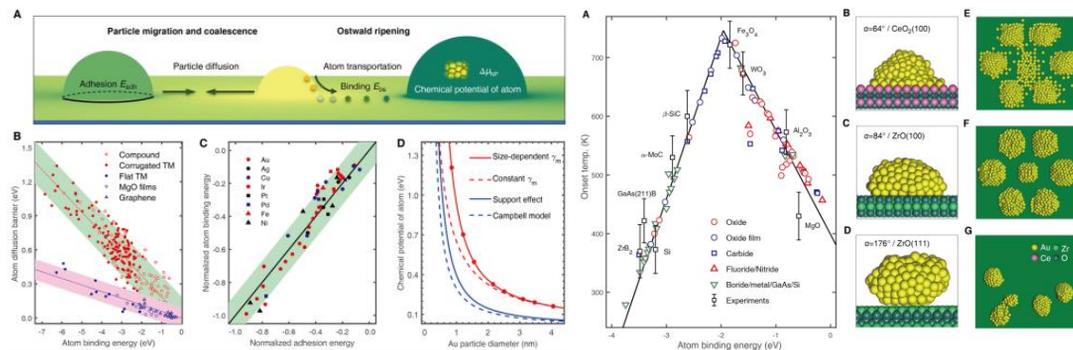


中国科大提出纳米催化剂抗烧结的稳定性理论



左图：烧结机理和标度关系。右图：抗烧结性Sabatier原理的实验和理论证明。

近日，中国科学技术大学李微雪教授所领导的理论与计算催化团队经过八年攻关，提出并建立了界面作用调控纳米催化剂生长动力学理论和双功能载体高通量筛选策略，为理性设计和筛选稳定的抗烧结纳米催化剂提供了参考。研究成果发表于《科学》(Science)上。

李微雪教授和团队成员胡素磊博士使用以人工智能和大数据分析为代表的驱动科学发现研究范式，积极探索控制纳米材料生长的基本原理，以热诱导和化学诱导纳米催化剂生长动力学为着眼点，揭示了金属与载体界面作用的线性标度关系和相应的描述符，建立了界面作用控制纳米催化剂生长动力学和抗烧结性的理论方法。该理论被基于第一性原理神经网络势函数大规模分子动力学模拟和大量已发表实验数据证实。在此基础上，进一步提出了利用双功能载体打破标度关系限制的高通量筛选策略，为改进纳米催化剂的抗烧结稳定性提供了理论研究方法。

具体来说，该团队在数据驱动分析1252组金属催化剂与载体界面作用能的基础上，揭示了金属原子与载体表面上吸附能分别与金属原子扩散能垒、金属纳米粒子粘附能之间的线性标度关系，确定了金属与载体相互作用的描述符，建立了考虑界面作用和尺寸效应的金属纳米粒子化学势的准确计算方法，为大规模计算研究纳米催化剂生长动力学奠定了基础。

该团队结合研究了323种单组分载体负载的纳米催化剂生长速率和金属与载体界面作用强度之间的关系，揭示存在有一般性的火山型依赖关系，由此提出了界面作用调控纳米催化剂抗烧结的Sabatier作用原理：界面作用既不能太强，否则会导致以熟化的方式失活；也不能太弱，否则会导致以粒子迁移碰撞的机制失活。在单组分载体上，由于界面作用标度关系的限制，仅当界面作用强度取值适中时，纳米催化剂稳定性达到最优，其耐烧结温度为金属熔点一半，即长期以来经验发现的所谓塔曼温度。

该团队以纳米金Au催化剂为例，检索收集了大量已发表的实验数据，实验结果与理论预测高度一致。另外还展开了基于第一性原理神经网络势函数的大规模分子动力学模拟，从微观理论模拟上直接证明了界面作用调控纳米催化剂抗烧结性的调控原理，进一步确认了该作用原理的正确性。在对贵金属Pt, Rh研究中，已发表的实验也很好验证了理论的正确性。

对于高温催化反应和小尺寸纳米催化剂，稳定性问题变得更为严峻，单组分载体无法满足相应的要求。该团队提出将强和弱两种不同界面相互作用强度的载体组合起来分别抑制纳米粒子迁移碰撞和熟化两个过程，从而打破了金属与载体界面作用标度关系和火山图的限制。以纳米金催化剂为例，高通量筛选了6724种双功能载体，预测了大量双功能载体使该催化剂耐烧结温度远超其塔曼温度。这一研究策略为利用双功能载体稳定纳米催化剂的提供了可能。由于双功能载体与纳米催化剂之间存在有大量丰富、多样的界面活性位点，这也有助于同时优化催化剂活性和选择性。



研究进展

中国科大在量子精密测量和暗物质探测领域同时取得重大进展

中国科大中科院微观磁共振重点实验室彭新华研究组和德国亥姆霍兹研究所的Dmitry Budker教授组合作，开发出一种新型的超灵敏量子精密测量技术，利用该新技术进一步开展了暗物质的实验直接搜寻，实验结果比先前的国际最好水平提升至少5个数量级，并首次突破国际公认最强的宇宙天文学界限。相关研究成果以“Search for axion-like dark matter with spin-based amplifiers”为题在线发表于国际知名学术期刊《Nature Physics》上。

