

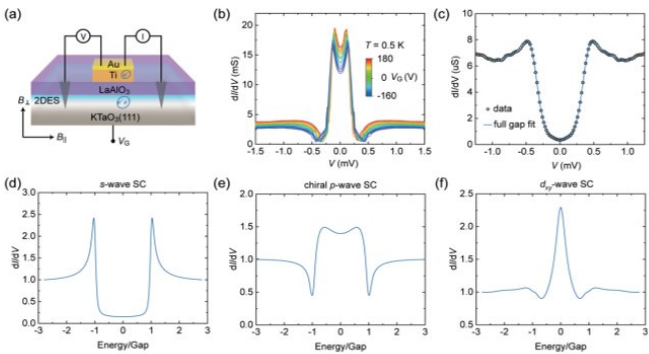
中国科大研究团队发现 $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 界面p波超导性的重要证据

图1: $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 平面结的隧穿谱。 (a) $\text{Ti}/\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 器件示意图, LaAlO_3 层作为隧穿势垒。 (b) $T=0.5\text{ K}$ 时, 弱隧穿势垒器件在不同偏压下的隧穿谱。 (c) $T=160\text{ K}$ 时, 强隧穿势垒器件的隧穿谱 (黑色圆点); 蓝色实线为基于完全能隙超导的Dynes模型拟合结果。 (d-f) 分别展示了金属/超导体平面结在强耦合状态下, s波、p波和d波超导体的归一化理论隧穿谱。

本报讯 中国科大曾长贵教授团队与西湖大学李华教授团队合作, 在 $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 界面超导性研究中取得重要进展。研究团队通过构建

据。相关研究成果发表在《国家科学评论》上。

在此次研究中, 团队构建了由金属钽(Ti)与 $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 超导界面组成的平面结, 并对其隧穿谱进行了系统性研究。通过精确调控 LaAlO_3 厚度以调节隧穿势垒强度, 实验发现, 在势垒较弱时, 隧穿谱在超导能隙内出现明显的双峰结构; 而当势垒较强时, 这一双峰特征消失, 退化为一个软化的完全超导能隙。进一步的理论计算表明, 在弱耦合条件下, 金属与超导体之间处于强耦合状态, 接触部分会引发动量空间的电子散射, 使得不同动量间的配对通道发生混合。在波阻超导体中, 不同通道的配对序参量是相同的, 这种混合对隧穿特性并没有显著影响。而在p波和d波非常规超导体中, 混合会抑制局域配对, 诱导能隙内的准粒子激发并形成安德烈夫束缚态。其中, p波超导体表现为能隙内双峰结构, 这则呈现单峰信号。此次实验与理论相结合的研究结果, 不仅为识别超导配对态提供了一种通用方法, 也揭示了 $\text{LaAlO}_3/\text{KTaO}_3$ 界面可能具备p波超导性。

中国科大物理学院博士生王碑林和郭林海博士为该研究的共同第一作者, 曾长贵、李华为论文共同通讯作者。

(合肥微尺度物质科学国家研究中心 物理学院 中国科学院量子信息与量子科技创新研究院 科研部)

中国科大提出利用弯折缺陷加速纳米纤维素降解的力化学策略

本报讯 中国科大工程科学学院吴恒安教授团队联合合肥微尺度物质科学国家研究中心俞书宏院士团队, 在弯折缺陷促进纳米纤维素高效降解的力化学研究中取得重要进展。研究团队从多尺度定量建模和实验表征出发, 系统阐明了机械处理诱导纳米纤维素形成不同典型弯折缺陷的微观力学机制, 揭示了结构弯折变形促进水解活化的力化学机理。结合原位水解实验验证, 提出了利用人工弯折缺陷大幅提升纳米纤维素水解效率的新方法。相关研究成果于6月17日发表于Cell出版材料科学旗舰期刊《物质》上。

研究团队首先通过原子力显微镜的定量表征, 发现了经过机械处理后纳米纤维素在广泛存在的弯折缺陷处呈现典型的三维形貌突变, 并基于大规模分子动力学模拟揭示了弯折缺陷的微观力学机理, 外载作用下纳米纤维素

