

双剑合璧！科学家“掌舵”分子论证基础化学反应

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21611.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！

双剑合璧!科学家“掌舵”分子论证基础化学反应。

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，工程师们常常通过添加催化剂、改变化学过程的温度、压力等宏观参数，在一定程度上控制化学反应，得到了所需的化学反应产物。但是随着人类对化学反应的认识不断深入，目前已经达到了原子分子尺度和量子态的水平，能够在更精细的水平上对化学反应进行调控是许多科学家追求的方向。

中国科学院大连化学物理研究所(以下简称大连化物所)杨学明院士、肖春雷研究员团队联合张东辉院士、张兆军副研究员团队从实验和理论双重角度，在 $H+HD$ 反应中实现了立体动力学精准调控，对化学反应的认识达到了一个新的水平。相关成果发表于《科学》(Science)杂志，审稿人评价该工作是反应动力学领域里程碑式的突破。



研究人员在控制氢分子化学键取向的激光器前工作(受访者供图)

激光的妙用

立体动力学效应是化学反应中一个基础而重要的问题。

它主要关注的是碰撞过程中反应物分子的空间取向对反应过程有何影响，其根源在于反应物分子并非简单的质点，而是有具体的结构和形状。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。

而氢分子是化学世界中最简单的分子。在与另一分子相互接近的过程中，由于其是非极性双原子分子，不容易发生取向变化而丢失原有的取向。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，这吸引了很多科学家的注意。氢分子就像一个哑铃，由两个氢原子通过类似弹簧的共价键连接形成的。

‘弹簧’自然就可以伸长或者缩短，肖春雷解释道，当另一个反应物与氢分子发生碰撞时，弹簧的状态会导致化学反应表现出非常大的差异性。

化学反应的实质是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。一直以来，在碰撞过程中控制分子化学键的方向，是一件十分困难的事情。由于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，因而无法研究相关反应中的立体动力学现象。

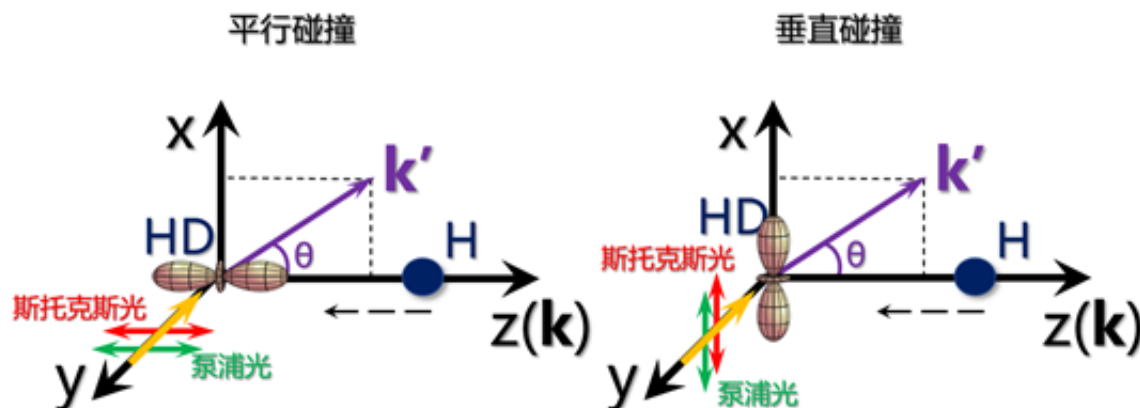
团队迅速想到了几种解决办法，最先考虑的是磁场和电场。磁铁具有磁性，容易被磁场控制，这是磁力作用的体现，但是分子本身的磁性是非常微弱的，难以用磁场对其方向进行控制；而电场很难用于中性分子的控制，而对于氢分子这类非极性分子，它更是无计可施。

