

# SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub> 复合材料的制备及其催化性能的研究

祁佳音, 郭卓\*

(沈阳化工大学材料科学与工程学院, 辽宁 沈阳 110142)

**摘要:**为提高锂离子电池负极材料的电催化析氢性能,以石墨烯为载体,采用水热法制备了还原氧化石墨烯(RGO)纳米片负载WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>复合纳米材料。电化学性能测试结果表明,当SnS<sub>2</sub>与WS<sub>2</sub>的物质的量的比为1:2、电流密度为10 mA/cm<sup>2</sup>时,其在0.5 mol/L的H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>电解质溶液中的过电位为180 mV, Tafel斜率为129 mV/dec。SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub>复合纳米材料作为无贵金属的电催化剂具有巨大的潜力。

**关键词:**石墨烯;二硫化钨;二硫化锡;水热法;析氢反应

**中图分类号:** TB33; TM912

**文献标志码:** A

**文章编号:** 0253-4320(2020)11-0159-05

**DOI:** 10.16606/j.cnki.issn 0253-4320.2020.11.033

## Study on preparation and catalytic performance of SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub> composites

QI Jia-yin, GUO Zhuo\*

(School of Materials Science and Engineering, Shenyang University of Chemical Technology, Shenyang 110142, China)

**Abstract:** In order to improve the electrocatalytic hydrogen evolution performance of anode materials of lithium ion battery, the reduced graphene oxide (RGO) nanosheets loaded with WS<sub>2</sub> and SnS<sub>2</sub> composite nanomaterials are prepared via a simple hydrothermal method by using graphene as a carrier. The results from electrochemical performance test show that the overpotential of the prepared composite in a 0.5 mol·L<sup>-1</sup> H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> electrolyte solution is 180 mV and its Tafel slope is 129 mV·dec<sup>-1</sup> when the mass ratio of SnS<sub>2</sub> to WS<sub>2</sub> is 1:2, and the current density is 10 mA·cm<sup>-2</sup>. The environmentally friendly synthesis method and excellent performance show that SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub> composite nanomaterial has a great potential as an electrocatalyst without precious metals.

**Key words:** graphene; tungsten disulfide; tin disulfide; hydrothermal method; hydrogen evolution reaction

随着人们对全球变暖、环境污染和能源安全的日益关注,发展一种清洁、绿色、可再生的能源是必要的<sup>[1-3]</sup>。由于水是其氧化反应过程中的唯一产物,氢气可以说是未来最清洁的燃料<sup>[4]</sup>。到目前为止,常规的贵金属如铂金、钌和铱基电催化剂一直是析氢反应最有效的电催化剂,但高昂的成本和严重的稀缺性限制了其的广泛与实际应用<sup>[5-6]</sup>。因此,探索制备高催化活性、高稳定性和低成本的非铂电催化剂至关重要。

科研工作者研制出大量不含贵金属的新型材料,如金属氧化物<sup>[7-8]</sup>、合金<sup>[9-11]</sup>、碳化物<sup>[12]</sup>、过渡金属硫化物<sup>[13]</sup>等。Qi等制备了具有大量活性位点和良好的稳定性3D WS<sub>2</sub>/石墨烯/Ni结构的复合材料,当电流密度为10 mA/cm<sup>2</sup>时,过电位为87 mV,在250 mV的过电势下具有119 mA/cm<sup>2</sup>的高电流

密度;二维纳米复合材料催化剂对催化性能有很大影响,但是,合成技术和催化剂机理的研究不足抑制了其在燃料电池中的发展。

笔者以石墨烯为载体,采用水热法合成SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub>复合纳米材料。并对其电催化性能及稳定性进行了研究。

## 1 试剂和仪器

### 1.1 试剂

石墨粉,质量分数为99.95%,上海阿拉丁生化科技股份有限公司生产;浓硫酸,AR,质量分数为95.0%~98.0%,天津市大茂化学试剂厂生产;双氧水,AR,质量分数为30%,天津市大茂化学试剂厂生产;盐酸,AR,质量分数为36.0%~38.0%,天津市大茂化学试剂厂生产;高锰酸钾,AR,天津市大茂化学

