
中国科学家获得多原子分子反应过渡态迄今最完整的图像

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21265.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！

中国科学家获得多原子分子反应过渡态迄今最完整的图像。北京时间2022年12月13日，中国科学院精密测量科学与技术创新研究院宋宏伟副研究员、美国新墨西哥大学郭华教授与加利福尼亚大学伯克利分校Daniel M. Neumark教授团队合作在Nature Chemistry期刊上发表了题为Observation of resonances in the transition state region of the $F + NH_3$ reaction using anion photoelectron spectroscopy的研究成果。

该工作利用高分辨率的慢光电子速度成像技术，结合高精度的量子动力学计算，获得了多原子分子反应过渡态目前最为完整的图像，对于理解多原子分子反应的反应机理具有重要意义。

论文通讯作者是宋宏伟、Daniel M. Neumark;第一作者为Mark C. Babin。

化学反应过渡态决定了化学反应的基本特性。对于多数化学反应，反应过渡态的寿命非常短，实验观测非常困难，因此，直接观测反应过渡态被认为是化学研究中的一个圣杯。共振态是反应体系在过渡态区域形成的具有一定寿命的准束缚态，它为研究化学反应在过渡态附近的行为提供契机，因而可以通过研究共振态的结构与动力学揭示化学反应的微观机理。

多原子分子反应 $F + NH_3 \rightarrow HF +$

NH_2 的反应路径上存在一个低于反应物能量的势垒(图1)，而且负离子 $F-NH_3$ 与 $F + NH_3$ 反应过渡态区域存在非常强的Franck—Condon重叠，是采用负离子光电谱技术研究过渡态结构的理想体系。该工作结合慢光电子速度成像光谱实验和量子动力学理论，观测到多原子分子反应 $F + NH_3 \rightarrow HF + NH_2$ 过渡态区域的多个振动Feshbach共振峰(图2)。共振波函数表明这些Feshbach共振态位于产物端势阱、过渡态和反应物端势阱等区域(图3)，成由于单个或多个反应体系振动模式的激发。由于部分Feshbach共振态的能量高于反应物势能，因而可能影响化学反应的速率和量子态分布。该研究工作获得了多原子分子反应过渡态目前最为完整的图像，表明过渡态光谱技术已经具备探究多原子分子反应过渡态区域复杂动力学行为的能力。