电磁波这时走进了团队的视线。

电磁波就是日常生活中常说的光。激光具有极高的亮度，能发挥足够强的作用来控制方向。不过对于氢分子而言，要控制其方向，对于激光各方面的参数又有相当高的要求——激光需要非常亮，激光的颜色需要非常单一，同时波长稳定性要非常好，需要长时间锁定在分子的跃迁谱线上。论文第一作者王玉奉说道。

针对这个挑战，我们自主研发了一种高能量、单纵模纳秒脉冲光参量振荡放大器。肖春雷说。利用激光制备技术，以前只能被动观测的我们，现在可以调控化学键的方向，从而主动控制碰撞过程。

将该激光作用于氢分子后，可以将氢分子激发至振动激发态。由于振动激发态氢分子化学键的方向跟激光电场方向相平行，改变激光的电场方向便可改变分子方向。而激光电场方向又被称为偏振方向，可以简单通过波片这一光学器件对其进行控制。波片如同船舵一般，通过转动波片就可以改变分子化学键的方向，从而控制氢分子在化学反应中的碰撞方向。氢氘分子(HD)与普通的氢分子(H₂)稍有不同，区别在于普通氢分子中的一个氢原子被替换为了其同位素氘(D)原子。团队选择HD作为研究对象，通过控制其化学键的方向，进行了两种典型的碰撞过程研究：平行碰撞与垂直碰撞。在平行碰撞构型中，HD的键轴分布平行于z轴；而在垂直碰撞构型中，HD的键轴分布垂直于z轴。



用激光将HD分子制备于两种不同的碰撞构型(受访者供图)

通过在受激拉曼激发过程中操控激光光子的偏振方向，杨学明、肖春雷实验团队可以在分子束中高效地将能量注入氢分子的化学键，同时赋予化学键特定的空间取向，成为了解决这个问题的关键先生。

氢分子的碰撞

有了控制氢分子化学键方向的技术之后，化学反应的研究也驶入了快车道。

化学反应都是通过碰撞发生的，而交叉分子束技术可以研究化学反应的碰撞过程，通过将反应物分子制备到特定的速度、量子态之后，再进行相互碰撞，可以获得其中的反应机理信息。

团队通过控制HD分子化学键的方向，研究了两种典型的碰撞过程：平行碰撞与垂直碰撞。碰撞之后，反应得以发生，得到的氢分子与氘原子会散射到各个方向，就像台球碰撞后向四处散去，获得了不同的散射方向。

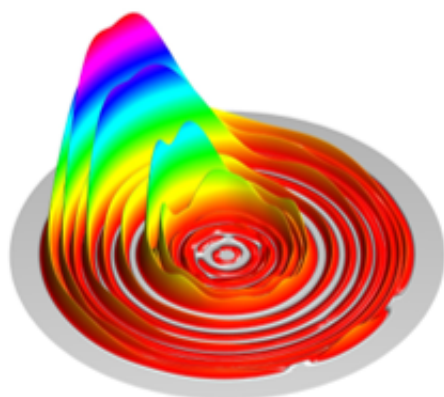
而反应物速度不同，带来的碰撞能量也是不一样的。

就像两辆汽车对撞过程中物体速度不同，因此撞击能量不同，碰撞带来的破坏力也有着很大的差别。王玉奉解释道。

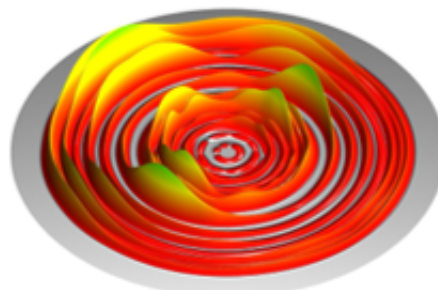
团队进行了三种碰撞能量下的实验，能量分别为0.5 eV，1.2 eV，2.07 eV。此处eV是电子伏特，将之转换为常见的温度单位开尔文(K)，则分别为5800 K，14000 K，24000 K，因此碰撞能量是极高的。实验测量表明，在不同能量下，反应物HD以不同的取向发生碰撞，导致的结果也是明显不同的。

