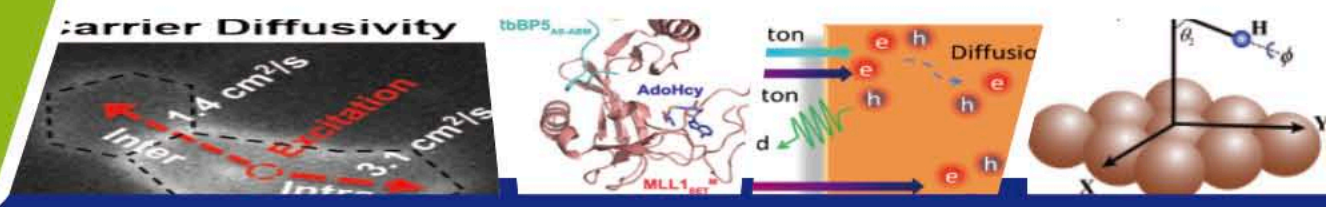
SKLMRD

分子反应动力学国家重点实验室

年度报告

2016



ANNUAL REPORT

OF THE STATE KEY LABORATORY OF MOLECULAR REACTION DYNAMICS

中国科学院大连化学物理研究所

一、研究水平与贡献

本年度我室共承担各类科研项目 138 项，实到经费 5849.40 万元，国家重点实验室专项资金的科研经费为 5205 万元，总经费为 11054.40 万元。其中科技部和基金委项目 68 项，经费 2718.92 万元。中科院经费 2213.18 万元，其他省部级经费 632 万元，大连化物所经费 210 万元。承担的项目包括科技部国家重点研发计划、国家重大科学仪器设备研制专项，基金委的科学中心、创新群体、重大仪器专项、重大集成、重点、重大、杰青、优青、面上以及青年项目，中科院的先导专项 A、先导专项 B、科研装备研制项目，中组部万人计划和青年千人等各类人才项目，以及大连化物所的创新基金等。所有研究项目都按计划进行或结题。我室安排自主课题 8 项，合计总额为 223 万元。

2016 年我室研究人员共发表 SCI 文章 109 篇，其中化学学科 1 区文章共 20 篇，占总论文数的 18.3%。

1.承担任务

新增的项目包括主持 1 项中科院先导 B 项目，1 项基金委重大、1 项重点和 1 项杰青项目，以及 1 项科技部国家重点研发计划。

序号	课题名称	项目（课题）编号	负责人及单位	起止时间	总经费（万元）	本年度经费（万元）	经费来源	类别	类型	研究方向
1	复杂分子体系的激发态动力学	21533010	韩克利，大连化物所	2016.1-2020.12	317.4	162	基金委	主要负责	重点	复杂分子体系反应动力学
2	能源化学转化的本质与调控	XDB17010000	杨学明，大连化物所	2016.7-2020.12	18000	473	中科院	主要负责	先导B	化学反应动力学
3	实现高能化学激光的动力学基础研究	21590804	张东辉，大连化物所	2016.1-2020.12	1969.72	233	基金委	主要负责	重大	化学反应动力学
4	纳米结构的超高分辨表征研究	2016YFA0200600	马志博、周传耀、金盛烨，大连化物所	2016.7-2021.6	470	288.68	科技部	参与	国家重点研发计划	化学反应动力学
5	材料模拟与设计	21525315	邓伟侨，大连化物所	2016.1-2020.12	400	175	基金委	主要负责	杰青	材料动力学模拟与设计

2.研究工作水平

（1）代表性研究工作

（1.1） 气相分子反应动力学

代表性研究成果1 ：模式选择化学领域取得新进展

H+H2O→H2+OH 及其同位素取代物作为最简单的模式选择反应得到了理论和实验的广泛研究。该团队首次在理论上对 H + H2O 初始基态、第一对称和反对称伸缩振动激发态反应进行了全维态-态量子动力学研究。计算发现对称和反对称激发态反应表现的非常相似，更重要的是产生的 OH 都只有很小一部分在 v = 1 态上，分布比例和基态与激发态的相对反应性非常接近，从而证实了 local mode 图像，以及不反应的 OH 键在反应中作为旁观者。在 local mode 图像中，(100)和(001)态可以看作局域伸缩的线性组合，入射的 H 原子倾向于和激发起来的 OH 反应，使得产物 OH 主要在基态。

