

Chinese Abstracts (中文摘要)

光缔合过程中多光子振转态选择性跃迁 497
王荣*, 邱明辉, 修俊玲 (大连交通大学理学院, 大连 116028)

摘要: 研究了光缔合过程中OH分子基电子态的振转态选择性跃迁. 计算结果表明通过选择适当的初始碰撞能与光场参数, 两碰撞原子可以利用三光子、四光子与九光子跃迁, 从连续态跃迁至目标态. 通过选取较低的光场频率, 增加跃迁至目标态的光子数来控制分子布居跃迁至较低的振转态. 在光缔合过程中, 部分缔合的分子通过中间态与背景态重新发生解离, 解离过程降低了目标态的布居分布.

关键词: 光缔合, 多光子跃迁, 态选择性, 中间态

1-碘丙烷分子的电子动量谱学研究: 自旋-轨道耦合效应与分子内轨道相互作用 503

王恩亮^{a,b*}, 史钰峰^{a,b}, 单旭^{a,b*}, 阳弘江^{a,b}, 张卫^{a,b}, 陈向军^{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, 近代物理系, 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)

摘要: 利用不对称不共面电子动量谱仪, 在2.5 keV碰撞能量下, 采用高精度的SAC-CI方法计算了1-碘丙烷分子束缚能谱, 同时采用Hartree-Fock、B3LYP/aug-cc-pVTZ(C,H)6-311G**(I)方法计算其电子动量分布. 并对电离能峰进行了标示. 结合非相对论与相对论计算方法以及自然键轨道分析, 对最外层两个轨道(碘的5p孤对)的自旋-轨道耦合效应与分子内轨道相互作用进行了比较. 两种相互作用对电子动量分布的不同影响是可观的. 实验结果与相对论计算的结果一致, 表明1-碘丙烷分子内自旋-轨道耦合效应占主导.

关键词: 1-碘丙烷, 电子动量谱学, 自旋-轨道耦合效应, 分子内轨道相互作用

NaF晶体中电荷补偿掺杂Ce³⁺离子光谱性质的从头算 512

马乃玉, 杨峰, 沈长春, 黄玉成, 宁利新* (安徽师范大学物理系, 芜湖 241000)

摘要: 用从头算研究NaF晶体中Ce³⁺占据Na⁺格位时的光谱性质, 电荷补偿由占据格位第一配位壳层的两个氟原子被氧取代(O_{F'})或第二配位壳层的两个Na空位(V_{Na'})来提供. 首先采用基于DFT的超单胞模型方法优化了Ce³⁺的局域结构, 并构造以Ce为中心的镶嵌团簇, 对其进行基于波函数理论的CASSCF/CASPT2/RASSI-SO计算, 获得Ce³⁺的4f¹和5d¹组态分裂能级能量. 通过将4f→5d跃迁能量计算值与低温实验激发光谱比较, 发现实验观测到的最低4f→5d跃迁谱带(390 nm)来自于两个最近邻O_{F'}补偿的Ce³⁺离子, 并不是文献中的两个次近邻V_{Na'}补偿的Ce³⁺. 最后从5d¹组态能级重心位移和晶场分裂两方面分析了由两个最近邻O_{F'}取代造成最低4f→5d跃迁红移约8000 cm⁻¹的原因.

关键词: 从头算, NaF:Ce³⁺, 局域结构, 4f→5d跃迁

并五苯分子电荷注入导致自旋极化的密度泛函理论研究 519

任俊峰*, 张燕如, 原晓波, 胡贵超 (山东师范大学物理与电子科学学院, 济南 250014)

摘要: 用密度泛函理论研究了不带自旋的空穴注入并五苯后体系的自旋相关特性. 电荷注入后并五苯分子中存在自发自旋极化行为. 当注入电荷量达一定程度, 分子磁矩随注入电荷量的增加呈线性增长, 最大磁矩可达1 μ_B. 注入电荷和并五苯分子的相互作用导致分子体系结构发生变化, 同时电荷密度分布及自旋密度分布也发生了变化. 注入电荷先填充自旋劈裂的碳原子p_z轨道.

