

大连化物所实现化学反应的立体动力学精准调控

2023-01-13 来源：大连化学物理研究所

【字体：大 中 小】


 语音播报


化学反应无处不在。如何精确调控化学反应是化学科学研究的核心目标之一。在化工生产过程中，工程师通过添加催化剂、改变化学过程的温度与压力等宏观参数，可以在一定程度上控制化学反应，得到所需的化学反应产物。随着人类对化学反应的认识不断深入到原子分子尺度和量子态的层面，如何在微观水平上进一步发展精确调控化学反应的原理和方法，成为科学家孜孜以求的目标。

近日，中国科学院院士、大连化学物理研究所研究员杨学明与研究员肖春雷实验团队，联合中科院院士张东辉与副研究员张兆军理论团队，在这一研究方向上取得重要进展。该研究通过控制分子化学键方向，实现了化学反应的立体动力学精准调控。1月13日，相关研究成果以长文 (research article) 的形式，发表在《科学》(Science) 上。审稿人对于该工作给予了高度评价。

化学反应的实质是原子、分子等微观粒子相互碰撞并引发旧化学键断裂、新化学键形成的过程。立体动力学效应是化学反应中基础而重要的问题，关注碰撞过程中反应物分子的空间取向对反应过程的影响。立体动力学效应的根源在于反应物分子并非简单的质点，而是有着具体的结构和形状。例如，氢分子由两个氢原子通过共价键连接形成，如同一个“哑铃”。因此，当另一个反应物与氢分子发生碰撞时，它从氢分子的一端发起攻击，或者直接攻击氢分子的共价键，这两种情况的反应几率和相应的动力学过程或表现出明显的差别。一直以来，如何利用化学反应中的立体动力学效应，实现对化学反应过程和结果的精细控制，是化学动力学研究中的前沿问题之一。

氢分子是最简单的分子，且是非极性双原子分子，在与另一分子相互接近的过程中，不易发生取向变化。因此，氢分子参与的基元化学反应是研究立体动力学效应的理想模型。然而，一直以来，人们难以在实验上制备足够数量的具有特定取向的氢分子，因而无法探究相关反应中的立体动力学现象。

为了应对这一挑战，杨学明、肖春雷实验团队研制了高能量、单纵模纳秒脉冲光参量振荡放大器，实现了对氢分子的立体动力学调控。该团队通过在受激拉曼激发过程中操控激光光子的偏振方向，在分子束中将氢分子制备于特定的振动激发态，同时赋予氢分子的化学键特定的空间取向。

进一步，利用基于极紫外激光技术的态-态分辨氢原子里德堡态飞行时间谱探测方法，结合交叉分子束技术，实验研究团队仔细测量了在0.50 eV、1.20 eV、2.07 eV三个碰撞能量下，两种不同构型的氢氘分子 (HD) 与氢 (H) 原子的 $H+HD \rightarrow H_2+D$ 反应结果，发现产生的氢分子 (H_2) 的量子态和散射角度分布存在显著的立体动力学差异。

为了探索其中的动力学过程，张东辉、张兆军理论团队开展了非绝热量子动力学模拟，精确重现了实验所观测到的现象，并结合极化微分截面理论方法，剖析了该反应中存在的立体动力学效应，揭示了量子干涉现象在垂直碰撞构型反应中发挥了重要作用。

“之前的化学反应研究可能像“抽盲盒”，它是由本来的量子属性决定的，科研人员不能随便控制，我们只能有一定的概率抽取到想要的结果。”张东辉说，“但现在我们可以通过精确的控制，激发特定化学键并控制它的方向，直接得到自己想要的结果。”

该工作通过高精度的实验和理论研究，验证了通过氢分子量子态空间取向的操控，可以对化学反应进行精细调控，表明了人类对化学反应的认识和调控达到了新高度。研究工作得到科技部科技创新2030重大项目、国家自然科学基金、中科院科研仪器设备研制项目等的支持。

