



新闻动态

科技新闻

通知公告

支部活动

学习园地

信息公开

科技新闻

当前位置: 首页 | 新闻动态 | 科技新闻

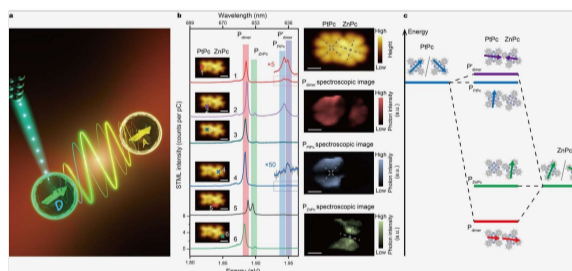
供体-受体分子间量子相干能量转移的直接观察

来源: 科研部 发布时间: 2022-06-07 浏览次数: 82

分子间的能量转移过程是生命活动与光电转换中的基本过程,是分子光谱学与光化学等领域的研究重点。其中,一个重要的科学问题是如何理解光合作用中的高效能量转移机制,以及其中是否存在高效的波状量子相干传能过程。早在20世纪30年代,理论分析就指出,当供体-受体分子间距离非常小时,分子间的偶极耦合强度就可以大于各自耗散,使得激发能量可以离域在整个供受体分子系统上,这样一来,能量就能以波状量子相干传能的方式在供体和受体分子之间振荡。然而,在实验上,关于量子相干传能过程存在的直接证据一直缺乏。其原因在于:一方面,常用的捕光天线蛋白等生物分子的结构复杂,难以精确地控制分子局域结构与微观环境;另一方面,常规远场稳态和超快光谱技术受到衍射极限的制约,难以对单个分子进行个体化研究,所测量结果受到系综平均效应的影响,反映的是多种过程与机制的平均结果,难以给出微观机理等的直观认识。

中国科大单分子科学团队利用自主发展的具有亚纳米空间分辨的电致荧光成像技术,以铂酞菁(能量供体)和锌酞菁分子(能量受体)为模型体系,通过STM操纵可控地改变供体-受体分子的间距与取向等结构特征,同时监控受体分子发光强度随着分子间距减小的变化特征,从实空间成像的角度研究了分子间能量转移机制的演化过程。他们发现,当分子间距较远时(大于1.7纳米),供体分子可以将能量通过偶极相互作用传递给受体分子,但供体与受体分子的偶极发射过程仍是相互独立的,与邻近分子没有关联。通过进一步分析能量传递效率随分子间距的变化趋势,发现该区间的能量转移是以单向跳跃式的非相干Förster能量转移为主。然而,当供体-受体中心间距减小至1.5纳米左右、以致分子间最近邻原子间隙小于范德华接触时,光谱特征上出现了两个新的荧光峰,其中一个相对于供体发光峰蓝移,强度很弱,而另一个相对于受体发光峰红移,而且很强,在供体和受体分子上均可以被明显观察到,光子成像图呈现出类似于“ σ 反键轨道”的离域特征图案,表明供体和受体分子沿中心连线方向的偶极以共线同相的方式相干耦合在一起,出现了双向的量子相干传能现象。另外,他们还发现量子相干传能发生与否还与分子跃迁偶极的取向密切相关,并提出了量子相干传能发生的新判据。在此基础上,他们还构筑了非相干和相干传能通道能同时存在的多分子网络结构,从实验上提供了量子相干传能更为高效的直接证据。该成果于2022年6月6日在国际知名学术期刊《自然-纳米技术》上在线发表。审稿人高度评价该工作:“这篇文章是一项重要的研究工作,将加深人们对分子系统中量子相干能量转移的基本理解,并催生大量的研究兴趣……这项工作的新颖之处在于以高度可控和定量的方式在单分子水平上实空间展示了量子相干能量转移。我相信该工作将引起科学界的广泛关注,并在相关领域中产生相当大的影响。”

中国科学技术大学微尺度科学国家研究中心孔繁芳博士和田晓俊博士为这篇文章的共同第一作者。该文章的通讯作者是董振超、张杨和侯建国。该系列研究工作得到了基金委、科技部、国家实验室、中科院、教育部、安徽省等单位的支持。



图注: (a) 供受体间相干能量转移艺术化示意图。(b) 当供体-受体分子处于最近邻时在特征位置激发的发光光谱以及对发光模式的光子成像图。(c) 激子耦合的能级排布特征图,反映了不同发光模式的偶极耦合特征,也表现出量子相干传能过程存在偶极取向依赖特征。

论文链接: <https://www.nature.com/articles/s41565-022-01142-z>

(合肥微尺度物质科学国家研究中心、中科院量子信息与量子科技创新研究院、合肥大科学中心、科研部)