关键词: 有机自旋电子学, 自发自旋极化, 密度泛函理论, 并五苯

碳纳米管负载Cu-Co复合氧化物的富氢气氛中CO催化消除 ... 523

刘宁, 高玉仙, 汪文栋*, 黄伟新 (中国科学院能量转换材料重点实验室, 中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

摘要: 采用超声处理辅助浸渍法制备了多壁碳纳米管负载的Cu-Co复合氧化物催化剂. 利用XRD、TEM、H₂-TPR、XPS和Raman光谱等表征了催化剂的结构性质. 在Cu和Co氧化物以及金属氧化物与碳纳米管载体间存在强相互作用. 催化剂在富氢气氛中CO催化消除反应中, 与单一Cu或Co催化剂相比, Cu-Co复合氧化物催化剂表现出独特的反应特性, 特别是在较高反应温度下可同时结合CO优先氧化和CO甲烷化的反应途径来实现高效CO消除. 当Cu/Co比为1/8时活性最优, 可以实现在150~250 °C和高反应空速(120 L/(h·g))富氢气氛中CO的完全消除.

关键词: Cu, Co, 碳纳米管, CO优先氧化, CO甲烷化

铂修饰的{001}面暴露的二氧化钛纳米片阵列的制备和光催化性能 530

李峰^a, 傅正平^{a*}, 陆亚林^{a,b*} (a. 中国科学技术大学材料科学与工程系, 中科院能量转换材料重点实验室, 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: 采用有机溶剂热法在FTO衬底上制备{001}面暴露的单晶锐钛矿相TiO₂纳米片阵列, 通过FESEM和XRD研究样品的形貌和晶体结构. 与水热法制备的纳米片阵列相比, 有机溶剂热法制备的样品取向性更好. 采用光沉积方法在纳米片阵列上沉积Pt, 所得到的Pt纳米颗粒粒径更为均匀, 并且更容易沉积在{001}面上. 所负载的Pt纳米颗粒增强了TiO₂纳米片的光吸收性能, 同时大大减弱了光致发光强度. 在光催化性能测试中, 具有最优负载量的样品催化性能提高了一倍. 与传统的Pt负载相比, {001}面的最优负载量显得相当小, 这可能源于高活性{001}面的原子结构.

关键词: 有机溶剂热法, 光沉积, 二氧化钛, {001}面, 纳米片阵列

pH值对AZ31镁合金表面植酸转化膜在模拟体液耐腐蚀性能的影响 535

郑嘉, 张胜涛*, 郭雷, 吕堂满, 周洋, 骆小方 (重庆大学化学化工学院, 重庆 400030)

摘要: 采用沉积的方法在镁合金AZ31表面制备植酸转化膜并研究了pH值的影响. 利用极化曲线和电化学阻抗谱方法测定其耐腐蚀性能, 用扫描电子显微镜观察转化膜的表面微观结构, 用能谱测定转化膜的组成元素. 在理论上通过热力学的方法分析最佳pH值. 植酸转化膜可以提高镁合金AZ31的耐腐蚀性能. 当植酸溶液的pH=5时腐蚀效率达到了89.19%, 此时腐蚀电位正移了156 mV, 腐蚀电流密度与没有处理的试样相比减小了约一个数量级. 热力学分析表明植酸转化膜的耐腐蚀性能不仅受植酸根离子和镁离子浓度的影响, 也与氢气释放的速率有关.

关键词: 植酸转化膜, 耐腐蚀性能, 腐蚀电流密度, 热力学分析

利用原位红外光谱与微分电化学质谱联用技术研究在Pt以及PtRu电极上发生的甲醇氧化反应 541

陶霖, 陈微, 姚瑶, Ammar Bin Yousaf, 陈艳霞* (中国科学技术大学合肥微尺度国家实验室, 化学物理系, 合肥 230026)

摘要: 利用电化学衰减全反射原位傅里叶变换红外光谱与微分电化学质谱联用技术, 在流动电解池环境以及恒电位条件下研究了Pt电极和Pt电极通过表面电沉积Ru形成的PtRu电极(Pt_xRu_y)上发生的甲醇氧化反应(反应电解质溶液为0.1 mol/L HClO₄+0.5 mol/L MeOH). 在0.3~0.6 V(参比电极为可逆氢参比)实验用到的所有电极上, CO是唯一能从红外光谱观察到的与甲醇相关的表面吸附物; 在Pt_{0.56}Ru_{0.44}电极上可以观察到CO吸附在Ru原子形成的岛上和CO线式吸附在Pt电极表面红外波段, 而其他电极上只能观察到Pt表面上线式吸附的CO; 甲醇氧化活性按Pt_{0.73}Ru_{0.27}>Pt_{0.56}Ru_{0.44}>Pt_{0.83}Ru_{0.17}>Pt的顺序递减; 在0.5 V时, 甲醇在Pt_{0.73}Ru_{0.27}电极上的氧化反应的CO₂电流效率达到了50%.