（1.2） 表面光化学动力学

代表性研究成果2 ：金属表面解离吸附动力学理论研究取得新进展

分子在金属表面解离吸附的动力学研究在多相催化等工业过程中占有重要的地位。该团队在其拟合的全维全域势能面上成功在全维（9 维）水平计算了 H2O 在 Cu(111)表面的解离吸附几率，从而首次实现了一个三原子分子在金属表面反应的全维量子动力学研究，被审稿人誉为“理解表面反应动力学的一个重要里程碑”。他们的研究发现全维量子解离几率与以往用减维模型得到的结果相差很大，证明只有全维量子计算才能精确描述此类反应。全维量子动力学还揭示了 H2O 的不同振动模式激发比平动能都能更有效地促进反应发生，并且效率明显要比减维模型得到的更为显著。该全维量子动力学研究也验证了该研究团队之前在双原子分子-表面散射中所发展的质心位点平均方法的准确性，表明该方法能广泛应用到多原子分子在金属表面的解离吸附动力学研究中，从而为精确模拟多原子分子-表面反应提供了一个重要的理论方法。

（1.3） 分子模拟与设计

重大研究成果：生物大分子微观作用机理的应用研究取得新进展

针对不同生物体系的重要科学问题，如何选择和综合利用这些计算模型及方法，是解决应用研究问题的关键所在。该团队利用结合增强型采样技术的分子动

力学模拟方案，以及利用 QM/MM/MD 方法计算底物结合和催化过程自由能的研究思路，揭示了蛋白本身和底物识别动态学过程、并利用 QM/MM 模型解析催化反应自由能变化的全景式研究手段，定量地从生物体系自身动态特性、底物结合过程以及催化反应动态学全景式阐明了辅助蛋白调控 MLL 甲基转移酶的底物结合和催化过程的微观机理，此研究为复杂蛋白酶复合物的功能机理解析提供了新的研究思路。通过发展新的计算策略，利用蛋白结构建模和优化技术获得完整单体蛋白质空间结构，结合长时间动力学模拟，采用蛋白间距离分布统计分析方法，成功预测了 AURKA-RNPK 蛋白复合物的结构，发现了 AURKA-RNPK 的相互作用加速肿瘤的发生和耐药，找到了相互作用的关键残基，指导实验合作者理性引入突变破坏相互作用。这一发现为复杂生物复合体结构研究和新一代药物设计提供了崭新的研究视角。

（1.4） 超快时间分辨光谱与动力学

代表性研究成果3 ：钙钛矿太阳能电池中载流子动力学研究取得新进展

探究钙钛矿薄膜微观形貌的非均匀性对载流子寿命、迁移率以及电池性能的影响对于进一步提高太阳能电池效率是非常必要的。利用自主搭建的时间分辨荧光扫描成像系统在亚微米空间尺度上成功实现了对微观区域载流子寿命，晶粒内部和晶粒之间的载流子扩散系数，晶粒内载流子迁移距离和载流子提取效率的直接成像测量；发现在高质量钙钛矿 CH3NH3PbI3（Cl）多晶薄膜中，晶粒内部载流子扩散速率很快，与大块钙钛矿单晶材料相近，载流子寿命较长，在不同大小和形状的晶粒之间的分布是非常均一的；由此证明钙钛矿膜表面微观形貌（晶块大小、边界等）的非均一性会损害薄膜光电性质的推断不完全正确。但是，当钙钛矿薄膜表面负载电子层和空穴传输层的时候，由于在钙钛矿和电子（空穴）受体界面存在的缺陷，不同晶粒表面载流子提取效率存在很大的差异，这很可能是限制太阳能电池效率进一步提高的关键因素。

