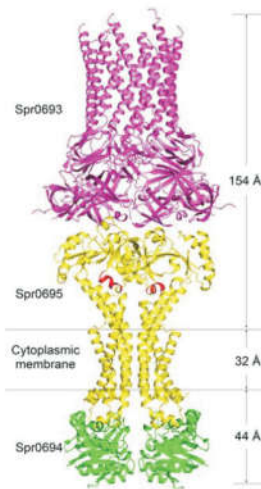




中国科大发现一种新型革兰氏阳性菌药物外排泵

中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家研究中心和生命科学学院周从照教授、陈宇星教授课题组解析了肺炎链球菌中一种新型ABC转运蛋白(Spr0693和Spr0694-0695)的原子分辨率结构,揭示了革兰氏阳性菌抗药的一种新机制。该研究成果以“Structure of a MacAB-like efflux pump from *Streptococcus pneumoniae*”为题于2018年1月15日发表在《自然·通讯》(Nature Communications)上。

课题组利用X-射线晶体学手段解析了肺炎链球菌中ABC转运蛋白Spr0694-0695和Spr0693的三维结构,是第一个革兰氏阳性菌中MacAB-like的药物外排泵。Spr0694-0695位于细胞膜上,不同于经典的ABC转运蛋白,它具有8次跨膜螺旋以及一个较大的胞外结构域;而Spr0693六聚体形成纳米管状结构,连接Spr0695与细胞壁。整合结构生物学、生物化学和微生物遗传学实验方法,鉴定了一条从Spr0695到Spr0693的底物转运通道,而且发现Spr0695的跨膜区与胞外区之间的一个 α 螺旋控制了该通道的开关,转运过程所需能量由Spr0694水解ATP提供。该工作不仅发现了一类全新的革兰氏阳性菌ABC转运蛋白的组织形式,而且阐明了药物外排分子机理,为抗生素的设计和改造提供了结构基础。



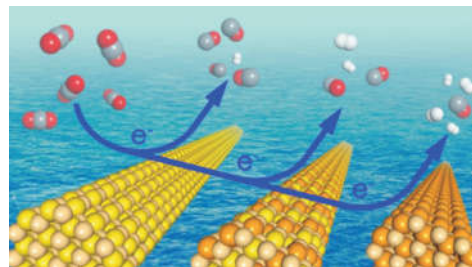
将含能电子关起来:中国科大提出首个自适应开关的有机分子太阳能电池设计

最近,合肥微尺度物质科学国家研究中心罗毅教授领导的研究小组江俊教授利用第一性原理计算,提出了首个自适应开关的有机分子太阳能电池设计,该方案具有低成本、高效、自适应的优点。相关成果以“Self-adaptive switch enabling complete charge separation in molecular-based optoelectronic conversion”为题,发表在《物理化学快报》(Journal of Physical Chemistry Letters)。

江俊课题组长期深耕于光电功能分子和光催化体系设计与模拟领域,聚焦于电子运动这一关键主线,基于第一性原理模拟进行结构设计以调控电子被激发后演化行为(Nature Commun. 2017, 8:16049; J. Phys. Chem. Lett. 2016, 7:1750)。在这次的单分子有机太阳能电池中,光开关分子偶氮苯被插入到一个典型的给体-受体体系(三联吡啶铂配合物)中,组成一个给体-光开关-受体体系。第一性原理计算表明,该分子具有平面共轭构型,可以吸收可见光,产生的受激电子会从偶氮苯和给体迅速转移到能级更低的受体上;而失去电子的偶氮苯分子顺反异构势垒会降低,从而自发发生从反式到顺式的构型转换(时间尺度为皮秒-纳秒量级);分子构型转变导致体系的共轭结构被破坏,导电性也大大降低,受体上的含能受激电子无法回到偶氮苯和给体,于是电子和空穴分别被储存在受体和给体上,实现了高效的电荷分离(激发态寿命为微秒量级);当受激电子被消耗(流入电极)之后,分子回到基态,此时的偶氮苯仍处于顺式构型,由于偶氮苯自身的特性,顺式分子能够吸收可见光转换回到反式构型,并开始新一轮循环。