收稿日期:2020-01-14;修回日期:2020-09-20

基金项目:辽宁省自然科学基金(2019-ZD-0084)

作者简介:祁佳音(1994-),女,硕士研究生,研究方向为电化学析氢,2449877351@qq.com;郭卓(1975-),女,博士,副教授,研究方向为电化学,通讯联系人,guozhuochina@syuct.edu.cn。

试剂厂生产;硝酸钠,AR,天津市大茂化学试剂厂生产;无水乙醇,AR,天津市大茂化学试剂厂生产;六氯化钨、硫代乙酰胺、L-半胱氨酸、氧化铝粉、氢氧化钠,分析纯,上海阿拉丁生化科技股份有限公司生产;冰块、蒸馏水,自制。

## 1.2 仪器

JA2003NKQ-250DB 电子天平,上海上平仪器有限公司生产;KQ-250DB 数控超声波清洗器,昆山市超声仪器有限公司生产;LG10-2.4A 高速离心机,北京京立离心机有限公司生产;DZF-1B 电热恒温真空干燥箱,上海跃进医疗器械有限公司生产;TD-3500XRD 衍射仪,丹东通达科技有限公司生产;DZF-1B 扫描电子显微镜(SEM),上海跃进医疗器械有限公司生产。

## 2 实验方法

### 2.1 氧化石墨烯的制备

分别称取 1.2 g 石墨和 2.0 g 无水硝酸钠缓慢倒入 70 mL 浓硫酸(冰浴)中,0℃左右的条件下搅拌 40 min,然后称取 6 g  $K_2MnO_4$ ,在搅拌(冰浴)的条件下缓慢加入上述溶液中,该过程要在 2 h 内缓慢加入。完成后开始升温,温度升到 35℃,在这个条件下搅拌 30 min。接着用分液漏斗滴加 300 mL 去离子水。添加结束后升温至 95℃,95℃下持续搅拌 15 min。当加热完成后,将所得到的溶液导入 60℃、200 mL 的去离子水中,随后加入过氧化氢(30%)至溶液变为亮黄色。溶液静置 12 h,收集沉淀物,经稀盐酸和蒸馏水洗涤即可得到氧化石墨烯。

### 2.2 $WS_2$ 的制备

称取 2.38 g 氯化钨和 4.55 g 硫代乙酰胺溶解于 80 mL 蒸馏水中,搅拌 30 min,将溶液分别转移至 100 mL 聚四氟乙烯内衬的不锈钢高压反应釜中,在 265℃时水热反应 24 h。待冷却后,将产物洗涤干燥,样品记作  $WS_2$ 。

### 2.3 $SnS_2/RGO/WS_2$ 催化剂的制备

称取 18.3 mg 氧化石墨烯和适量的  $WS_2$  溶于 40 mL 去离子水中,然后超声 4 h,再将不同质量的  $SnCl_4 \cdot 5H_2O$  溶于溶液中,搅拌 30 min。接着将 1.6 g L-半胱氨酸加入溶液中,搅拌 30 min。再将其转移至 50 mL 聚四氟乙烯内胆反应釜,在 180℃烘箱中恒温反应 14 h,让其自然冷却到室温,然后再离心分离沉淀,得到  $SnS_2$  与  $WS_2$  物质的量比为 1:1、2:1 和 1:2 的样品,最终产物分别命名为 WGSn-

