

# 大连化物所等揭示化学反应中的“双漫游”机理

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13903.html>

**本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！**

近日，中国科学院院士/中科院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室研究员张东辉、大连化物所分子反应动力学国家重点实验室研究员傅碧娜团队与大连理工大学教授韩永昌合作，发现了化学反应中的“双漫游（double-roaming）”机理。

漫游（roaming）机理是化学反应中不寻常但有趣的机理，通过漫游机理会导致意想不到的产物，并且其呈现的产物末态分布与传统的最小能量路径呈现的分布完全不同。尽管漫游机理在单分子解离和双分子碰撞反应中均有被发现和报道，但在同一反应中的多重漫游途径较罕见。

该研究中，通过构建基于基本不变量-神经网络

的高精度全

维势能面和动力学计算，研

究人员在重要的双分子燃烧反应“ $\text{H} + \text{C}_2\text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2 + \text{C}_2\text{H}$ ”

中发现了新奇的“双漫游”机理

：一种漫游路径为： $\text{C}_2\text{H}_3$

即将解离成氢原子和乙炔分子（ $\text{HCCH}$ ），但并未解离，而分离的氢原子在乙炔附近徘徊，最终从乙炔提取氢原子生成 $\text{H}_2$ ，该路径被命名为乙炔促进的漫游（acetylene-facilitated roaming，A-roaming）；另一个漫游机制为：氢原子

从最初形成的 $\text{C}_2\text{H}_3$ 迁移，随后 $\text{C}_2\text{H}_3$

即将解离成氢原子和亚乙烯基（ $\text{H}_2\text{CC}$ ），

出去的H原子在亚乙烯基周围漫游，最后从亚乙烯基中抽取另一个H原子，该路径被命名为亚乙烯基促进的漫游（vinylidene-facilitated roaming，V-roaming）。在高碰撞能下，“双漫游”途径

约占 $\text{H}_2 + \text{C}_2\text{H}$

H产物总积分截面的95%，其中，乙炔促进的漫游途径占89%，亚乙烯基促进的漫游途径占6%

。两种漫游路径均产生了高内能激发的 $\text{C}_2\text{H}$

H产物，通过常规过渡态的直接抽取路

径则产生较冷的 $\text{C}_2\text{H}$

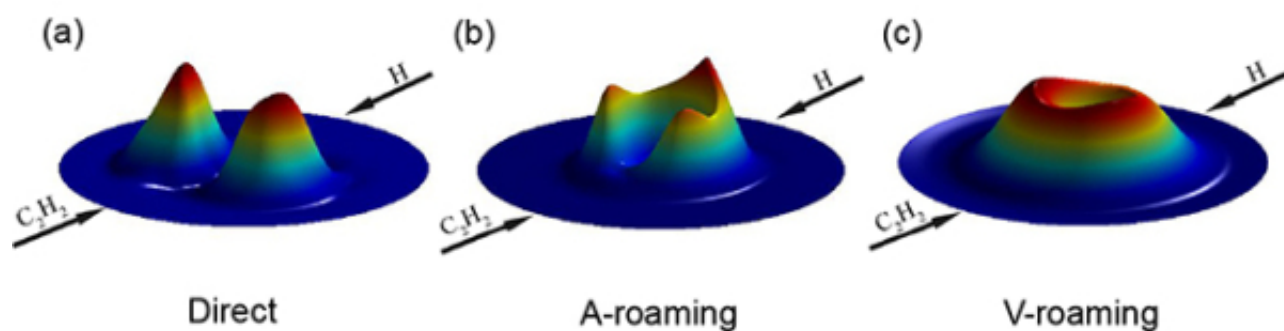
H。该研究的计算结果为两种异构体（乙炔和亚乙烯基）在化学反应动力学中的重要性、以及在该双分子反应中漫游动力学的实验研究提供了重要启示。

相关研究成果以Double-Roaming Dynamics in the  $\text{H} + \text{C}_2\text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2 + \text{C}_2\text{H}$  Reaction: Acetylene-Facilitated Roaming and Vinylidene-Facilitated Roaming为题，发表在《物理化学快报》（The Journal of Physical Chemistry

Letters

)上。大连化物所反应动力学理论与计算研究组2017级联培博士研究生付艳林为论文第一作者。研究工作得到国家自然科学基金、科学技术部重点研发计划、中科院战略性先导科技专项(B类)“能源化学转化的本质与调控”等的支持。

[论文链接](#)



三种反应路径H<sub>2</sub>产物在平动能和角度上的三维分布对比图，其中(a)为直接抽取；(b)为A-漫游；(c)为V-漫游

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 <https://www.iikx.com/news/progress/>

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，[爱科学iikx.com](http://www.iikx.com)转发