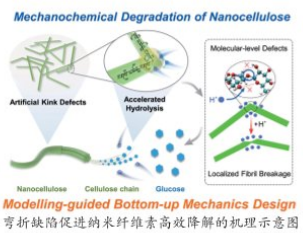


图2: 弯折缺陷促进纳米纤维素降解的力化学策略。 (a) 为耗散积累的机械能和应力发生局部的三轴塑性变形并伴随微结构畸变和氢键断裂; 进一步结合第一性原理计算和原位水解实验揭示了弯折缺陷的力化学机理, 弯折缺陷处分子链的非线性几何构型驱动水解反应向具有较低自由能垒

的理想反应路径发展以促进在弯折缺陷处的优先水解。

在对弯折缺陷微观机制的全面阐释和力化学行为的理论预测基础上, 研究团队提出了引入简单机械预处理的水解“两步”法, 通过诱导更多的人工弯折缺陷实现了初期水解速率的显著提升。该研究揭示了机械诱导纳米纤维素塑性变形和微结构缺陷对其水解反应效率的力化学调控机理, 为生物圈中广泛应用机械处理降解纤维素生物质提供了关键科学依据和新的理论启示, 推动了力化学方法在生物质可持续利用领域的应用前景。

近代力学系侯远震博士和化学系韩子盟博士为该论文共同第一作者, 吴恒安教授、俞书宏院士和朱永波副教授为论文共同通讯作者。

(工程科学学院 合肥微尺度物质科学国家研究中心 科研部)

中国科大提出自适应动态动力学拆分的新概念

本报讯 中国科大黄汉民教授团队原创性地提出了一种“自适应动态动力学拆分”(Adaptive DKR)新概念, 实现了应用同一手性催化剂, 在构建不同尺寸的手性中心、产物手性中心的绝对构型随环境尺寸“动态适应”性反转。这一颠覆传统认知的手性构建新概念为高效构建多个立体中心的结构多样的复杂多环化合物库提供了强大的合成方法学工具, 并在应用于天然药物分子Martinellic acid全合成中取得显著突破 (LLS短至9步, 大于11%收率)。相关研究成果于6月23日发表在《自然·化学》上。

研究团队长期深耕于氮杂三元环钨络合物(Huang Complex)化学, 先后以其作为Leading complex发展了新型的C-N键复分解反应, 并建立了有机胺动态排序的新范式。受其独特的动态平衡性质启发, 团队巧妙利用胺络合三元环钨络合物的动态互变特性, 富有创见

性地提出“自适应动态动力学拆分”(Adaptive DKR)新概念。在自适应DKR模型中, 手性诱导步骤与催化剂-底物结合步骤“解耦”并融合于后续的转化过程中, 使得生成的环中间体的构型可调, 并能根据环境过态的能量差异 (主要由目标环尺寸决定) 进行动态互变, 最终实现环尺寸变化时立体构型的“自适应反转”。

基于这一创新机制, 团队发展了一套高效的钨催化不对称环化反应。使用完全相同的手性双膦配体整合的钨催化剂, 当改变胺基二烯链长度 (即改变目标产物的环尺寸) 时, 产物分子中氮原子邻位手性中心构型发生了反转, 合成六元环和七元环的氮杂并环产物时, 主要立体异构体氮原子邻位手性中心呈R构型; 而合成五元环产物时, 该位置则“自适应”地反转为R构型。该反应底物普适性优异, 能够兼容多种水杨醛、邻氨基芳香醛、胺基醛及胺基二

烯底物, 以良好的收率、非对映选择性和对映选择性构建含有多个连续手性中心的结构多样的氮杂多环化合物。

该策略能够应用于复杂天然产物(→Martinellic acid)的高效全合成。Martinellic acid分离自亚马逊雨林植物, 具有独特的三苯环骨架和三个连续手性中心, 其立体选择性全合成极具挑战性。已知文献报道中其合成路线为12-25步, 总收率仅3.3%。黄汉民教授团队巧妙地利用自适应DKR策略作为关键的手性骨架构建步骤, 从商业可得原料出发, 仅用9步即可完成(→Martinellic acid)的全合成, 总收率达11%, 充分彰显了自适应DKR策略在复杂分子合成中的强大威力。