代表性研究成果列表

序号	成果名称	完成人	刊物、出版社或授权单位名称	年、卷、期、页或专利号	类型	类别	研究方向
1	A local mode picture for H atom reaction with vibrationally excited H_2O: a full dimensional state-to-state quantum	刘舒，张东辉	Chemical Science	2016 年 7 卷 1 期 261 页	论文	独立完成	气相化学反应动力学

	dynamics investigation						
2	First-principles quantum dynamical theory for the dissociative chemisorption of H20 on rigid Cu(111)	张兆军,刘天辉,傅碧娜,杨学明,张东辉	NATURE COMMUNICATIONS	2016 年 7 卷 11953 页	论文	独立完成	表面化学反应动力学
3	Structural basis for activity regulation of MLL family methyltransferases	Li Yanjing，Han Jianming， 张跃斌，Cao Fang，Liu Zhijun，Li Shuai，Wu Jian，Hu Chunyi，Wang Yan，Shuai Jin， Chen Juan， 曹了然， Li Dangsheng，Shi Pan，Tian Changlin，Zhang Jian， Dou Yali， 李国辉，Chen Yong，Lei Ming	Nature	2016 年 530 卷 447 页	论文	非第一完成人(非独立完成)	分子模拟与设计
4	Nuclear AURKA acquires kinase-independent transactivating function to enhance breast cancer stem cell phenotype	Zheng Feimeng，Yue Caifeng，李国辉，He Bin，Cheng Wei，Wang Xi，Yan Min，Long Zijie，Qiu Wanshou，Yuan Zhongyu， Xu Jie，Liu Bing， Shi Qian，Lam Eric W.-F.， Hung Mien-Chie，Liu Quentin	NATURE COMMUNICATIONS	2016 年 7 卷 10180 页	论文	非第一完成人(非独立完成)	分子模拟与设计
5	Limiting Perovskite Solar Cell Performance by Heterogeneous Carrier	田文明,崔荣荣,冷静,刘俊学,李雅娟,赵春一,张军,邓伟侨,连天泉,金盛烨	Angewandte Chemie International Edition	2016 年 55 卷 13067 页	论文	独立完成	超快时间分辨光谱与动力学

二、队伍建设和人才培养

（1） 实验室队伍的总体情况

固定人员总数 66 名，包括科研、技术人员 63 名，管理人员 3 名。 各类人才包括：院士 4 名，万人 2 名，青千 3 名，百千万人才工程 3 名，杰青 5 名，优青 3 名，院百人 6 名。						
正高级			副高级		中级	
中科院院士	研究员	教授级高级工程师	副研究员	高级工程师	助研	工程师
4 名	15 名	1 名	23 名	2 名	19 名	2 名

在站博士后	博士研究生	硕士研究生
17 名	71 名	49 名

（2） 队伍建设、人才培养与引进情况

2016 年我室继续通过中组部万人计划、千人计划，省市各类人才计划，中科院各类人才计划以及所级人才计划，大力引进和培养各类人才，所里和实验室分别通过创新基金和自主项目着重向引进人才倾斜。

2016 年队伍建设的成绩如下：

(1) 张存浩获命名小行星殊荣

(2) 韩克利继 2015 年再次入选“2016 全球高被引科学家”名录

(3) 杨学明获全国优秀科技工作者称号

(4) 沙国河获全国科普工作先进工作者称号

(5) 肖春雷获中国化学会青年化学奖。

(6) 李国辉获国家自然科学基金委员会杰出青年科学基金项目的支持。

(7) 引进基金委优青 1 名：任泽峰

(8) 韩克利受聘中科院特聘研究员“特聘核心骨干”。

(9) 郭庆入选中国科学院青年创新促进会会员。

(10) 孙志刚、邓伟侨入选辽宁省第十批“百千万人才工程”百人层次，傅碧娜、周传耀获万人层次。

(11) 杨学明受聘为大连化物所首批“张大煜杰出学者”；邓伟侨、李国辉、张东辉、韩克利等受聘为首批“张大煜优秀学者”；任泽峰、孙志刚、张未卿、金盛烨、董文锐等受聘为首批“张大煜青年学者”。

(12) 韩克利受聘大连化物所首席研究员。

(13) 新增硕士生导师 2 名：肖春雷、郭庆

2016 年我室在站博士后 17 名，在读研究生共 120 名（含联合培养 40 名），其中博士在读 71 名，硕士在读 49 名。毕业博士研究生 11 名。

邵科杰获博士研究生国家奖学金，王玉奉获硕士研究生国家奖学金；王志强获中科院院长奖优秀奖，汪涛的学位论文获得中科院优秀博士学位论文，杨学明获中科院研究生院优秀指导教师奖。