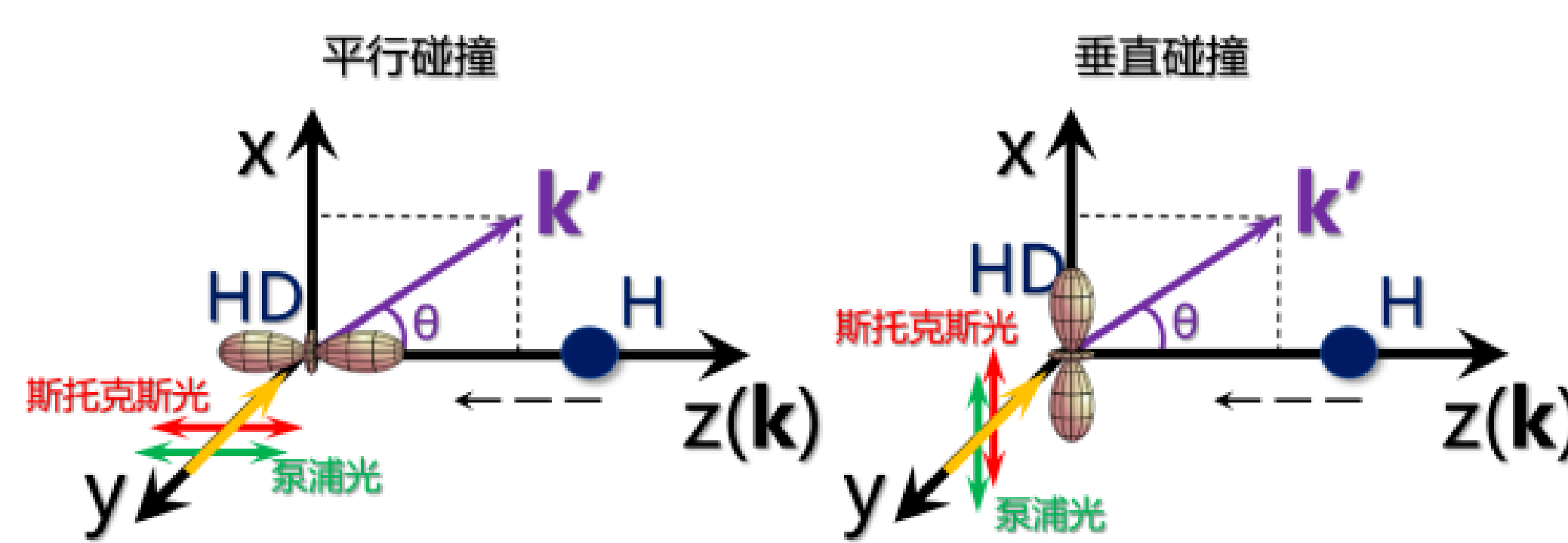


图1.利用激光控制HD分子化学键的方向，使其以两种构型与H原子发生碰撞。z轴为HD分子和H原子的相对运动方向。利用激光，研究团队可以将HD分子制备于两种不同的碰撞构型：一种构型中，HD的键轴分布平行于z轴（左图）；另一种构型中，HD的键轴分布垂直于z轴（右图）。用于受激拉曼激发的泵浦光、斯托克斯激光沿y轴方向传播，绿色、红色双箭头表示它们的偏振方向。