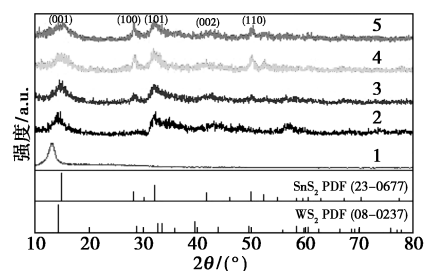
1、WGSn-2 和 WGSn-3。

## 3 结果与分析

### 3.1 $SnS_2/RGO/WS_2$ 复合材料的结构分析

#### 3.1.1 XRD 分析

氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的 WGSn 的 XRD 谱图如图 1 所示。



1—氧化石墨烯;2—二硫化钨;3—WGSn-1;4—WGSn-2;  
5—WGSn-3

图 1 氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的 WGSn 的 XRD 谱图

从图 1 中谱线 1 可以看到出,在  $2\theta$  为 12.6° 位置出现 1 个石墨烯特征衍射峰,对应氧化石墨(002)晶面衍射峰。从图 1 中谱线 2 可以看出, $WS_2$  在 14.4、32.4、43.7° 和 58.6° 处的衍射峰分别与六边形  $WS_2$  (JCPDS 卡编号 08-0237) 的(002)、(100)、(006)和(110)晶面对应。从图 1 中谱线 3~谱线 5 可以看出,WGSn-1、WGSn-2 和 WGSn-3 的(001)、(100)、(101)晶面对应的峰强度有所降低,这是由于三者的复合有效地降低了峰间的堆积,形成相互插层的层状结构。

#### 3.1.2 拉曼光谱分析

氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的 WGSn 拉曼光谱如图 2 所示。从图 2 中谱线 3~谱线 5 可以看出,在  $130\text{ cm}^{-1}$  和  $320\text{ cm}^{-1}$  处观察到 2 个主要的谱带,分别对应  $SnS_2$  的 E 和  $A_{1g}$  振动模式,与原始的  $SnS_2$  相比,样品的 E 和  $A_{1g}$  模式峰被抑制,这是因为他们被固定在 RGO 表面上并且具有很少的层状结构<sup>[16]</sup>。样品在  $709\text{ cm}^{-1}$  和  $822\text{ cm}^{-1}$  处观察到 2 个主要的谱带,分别对应  $WS_2$  的 E 和  $A_{1g}$  振动模式。同时样品在  $1325\text{ cm}^{-1}$  和  $1590\text{ cm}^{-1}$  处观察到 2 个主要的谱带,分别对应 RGO 的 D 带和 G 带。与 RGO 相比,样品的 ID/IG 值要高于 RGO (1.05),表明  $SnS_2$  和  $WS_2$  的引入对碳缺陷有一定的贡献。这主要归因于 RGO 的还原和  $SnS_2$  和  $WS_2$  纳米片插入石墨烯纳米片中,这与以前的报道相似<sup>[15]</sup>。

