

Chinese Abstracts (中文摘要)

多学科应用可大范围搜索的紧凑型扫描隧道显微镜 523

孟文杰^a, 王琦^c, 张晶^a, 侯玉斌^a, 陆轻轴^{a,b,d*} (a. 中国科学技术大学, 中国科学院强磁场科学中心, 合肥 230026; b. 中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室(筹), 合肥 230026; c. 中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900; d. 南京大学人工微结构科学与技术协同创新中心, 南京 210093)

摘要: 本文展示了结构紧凑(高度为66 mm, 直径为25 mm)扫描隧道显微镜, 配备了一套拥有原子级分辨精度的三维压电马达. 其中Z方向定位依靠的是自行发明的由轴向切割的压电扫描管驱动的摩擦型步进器. X-Y方向(即样品面方向)的移动是将Z向步进器作为一个惯性滑块垂直嵌入压电扫描管内同时一端平放在压电扫描管的顶部. 其设计具有在极端条件下(低温、强磁场等)从宏观尺度样品区域(平方毫米级别)搜索微观靶向(缺陷位、掺杂位、边界及纳米器件等)的能力. 在室温大气下对高定向热解石墨进行测量, 得到了高分辨率的原子图像.
关键词: 扫描隧道显微镜, 大范围搜索, 空气中扫描隧道显微, 电学扫描隧道显微镜

氮原子在800 nm附近的同位素位移 527

白皎, 汪海玲*, 倪雪, 邓伦华* (华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

摘要: 利用浓度调制的光谱技术, 测量了¹⁴N和¹⁵N原子在800 nm附近的多普勒受限吸收光谱, 用于研究¹⁴N和¹⁵N原子的同位素位移. 在放电管中, 通过对氮气和其载气氮气的混合气体放电产生氮原子. 测量了氮原子的四个跃迁($3s^4P_J \rightarrow 3p^4D^{\circ}_J$, $3s^4P_J \rightarrow 3p^4P^{\circ}_J$, $3s^2D_J \rightarrow 5p^2D^{\circ}_J$, 和 $3p^2P^{\circ}_J \rightarrow 5s^2P_J$)的同位素位移, 并观测和讨论了相应的特殊质量位移对J量子数的依赖关系.

关键词: 多普勒受限吸收光谱, 同位素位移, 特殊质量位移, J-依赖关系

1,2-环氧辛烷的同步辐射光电离解离研究 533

王洋洋^{a,b}, 刘亚伟^{a,b}, 康旭^{a,b}, 赵小利^{a,b}, 王林^{a,b}, 胡毅超^{a,b}, 刘付轶^c, 盛六四^c, 朱林繁^{a,b*} (a. 中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室(筹), 合肥 230026; b. 中国科学技术大学量子信息与量子科技前沿协同创新中心, 合肥 230026; c. 中国科学技术大学国家同步辐射实验室, 合肥 230029)

摘要: 利用同步辐射产生的真空紫外光和反射式飞行时间质谱仪, 在超声冷却条件下测量了1,2-环氧辛烷在光子能量9.8~16.6 eV能区的光电离解离过程, 获得了不同能量光子作用下的电离解离产物. 通过测量各离子的光电离效率曲线, 得到了主要碎片离子的出现势. 结合G3理论计算得到了母体离子、中性碎片及离子碎片的结构与能量, 通过对比实验测量值与理论值给出了1,2-环氧辛烷的光电离解离通道.
关键词: 1,2-环氧辛烷, 光电离解离, 出现势, 解离通道

Ca⁺-dipropylamine复合物的光解研究 539

陈西亚^{a,b}, 金兵^{b,c}, 程元^{b,c}, 王东升^{d*}, 杨世和^{e*} (a. 华中科技大学电气与电子工程学院, 武汉 430074; b. 中国科学院武汉物理与数学研究所, 波谱与原子分子物理国家重点实验室, 武汉 430071; c. 中国科学院大连化学物理研究所, 分子反应动力学国家重点实验室, 大连 116032; d. 中国科学院沈阳分院, 沈阳 110004; e. 香港科技大学化学系, 香港)

摘要: 研究了气相Ca⁺-dipropylamine复合物在400~690 nm波长范围内的光解过程. 在研究的光谱范围内, 蒸发解离得到非反应性产物Ca⁺是最主要的通道. 在450~528 nm范围内, 反应性产物Ca⁺-NHC₃H₇也被探测到. 这一反应性通道被认为是Ca⁺对二丙胺分子中的C-N键的插入活化作用引起的, 量化计算与实验现象一致.

