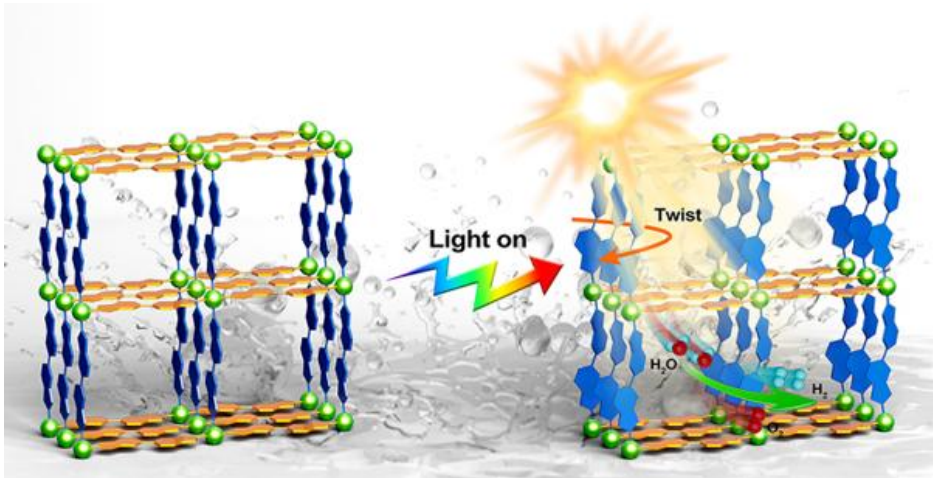




## 中国科大在人工光合成领域取得新进展



图注：通过激发态结构扭曲促进电荷分离实现光催化全水分解

中国科大江海龙教授团队联合罗毅教授和江俊教授团队在人工光合成研究中取得新进展。研究成果以“Dynamic structural twist in metal–organic frameworks enhances solar overall water splitting”为题发表于《自然·化学》(Nature Chemistry)。应期刊编辑邀请，研究团队、审稿人和编辑共同撰写的研究简报(Research briefing)也在线刊登，期刊审稿人和编辑对该工作给予高度评价，称我们提出了一个“新颖、颠覆性的概念”(a novel and disruptive concept)，并认为这为未来发展更高效的光催化剂提供了“令人激动的进展”(an exciting development)。

光催化全水分解制取氢气被视为化学领域的“圣杯”反应，其中一个主要限制瓶颈是光催化过程中的电子和空穴极易复合。为了抑制这种复合现象，研究者们已发展了许多策略。然而，这些经典策略多集中于催化剂的基态结构，而电子和空穴的复合则发生在激发态。自然光合作用中，电子在转移过程中光合蛋白通过构象变化来稳定电子，保证其长距离传输。受此启发，研究团队基于人工光催化剂在接受电子后发生激发态结构变化，以稳定光生电子并延长其寿命，从而实现光催化的全解水反应。

基于上述理念，研究团队选择了一种名为CFA-Zn的金属有机框架材料(MOFs)，成功通过激发态结构变化延长了光生载流子的寿命，进而实现了高效的光催化全解水反应。CFA-Zn由闭壳层的Zn节点连接两种化学上相同但晶体学上不同的柔性有机配体组成。两种晶体学不同的有机配体分别作为电子供体和受体，而Zn的闭壳层结构确保了两种配体间的化学绝缘。以上特征使CFA-Zn能够创造类似植物体中动态柔性的化学微环境，通过激发态结构变化稳定激发态电子并延长其寿命。

近年来，江海龙教授团队围绕催化中心微环境调控方面取得了系列进展。特别是利用MOF催化剂独特的柔性结构，创造柔性自适应催化位点，实现高选择性CO<sub>2</sub>光还原到CH<sub>4</sub>(Nat. Catal. 2021, 4, 719等)。本次研究是在前期工作基础上借助动力学结构的MOF光催化剂，抑制了辐射弛豫过程，为光化学反应提供了新的视角与启示。