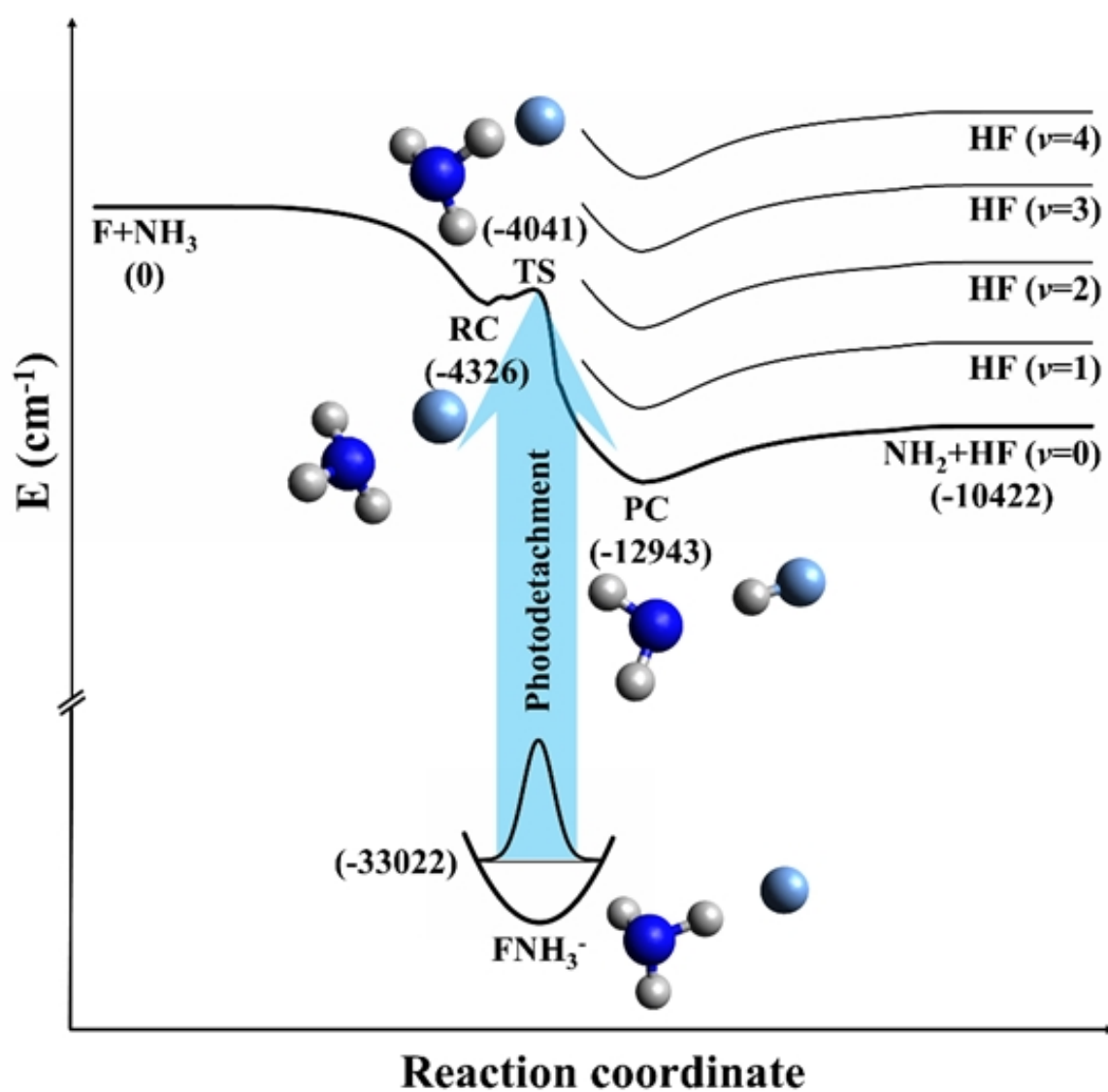


图1：负离子F-NH₃光脱附至中性F+NH₃反应过渡态区域的能级图。

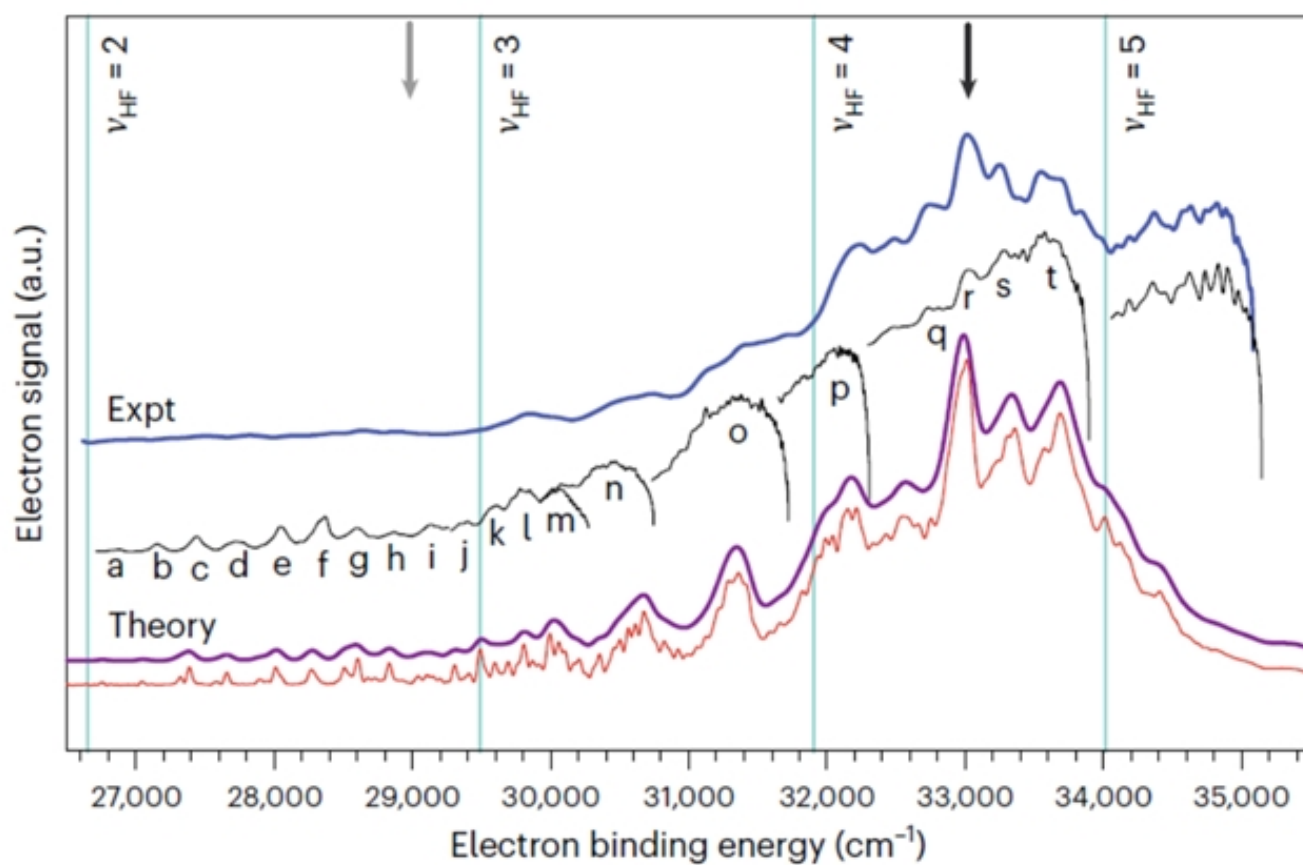


图2：实验测量与理论计算的F-NH₃光脱附谱。

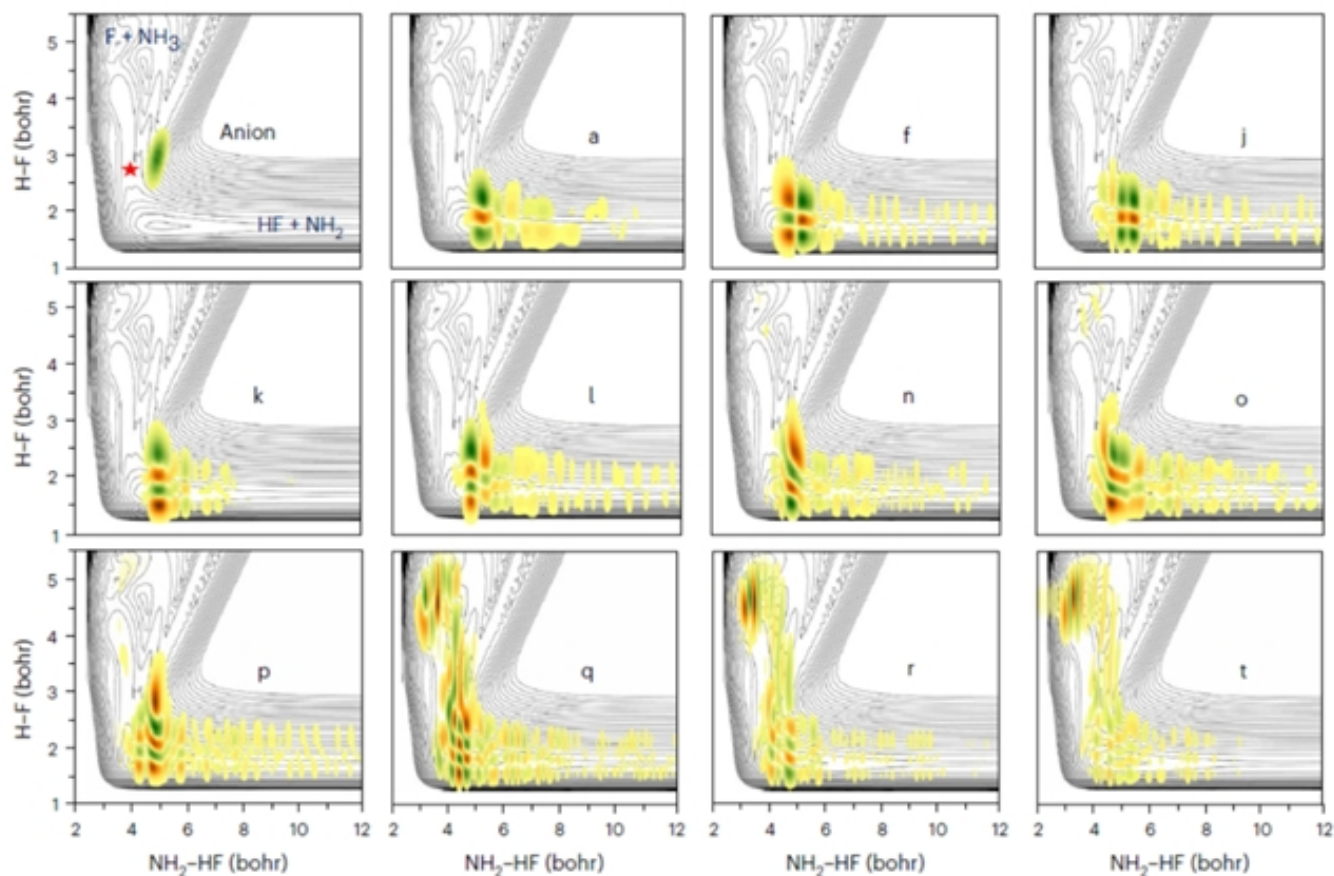


图3：F-NH₃负离子基态与不同Feshbach共振态波函数的分布。

该工作得到了自然科学基金创新研究群体项目(21921004)和面上项目(21973109)的支持。(来源：科学网)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41557-022-01100-1>

作者：宋宏伟等 来源：《自然—化学》

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](https://www.iikx.com)转发