关键词: 光解, Ca⁺, 二丙胺, B2-PLYP, TD-DFT

基于第一性原理的合金化掺杂MgH₂的热力学稳定性研究 545

万臻臻^a, 王仲民^{a,b*}, 王殿辉^a, 钟燕^{a,b}, 邓健秋^a, 周怀营^a, 胡朝浩^{a*} (a. 桂林电子科技大学材料科学与工程学院, 桂林 541004; b. 广西信息科技实验中心, 桂林 541004)

摘要: 基于密度泛函的第一性原理, 系统研究了合金化掺杂过渡金属(TM=Sc, Ti, Y)和IIIA族元素(M=Ca, Sr, Ba)对MgH₂(金红石和萤石结构)的热力学稳定性的影响. 结果表明, 在低掺杂量(<20%)时, MgH₂的萤石结构比金红石结构相对更稳定. 掺杂Ti, Sr, Ba时, MgH₂的结构发生了失稳现象. MgH₂由金红石结构转变到萤石结构的掺杂TM和M的比例分别大约在20%和40%左右. Mg_{0.5}Ba_{0.5}H₂萤石结构的形成焓比MgH₂萤石结构高约0.3 eV, 表明其放氢温度在标准大气压下将远低于纯MgH₂. 理论计算数据与实

验数据有很好的 consistency.

关键词: MgH₂, 第一性原理, 合金化, 失稳, 结构转变

纳米粒子在亚浓高分子溶液中的扩散: 多粒子碰撞动力学 549

李树贤, 江慧军, 侯中怀* (a. 中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026; b. 中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室(筹), 合肥 230026)

摘要: 采用混合型介观多粒子碰撞动力学方法研究浸没在亚浓高分子溶液中的纳米粒子的扩散问题. 集中于探究高分子浓度和高分子片段间的长程流体力学效应对纳米粒子扩散行为的影响. 通过大量的计算机仿真模拟, 发现纳米粒子扩散系数D随高分子浓度c变化满足Phillips公式 $D \sim \exp(-\alpha c^\delta)$, 其中标度指数 $\delta \approx 0.97$ 和实验文献中报道结果一致. 增加纳米粒子尺寸时, 标度之前因子 α 单调增加, 但标度指数 δ 基本保持固定. 研究了在没有流体力学相互作用时纳米粒子扩散行为, 发现纳米粒子的迁移速率减慢而标度指数也明显不同于实验发现, 表明流体力学效应在纳米粒子在亚浓高分子溶液中的扩散问题起到了非常重要的作用.

关键词: 纳米粒子, 高分子溶液, 多粒子碰撞动力学

CL20/BTF共晶高温热分解ReaxFF/Ig分子动力学模拟 557

杨镇, 何远航* (北京理工大学爆炸与科学国家重点实验室, 北京 100081)

摘要: 用ReaxFF/Ig反应力场模拟CL20/BTF共晶在2000~3000 K高温条件下的热分解过程, 获得了势能和物种数的演化、初始反应路径及热分解产物等详细信息. 通过指数函数对势能的演化曲线进行拟合得到反映特征时间等参数, 采用经典的Arrhenius反应速率方程描述总包反应, 获得CL20/BTF共晶的活化能 $E_a = 60.8$ kcal/mol. 研究得到CL20/BTF共晶热分解的初始路径, CL20分子中N-NO₂首先断裂, 在热分解起始阶段占主导作用. 在不同温度条件下, CL20分子均在BTF分子前完全分解. CL20/BTF共晶的主要产物为NO₂、NO、NO₃、HNO、N₂、H₂O、CO₂、O₂、N₂O、HONO等. 温度对产物均产生一定程度的影响.

关键词: ReaxFF/Ig, 分子动力学, CL20/BTF共晶, 反应机理, 高温热分解

多价态高分子链在受体平面上的超选择性吸附 564

黄浩智, 陈宇浩, 昱万程*, 罗开富* (中国科学技术大学高分子科学与工程系, 中科院软物质化学重点实验室, 合肥 230026)

摘要: 利用三维朗之万动力学模拟研究了多价态高分子链在受体平面上的吸附行为. 其在受体平面上的吸附具有超选择性, 随着高分子链上配体浓度的增大, 发生超选择性吸附时的平面受体浓度范围变窄; 而超选择性吸附最显著时的平面受体浓度, 即最佳平面受体浓度随着链上配体浓度的增大而减小. 对处于吸附态的多价态高分子链的构象性质进行了系统地研究, 发现链的平衡回转半径 R_g 及其水平分量 $R_{g,\parallel}$ 随着平面受体浓度的增大都存在极大值. 其平衡回转半径 R_g 与其链长N间的标度指数表明当平面受体浓度的增大时, 处于吸附态的链构象介于二维链构象和三维链构象之间; 随着平面受体浓度的进一步增大, 吸附在平面上的多价态高分子链发生轻微的塌缩.