彭新华研究组利用气态氦和铷原子混合蒸气室，发明了具有超高灵敏度和“桌面式”的新型核自旋量子测量技术，实现了迄今为止国际最佳灵敏度的核自旋磁传感器。该工作报道了一种全新的自旋放大效应：当外界待测磁场的频率接近氦原子的塞曼频率，待测磁场的强度可以被氦原子显著放大至少100倍。这种新的放大机制完全不同于以往的机制，具有多方面的突出优势：首先该技术利用激光先极化铷原子蒸气，再利用铷与气态氦原子的自旋交换碰撞，从而将氦原子的核自旋极化。相比传统热极化方法（氦核自旋极化度仅仅为 $\sim 10^{-6}$ ），本研究利用光极化的方法获得了接近0.3的自旋极化度，远超过传统方法。其次，传统方法采用对氦原子进行外部探测，而本研究通过铷原子与氦原子的随机自旋交换碰撞，就可以将氦原子的信号高灵敏读出，极大的简化了装置体积和复杂度。基于该物理机制，研究人员设计出了第一台磁场量子放大器，并命名为“spin-based amplifier”（“自旋放大器”），该放大器具有超低磁场本底噪声，是极佳的磁场放大设备。进一步，研究人员将这台自旋放大器与团队已发展的原子磁力计相结合，将原子磁力计的磁探测灵敏度提高了100倍，达到fT灵敏度水平（ $1\text{fT}=10^{-15}\text{T}$ ）。

三位审稿人均高度评价该工作“I think the result is of great interest for the larger physics community”（这个结果将引起物理学家的广泛兴趣）“This is a significant advance for the field”（轴子搜寻领域的重要进展）“the result is original and will be of interest for physics community working in axion detection and astrophysical observations.”（该原创作品将激发轴子搜寻和天文观测领域的广泛兴趣）。这一成果充分展示了量子精密测量技术与暗物质探测的交叉融合，有望激发宇宙天文学、粒子物理学和原子分子物理学等多个基础科学的广泛兴趣。

中国科大研制用于太空防护的仿生纳米复合膜取得重要进展

近日，中国科大俞书宏院士团队研发了一种新型的针对太空防护应用的聚酰亚胺-纳米云母复合膜材料，该材料采用了独特的仿生设计，使其力学性能和空间极端环境耐受性均得到了显著提升。研究人员受天然珍珠母的“砖-泥”层状结构启发，巧妙地设计构筑了具有双层类珍珠层结构的聚酰亚胺-云母纳米复合膜，使其顶层分布有更致密的云母纳米片，借助云母的本征属性和最为构筑单元的优点，在实现材料力学性能有效提升的同时，使其顶层对原子氧、紫外辐射和空间碎片等抵抗能力也得到了明显提升。该研究成果以“Double-Layer Nacre-Inspired Polyimide-Mica Nanocomposite Films with Excellent Mechanical Stability for LEO Environmental Conditions”为题发表在国际期刊Advanced Materials上。

研究人员利用他们前期开发的具有优异力学性能和紫外屏蔽功能且可宏量制备的云母纳米片（Nat. Commun. 2018, 9, 2974）作为构筑基元，与聚酰亚胺前驱体共组装得到聚酰亚胺-云母纳米复合膜，利用云母的优越本征特性来弥补聚酰亚胺的不足。研究人员通过改变组分配比，借助喷涂与热固化联用法构筑了具有双层类珍珠层结构的聚酰亚胺-云母纳米复合膜，使其顶层具有更致密的云母纳米片。这种设计策略不仅实现了材料力学性能的有效提升，而且使其上表面对原子氧、紫外辐射和空间碎片等具有更高的抵抗性能。

研究表明，这种新型仿生复合膜的拉伸强度、杨氏模量和表面硬度分别为125 MPa、2.2 GPa和0.37 GPa，比纯聚酰亚胺膜分别高出45%、100%和68%。由于独特的双层类珍珠母结构以及云母纳米片的固有性能优势，所得双层聚酰亚胺-云母复合膜表现出更优越的原子氧耐受性（侵蚀率 $\approx 0.17 \times 10^{-24} \text{ cm}^{-3} \text{ atoms}^{-1}$ ），明显优于纯聚酰亚胺薄膜、单层类珍珠母结构的聚酰亚胺-云母复合膜和以往报道的聚酰亚胺基复合材料。此外，其抗紫外线老化性（313 nm）和高温稳定性（380°C）相比纯PI膜也得到了明显提升。

这种具有双层类珍珠母结构的聚酰亚胺-云母纳米复合膜有望取代现有的聚酰亚胺基复合膜材料，作为一种有效的新型航天器外层防护材料，从而用于低轨道环境。该项研究提出的独特双层仿珍珠母结构设计策略也为设计构筑其他高性能纳米复合材料提供了新思路。

