
石墨氧原子散射的自旋选择性碰撞和自旋翻转机制

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/23359.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！

石墨氧原子散射的自旋选择性碰撞和自旋翻转机制。

2023年5月22日，德国马克斯普朗克多学科科学研究所Alec M.

Wodtke教授实验团队以及美国新墨西哥大学郭华教授理论团队在Nature

Chemistry期刊上发表题为Spin-dependent reactivity and spin-flipping dynamics in oxygen atom scattering from graphite的新研究。

该研究报道了三线态氧原子O(3P)和单线态氧原子O(1D)在高定向热解石墨(HOPG)表面散射实验结果，通过分子动力学模拟，证实了氧原子在石墨表面的自旋选择性碰撞，并揭示了自旋翻转的机制。

论文通讯作者是G. Barratt Park教授和郭华教授，共同第一作者是赵梓博和王瑛琦。

对于气相反应来说，改变一个分子的电子自旋状态可以极大地改变它的反应活性，这一点已经得到公认。但是在表面发生的反应尚缺乏明确的能够观察到自旋守恒的态到态(state-to-state)的实验。因此，电子自旋在表面化学中的作用仍存有相当大的争议。

德国马克斯普朗克多学科科学研究所Alec M.

Wodtke教授实验团队利用一种全新的入射/出射关联性离子成像(Incoming/Outgoing Correlation Ion-imaging)方法来测量了态到态散射氧原子的动能以及角度分布。此方法极大提高了速度分辨率，即使在入射原子和散射原子的速度分布很宽的情况下，也可以测量指定入射能量下的反应机率。通过该方法，发现了O(1D)在石墨表面散射的电子非绝热途径，即入射的O(1D)在石墨表面散射后以O(3P)离开表面，在此过程中，部分O(1D)激发态的电子能量转化为了O(3P)散射动能而剩余部分由表面吸收。此外实验团队还观察到，相对于O(3P)，O(1D)在石墨上的吸附机率更高。

为了理解O(3P)和O(1D)在石墨表面散射的动力学过程，美国新墨西哥大学郭华教授理论团队利用机器学习的方法从DFT数据中建立了氧原子在石墨烯表面的高维势能面(PESs),开展了自旋态选择性的分子动力学模拟。模拟的结果表明了O(1D)与石墨发生反应比O(3P)更有效，表现出更高的吸附概率。其中入射的O(3P)在石墨碰撞过程中自旋始终保持不变。相比之下，在O(1D)原子与石墨碰撞后发生自旋翻转，需要在表面形成高振动激发的化学吸附氧原子，从而损失大部动能。理论模拟定性地解释了实验结果。

图1：O(3P) O(3P)过程中动能以及角度分布以及与非绝热和绝热分子动力学模拟的比较。

该研究表明，对于表面反应，分子自旋状态的改变对反应活性仍可能有很大的影响，其中非绝热效应扮演了重要角色。这对于今后表面反应的研究有重要启示：分子的自旋状态是决定反应活性的一个重要因素，而分子的自旋翻转并不遵循常规的绝热路径。(来源：科学网)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41557-023-01204-2>

作者：郭华等 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