关键词: 多价态高分子链, 朗之万动力学模拟, 超选择性吸附

亚纳米厚的氧化铝包裹层可以显著提高负载型金纳米颗粒催化剂的热稳定性 571

王春雷, 路军岭* (中国科学技术大学化学物理系, 合肥微尺度国家科学实验室, 能源材料化学协同创新中心, 中科院能量转换材料重点实验室, 合肥 230026)

摘要: 负载型金纳米颗粒催化剂在许多催化反应中展现出非常好的催化活性, 但是金纳米颗粒在高温等反应条件下容易烧结团聚, 极大地限制了金催化剂的应用. 利用原子层沉积技术在Au/TiO₂催化剂表面分别精确沉积了一层超薄的二氧化钛和氧化铝包裹层, 并对比研究了包裹层对金纳米颗粒的热稳定性影响. 原位红外漫反射CO吸附和 α -射线光电子能谱数据证实了氧化物包裹层的存在. 发现亚纳米厚的氧化铝包裹层能够在600 °C完全避免金纳米颗粒的团聚; 相反, 二氧化钛包裹层对金纳米颗粒稳定性的提高没有明显效果. 通过CO氧化探针反应的活性测试, 发现随着煅烧温度的升高氧化铝包裹的Au/TiO₂催化剂的活性逐渐提高, 表明高温处理可以促进被包裹金原子的暴露并表现出催化活性. 提供了提高金纳米颗粒稳定性的有效方法, 为拓展金催化剂在条件苛刻的反应中的应用奠定了技术基础.

关键词: Au/TiO₂, 烧结, 原子层沉积, 氧化铝包裹, 颗粒稳定性

BiFe_{1-x}Nb_xO₃的结构、磁性和光学性质 578

洗慧敏, 杜奕全, 张弼, 陈熹* (华南理工大学物理系, 广州 510006)
摘要: 用溶胶凝胶法制备了Nb掺杂多铁BiFe_{1-x}Nb_xO₃粉晶样品(0<x<0.05), 研究Nb掺杂对样品的结构、磁学和光学性质的影响. 根据XRD图谱和Rietveld精修的结果可知, 所有的样品仍保持R3c相, 但晶格常数a, c, 晶胞体积V和Fe-O-Fe键角发生变化. 适当的Nb掺杂使得样品晶粒尺寸减小, 导致剩余磁化强度的增强, 使得BiFe_{1-x}Nb_xO₃样品的禁带窄化.

关键词: 铁酸铋, 晶体结构, 磁性性质, 带隙

光沉积Ru和RuO₂的锐钛矿TiO₂纳米片的光解水产氧 585

米诗阳, 刘旭旭, 汪文栋* (中国科学技术大学化学物理系, 中国科学院能量转换材料重点实验室, 合肥 230026)

摘要: 采用水热法以HF作为结构调控剂合成了主要暴露(001)面的锐钛矿TiO₂纳米片, 通过光沉积方法分别合成了负载Ru和RuO₂物种的光催化剂. 利用X射线衍射、透射电镜和氢气程序升温还原等分析表征了催化剂的结构性质. 通过光解水产氧反应来研究催化剂的催化性能, 详细考察了Ru含量、负载方式以及氧化和还原处理等因素的影响, 光解水产氧速率的差异证明了Ru物种在不同晶面的电荷-空穴分离效应. 与负载单一助催化剂的Ru/TiO₂和RuO₂/TiO₂样品相比, 活性最优的0.5%Ru-1.0%RuO₂/TiO₂样品由于负载了双助催化剂, 其催化活性得到更大的提高, 证实了在锐钛矿TiO₂上的晶面电荷-空穴分离效应.

