

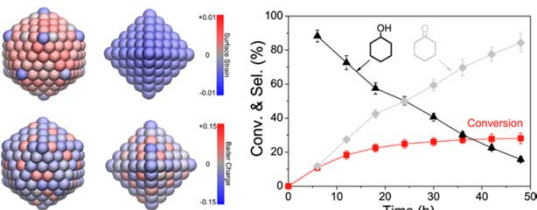
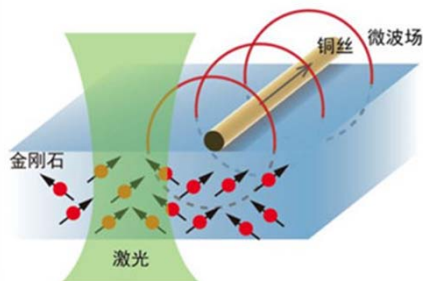
研究进展

李晶金属纳米晶催化作用机制研究
取得重要进展

近日,中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室和化学与材料科学学院的曾杰教授课题组与李震宇教授合作,在李晶金属纳米晶催化作用机制研制方面取得重要进展。研究人员成功制备了 $Au_{75}Pd_{25}$ 二十面体和八面体,尽管两种合金暴露同一种晶面,但是具备李晶结构的 $Au_{75}Pd_{25}$ 二十面体在环己烷氧化反应中催化活性和选择性明显高于单晶结构的八面体。通过深入的理论计算,研究人员发现李晶合金的突出表现源于李晶结构引发的表面应变能的增强和活性金属表面阴离子浓度的提高。该成果发表在《纳米快报》杂志上[Nano Lett. 2015, 15, 2875-2880]。

应用于环己烷氧化反应的催化剂在催化性能提升上存在着不小的瓶颈,表现在增强分子氧作为氧化剂的活性和提高针对目标产物环己酮的选择性。李晶合金纳米晶由于其独特的李晶结构和合金的协同效应,在催化环己烷氧化反应中有着不俗表现。然而,李晶结构在催化反应中的反应机理还缺乏深入的探索。

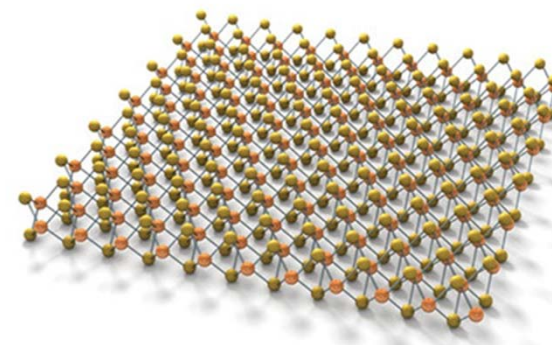
为此,曾杰教授课题组基于氧化刻蚀理论,通过调节加入碘离子的量分别合成 $Au_{75}Pd_{25}$ 二十面体和八面体。这两种合金纳米晶暴露出同一种晶面,二十面体具备李晶结构,而八面体为单晶。因此,它们适合研究李晶和单晶在催化反应中的不同表现以及反应机理。在环己烷氧化反应中,二十面体的瞬时收率(turnover frequency,缩写为TOF)达到 $15106 h^{-1}$,是八面体的三倍,同时二十面体对环己酮的选择性高达84.3%。为了解释这一现象,我们结合了第一性原理计算和光谱技术。研究表明,二十面体中的李晶结构导致晶体表面膨胀,并且在表面积累了高浓度的负电荷,两者共同促进了二十面体催化活性的提升。该项研究成果为将李晶结构应用于分子氧氧化反应提供了新的实验基础和理论依据。

量子精密测量技术实现对微波场
纳米级分辨率的重构

中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室杜江峰教授研究团队在量子精密测量领域取得突破,利用金刚石中的固态电子自旋,在世界上首次实现了室温大气下纳米级分辨率的微波场磁场分量矢量重构测量。该工作发表在国际重要学术期刊《自然·通讯》杂志上。