关键词: 微分电化学质谱, 电化学衰减全反射原位傅里叶变换红外光谱, 甲醇氧化, PtRu电极, CO₂电流效率

从可溶性单源分子前驱体采用溶胶凝胶法制备ZnO/TiO₂纳米复合物 548

Hameed Ullah*, Kabeer Ahmad Khan, Wasid Ullah Khan (巴基斯坦哈拉拉大学化学系, 曼塞赫拉)

摘要: 合成了单源分子前驱体Cl₂TiZn(dmae)₄ (dmae为2-二甲乙酰胺), 并以乙醇为溶剂, 加入等摩尔量的水对其进行可控水解得ZnO/TiO₂纳米复合凝胶, 经pH=9沉淀, 在200、400和600 °C烧结得到不同的产物T₂₀₀、T₄₀₀、T₆₀₀. XRD分析表明未烧结产物为无定形粉末并随着烧结温度升高晶型改善. ZnO呈纤锌矿结构(六方晶系), TiO₂呈板钛矿型结构(正交). BET分析和扫描电镜表明颗粒的大小随着烧结温度的提高而增加. 红外光谱证明Zn-O和Ti-O的特有的振动频率, OH基团烧结后的产物中被去掉. 所有的样品都显示良好的光催化活性, 且T₆₀₀活性最高.

关键词: 单源分子前驱体, 溶胶凝胶法, ZnO/TiO₂, 甲基橙, 光催化活性

毛刺状竹节结构氮化硼纳米管的合成与生长机理 555

张弼*, 陈熹 (华南理工大学物理系, 广州 510640)

摘要: 以非晶硼和氧化镍纳米颗粒为原料, 在氢气中1100 °C下合成了毛刺状竹节结构的氮化硼纳米管. 利用X射线衍射和透射电镜研究了氮化硼纳米管的结构和形貌. 竹节结构纳米管表面的毛刺是六方氮

化硼的纳米薄片. 提出了一种基于固态硼和气态二氧化硼扩散的毛刺形貌生长机理.

关键词: 氮化硼纳米管, 热化学合成, X射线衍射, 透射电镜

杂质对硬球系统团簇成核临界条件的影响 559
邓元祥^a, 肖长明^{b*} (a. 湖南工学院数理教学部, 衡阳 421002; b. 湖南师范大学物理系, 长沙 410081)

摘要: 通过CS状态方程及嫡极大原理在多元胶体系统研究了杂质对硬球系统团簇成核临界条件的影响. 极少量元素或杂质的小胶球对系统成核的临界条件的影响也是不可忽略的: 成核的临界体积分数显著地降低; 此外, 研究还发现杂质对成核的临界尺寸影响较少.

关键词: 团簇胶球, 团簇密度, 团簇成核

一种可精确控制粒径的SiO₂微球合成方法 563
潘磊^a, 王艺^a, 徐洪波^b, 丁艳波^c, 李焱^{a*}, 赵九蓬^{b*} (a. 哈尔滨工业大学复合材料与结构研究所, 哈尔滨 150080; b. 哈尔滨工业大学化学学院, 哈尔滨 150001; c. 沈阳工程学院新能源学院, 沈阳 110136)

摘要: 用改进的种子法合成SiO₂微球. 微球生长过程中连续缓慢添加正硅酸乙酯, 使用动态光散射法实时监控微球粒径的增长过程, 调节正硅酸乙酯的添加, 实现对粒径的精确控制. 为制备禁带位置位于1000 nm的光子晶体, 合成粒径为446 nm的SiO₂微球, 微球粒径在4 h内从193 nm增长到446 nm, 远远快于传统种子法, 微球粒径与目标粒径偏差为±5 nm. 制得的SiO₂微球被组装为光子晶体, 其禁带位置恰好位于1000 nm.

