 25(3): Article 13.

DOI: 10.61558/2993-074X.3037

Available at: <https://jelectrochem.xmu.edu.cn/journal/vol25/iss3/13>

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: 腐蚀·光电效应调控·电化学纳米压印

C. Guo, L. Zhang, M. Sartin, L. Han, Z. Tian, Z.-Q. Tian, D. Zhan. Photoelectric Effect Accelerated Electrochemical Corrosion and Nanoimprint Processes on Gallium Arsenide Wafer, *Chem. Sci.*, 2019, DOI: 10.1039/c9sc01978b.

腐蚀是自发的电化学过程. 能否主观能动地控制腐蚀速率, 并将腐蚀进程精准地限制在微纳米尺度的范围之内? 厦门大学詹东平-韩联欢教授团队利用半导体和金属之间的接触电势诱导腐蚀反应, 并发现半导体的光电效应可以加速和调控腐蚀进程. 当 n-GaAs 和金属 Pt 形成接触界面, 由于电子逸出功的差异, 界面 Pt 侧荷负电而 n-GaAs 侧荷正电, 形成界面接触电势. 若 Pt 侧电子被溶液中的电活性物种移走, 则 n-GaAs 侧将由于空穴累积而氧化溶解. 这种接触电势诱导腐蚀严格沿着 Pt/n-GaAs/溶液三相界面进行, 一旦 Pt 与 n-GaAs 分离则腐蚀终止, 因此腐蚀反应被严格控制在空间电荷的德拜长度之内. 当 n-GaAs 受到光照, 由于其光电效应产生电子-空穴对, 光生载流子在 Pt/n-GaAs 界面的传输使接触电势增大, 从而加速腐蚀反应进程. 基于这一原理, 该团队发展出了无需任何辅助工艺、直接在半导体晶圆上批量制造三维微纳米功能结构的电化学纳米压印技术.

关键词: 界面水结构·SHINERS·分子动力学模拟

C. Y. Li, J. B. Le, Y. H. Wang, S. Chen, Z. L. Yang, J. F. Li, J. Cheng, Z. Q. Tian. *In situ* Probing Electrified Interfacial Water Structures at Atomically Flat Surfaces, *Nat. Mater.*, 2019, DOI: 10.1038/s41563-019-0356-x.

电化学界面水结构, 例如水分子在双电层中的取向及其复杂的氢键网络, 对电极过程具有显著影响. 厦门大学李剑锋教授和程俊教授合作, 使用壳层隔绝纳米粒子增强拉曼光谱 (SHINERS), 在金 (111) 和 (100) 单晶电极表面上获得了界面水的拉曼信号, 并原位观测到了析氢反应过程中界面水的构型转变, 发现随着电极电势的负移, 界面水由“平行”结构向“单端氢朝下”、再向“双端氢朝下”变化. 基于课题组前期发展的“界面电极电势理论方法”, 通过分子动力学模拟得到不同电位下 Au (111)/溶液界面双电层中水的三种构型以及相应的氢键数目, 揭示了双电层的原子级结构. 该研究在实验和理论层面, 首次将界面水的构型转变以及氢键断裂与电极电势进行了准确关联, 对探知双电层的三维结构具有指导性意义.

关键词: 纳米界面工程·Plasmon 介导热空穴氧化

C. Zhan, Z. Y. Wang, X. G. Zhang, X. J. Chen, Y. F. Huang, S. Hu, J. F. Li, D. Y. Wu, M. Moskovits, Z. Q. Tian. Interfacial Construction of Plasmonic Nanostructures for the Utilization of the Plasmon-Excited Electrons and Holes, *J. Am. Chem. Soc.*, 2019, 141, 8053-8057.