## 研究进展

### 中国科大开辟甲醇原位产氢辅助聚苯乙烯降解新路径

近日，中国科大曾杰教授、李洪良副教授等人在聚苯乙烯塑料的循环升级领域取得重要进展。研究人员提出了一种全新的聚苯乙烯降解路径，通过甲醇原位分解释放低分压氢物种来降解聚苯乙烯，避免了直接氢解过程中较高氢分压引起的聚苯乙烯苯环侧链过度加氢，同时相较于热解过程，甲醇的引入又可以抑制聚苯乙烯主链的自成环脱氢，从而避免了联苯和稠环等副产物的生成，实现了高效聚苯乙烯解聚制备烷基苯。相关成果以“Recycling valuable alkylbenzenes from polystyrene through methanol-assisted depolymerization”为题发表于《德国应用化学》。

研究人员通过构建二氧化硅负载的钌-二氧化硅催化剂用于甲醇原位产氢辅助聚苯乙烯降解高效制备烷基苯。在280摄氏度下经过6小时的反应后，液相产物的质量收率达到93.2%。其中，主要产物为单环芳烃和二苯代烷等高价值的烷基苯，选择性达到84.3%。通过热解方式降解聚苯乙烯，面临反应速率慢以及催化剂积碳的问题。同时，聚苯乙烯主链脱氢芳构生成的稠环和联苯类物质，限制了苯环的回收率。然而，聚苯乙烯氢解又面临着苯环的过度加氢问题。研究人员通过理论分析发现，以甲醇作为氢载体辅助聚苯乙烯降解相比于热解的热力学更优。同时，甲醇原位分解产生的氢物种能抑制聚苯乙烯主链的芳构化，进而避免积碳的生成。相比于氢解，甲醇原位分解产生的低氢分压能抑制苯环的过度加氢化，从而提高烷基苯产物的选择性。实验结果表明，引入甲醇后液相产物的质量收率显著提升，聚苯乙烯热解为49.6%，聚苯乙烯氢解为41.6%，而甲醇辅助聚苯乙烯降解达到93.2%。同时，单环芳烃和二苯代烷的选择性也有所提高，聚苯乙烯热解为74.7%，聚苯乙烯氢解为51.4%，而甲醇辅助聚苯乙烯降解达到了84.3%。

这项工作评估了钌-二氧化硅催化剂用于商用废弃聚苯乙烯降解的催化性能，包括试管、量杯、瓶子和泡沫塑料等。将上述样品剪成厘米大小的碎片，在280摄氏度下经过6小时的催化测试，各种商用废弃聚苯乙烯都几乎完全降解。其中，降解试管、量杯、瓶子和泡沫塑料后的液相产物质量收率分别达到93.5%、95.6%、97.6%和97.9%，这证明了钌-二氧化硅催化的甲醇辅助聚苯乙烯降解策略用于商用废弃塑料回收的普适性。

### 中国科大阴离子交换膜电解水制氢技术取得新进展

近日，中国科大高敏锐教授课题组报道了一种以氮介导的二维氧化钴催化剂，同时展现出优异的析氧活性与稳定性。通过氮的引入，一方面触发了晶格氧氧化机理，另一方面又构建了非键态氧( $O_{NB}$ )作为电子供体，避免了电子从“钴-氧”键序中移除，保证了催化剂的稳定性，相关成果以“Nitrogen-Mediated Promotion of Cobalt-Based Oxygen Evolution Catalyst for Practical Anion-Exchange Membrane Electrolysis”为题发表于《美国化学会杂志》。

低温电解水作为一种可持续的绿色制氢技术受到广泛关注。在众多电解水技术中，阴离子交换膜水电解在制的氢气纯度、电流密度、冷启动时间等方面具有优势，且可以不使用贵金属催化剂和槽体。当前，过渡金属及其氧化物在碱性电解质中展现较好的析氧催化活性。然而，在大电流密度下，这类催化剂的稳定性能面临较大挑战。

在传统的吸附演化机理中，电子从填充的下哈伯德带(LHB)给出。而将氧带推向费米能级，能触发晶格氧机制，此时氧作为氧化还原中心，电子从“金属-氧”键带给出，从而导致“金属-氧”键顺序降低，致使结构不稳定。该工作创新性地构建 $O_{NB}$ 态，取代“金属-氧”的成键带作为电子供体，使得其键序得以保持，保证结构稳定性。同时，小电负性的氮取代氧位点，可以将LHB降低到“金属-氧”键带以下，触发晶格氧路径。