（3） 培养或引进的优秀人才简介

（3.1） 李国辉

李国辉，男，博士，1972 年出生，研究员、博士生导师。主要研究方向：分子动力学模拟的新方法发展及应用研究。已发表 SCI 文章 88 篇，在 Nature 上发表文章 1 篇，在 JACS 上发表文章 2 篇，在 JCTC 上发表文章 6 篇，在 Nat. Comm., Chem. Sci.上个发表论文各 1 篇。2010 年入选中科院“百人计划”，并于次年获得择优支持。2016 年获国家自然科学基金杰出青年基金的支持。应邀多次做国际会议邀请报告和论坛主席，被 Sci. Rep.等 3 个英文国际期刊聘为编委。2013 年中科院超级计算年会上获得首届最佳应用奖；2014 年全国并行应用挑战赛总决赛中，荣获“最佳应用铜奖”；2014 年获得第五届中国侨界（创新人才）贡献奖。

（3.2） 任泽峰

任泽峰，1981 年生。2004 年在中国科学技术大学获学士学位， 2009 年在大连化物所杨学明教授的指导下获化学博士学位。后跟随 Martin Wolf 教授在马克思普朗克研究学会的 Fritz Haber 研究所从事博士后工作，2011 年起在北京大学担研究员职务，2016 年作为人才引进到大连化物所工作。研究领域为超快表面动力学尤其是表面光催化及表面和频产生和双光子发光光谱。曾获得国家自然科学奖二等奖；主持国家自然科学基金优青项目，仪器专项，重大项目的子课题等。研究成果入选 2006 和 2007 年中国十大科技进展新闻。发表论文近 30 篇，以第一作者、共同第一作者和通讯作者发表 Science 2 篇，PNAS 1 篇，J. Phys. Chem. L 1 篇，Chem. Sci. 2 篇，Chem. Soc. Rev.1 篇等。

三、开放与合作交流

1. 概述本年度实验室国内外学术交流与合作的主要情况。

2016 年，本实验室科研人员以及在读研究生约有 137 人次出席国内学术会议或讲学，17 人次参加国际学术会议或讲学，21 人次海内外专家学者到实验室访问或进行合作研究。

瑞典隆德大学 Pullerits Tönu 教授通过中科院“国际人才 PIFI” -国际访问学者计划，台湾国立交通大学朱超原教授通过大连化物所高级伙伴研究员计划来访并进行学术讲座和交流。此外，美国克罗拉多大学 Rex T. Skodje 教授、荷

兰奈梅亨拉德邦大学分子与材料研究所 David H. Parker 教授以及法国 Montpellier 大学分子化学与材料学研究院 Fabien Gatti 教授等与我室有合作交流。

国际著名的理论化学家，美国科学院院士，美国国际量子分子科学院院士，美国物理学会会士，英国皇家化学学会会士，ISI 高被引科学家，美国加州理工学院化学材料与过程模拟中心主任 WILLIAM A. GODDARD III 教授，应我室邓伟侨研究员邀请受聘大连化物所张大煜讲座教授并作题为“Quantum Mechanics based mechanisms for selective catalytic reactions”的报告。国际著名生物化学家，美国国家科学院院士，美国艺术与科学院院士，美国化学会会士，美国科学促进会会士，美国化学研究评论（Accounts of Chemical Research）杂志主编，美国有机化学（Journal of Organic Chemistry）期刊高级编辑，美国犹他大学化学系特聘教授 Cynthia J. Burrows 女士，应我室邀请受聘大连化物所张大煜讲座教授并作题为“Using Nanopores to Interrogate DNA: Examining Base Modifications and Unfolding Dynamics in Single Molecules”的报告。

2.公众开放活动的目的意义，开放对象，活动内容，取得成效。

在 5 月 13-14 日大连化物所举办的“公众开放日”活动中，我室作为重要展点之一迎接了约 6000 名来自大、中、小学校的青少年学生和社会公众参观者，使其感受科学氛围、了解科研过程、体验科学乐趣、触摸科技前沿。上午九点，会议中心座无虚席，在大家的翘首期盼中，沙国河院士的科普讲座“奇妙的科学实验”开讲了。“神奇的激光、静电的产生与应用、马德堡半球、太阳能的应用、伯努利原理、光纤传输、电磁感应现象、视觉误差……”一系列的科学知识，在八十二岁高龄的沙院士手中，变成了一个个魔术表演，让台下听众们赞叹不绝。沙国河院士获 2016 年度全国科普工作先进工作者荣誉称号。另外，肖春雷研究员也作了“神奇的激光”科普报告，获得了参观者的好评。