研究团队巧妙地利用钻石中的氮-空位点缺陷中的电子自旋(简称“钻石探针”)作为量子传感器,实现了对近场微波磁场矢量的重构测量。钻石探针是一种含氮的晶体缺陷,普遍存在于金刚石单晶中,缺陷中有两个未成对的电子,组成一个自旋为1的量子体系。在微波磁场的驱动下,电子自旋可以在两个量子状态之间振荡,称为拉比振荡。拉比振荡频率与微波磁场的强度和矢量方向有关。研究团队通过测量电子自旋的拉比振荡频率,并结合金刚石的单晶特性,巧妙地完成了对2.6000GHz线性极化微波磁场的测量和矢量重构,空间分辨率达到了光学衍射极限(约230纳米),通过最大似然估计方法处理实验数据得到了5.6毫弧度的矢量角度精度和百万分之一特斯拉的矢量幅度精度。该空间分辨率已经超越了冷原子和热原子蒸气方法,微波磁场探测手段进入到纳米级尺度。

该实验为室温大气下高精度的微波近场测量方法提供了一个新的实验手段。随着相关技术的进步,测量结果的精度和空间分辨率仍然有进一步提高的空间,再结合扫描探针显微技术、强磁场技术,该方法将可以对频率范围从微波直到太赫兹波段、分辨率低至原子尺度的微波磁场进行成像,为解决太赫兹波段缺乏成像手段的现状提供新的思路。审稿人也指出:“这一技术可以使用于太赫兹近场成像,将会是一个重要的应用点”,“毫无疑问是一个非常有价值的方法”。

固态微纳结构量子调控取得重要突破:中国科大发现基于
单原子层的新型单光子源

中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室潘建伟、陆朝阳等与华盛顿大学许晓栋、香港大学姚望合作,在国际上首次在类石墨单原子层半导体材料中发现非经典单光子发射,连接了量子光学和二维材料这两个重要领域,打开了一条通往新型光量子器件的道路。该工作于北京时间5月5日在线发表在《自然》杂志子刊《自然·纳米技术》上。同期的“新闻视角”(News & Views)栏目撰文评论该工作“开辟了一个新的研究领域”。

自从2004年曼彻斯特大学的Geim和Novoselov成功制备石墨烯(即单原子层碳)以来,其美妙的物理内涵和优异的性质引发了对基础和应用研究的热潮。然而石墨烯的电子结构中不具备能隙,限制了其在光电器件方面的应用。最近,一类新型的有直接带隙的类石墨材料:单原子层过渡金属硫化物(如 MoS_2 , WSe_2 等),由于其独特的光电性质受到广泛的关注。然而,此前国际上所有的关于单原子层二维材料的研究都集中于经典光学领域,还未在实验上观察到如光子反聚束等量子光学现象。

潘建伟、陆朝阳等领导的团队在国际上首次实验发现, WSe_2 二维单原子层中的原子缺陷能够束缚激子而成为非经典的单光子发射器,验证其二阶关联函数约为0.14。单光子具有极窄的谱线线宽约100微电子伏特,比 WSe_2 二维单原子层非定域的谷激子的线宽小两个数量级。通过磁光测量发现缺陷中激子具有异常大的朗德g因子,大约为8.7,远大于单原子层谷激子和InAs量子点。和其他的单光子系统相比,这种基于单原子层的单光子器件不仅利于光子的读取和控制,并且可方便地制备和实现与其他的光电器件平台结合,例如微纳结构谐振腔,实现高效光量子信息处理线路。理论表明,通过电场控制,还可能实现对单电子自旋-谷耦合自由度的量子调控,在未来可应用于可容错量子计算的研究。

由于基于单原子层的量子调控的潜在前景和新颖物理意义,该领域很快已经成为国际激烈竞争的焦点。同时在《自然·纳米技术》在线发表的还有稍晚于中国团队投稿的三个欧美独立研究团队的类似研究成果,分别来自瑞士苏黎世联邦理工学院、法国强磁场国家实验室和美国罗切斯特大学。