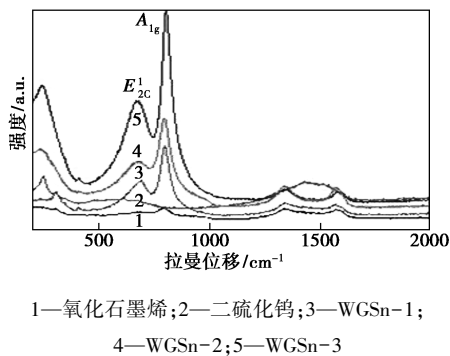


图2 氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn拉曼光谱

### 3.1.3 SEM分析

还原氧化石墨烯、二硫化钨/还原氧化石墨烯、WGSn-3的SEM和TEM图如图3所示。

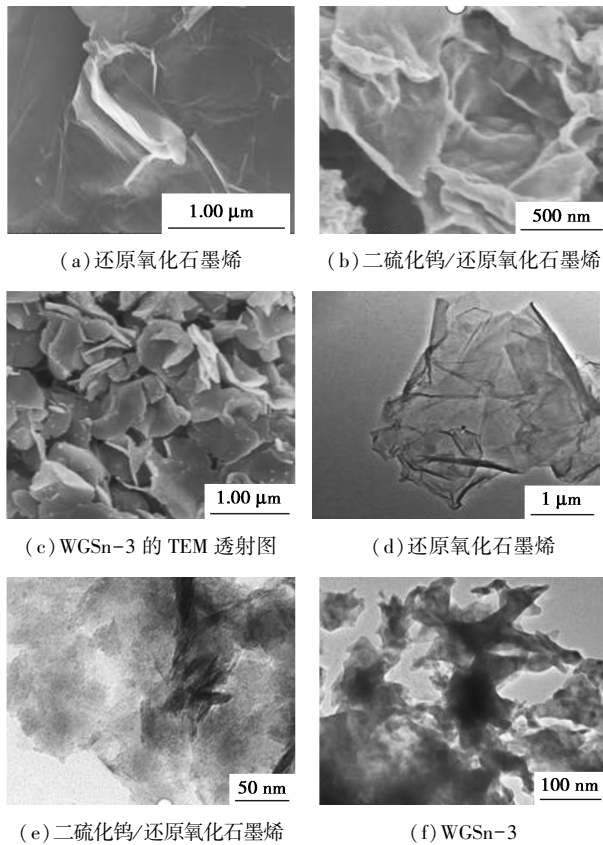


图3 还原氧化石墨烯、二硫化钨/还原氧化石墨烯、WGSn-3的SEM和TEM图

从图3(a)中可以看出,RGO呈现二维纳米片状结构,表面有多条皱纹。而从图3(b)中可以看出,这种杂交表面的皱纹更加粗糙,这是由于在WS<sub>2</sub>和RGO的层状结构之间存在范德华力,增加了折叠的程度,从而使2个表面的皱纹粗糙。从图3(c)中可以看出,在WS<sub>2</sub>/RGO上负载SnS<sub>2</sub>纳米粒子后,在氧化石墨烯存在下,WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>纳米粒子作为连续起

皱的纳米片在RGO纳米片表面均匀地展开和分布。这种改变应该归因于GO表面基团对WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>材料晶体生长和自组装过程的重要影响。从图3(d)中可以观察到RGO的分层结构。从图3(e)中可以看到中孔WS<sub>2</sub>晶体彼此平行。从图3(f)中可以看出,WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>纳米片在RGO表面上展开并均匀分布。值得注意的是,WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>纳米片不与RGO表面平坦接触,呈现出许多皱纹纳米片结构的横截面。因此,在该多孔三维纳米结构中,与WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub>和RGO之间完全平坦的接触相比,复合材料的比表面积应大大提高。

### 3.2 WS<sub>2</sub>/RGO/SnS<sub>2</sub>复合材料的催化性能分析

催化剂本身的原位活性是比较催化剂材料和指导催化剂开发所必需的重要度量。通过在0.5 mol/L的H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>电解质溶液中的循环伏安扫描测试(CV)来研究氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn的复合材料的电化学性能,其中K/KCl为参比电极,以氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn复合材料为工作电极,Pt为对电极。测量得到的氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn的CV曲线(10个周期)如图4所示。电压范围为-0.3~0.3 V,扫描速率为50 mV/s。

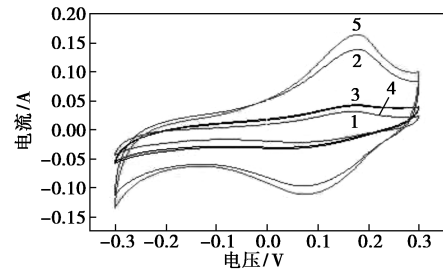


图4 氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn的CV曲线

从图4中可以看到,该复合材料的循环伏安曲线在0.15 V左右出现峰,同时对应出现微弱的电流强度,WGSn-3表现出最高的氧化还原曲线。由于石墨烯的加入促进了电子在双电子层间的传输,三者复合后,在层与层之间形成了相互连接的通道,相互弥补彼此间的空隙,为氧化还原提供更多的附着位点,使得析氢反应能够快速地在电极周围发生,从而促进了催化效果。

氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的WGSn的LSV极化曲线与塔菲尔斜率如图5所示。

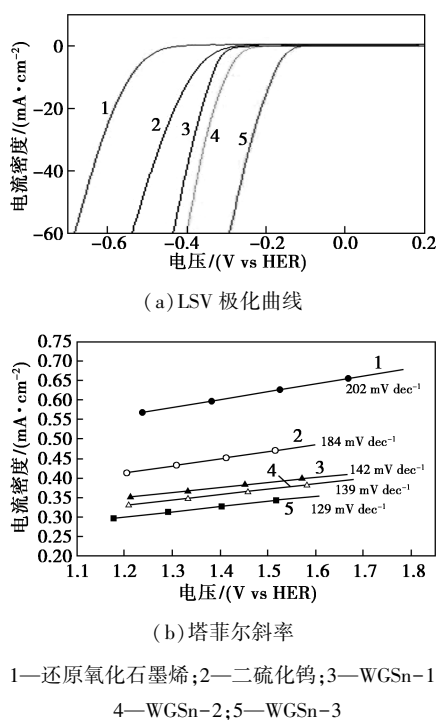


图 5 氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的 WGSn 的 LSV 极化曲线与塔菲尔斜率