研究人员利用同位素标记的微分电化学质谱、扩展X射线吸收精细结构和原位衰减全反射表面增强红外吸收光谱等谱学技术，对晶格氧参与析氧反应过程进行原位检测，证实了低电负性氮的引入增加了氧化钴材料中“钴-氧”键的共价性，触发了LOM路径。该结构改变同时释放了非键态氧作为电子供体，不影响“钴-氧”的键序，限制了钴元素的溶解，增强了催化剂的稳定性能。

在实际的碱性膜电解槽中，该设计的催化剂作为膜电极组件的阳极催化剂，电解槽在 $1\text{Acm}^{-2}$ 电流密度为1.78V，并稳定地运行300小时以上。电解槽在 $1\text{Acm}^{-2}$ 的电流密度运行1.75小时后，共产生2.925升氢气，对应的电耗为47.8度电每公斤氢气。

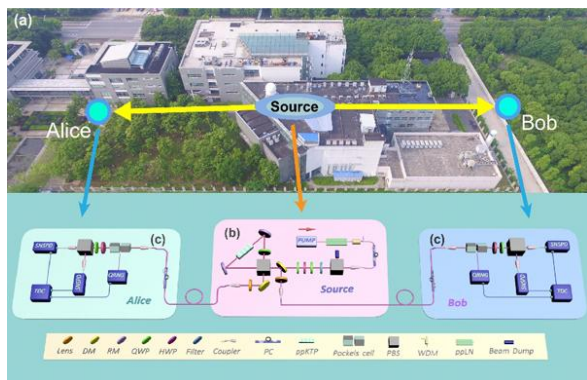
## 研究进展

中国科大首次实现无漏洞  
Hardy佯谬检验

中国科大潘建伟、张强、陈凯等组成的研究团队与南开大学陈景灵等合作，通过发展高效率和高保真的光学量子纠缠态制备与测量系统，成功实现了关闭探测效率漏洞与局域性漏洞的Hardy非定域性演示。该研究为量子力学非定域性提供了新的证据，并为相关的量子信息应用奠定了基础。相关研究成果以“编辑推荐(editor's suggestion)”的形式发表于国际学术期刊《物理评论快报》。

研究团队在理论上进一步发展了Hardy约束的Eberhard不等式，该不等式允许在探测效率漏洞被关闭且存在噪声的情况下进行Hardy佯谬检验。实验上，研究团队通过优化空间光路的参数，产生了可预报探测效率为82%、保真度为99.1%的纠缠光子对，成功关闭了探测效率漏洞。此外，研究团队通过精心设计的时空配置，确保了纠缠光子对的产生和观测者的测量选择，测量事件和观测者的测量选择均处于类空间隔，从而关闭了局域性漏洞，首次实现了无漏洞的Hardy佯谬检验。

该研究不仅对量子物理基础研究具有重要意义，而且对量子密钥分发、量子随机数认证等量子信息技术的发展具有重要影响。审稿人高度评价了这项工作，认为“实验结果以及检验局域实在性的量化证据令人印象深刻(The experimental results, along with the quantified evidence against local realism, are impressive)”，并以“编辑推荐”方式发表。



图注：无漏洞Hardy佯谬检验实验装置图



## 国家研究中心简讯

## ◆合肥微尺度物质科学国家研究中心举办党纪学习教育专题党课报告会

为深入学习贯彻习近平总书记关于党纪学习教育的重要讲话和重要指示精神，推动党纪学习教育走深走实，7月24日，合肥微尺度物质科学国家研究中心党委在东区理化大楼东三报告厅，以理论学习中心组学习会形式，举办党纪学习教育专题党课报告会。国家研究中心党政班子成员、党委委员及全体党员参加会议。



## ◆合肥微尺度物质科学国家研究中心召开师德师风警示教育大会

7月24日，合肥微尺度物质科学国家研究中心在理化大楼东三报告厅召开全体教职工大会。会议由国家研究中心党委书记叶树集主持。国家研究中心党委副书记兼纪检委员孙梅作了2024年度师德师风警示教育报告。叶树集强调，希望全体教职工不断提升政治站位、恪守职业道德、规范自身行为，自觉传承科大精神谱系，以学生发展为本，更好地开展人才培养和科学研究工作。