3 月 18 日，民盟大连市委专职副主委郭连喜以及 30 余名新盟员来室参观学习。5 月 16 日，浙江师范大学党委书记陈德喜、校长蒋国俊一行六人访问我室，并与我所签订中国科学院大连化学物理研究所-浙江师范大学战略合作协议。5 月 18 日，德国哥廷根大学校长 Ulrike Beisiegel 女士、Alec Wodtke 教授一行三人访问我室。

今年陆续有，南开大学物理科学学院 19 名师生、南开大学伯苓班 22 名师生、武汉大学 28 名师生，中国科学技术大学化学与材料科学学院和郑州大学化学与分子工程学院 45 名师生来我室参观学习。

3. 实验室作为本领域公共研究平台的作用，大型仪器设备的开放与共享情况。

2016 年度，国内外多人次通过开放课题和合作培养研究生等机制，利用本室的研究实验系统和计算机机群，进行和研究工作。例如大连理工大学陈茂笃教授派出的研究生在我室进行了卓有成效的研究工作。

我室设备的特点是专用性高且开放共享，在具体的使用和运行管理方面，有以下措施：

（1）实验室的实验系统均采取免费服务。

（2）所有设备都对全室和室外用户开放，原则上室外用户优先使用。

（3）实验室设立开放课题，室外用户可以随时自主申请开放课题。

（4）合作培养研究生是非常卓有成效的开放方式，因为合作培养的研究生可以在我室复杂的实验研究系统上进行长时间的训练和学习，从而得到非常好的研究成果。

四、专项经费执行情况与效益分析

1. 自主研究课题的设置及执行情况。

我室安排自主课题共 8 项，合计总额为 223 万元。我室自主课题主要用于资助新引进人才、培育具有良好发展潜力的新的研究课题以及研发新的先进的物理化学实验和理论研究技术、仪器和方法。

（1） 甲烷的泛频激发对与其相关反应动力学影响的研究

负责人：杨家岳

执行情况：

重点研究了反应 $CH4(v_3=2)+F$ 中，泛频振动激发态反应的相对反应性的定量数据，探究了该反应随碰撞能的变化规律。

（2） “化学键软化”机理导致的共振态是普遍存在的吗？

负责人：肖春雷

执行情况：

利用里德堡态氢原子飞行时间谱-交叉分子束装置，结合受激拉曼振动激发技术，制备了足够强的 OH 分子束，获得了足够强的 OH+D_2/HD（v=0）的交叉分子束结果，制备振动激发的 D_2/HD 分子，实验最终并没有观测到分子激发现象。

（3） 多原子分子在金属表面解离的量子动力学研究

负责人：张兆军

执行情况：

利用高维量子动力学方法研究了甲烷在金属催化剂镍(111)表面分解动力学机制，重点阐述了表面碰撞位点和方位角对甲烷分解概率的影响。利用八维量子动力学方法研究了甲烷在金属镍(100)表面碰撞几率和其同位素效应。发展了 H_2O 分子在金属表面解离化学吸附的全维量子动力学方法，第一次对 H_2O 在刚性 Cu(111)表面解离反应进行了 9 维量子动力学计算，这一工作在分子-表面量子动力学研究领域来说是一项非常重要的进展。

（4） 飞秒时间分辨紫外光电子能谱装置

负责人：周传耀

执行情况：

完成了紫外光电子能谱装置超高真空腔体部分、样品处理与表征部分、溢流分子束气体进样部分的设计与采购；完成了极紫外光束线的设计与加工，包括高次谐波的产生与选择、高次谐波光与泵浦光合并腔体。

（5） 二维红外光谱研究离子水溶液低温和超高压动力学

负责人：袁开军

执行情况：

利用二维红外光谱技术通过对其乙腈分子转动时间的测量，研究了锂离子在乙腈溶液中的配位数。利用超快时间分辨的化学交换光谱实时地证明了氢键解离和生成过程中同位素效应对化学交换无影响。利用超快振动光谱研究了锂盐-丁二腈形成的塑料晶体形态的电解质中的溶解动力学过程。