该工作的第一作者是中国科大特任副研究员于翀, 黄汉民教授为唯一通讯作者。

(化学与材料科学学院 精准智能化学全国重点实验室 科研部)

中国科大在一维金属纳米结构光学性质研究中取得进展

本报讯 中国科大周蒙教授课题组与美国卡耐基梅隆大学梁超教授课题组合作, 揭示了一维生长金纳米棒光学性质的演化。相关研究成果发表在《科学进展》上。

纳米材料的激发态振动行为反映其力学与光学特性。传统金纳米棒的振动模式包括纵向和横向两类, 振动频率与结构尺寸密切相关。然而, 当尺寸缩小至原子级别($<2\text{ nm}$)时, 传统弹性理论对其振动行为的描述面临挑战, 尤其是电子结构、表面应力与配体耦合等因素在此尺度下更为显著。

本研究选取了一系列径向尺寸一致(3.15Å)、长度逐步增长的棒状金纳米团簇, 并通过紫外-可见-近红外光谱确认其具有共通的~400nm吸收峰与可观测的近红外吸收特征(如图所示), 体现出其各向异性电子结构。

利用飞秒时间分辨瞬态吸收光谱, 研究团队系统揭示了该系列金棒的激发态动力学过程。结果表明, 所有体系在400nm激发下均出现快速的系间窜越(ISC)过程, 且其速率随棒长增加而加快。更为重要的是, 在带边激发条件下观测到清晰的相干振荡信号。频谱分析表明, 这些相干振荡主要包含两种模式: 其一为与棒长呈线性关系的纵向振动, 其二为与长度无关的横向振动。

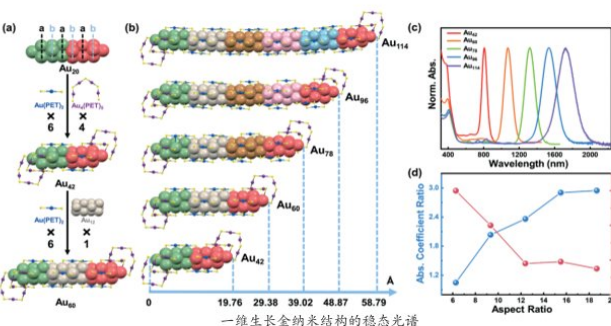


图3: 一维生长金纳米棒结构的动态光学性质

该系列棒状金纳米团簇的纵向振动频率相较于经典弹性模型表现出显著偏离, 打破了频率与1/L成正比的线性关系 (其中L为纳米棒的长度)。进一步的理论计算模拟了Au42至Au114的拉曼振动模式, 结果与实验中获得的主振动频率 (约1.7THz和2.6-2.9THz) 高度吻合, 验证了实验观测的可重复性。本工作系统揭示了原子级结构精确可调的金纳米棒中相干

本报 中国科大倪勇教授、何晓辉教授研究团队与合作者揭示了梯度厚电极体系内离子/电子协同的传输与反应机制; 设计了一种多梯度匹配的厚电极微结构, 该结构通过优化的传输与反应动力学, 协同增强了厚电极快速充放电能力和机械稳定性, 为设计高倍率抗损伤电池提供了一种通用的理论方案。相关研究成果发表在《先进能源材料》上。

厚电极由于离子/电子传输的不对称性和显著增加的路径, 在电极内部沿着厚度方向存在三个固有的梯度物理场: 电解液中的锂离子通量、导电网络中的电子通量以及颗粒表面的反应通量。这种固有的梯度物理场是厚电极快速充放电和机械性能较差的主要原因。研究团队提出了一种通用的厚电极微结构设计原理—匹配原则, 该原则将导电剂、孔隙率和颗粒的梯度分布与这些固有的通量梯度相匹配, 实现了一种多梯度匹配的电极微结构: 从隔膜到集流体, 导电剂含量和粒径逐渐增加, 同时孔隙率逐渐减小。研究团队构建了锂离子电池的力-电-化全耦合模型, 通过多物理场仿真模拟验证了该多梯度结构可以协同增强厚电极的快充性能和机械性能, 快充性能提高34.04%, 同时电极损伤降低20.34%。