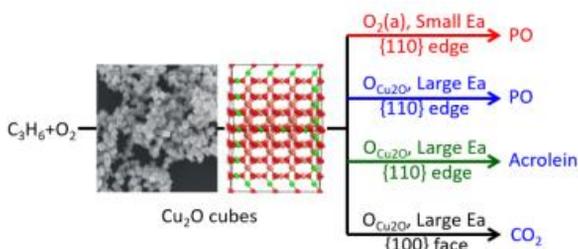


研究进展

中国科大研制了丙烯空气环氧化制环氧丙烷高选择性催化剂

近日,中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心/化学与材料科学学院黄伟新教授和武汉大学顾向奎研究员合作研究,发现小尺寸 Cu_2O 立方体纳米晶在丙烯空气环氧化制环氧丙烷反应中表现出高选择性,并明确了其 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 边位是催化活性位和理解了催化反应机理。研究成果以“Fine cubic Cu_2O nanocrystals as highly selective catalyst for propylene epoxidation with molecular oxygen”为题发表在*Nat. Commun.* **2021**, 12, 5921。

环氧丙烷(PO)是一种高价值化工中间体。丙烯与 O_2 环氧化反应是最经济和绿色的PO生产途径,但由于缺乏高效催化剂,该反应也是最具挑战性的催化反应之一。铜基催化剂被广泛研究作为丙烯空气环氧化反应催化剂,但报道的PO选择性并不令人满意。在前期研究中,中国科学技术大学黄伟新教授团队发现 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 晶面是催化丙烯空气环氧化反应的活性晶面(*Angew. Chem. Int. Ed.* **2014**, 53, 4856),并观察到小尺寸 Cu_2O 立方体纳米晶具有高密度 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 边位,在CO氧化反应中起主要催化作用(*Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, 58, 4276)。基于上述基础理解,黄伟新教授团队在本工作中设计了平均尺寸为27 nm的 Cu_2O 立方体纳米晶用于丙烯空气环氧化反应,获得了80%以上的PO选择性,并证实了其 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 边位为生成PO的活性位点。与此同时,发现了温度依赖的催化反应机理,在低反应温度下,主要发生 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 边位催化的弱吸附 O_2 物种为活性氧物种的低能垒Langmuir-Hinshelwood (LH)反应选择性生成PO,但弱吸附 O_2 物种在高反应温度不稳定,则同时发生 $\text{Cu}_2\text{O}\{110\}$ 边位和 $\text{Cu}_2\text{O}\{100\}$ 面位催化的表面晶格氧为活性氧物种的高能垒Mars-van Krevelen (MvK)反应分别生成PO、丙烯醛和 CO_2 。该研究结果为丙烯空气环氧化高效催化剂的研制提供了新思路。



中国科大研制一种基于光学薄膜的平面型显微成像元件

近日,中国科大物理学院光电子科学与技术安徽省重点实验室/合肥微尺度物质科学国家研究中心张斗国教授研究组提出并实现了一种基于光学薄膜的平面型显微成像元件,用作被测样本的载波片,可在常规的明场光学显微镜上实现暗场显微成像和全内反射成像,而获取高对比度的光学显微图像。研究成果以“Planar photonic chips with tailored angular transmission for high-contrast-imaging devices”为题发表在综合性学术期刊*Nature Communications*。

光学显微镜是利用光学原理,把人眼不能分辨的微小物体放大成像,进而拓宽人类观察物质结构的空间尺度范围。明视场显微镜和暗视场显微镜都需要复杂的光学元件,如暗场显微镜需要一个特殊的聚光镜来实现照明光以大角度入射到样品;全内反射显微镜需要高折射率棱镜或高数值孔径显微物镜来产生光学表面波;这些元件体积较大,不易集成;同时成像效果严格依赖于光路的精确调节,增加了其操作复杂度。本论文提出的基于光学薄膜的平面型显微成像元件可有效弥补这些不足。该元件结构主要包含三部分:中间部分是掺杂有高折射率散射纳米颗粒的聚合物薄膜,利用纳米颗粒的无序散射来拓展入射光束的传播角度范围;上部和下部是由高低折射率介质周期性排布形成的光学薄膜,利用其来调控出射光束的角度范围。通过光子带隙设计,下部光学薄膜只允许垂直入射的光束透过,其他角度光束的都被抑制;上部光学薄膜在750 nm波长入射下,只有大角度的光束才能透射;在640 nm波长下任何角度的光都不能透射,只能产生全内反射。

因此,在正入射下,经过该光学薄膜器件的光束出射角度要么是大于一定的角度(对应750 nm波长),要么是在薄膜表面产生光学表面波(对应640 nm波长)。利用一块光学薄膜器件,在常规的明场显微镜上,可同时实现暗场显微成像与全内反射成像。成像效果相对于明场光学显微镜像,其成像对比度有大幅度的提升。该方法不仅适用于空气中的样品,也适用于液体环境中生物活细胞的成像。

进一步实验结果表明,该方法不仅可以实现介质薄膜上的表面波,也可用于激发目前引起广泛兴趣的金属薄膜表面等离激元,利用其作为照明光源,实现了一种新的表面等离激元共振显微镜架构,相对于目前广泛使用的基于油浸物镜的表面等离激元共振显微镜,基于光学薄膜器件的表面等离激元显微镜结构简单,成本低、操作便利,易于集成。