关键词: 锐钛矿TiO₂纳米片, 光解水产氧, 晶面, Ru助催化剂, 电荷分离

三甲基镓在Pd(111)表面吸附解离及表面预吸附H和O的影响 .591

丁良兵, 马运生*, 胡婕, 陈博昊 (中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

摘要: 利用X-射线光电子能谱(XPS)和程序升温脱附谱(TPD)研究了三甲基镓在Pd(111)表面的吸附和解离行为, 并考察了表面预吸附H和O的影响. 结果表明, 在吸附温度为140 K时, 三甲基镓在Pd(111)上主要为解离吸附, 此时表面物种为Ga(CH₃)_x (x=1, 2, 3)和CH_x物种. 加热将导致Ga的甲基化合物中的Ga-C键发生分步断裂, 在不同温度下产生CH₄和H₂从表面脱附. 同时, XPS结果证实了在275~325 K的温度区间内存在Ga甲基化合物的分子脱附. 退火至更高温度, 表面只观察到积碳和金属Ga物种, 这二者随着温度的继续升高逐渐向体相扩散. 在Pd(111)表面预吸附O和H对上述吸附和解离行为存在显著的影响. 当表面预吸附H时, 脱附产物CH₄和H₂的脱附主要位于315 K, 可归属为一甲基镓的解离脱附. 当表面预吸附O时, 只在258 K观察到CH₄和H₂的脱附峰, 可能来自于Pd-O-Ga(CH₃)₂吸附结构的解离.

关键词: 三甲基镓, Pd(111), 吸附, 解离, XPS, TPD

三元异质结构Ag-Bi₂MoO₆/BiPO₄光催化剂高效降解苯酚红 600

姜大雨, 徐达, 郑佳, 杨阳, 刘畅, 王宇爽, 车广波, 林雪*, 常立民* (吉林师范大学环境友好材料制备与应用教育部重点实验室, 长春 130103)

摘要: 多组分复合体系有利于电荷的有效分离, 减少电子空穴对的复合几率. 通过低温液相法首次合成Ag-Bi₂MoO₆/BiPO₄三元异质结构光催化剂. 利用XRD、SEM、EDX及XPS等技术对样品进行了表征. 结果表明, Ag纳米粒子光照积累在Bi₂MoO₆/BiPO₄的表面, 通过表面等离子共振增加对可见光的吸收, 同时作为电子受体促进了光生电子的转移. Ag、BiPO₄和Bi₂MoO₆形成三元异质结构有效地抑制了光生电子空穴对的复合. Ag-Bi₂MoO₆/BiPO₄表现出优异的光催化性能, 其光催化活性较BiPO₄、Bi₂MoO₆和Bi₂MoO₆/BiPO₄样品有较大提高. 并且对Ag-Bi₂MoO₆/BiPO₄三元异质结构的光催化机制进行了讨论. 光催化过程中反应活性物种捕获实验结果表明h⁺和O₂^{·-}是主要的活性基团.

关键词: 异质结构, 钼酸铋, 磷酸铋, 银, 光催化, 可见光

含硫磷酸钙纳米颗粒的制备及对铅离子的高效选择性去除 607

龚成云^{a,b}, 耿志刚^a, 董安乐^a, 叶新新^a, 汪国忠^a, 张云霞^{a*} (a. 中国科学院材料物理研究所, 中国科学院材料物理重点实验室, 环境与能源纳米材料中心, 安徽省纳米材料与纳米结构重点实验室, 合肥 230031; b. 中国科学技术大学纳米科学技术学院, 苏州 215123)

摘要: 用一种简易共沉淀法制备了非晶含硫磷酸钙(SCP)材料, 实现硫原子原位引入磷酸钙纳米颗粒中, 并研究了其对Pb(II)的吸附特性和机理. 与羟基磷灰石相比, SCP对Pb(II)的去除性能显著增强, 在10 min内能快速将20 ppm的Pb(II)溶液降低至饮用水标准

下. 由Langmuir吸附等温线模型计算可知, SCP对Pb(II)的最大饱和和吸附量高达1720.57 mg/g, 这个数值远远超过以往所报道的绝大部分吸附剂材料. 在竞争离子Ni(II), Co(II), Zn(II)和Cd(II)共存的条件下, SCP还表现出对Pb(II)的选择性去除. 研究表明, SCP对Pb(II)超高的去除效率和优异的亲和力归因于其可通过溶解沉淀和离子交换反应在其表面形成棒状的羟基磷酸铅晶体, 以及形成沉淀物硫化铅. SCP以其对Pb(II)快速、高效和优异选择性成为在实际铅污染治理中的理想材料.