研究团队进一步揭示了通量梯度与微结构梯度匹配的内在机理。首先, 靠近集流体的电极面积越多, 可以为离子传输提供更多可用路径, 从而最大限度地减少电子传输阻力。其次, 孔隙率分布与锂离子通量相匹配, 使得靠近隔膜的较大孔隙率可以显著提高局部离子扩散系数, 在锂离子通量梯度存在的情况下为离子传输提供更多可用路径, 从而减轻电解液中的浓差极化。第三, 靠近隔膜的较小颗粒可以提高电化学反应速率以匹配该处的高反应通量, 从而在锂化末期, 靠近隔膜的小颗粒可以抑制电化学反应, 减少该区域的消耗, 使更多的锂转移到集流体侧, 使得靠近集流体的大颗粒具有更大的反应电流密度, 从而提高电化学反应通量深度方向的均匀性。

研究团队的工作系统揭示了梯度厚电极体系内离子/电子传输机制与应力演化规律, 从原理上给出了一种普适的厚电极微结构设计原则, 这种多梯度微结构可以有效缓解厚电极能量密度和功率密度之间的矛盾, 同时抑制电极的分层损伤, 从而为厚电极的商业化应用提供理论基础。

中国科大工程科学学院博士研究生牛欣亚博士为论文第一作者, 倪勇教授、陆宇阳助理研究员为共同通讯作者。合作者包括中国科大何晓辉教授、北京理工大学廖湘阳教授。

(工程科学学院 科研部)

本报讯 中国科大宋礼教授团队提出了原位晶畴工程的精准合成新方法, 克服了传统外延生长中对二维材料本征缺陷结构和分布难以同时控制的局限性, 成功实现了单层二硫化钨横向同质结 (WS₂ Lateral Homojunctions) 的可控化学气相直接外延生长。相关研究成果于6月13日发表在《国际学术季刊》《美国化学会志》上。

二维过渡金属硫化物因其原子尺度下具备优异的电学特性, 是突破传统硅基半导体性能瓶颈的理想材料之一, 然而为了实现复杂的器件应用, 原子厚度低维单元需要具有不同的场效应调制行为。利用纵向范德瓦耳斯力或横向原子键能够无损集成具有不同特性的二维材料, 形成特异的同质结或异质结。其中, 二维横向同质结不仅具备可调控的电学特性, 还具有独特的原子级洁净的界面, 基于二维同质的各类感存器件已展现出巨大的性能优势。当前, 由于可供选择的原子种类受到严格限制, 直接外延生长二维过渡金属硫化物的同质结仍面临巨大挑战。

研究团队首先通过理论计算和模拟, 确定了最优本征缺陷构型, 进一步利用两步化学气相沉积法, 在晶圆水平上原位调控缺陷结构, 最终获得具有特定缺陷结构和分布的二维同质结。分析测试结果表明, 此类二维同质结不仅具备不同的电学场效应特性, 更重要的是其界面处同时实现了理想的原子晶格匹配和定制化的能带结构匹配。基于二维WS₂同质结构建的逻辑反器展现出良好的抗干扰操作特性, 其峰值电压增益达到12, 动态延迟时间约为135微秒, 峰值功耗低至1.3nW。

论文的通讯作者是中国科大宋礼教授、魏晓君教授和新加坡南洋理工大学刘政教授, 崔其龙博士和寿宏伟博士为共同第一作者。上述研究得到了科技部重点研发计划、国家自然科学基金、中国科学院先导专项、中国科大基础前沿团队等项目的资助。

(国家同步辐射实验室 科研部)

中国科大在二维同质结精准合成及器件应用方面取得重要进展