平行碰撞

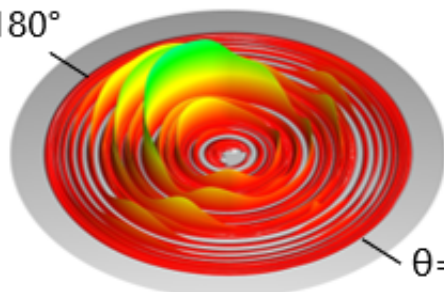
垂直碰撞



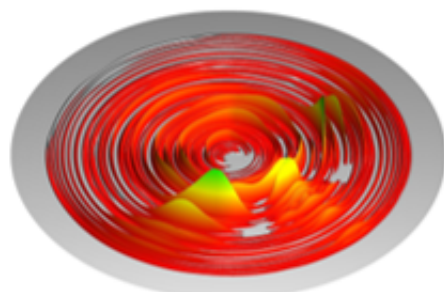
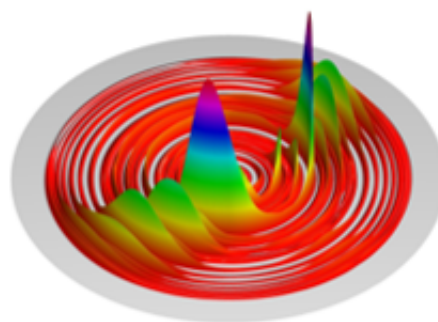
0.5 eV



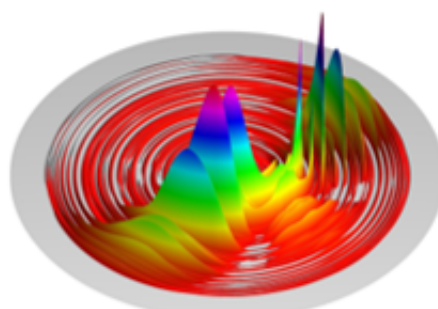
$\theta=180^\circ$



1.2 eV



2.07 eV



两种碰撞过程的区别(受访者供图)

我们称该反应具有强烈的立体效应。王玉奉说。

实验部分顺利完成，但是团队显然并不满足于此。

理论与实验的结合

为了理解其中的动力学过程，张东辉、张兆军理论团队又开展了非绝热量子动力学模拟。

为什么团队想到要采取非绝热量子动力学模拟呢？

论文的共同第一作者黄嘉宇解释道：因为非绝热过程在分子反应中扮演着重要的角色，只有开展非绝热量子动力学模拟才能精确解释涉及非绝热过程的分子反应实验结果。

通过该模拟过程，精确重现了实验所观测到的现象，并且结合极化微分截面理论方法，详细分析了该反应中存在的立体动力学效应。团队在考虑干涉和不考虑干涉两种情况下，发现了其结果有着明显的差别，并揭示了量子干涉现象在垂直碰撞构型反应中发挥了重要的作用。

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好的，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。张东辉介绍道，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。

我觉得我们顺利完成这个工作最重要的原因，是有精确的理论，能够揭示了实验观测背后的物理图像，然后反过来实验又为理论模型的进一步发展提供了反馈，实现了理论与实验的‘双剑合璧’。肖春雷说。

理论与实验结果的一致性，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。为将来建立精确的化学反应理论体系、发展主动调控化学反应的方法，提供了新的思路。

未来我们会继续合作，研究更低碰撞能或更高碰撞能的多原子化学反应的立体控制效应、反应共振、量子干涉等现象。这些工作对于理论和实验来说都是极具挑战性的，会极大扩展我们对化学反应的认识。张兆军告诉《中国科学报》。

该工作的共同第一作者是大连化物所博士后王玉奉、黄嘉宇。研究工作得到了科技部科技创新2030重大项目、国家自然科学基金、中国科学院科研仪器设备研制项目等的支持。(来源：中国科学报 孙丹宁)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1126/science.ade7471>

作者：杨学明等 来源：《科学》

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