关键词: SiO₂微球, 动态光散射法, 种子法, 光子晶体

网状钼酸铋的可见光催化活性 568
王庆伟^a, 郭晓宇^b, 林雪^{b*}, 刘春波^b, 翟宏菊^b (a. 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, 四平 136000; b. 吉林师范大学化学学院, 四平 136000)

摘要: 采用无助剂、无模板的水热法成功合成网状Bi₂MoO₆. pH值对这一形貌的形成起重要作用. 所制备的网状Bi₂MoO₆样品表现出优异的可见光催化活性, 其光催化活性比固相法合成的块状Bi₂MoO₆样品高得多.

关键词: 钼酸铋, 纳米结构, 水热合成, 光催化性能

CuCoMn-zeolite双功能催化剂转化生物质基合成气制取液态烃 573

张朝霞, 毕培燕, 姜沛汶, 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, 合肥 230026)

摘要: 选用四种不同的分子筛(SAPO-34, ZSM-5, Y, MCM-41)与CuCoMn(高醇合成组元)构成双功能催化剂, 利用N₂吸脱附、H₂-TPR、XRD、NH₃-TPD等表征了催化剂的结构性质. 研究了催化剂在生物质基合成气一段法制取液态烃燃料的应用. 相比于CuCoMn催化剂, 加入分子筛的双功能催化剂均不同程度地提高了液体烃燃料的选择性及收率, 且收率按顺序递减呈CCM-ZSM-5>CCM-SAPO-34>CCM-Y>CCM-MCM-41. 同时, 共沉淀法制备的CuCoMn-ZSM-5 (20wt%, Si/Al=100) 具有最佳的CO转化率(76%)及液体产物收率(30%). 相比于CuCoMn氧化物, 双功能催化剂的比表面及孔隙均得到提高. CCM-ZSM-5具有适中的微孔尺寸和中等强度的酸性, 增加CCM-ZSM-5中ZSM-5含量或降低ZSM-5中的Si/Al比, 均有利于提高酸性位点的数量, 主要是较弱的酸性位. 而共沉淀法制备的CCM-ZSM-5具有更好的金属分散性及还原性能.

关键词: 双功能, CuCoMn-zeolite, 高醇制烃, 生物质基合成气转化, 液态烃合成

介电力显微镜探测氧化锌纳米线表面吸附分子对电导率的影响 582
陈琪^{a,b}, 卢威^b, 吴昱昆^c, 丁怀义^c, 王兵^a, 陈立桅^{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. 中国科学院苏州纳米技术与纳米仿生研究所纳米研究国际实验室, 苏州 215123; c. 中国科学技术大学物理系, 合肥 230026)

摘要: 利用场效应晶体管器件和介电力显微镜来研究氧化锌纳米线表面吸附分子对其电导率的影响. 相比于空气中, ZnO纳米线场效应晶体管器件在氮气中电导率更高, 介电力显微镜得的介电信号也是在氮气中更大. 影响ZnO纳米线电导率变化的主要原因是表面吸附分子数量的变化, 而不是电极与材料之间接触性质的变化.

关键词: 介电力显微镜, ZnO纳米线, 场效应晶体管, 表面吸附分子

两性亲水树枝状聚合物的合成与药物控释 587

王帅鹏^a, 宋晓婉^a, 冯晓双^{b*}, 陈鹏^{a*}, 钱家盛^a, 夏茹^a, 苗继斌^a (a. 安徽大学化学化工学院, 安徽省高分子绿色材料重点实验室, 合肥 230601; b. 阿卜杜拉国王科技大学物理科学工程部, 图瓦 23955-6900)

摘要: 结合阴离子开环聚合方法合成了内壳为聚(乙氧基乙基缩水甘油醚), 外层为聚环氧乙烷的两亲性类树枝状嵌段共聚物PEEGE-G2-b-PEO(OH)₁₂. 使用核磁共振氢谱以及凝胶渗透色谱等表征了中间产物和目标产物. 选择阿霉素作为实验药物, 研究了该聚合物的载药和控释行为. 聚合物的载药率和包覆效率分别为13.07%和45.75%, 体外释放试验表现为持续性的释放, 并受到释放介质pH影响.