从图 5(a) 中可以看出, WGSn-3 具有最佳的 HER 活性。WS<sub>2</sub> 的最高起始过电位(H) 约为 315 mV, 电流密度较低。原始 WS<sub>2</sub> 的电流密度仅为 10 mA/cm<sup>2</sup>, 过电位为 400 mV。不良的 HER 性能与原始 WS<sub>2</sub> 的电导率有关。当在系统中引入 RGO、SnS<sub>2</sub> 时, 得到的 WGSn-1、WGSn-2 和 WGSn-3 显示出较高的电流密度, 与原始 WS<sub>2</sub> 相比, 具有较低的起始过电位。WGSn-3 复合催化剂的电流密度高于原始 WS<sub>2</sub> 和 WGSn-1、WGSn-2 复合材料。WGSn-3 复合催化剂的起始过电位最小, 为 100 mV, 在电流密度为 10 mA/cm<sup>2</sup> 时, 其在 0.5 mol/L 的 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 的电解质液中的过电位为 180 mV。

塔菲尔斜率是催化剂的固有性质, 这是由他的限速步骤决定的。因此, 可以用相应的 Tafel 斜率来探讨其电催化剂的作用机理。从图 5(b) 中可以看出, 原始 WS<sub>2</sub> 表现出 184 mV/dec 的大 Tafel 斜率。与高导电的石墨烯、SnS<sub>2</sub> 复合后的 WGSn-1、WGSn-2 和 WGSn-3 催化剂的 Tafel 斜率降低到 142、139 mV/dec 和 129 mV/dec。原则上, 较低的 Tafel 斜率意味着催化剂需要施加较低过电位以产生所需的电流。因此, Tafel 斜率最小的 WGSn-3 复合材料在所有样品中表现出最佳的活性, 这与 LSV 分析是一致的。

氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的

WGSn 的阻抗谱(EIS) 图如图 6 所示。

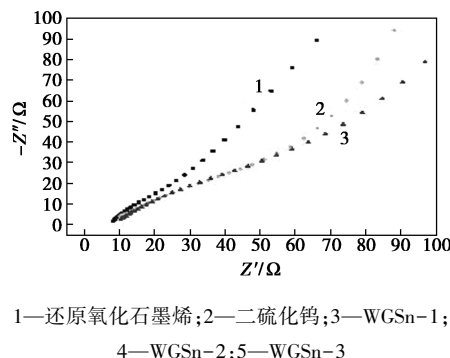


图 6 氧化石墨烯、二硫化钨及不同物质的量比的 WGSn 的阻抗谱(EIS) 图

从图 6 中可以看出, 作为制备样品的奈奎斯特图, 包括 1 个弧和 1 个半圆的应用电位。结果表明, WGSn-3 电极的半圆直径明显小于 WGSn-1、WGSn-2 电极的直径, 说明 WGSn-3 电极的电荷转移速度比其他电极快。石墨烯具有优异的导电性, 是促进电子快速转移的导电网络。从电极基片到 WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub> 活性边缘位置, WGSn-3 复合材料的 HER 性能更好。

稳定性是评价电催化剂的另一个重要标准。因此, 利用 CVS 在 0.5 mol/L 的 H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 的电解质溶液中, 以 100 mV/s 的扫描速率扫描 1 000 个周期, 测量结果如图 7 所示。