（6） 团簇的 IR-VUV 光谱研究

负责人：江凌

执行情况：

购置了一套高压脉冲阀（Even-Lavie valve），用于团簇光谱与动力学研究，现在已进行了仪器整体设计和搭建，仪器组装与调试。利用这套装置，采用 118nm 和光参量振荡激光器产生的红外激光，成功地测得了与大气雾霾相关的中性甲胺二聚体的红外谱图，这一工作正在投稿中。

（7） 钙钛矿薄膜中界面电荷转移的超快动力学研究

负责人：冷静

执行情况：

利用飞秒瞬态吸收光谱技术研究了从钙钛矿薄膜到电子受体（PCBM）和空穴受体（spiro-OMeTAD）的 CT 动力学的薄膜厚度依赖性，这一成果已经发表在 J. Phys. Chem. Lett.上。采用飞秒瞬态吸收光谱及荧光光谱技术研究了包含不同 n 值组分的 2D 层状钙钛矿薄膜及其载流子的动力学过程，这一成果已发表在 J. Am. Chem. Soc.上。

（8） MTR4 与 NRDE2 蛋白质相互作用分子机制及功能微观机理的理论与实验研究

负责人：李国辉

执行情况：

发现过表达 NRDE2 抑制 hMTR4 与 exosome、CBC 及 TRAMP 和 NEXT 复合体之间的相互作用，已经得到总要蛋白的单体和复合物晶体，并且做了 X 射线衍射实验，正在进一步优化结晶条件，实现更高解析度的晶体结构。

2. 开放课题的设置及执行情况。并简要介绍 1-2 项利用开放基金完成的优秀成果。

分子反应动力学的研究投入大，因此我室尽量满足各科研机构利用我室设备和条件进行研究的需求。2016 年我室安排开放课题共 16 项，当年支出经费 31 万元，共发表 SCI 研究论文 15 篇。重要进展如下：

青岛大学楚天舒教授利用实验室开放课题的资助，在大分子体系激发态动力学方面开展了研究工作。阐明了乙醇溶液中香豆素 153 的激发态氢键动力学机理和氰离子化学荧光传感器的荧光检测机理，撰文总结介绍了通过与本实验室合作研究在光诱导液体激发态动力学领域提出的一些新机理和新发现。本年度共发表 SCI 论文 5 篇（含封面文章 1 篇）。

辽宁大学宋朋教授利用实验室开放课题的资助，在激发态电子转移动力学方面开展了研究工作。在不同外电场条件下选取一个频率为ωeff 的有效振动模式来代替相关的高频振动，确定了有效 Huang-Rhys 因子 Seff=λi/hνeff，为研究外电场对体系激子解离和电荷复合过程的影响提供了理论依据。此外，借助本项目对电荷转移前后π电子重新分布、电子相干性、电子态能级结构以及激发态核构型变化等研究结果和分析方法，将本项目研究的内容向激发态质子转移动力学领域做了探索性的延伸，提出了新的多质子转移机理，并也取得了一定的研究成果。本年度共发表 SCI 论文 6 篇。

五、依托单位的支持

1.依托单位在人、财、物条件方面的保障和支持（应与填报的数据一致）。

类别	2015 年度	2016 年度	增长数	增长比率
专职管理人员（个）	3	3	0	0
专职技术人员（个）	4	5	1	25%
硕士研究生招生（个）	11	9	-2	-18.2%
博士研究生招生（个）	8	15	7	87.5%
单位配套运行费（万元）	0	0	0	0
单位配套设备费（万元）	0	0	0	0
实验室总面积（平米）	5861	5861	0	0
实验室总资产（万元）	21163	27605	6442	30.4%

2.依托单位给予的其他支持

在 2016 年期间，实验室从大连化物所获得各种资助 210 万元，主要用于资助本室院士杰青等各类人才。从中国科学院获得的资助总额 2213.18 万，主要用于资助先导项目，实验室仪器升级改造，以及院级各类人才如国际访问学者、卓越青年科学家、青促会会员等。

实验室主任：张东辉研究员
学委会主任： 郑兰荪院士

2016 ANNUAL REPORT

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

地址：大连市沙河口区中山路457号
http：www.sklmr.dicp.ac.cn