关键词: 阴离子开环聚合, 活性聚合, 类树枝状聚合物, 两性亲水嵌段聚合物, 药物缓释

TFTTP作为阴极缓冲层提高有机薄膜太阳能电池的内建电场和载流子收集效率 593

臧月^a, 曹康丽^b, 黄江^a, 张清^{b*}, 于军胜^{a*} (a. 电子科技大学光电信息学院, 电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 610054; b. 上海交通大学化学化工学院, 上海 200240)

摘要: 采用一种新型的电子传输材料TFTTP作为阴极缓冲层提高基于SubPc/C₆₀异质结的有机薄膜太阳能电池的性能. 通过在有机活性层和金属电极之间加入TFTTP界面层, 器件的能量转换效率提高了约30%. 系统研究了器件的二极管特性、光电流特性以及内部的光场分布情况, 结果表明, TFTTP阴极缓冲层的引入可以有效地提高器件的内建电场, 进而增加电荷转移激子的分离效率. 通过使用TFTTP作为阴极缓冲层, 在C₆₀/金属界面形成良好的欧姆接触, 降低了界面接触电阻, 有利于自由载流子的收集.

关键词: 有机薄膜太阳能电池, 阴极缓冲层, 内建电场

金纳米粒子和钼氧化物复合膜修饰电极的制备及应用 600
吴守国^a, 张志鑫, 赵祺平, 周磊, 姚瑶 (中国科学技术大学化学系, 合肥 230026)

摘要: 利用循环伏安法将金纳米粒子和钼氧化物共同电沉积在玻碳电极表面, 制备了金纳米粒子和钼氧化物复合膜修饰电极, 利用SEM和XPS研究了MoO_x/AuNPs复合膜的表面形态, 并研究其修饰电极对葡萄糖的电催化氧化过程. 首次提出了阳极扫描极化反向催化伏安法, 即在反向扫描过程中纯的催化氧化电流通过扣减背景电流的方法被提取出来. 显著提高电流测量灵敏度改善了信噪比. 制备的MoO_x/AuNPs复合膜修饰电极在0.01~4.0 mmol/L对葡萄糖具有线性响应, 电流灵敏度为2.35 mA·L/(mmol·cm²), 检测限为9.01 μmol/L(信噪比为3).

关键词: 钼氧化物, 金纳米粒子, 非酶传感器, 阳极扫描极化反向催化伏安法

紫外光固化自修复剂的微胶囊化及智能防腐涂层的制备 607

赵东^a, 汪贞贞^{a*}, 吴启超^b, 周晓^b, 葛学武^a (a. 中国科学技术大学中科院软物质化学重点实验室, 高分子材料科学与工程系, 合肥 230026; b. 广东天安新材料股份有限公司, 佛山 528000)

摘要: 利用在水相中原位生成的聚脲甲醛沉淀吸附在可见紫外光固化组份构成的油相表面, 制备了包覆自修复剂的脲醛树脂(PUF)微胶囊. 光学显微镜及SEM表明, PUF微胶囊尺寸为118~663 μm, 与PUF形成过程中的搅拌速度有关. 在中等搅拌速度(600 r/min)时, 可以得到最高的包覆率(97.52wt%)和产率(65.23wt%). 将此微胶囊掺入水性聚氨酯乳胶中制成的涂层表面受损后, 在紫外光照射下可以进行自修复, 具有优异的金属防腐性能.

关键词: 自修复, 聚氨酯, 金属防腐, 脲醛树脂微胶囊

钴卟啉对三种胺的固定用于SO₂的脱除 616

蓝公家^a, 张建斌^{a*}, 赵天翔^a, 许秋霞^a, 魏雄辉^{b*} (a. 内蒙古工业大学化学化工学院, 呼和浩特 010051; b. 北京大学化学与分子工程学院应用化学系, 北京 100871)

摘要: 利用紫外-可见光谱和荧光光谱手段研究了四苯基卟啉钴(CoTPP)对苯胺、乙二胺和二乙胺的超分子固定用于脱除SO₂. 紫外-可见光谱表明CoTPP与三种胺作用后生成CoTPP-胺配合物, Soret吸收带发生红移. 当通入SO₂后, SO₂与胺的作用强于CoTPP与胺的作用, CoTPP-胺配合物释放出CoTPP, CoTPP在胺法脱硫过程中起到胺固定作用. 荧光光谱表明CoTPP与三种胺作用形成1:1的分子配合物, 且为焐驱动反应. CoTPP与苯胺和二乙胺作用为吸热反应, CoTPP与乙二胺作用为放热反应.

关键词: 胺, 二氧化硫, 超分子固定, 四苯基卟啉钴