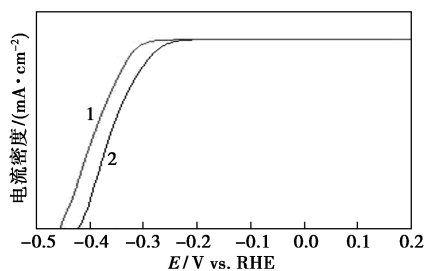


图 7 WGSn-3 的稳定性

由图 7 中可以看出, WGSn-3 在酸性电解质中具有较好的稳定性、较小的阳极电流损失及良好的耐久性。

#### 4 结论

以石墨烯为载体, 采用简单水热法合成 SnS<sub>2</sub>/RGO/WS<sub>2</sub> 纳米复合材料。作为一种无贵金属催化剂, WGSn-3 催化剂表现出更强的 HER 性能, 其起始电位为 100 mV, Tafel 斜率降低到 129 mV/dec, 同时具有良好的稳定性与耐久性。出色的电化学性能归因于 WS<sub>2</sub>、SnS<sub>2</sub> 与石墨烯的协同作用, 这有利于

增强氧化还原动力学和结构稳定性。可以扩展这种合成路线,以制造其他过渡金属二硫化物材料,可以提供出色的锂存储性能。

### 参考文献

- [1] Gao X, Yu G, Zheng L C, *et al.* Strong electron coupling from the sub-nanometer Pd clusters confined in porous ceria nanorods for highly efficient electrochemical hydrogen evolution reaction [J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2019, (2): 966–973.
- [2] Hu J, Huang B L, Zhang C X, *et al.* Engineering stepped edge surface structures of MoS<sub>2</sub> sheet stacks to accelerate the hydrogen evolution reaction [J]. *Energy & Environmental Science*, 2017, 10: 593–603.
- [3] Alex C, Bhat S A, John N S, *et al.* Highly efficient and sustained electrochemical hydrogen evolution by embedded Pd-nanoparticles on a coordination polymer—reduced graphene oxide composite [J]. *ACS Applied Energy Materials*, 2019, (2): 8098–8106.
- [4] Chen S Q, Chen X B, Wang G J, *et al.* Reaction mechanism with thermodynamic structural screening for electrochemical hydrogen evolution on monolayer 1T' Phase MoS<sub>2</sub> [J]. *Chemistry of Materials*, 2018, (30): 5404–5411.
- [5] He Q Q, Chen X B, Chen S Q, *et al.* Electrochemical hydrogen evolution at the interface of monolayer VS<sub>2</sub> and water from first-principles calculations [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2018, (11): 2944–2949.
- [6] Feng X, Wang H, Bo X, *et al.* Bimetal-organic framework-derived porous rodlike cobalt/nickel nitride for all-pH value electrochemical hydrogen evolution [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, (11): 8018–8024.
- [7] Muralikrishna S, Ravishankar T N, Ramakrishna T, *et al.* Non-noble metal graphene oxide-copper(II) ions hybrid electrodes for electrocatalytic hydrogen evolution reaction [J]. *Environmental Progress & Sustainable Energy*, 2016, (35): 565–573.
- [8] Leyla Najafi, Sebastiano Bellani, Reimier Oropesa-Nuñez, *et al.* Doped MoSe<sub>2</sub> nanoflakes 3d metal oxide hydr(oxy)oxides hybrid catalysts for pH universal electrochemical hydrogen evolution reaction [J]. *Adv Energy Mater*, Doi:10.1002/aenm.201801764.
- [9] Zang M J, Xu N, Cao G X, *et al.* Cobalt molybdenum oxide derived high-performance electrocatalyst for the hydrogen evolution reaction [J]. *ACS Catalysis*, 2018, (8): 5062–5069.
- [10] Zhang B, *et al.* Low-temperature electrochemical codeposition of aluminum-neodymium alloy in a highly stable solvate ionic liquid [J]. *Journal of Solid State Electrochemistry*, 2019, (23): 1903–1909.
- [11] Pohrellyuk I, Tkachuk O, Proskurnyak R, *et al.* Influence of regulated modification of nitride layer by oxygen on the electrochemical behavior of Ti<sub>6</sub>Al<sub>4</sub>V alloy in the Ringer's solution [J]. *Materials and Corrosion*, 2019, (70): 2320–2325.