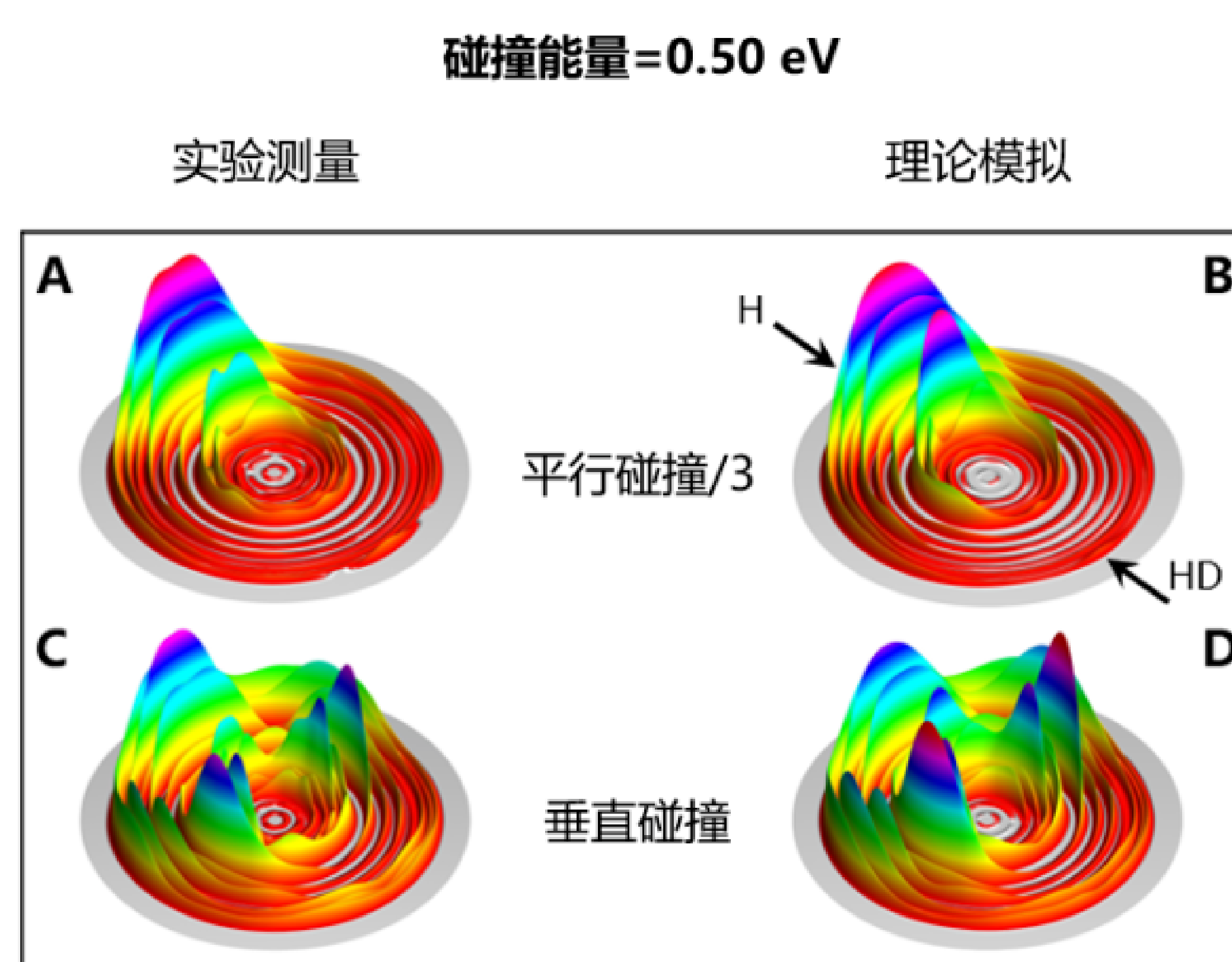
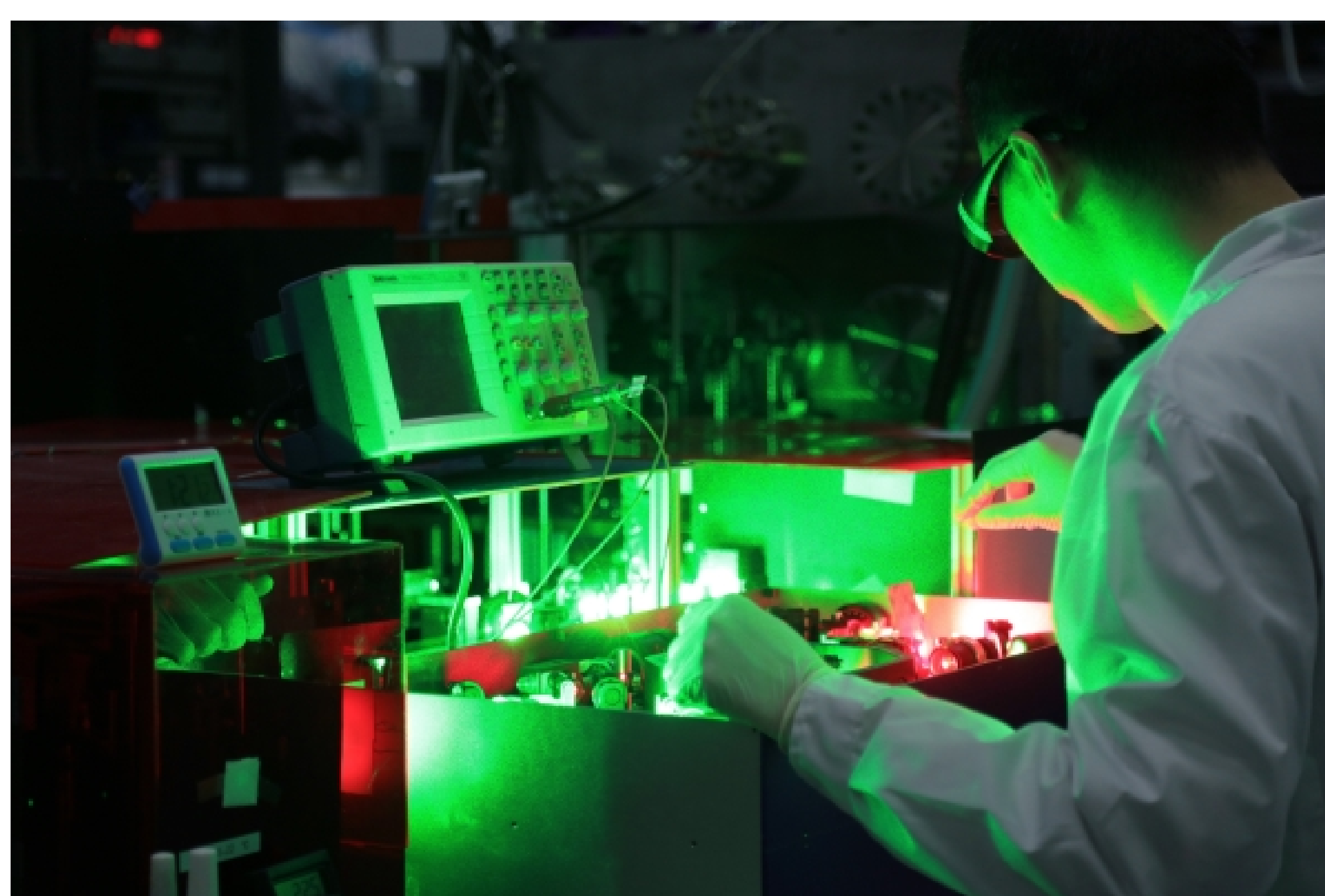


图2.在0.50 eV碰撞能下，两种不同的碰撞构型的 $H+HD \rightarrow H_2+H$ 反应的微分反应截面差异非常明显（左列：通过交叉分子束实验测量得到；右列：通过量子动力学理论模拟得到）。图中不同圆环代表不同振转态的 H_2 分子产物，圆环的高度代表在相应的散射方向上的 H_2 分子产物的相对数量。



大连化物所研究人员在控制氢分子化学键取向的激光器前工作。

 责任编辑：侯茜 打印     更多分享

> 上一篇：化学所纳流体仿生功能研究获进展
 > 下一篇：中国科大等在新型碳基晶体研究方面取得重要进展



扫一扫在手机打开当前页