具有表面等离激元性质的金属纳米颗粒在光照下可以产生激发态的电子和空穴介导化学反应的发生. 然而对于如何高效利用这些激发态的载流子, 人们的认识还存在不足. 厦门大学田中群院士研究团队通过构筑一系列不同的表面等离激元纳米结构, 使用对巯基苯胺作为探针分子, 用表面增强拉曼光谱技术详细研究了界面结构对于表面等离激元介导化学反应的影响. 除氧条件下, 在 Au@TiO<sub>2</sub> 核壳纳米结构上实现了对氨基苯硫酚的空穴氧化反应. Au、Au@SiO<sub>2</sub> 和 Au@SiO<sub>2</sub>@TiO<sub>2</sub> 等系列纳米粒子的对照实验, 排除了热效应、表面催化和热电子的影响, 确认了空穴的贡献, 对于研究表面等离激元介导化学反应具有借鉴意义.

关键词: 电催化·MOFs·析氢反应

T. Liu, P. Li, N. Yao, G. Cheng, S. Chen, W. Luo, Y. Yin. CoP-Doped MOF-Based Electrocatalyst for pH-Universal Hydrogen Evolution Reaction, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, 58, 4679-4684.

过渡金属磷化物 (TMPs) 是一类潜在的氢析出催化剂, 但活性仍有待提高. 武汉大学的罗威教授、陈胜利教授与加州大学河滨分校殷亚东教授合作, 在无需高温煅烧的情况下, 实现了 Co 基金属有机框架 (MOFs) 材料的可控磷化. 获得的 Co-MOF@CoP 复合材料, 不仅保持了 MOFs 材料的高比表面积及高密度暴露活性位点, 同时由于 MOF 中氮对表面 CoP 的拉电子效应, 使该材料具有更加适宜的氢结合能和水平活化能力, 从而在比较宽的 pH 范围内实现了接近于铂催化剂的析氢性能.

关键词: 电催化·二维材料层数与活性的构效关系

D. Hu, T. Zhao, X. Ping, H. Zheng, L., X. Liu, J. Zheng, L. Sun, L. Gu, C. Tao, D. Wang, L. Jiao. Unveiling the Layer-Dependent Catalytic Activity of PtSe<sub>2</sub> Atomic Crystals for the Hydrogen Evolution Reaction, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, DOI: 10.1021/anie.201901612.

揭示二维材料晶体结构与电催化性能之间的构效关系至关重要. 清华大学焦丽颖-王冬教授研究团

队采用化学气相输运法实现了二维 PtSe<sub>2</sub> 晶体层数的有效控制合成,并通过微纳加工技术构建单个 PtSe<sub>2</sub> 晶体微电化学池,结合理论计算证实了析氢催化活性主要来自 PtSe<sub>2</sub> 晶体的 Edge 位点.该工作通过对实验环节的严格控制,结合理论化学计算,研究二维晶体本征原子结构、电子结构及电学性能等对其催化活性的影响,为二维材料催化性能的构效关系研究提供了可借鉴的流程.

**关键词:**电催化·晶面选择性·木质素降解

C.J. Bondue, F. Calle-Vallejo, M.C. Figueiredo, M.T. M. Koper. Structural Principles to Steer the Selectivity of the Electrocatalytic Reduction of Aliphatic Ketones on Platinum, *Nat. Catal.*, 2019, 2, 243-250.

高温裂解木质素副反应多,电化学方法能否解决选择性?荷兰 Marc Koper 教授团队以丙酮为模式体系,研究了其在单晶 Pt 电极的电化学还原行为,发现了 Pt(110)台阶上丙酮吸附和脱氢的活性位,Pt(111)和 Pt(110)平台位对丙酮没有吸附能力,而 Pt(110)平台位能催化丙酮不完全氧化并导致 Pt(110)台阶位发生中毒.理论计算表明,丙酮吸附在铂晶体表面后,通过加氢生成吸附中间物 CH<sub>3</sub>COHCH<sub>3</sub>,在低铂原子配位数的 Pt(110)和 Pt(553)上生成 2-丙醇,而在未配位铂原子的 Pt(510)上形成烷烃,呈现晶面选择性催化.该工作再次表明,模式体系的构筑对电化学基础研究的重要意义.