- [12] Sun Y L, Wang B L, Yang N, *et al.* Synthesis of RGO-supported molybdenum carbide (Mo<sub>2</sub>C-RGO) for hydrogen evolution reaction under the function of poly(ionic liquid) [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2019, (58): 8996–9005.
- [13] Wang J B, Chen L, Zeng L, *et al.* In situ synthesis of WSe<sub>2</sub>/CMK-5 nanocomposite for rechargeable lithium-ion batteries with a long-term cycling stability [J]. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 2018, (6): 4688–4694.
- [14] Ma L, Xu L M, Lin W L, *et al.* Hydrothermal synthesis of selenium-doped graphene-like molybdenum disulfide/graphene hybrid as an efficient electrocatalyst for hydrogen evolution [J]. *Advanced Powder Technology*, 2016, (27): 2153–2160.
- [15] Zheng X L, Xu J B, Yan K Y, *et al.* Spaceconfined growth of MoS<sub>2</sub> nanosheets within graphite: The layered hybrid of MoS<sub>2</sub> and graphene as an active catalyst for hydrogen evolution reaction [J]. *Chem Mater*, 2014, 26(7): 2344–2353. ■
- (上接第 158 页)
- [11] 龙文字, 刘继涛, 秦永航, 等. 氧化-络合萃取法脱除重质燃料油中硫化物 [J]. *现代化工*, 2015, 35(12): 101–104, 106.
- [12] 毛春峰, 李秀萍, 赵荣祥, 等. H<sub>3</sub>PW(12)O(40)@C 的制备和氧化脱除模拟油中硫化物 [J]. *现代化工*, 2017, 37(1): 123–127.
- [13] 张伟. 分子氧化法深度脱除燃油中有机硫研究 [D]. 广州: 华南理工大学, 2014.
- [14] Zhang Hongxng, Gao Jiajun, Meng Hong, *et al.* Catalytic oxidative desulfurization of fuel by H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> in-situ produced via oxidation of 2-propanol [J]. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 2012, 51(13): 4868–4874.
- [15] Wang Qing, Wang Shengqiang, Yu Hongbing. Oxidative desulphurization of model fuel by in situ produced hydrogen peroxide on palladium/active carbon [J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2017, 95(1): 136–141.
- [16] 安红强. 氢氧直接合成过氧化氢及其与环己酮氨氧化反应集成过程的研究 [D]. 天津: 河北工业大学, 2010.
- [17] 李向峰, 李星星, 高豹, 等. 回收有机废液中乙腈和 N,N-二甲基甲酰胺 [J]. *江西化工*, 2020, (2): 100–102.
- [18] 干雅平, 徐明仙, 王美华, 等. 合成革行业 DMF 废液精馏回收的萃取法预处理研究 [J]. *科技通报*, 2016, 32(5): 215–218.
- [19] Ye J, Liu J, Xu C, *et al.* Electrooxidation of 2-propanol on Pt, Pd and Au in alkaline medium [J]. *Electrochemistry Communications*, 2007, 9: 2760–2763.
- [20] 王庆, 王胜强, 于宏兵. Pd/C 催化氧化吸附脱除燃油中噻吩类硫化物研究 [J]. *化学工程*, 2016, 44(7): 1–5.
- [21] 张丹丹. 燃料油中萃取催化氧化耦合脱硫 [D]. 洛阳: 河南科技大学, 2018.
- [22] Yang Chunping, Zhao Kun, Cheng Yan, *et al.* Catalytic oxidative desulfurization of BT and DBT from n-octane using cyclohexanone peroxide and catalyst of molybdenum supported on 4A molecular sieve [J]. *Separation and Purification Technology*, 2016, 163: 153–161.
- [23] Dai B, Wu P, Zhu W S, *et al.* Heterogenization of homogenous oxidative desulfurization reaction on graphene-like boron nitride with a peroxomolybdate ionic liquid [J]. *RSC Advances*, 2016, 6(1): 140–147.
- [24] 刘汉林, 李秀萍, 赵荣祥. DESs/SG 催化剂的制备及其氧化脱硫性能 [J]. *燃料化学学报*, 2020, 48(3): 369–377.
- [25] Nie Y, Dong Y, Gao H, *et al.* Regulating sulfur removal efficiency of fuels by Lewis acidity of ionic liquids [J]. *Sci China: Chem*, 2016, 59(5): 526–531. ■