关键词: 含硫磷酸钙, 铅离子, 选择性去除

Ni/α-Al₂O₃催化剂作用下苯甲醚的加氢脱氧 617

汤文武^{a,c}, 张兴华^{b,c*}, 张琦^{b,c}, 王铁军^{b,c}, 马隆龙^{b,c*} (a. 中国科学院大学化学系, 合肥 230026; b. 中国科学院可再生能源重点实验室, 广州 510640; c. 中国科学院广州能源研究所, 广州 510640)

摘要: 通过化学沉淀法制备了以α-Al₂O₃、γ-Al₂O₃、SiO₂、TiO₂和ZrO₂为载体的五种镍基催化剂, 以苯甲醚为模型化合物对催化剂进行活性评价, 考察载体对加氢脱氧催化反应的影响. 实验表明, Ni/α-Al₂O₃对苯甲醚加氢脱氧反应的催化活性最高. 在优化的工况下, 苯甲醚的转化率达到93.25%, 碳氢化合物收率达到90.47%. H₂-TPD测试表明五种镍基催化剂中, Ni/α-Al₂O₃表面拥有更多的活性金属位, 具有更高的加氢催化活性. Ni/α-Al₂O₃催化剂具有优异的可重复使用性能, 反应后催化剂表面的积碳量几乎可以忽略.

关键词: 苯甲醚, 加氢脱氧, Ni/α-Al₂O₃, 碳氢化合物

基于分布参数系统和单粒子模型的锂离子电池工作状态实时监控模型 623

黄亮^a, 姚畅^{b*} (a. 北京交通大学电子信息工程学院, 北京 100044; b. 国家自然科学基金委员会信息中心, 北京 100085)

摘要: 提出了一种基于分布参数系统偏微分方程描述和单粒子模型的锂离子电池工作状态实时监控建模方法, 能够实时跟踪锂离子电池阳极的锂离子密度和残差变化, 并通过仿真实验验证了本文模型对锂离子电池工作状态故障报警的有效性和精确性.

关键词: 锂离子电池, 分布参数系统, 单粒子模型, 工作状态监控

基于支持向量机、支持向量回归和分子对接的CYP450 1A2抑制剂的发现研究 629

陈茜, 乔连生, 蔡漪涟, 张燕玲*, 李贲宇 (北京中医药大学中药学院, 中药基础与新药研究重点实验室, 北京 100102)

摘要: 支持向量机, 支持向量回归和分子对接的计算方法已广泛应用于化合物的药理活性计算. 为了提高计算的准确性和可靠性, 拟以细胞色素P450酶1A2为研究载体, 运用建立的联合SVM-SVR-Docking计算模型预测潜在的CYP1A2抑制剂. 其中, 建立的最优SVM定性模型训练集, 内部测试集和外部测试集的准确率分别为99.432%, 97.727%和91.667%. 最优SVR定量模型训练集和测试集的R²和MSE分别为0.763, 0.013和0.753, 0.056. 实验表明两个模型具有较高的准确性和可靠性. 通过对SVM和SVR模型结果的分析, 发现连接性指数、分子构成描述符和官能团数目等分子描述符可能与CYP1A2抑制剂的辨识和活性预测密切相关. 随后利用分子对接技术分析化合物与CYP1A2的结合构象及相互作用的稳定性. 形成氢键相互作用的关键氨基酸包括THR124, ASP320; 形成疏水相互作用的关键氨基酸包括ALA317和GLY316. 所获得模型可用于天然产物化学成分中CYP1A2潜在抑制剂的活性计算及其介导的药物-药物相互作用预测提供理论指导, 也为合理联合用药提供一定参考. 共获得20个对CYP1A2具有潜在抑制活性的化合物. 部分结果与文献结果相互印证, 进一步说明了模型的准确性和联合计算策略的可靠性.

关键词: 支持向量机, 支持向量回归, 分子对接, CYP1A2抑制剂

生物油制备生物质氢气和生物质燃料 635

姜沛汶, 吴小平, 刘俊旭, 李全新* (中国科学技术大学化学物理系, 安徽省生物质洁净能源重点实验室, 中国科学院城市污染物转化重点实验室, 合肥 230026)

摘要: 研究了一种以生物质裂解油为原料制备氢气和生物燃料的催化转化过程. 该过程包括生物油催化裂解制备氢气和生物合成气, 合成气的调变, 烯烃聚合和费脱合成耦合制备生物燃料. 在优化反应条件下, 氢气产率达到120.9 g H₂/(kg bio-oil), 烯烃聚合-费脱合成耦合反应形成的生物燃料产率达到526.1 g/(kg bio-syngas). 基于产物分析和催化剂特性表征, 探讨了生物燃料合成过程中的反应路径和化学反应过程.

关键词: 生物油, 生物质氢气, 烯烃聚合, 费脱合成, 生物燃料