**关键词:**电催化·酶生物燃料电池·酶定向进化

L. Zhang, H. Cui, Z. Zou, T. M. Garakani, C. Novoa-Henriquez, B. Jooyeh, U. Schwaneberg. Directed Evolution of a Bacterial Laccase (CueO) for Enzymatic Biofuel Cells, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, 58, 4562-4565.

酶生物燃料电池在自供能、植入式和便携式装置中具有应用前景,但氧化还原酶的电催化效率低下.采用酶定向进化(2018年诺贝尔奖)技术,通过有效的突变/重组策略,筛选出具有目标特征的酶,提高其底物特异性、催化活性、稳定性、溶剂耐受性和异构选择性等.德国亚琛工业大学生物技术所的研究者们采用多通道阵列电极技术,筛选出漆酶定向进化变种 D439T/L502K,大幅降低了漆酶电催化氧还原反应的过电势,提高了葡萄糖/氧气生物燃料电池的开路电位.编者认为酶定向进化技术将推动生物电化学的发展.

**关键词:**光电催化·压电效应·p-n 结载流子输运

Z. Liu, L. Wang, X. Yu, J. Zhang, R. Yang, X. Zhang, Y. Ji, M. Wu, L. Deng, L. Li, Z.-L. Wang. Piezoelectric Effect Enhanced Full-Spectrum Photo-

Electrocatalysis in p-n Heterostructure, *Adv. Funct. Mater.*, 2019, DOI: 10.1002/adfm.201807279.

降低光生载流子复合率、提高其利用效率是光电催化关键问题.中科院北京纳米能源与系统研究所李琳琳、王中林与济南大学于欣研究团队在由 TiO<sub>2</sub> 与 Ag<sub>2</sub>O 构成的 p-n 结处插入 BaTiO<sub>3</sub>(BTO)纳米层,其压电效应能够增强该 p-n 结处中的电子和空穴分离能力.同时,通过外加电场促使载流子定向传输、抑制其复合率,进而提高体系的光电转化效率.

**关键词:**光电催化·钙钛矿电池·效率和稳定性

N. Li, S. Tao, Y. Chen, X. Niu, C.K. Onwudinanti, C. Hu, Z. Qiu, Z. Xu, G. Zheng, L. Wang, Y. Zhang, L. Li, H. Liu, Y. Lun, J. Hong, X. Wang, Y. Liu, H. Xie, Y. Gao, Y. Bai, S. Yang, G. Brocks, Q. Chen, H. Zhou. Cation and Anion Immobilization through Chemical Bonding Enhancement with Fluorides for Stable Halide Perovskite Solar Cells, *Nat. Energy*, 2019, 4, 408-415.

消除有机阳离子和卤素阴离子空位缺陷,是提高钙钛矿太阳能电池效率和稳定性重要途径.北京大学工学院周欢萍课题组在钙钛矿活性层中掺杂氟化钠,由于氟的电负性极高,与有机阳离子形成强氢键,同时与铅离子形成强离子键,有效地消除了有机阳离子和卤素阴离子空位缺陷,大幅提升钙钛矿太阳能电池的光电转换效率和长期稳定性.

**关键词:**电合成·苯并咪唑酮·苯并恶唑酮

F. Xu, H. Long, J. Song, H.-C. Xu. De Novo Synthesis of Highly Functionalized Benzimidazolones and Benzoxazolones through an Electrochemical Dehydrogenative Cyclization Cascade, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2019, DOI: 10.1002/anie.201904931.

苯并咪唑酮和苯并恶唑酮结构是多种药物分子的核心骨架.这些苯并杂环的构建通常以苯衍生物为原料,通过构建另外的五元杂环实现.厦门大学徐海超教授报道了一种苯并咪唑酮和苯并恶唑酮的电合成新方法.该方法以易得的开链化合物为原料,通过电化学脱氢环化一步构建苯环和五元杂环,并能有效控制区域选择性.这些电氧化反应的副产物为氢气,无需过渡金属基催化剂和氧化剂,且可构建多种通过其它方法不易合成的多取代苯并咪唑酮和苯并恶唑酮结构.

詹东平

(厦门大学化学化工学院)  
编于 2019 年 6 月 10 日