这一研究体系通过巧妙的设计抑制了有机太阳能电池中的电荷复合过程,实现了高效的电荷分离和分子导电性的自动切换,是首个自适应开关的有机分子太阳能电池设计。文中所报道的给体-光开关-受体体系不仅仅局限于偶氮苯和三联吡啶铂配合物分子,其他光开关分子和给体-受体体系也可以用于这一复合体系中。这一设计采用有机小分子作为材料,解决了有机太阳能电池中容易发生电荷复合和导电性无法切换的问题,为低成本、易合成的有机分子体系大规模用于太阳能电池、光催化等领域打开了大门。

二氧化碳电还原产合成气的催化剂研制取得重要进展



硫硒化镉合金纳米棒电还原二氧化碳产合成气示意图

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和化学与材料科学学院曾杰教授课题组利用组分可调的硫硒化镉合金纳米棒作为催化剂,高效电还原二氧化碳为合成气。这种硫硒化镉合金纳米棒的催化剂,在二氧化碳电还原反应中表现出高活性和高稳定性,并且能够在很宽的范围内调控合成气的组成比例。该成果以“Achieving the widest range of syngas proportions at high current density over cadmium sulphoselenide nanorods in CO₂ electroreduction”为题,1月9日发表在《先进材料》杂志上(Adv. Mater. 2018, doi:10.1002/adma.201705872)。

研究人员利用液相合成技术,近期设计并合成出组分可调的硫硒化镉合金纳米棒催化剂。研究人员发现,该催化剂中的硒含量越高,反应中氢的中间体越多,合成气(产物中氢气)组分比例也越高。研究表明,在过电位-1.2 V时,产物合成气中的一氧化碳和氢气之比可以在4:1和1:4之间自由调整。同时,不管是何种组成比例的合成气,其电流密度均超过25 mA/cm²。另外,在连续使用该催化剂10个小时的稳定性测试中,电流密度基本保持稳定,产物合成气的组成比例也基本没有变化。

中国科大在碳基材料电催化析氢研究方面取得新进展

近年来电解水制氢受到学术界广泛关注,寻找廉价高效的非铂电催化剂成为时下研究热点。作为当下“明星材料”的石墨烯具有导电性好、耐腐蚀等优点,近年来科研人员致力将其开发为高活性酸性析氢电催化剂,然而很多碳基催化剂的活性与贵金属相比还有很大的差距。如何将石墨烯碳基材料开发成高活性电催化剂是一个热点课题。

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和化学与材料科学学院材料系陈乾旺教授课题组以贵金属铈掺杂的金属有机框架材料作为前驱体,一步煅烧制备了氮掺杂的类石墨烯层包裹铈合金核壳结构材料,在酸性电解质析氢反应中表现出高活性和高稳定性。该研究成果1月12日发表在《先进材料》杂志上(Advanced Materials 2018, doi: 10.1002/adma.201705324)。

铈合金可向表面活性位点转移电子,铈合金表面覆盖的氮掺杂的石墨烯层类似于“铠甲”,有利于防止合金内核被酸腐蚀。作为酸性析氢电催化剂(其中铈的含量仅为1.56 wt%),其塔菲尔斜率仅为23 mV/dec,达到10 mA/cm²电流密度时过电位仅为24 mV,显示出与商用的20% Pt/C电催化剂可比的电催化析氢性能。密度泛函理论模拟计算发现,氮掺杂原子近邻的碳原子是电催化反应的活性位点,铈的引入促进了电子向类石墨烯层表面迁移,降低了活性位点的氢吸附自由能。材料的表面结构表征和元素成分成像分析等,揭示了氮元素掺杂量的增加以及铈元素在合金内核表面的富集有利于催化剂性能的提升。该工作为今后寻找更为廉价、高效的电催化析氢催化剂提供了一种新思路。