

气相中原子分子成簇动力学 I. 动力学的基本模型

史扬,高振,朱起鹤,孔繁放

分子反应动力学国家重点实验室, 中国科学院化学研究所, 北京 100080

摘要:

提出了气相原子、分子碰撞形成团簇的动力学一般模型, 认为具有特定组份单元的粒子经碰撞后可任意组合成团簇. 各碰撞速率常数随团簇的尺寸和结构特征而变化. 团簇的热解离速率主要取决于断键数. 因此裂解出小碎片的几率较大. 将上述模型用动力学方程表示, 可计算在不同时刻的团簇尺寸. 激光烧蚀、电弧放电等几种形成团簇方法的具体条件.

关键词: 团簇 成簇动力学 团簇尺寸分布

收稿日期 1995-05-26 修回日期 1995-09-11 网络版发布日期 1996-03-15

通讯作者: 孔繁放 Email:

本刊中的类似文章

1. 郭彩虹; 贾建峰; 郭玲; 武海顺. Ga₃P₃(x+y=8)及其阴离子团簇的结构与性质的DFT研究[J]. 物理化学学报, 2006,22(10): 1253-1259
2. 盛六四, 齐飞, 高辉, 罗志勇, 张允武. C₂H₂Cl分子团簇内部离子-分子反应产生C₄H₂Cl⁺的研究[J]. 物理化学学报, 1995,11(11): 1004-1007
3. 马晨生, 李海洋, 张晓光, 白吉玲, 王秀岩, 张桂秋, 王利, 何国钟, 楼南泉. 铜氧团簇负离子的产生[J]. 物理化学学报, 1996,12(02): 185-189
4. 史扬, 高振, 朱起鹤, 孔繁放. 气相中原子分子成簇动力学 II. 碳簇成簇动力学[J]. 物理化学学报, 1996,12(03): 208-212
5. 胡文华; 王小涓; 詹业宏; 宁铎; 陈丽; 刘美希; 陆文云; 杨世和. Van der Waals团簇o-xylene N₂的共振双光子电离光谱[J]. 物理化学学报, 1997,13(04): 289-292
6. 王丽; 杨华; 边秀房; 李喜珍. 自由表面的Ni原子团簇的熔化[J]. 物理化学学报, 2001,17(12): 1097-1101
7. 李玥; 王秀岩; 张晓光; 李连斌; 楼南泉; 盛六四; 张允武. van der Waals团簇ArHCl的光电离研究[J]. 物理化学学报, 1997,13(04): 322-327
8. 郭向云. 团簇形成和增长机理的Monte Carlo研究[J]. 物理化学学报, 2003,19(02): 174-176
9. 张霞; 唐紫超; 高振. 镉分族元素二元团簇及其与Co形成的团簇离子[J]. 物理化学学报, 2003,19(01): 4-8
10. 于忠德; 张南; 高振; 孔繁放; 朱起鹤. 铜硫团簇离子的形成与光解[J]. 物理化学学报, 1994,10(02): 97-99
11. 张南; 于忠德; 冯万水; 武小军; 高振; 朱起鹤; 孔繁放. 含氢碳原子团簇的初步研究[J]. 物理化学学报, 1994,10(02): 126-129
12. 张南; 于忠德; 武小军; 高振; 朱起鹤; 孔繁放. 钼硫原子簇的形成及激光裂解的初步研究[J]. 物理化学学报, 1994,10(01): 44-49
13. 李海洋; 马晨生; 白吉玲; 何国钟. Mn/O团簇负离子的组成规律及增长机理[J]. 物理化学学报, 1997,13(10): 946-949
14. 张小岗; 郭向云; 钟炳; 彭少逸. 甲醇在超临界环己烷中形成簇团的Monte Carlo初探[J]. 物理化学学报, 1997,13(10): 898-903
15. 李海洋; 马晨生; 白吉玲; 何国钟. 样品价态对激光气化产生Cu/Cl团簇的组成和稳定性的影响[J]. 物理化学学报, 1997,13(10): 933-937
16. 徐灿; 朱莉芳; 高晨阳; 曹娟. 硅氧团簇(SiO₂)_nO₂H₄的密度泛函理论研究[J]. 物理化学学报, 2006,22(02): 152-155
17. 马文瑾; 武海顺. Al_mN₂⁻ (m=1~8)团簇的结构与稳定性[J]. 物理化学学报, 2006,22(02): 178-182
18. 邵士勇; 李海洋; 罗晓琳; 肖雪; 牛冬梅; 温丽华; 王宾; 梁峰; 侯可勇. 乙腈团簇增强的激光高价电离现象的质谱研究[J]. 物理化学学报, 2005,21(10): 1113-1116
19. 张材荣; 陈宏善; 陈玉红; 冯旺军; 李维学; 许广济; 寇生中. Al₈P₈团簇环状结构与性质的密度泛函理论研究[J]. 物理化学学报, 2005,21(12): 1368-1372
20. 宋燕; 陈宏善; 张材荣; 王广厚. (BN)_n(n≤12)团簇的结构及成键性质[J]. 物理化学学报, 2005,21(07): 735-739
21. 刘让苏; 刘凤翔; 董科军; 郑采星; 刘海蓉; 彭平; 李基水. 液态金属Al凝固过程中的团簇结构与幻数特性[J]. 物理化学学报, 2004,20(09): 1093-1098
22. 吕瑶; 许小红; 武海顺. Co_n(n=2~10)团簇的结构和磁性[J]. 物理化学学报, 2004,20(09): 1118-1122
23. 白玉林; 陈向荣; 杨向东; 严鹏. 硫团簇S_n(n=2~8)结构的朗之万分子动力学计算[J]. 物理化学学报, 2003,19(12): 1102-1107
24. 牛冬梅; 张树东; 张先钰; 李海洋. 激光喷射Cu等离子体与气相C₂H₅OH团簇的反应[J]. 物理化学学报, 2003,19(12): 1114-1118
25. 马文瑾; 武海顺. Al_mN₂ (m=1~8)团簇结构与稳定性的DFT研究[J]. 物理化学学报, 2004,20(03): 290-295
26. 李志伟; 李香芝; 许先芳; 赵存元; 陈六平. NaP₄及其正负离子的结构和光谱性质[J]. 物理化学学报, 2008,24(04): 670-674
27. 吕瑶; 许小红; 武海顺. (CoCr)_n (n=1-5)合金团簇的结构和磁性[J]. 物理化学学报, 2008,24(07): 1252-1256
28. 马文瑾; 张献明; 许小红; 王艳宾; 武海顺. C_nAl₂ (n=1-10)团簇的结构特征与稳定性[J]. 物理化学学报, 2008,24(08): 1477-1480
29. 罗小艳; 贾文红; 张聪杰. In_nNa和In_nNa⁺ (n=2-8)的团簇结构和电子性质[J]. 物理化学学报, 2009,25(02): 261-266
30. 张妍宁; 王丽; 边秀房. 中介尺度Au纳米团簇熔化的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2003,19(01): 35-39
31. 沈少来; 唐景昌; 曹松; 汪雷. Cl/GaAs(111)表面近边X射线吸收精细结构的多重散射研究[J]. 物理化学学报, 2003,19(11): 1054-1058
32. 马文瑾; 武海顺. Al_mN₂(m=2~9)团簇结构与稳定性的DFT研究[J]. 物理化学学报, 2003,19(10): 927-932
33. 刘守新; 孙承林. 担载Ag对TiO₂界面光生电子转移效率的影响[J]. 物理化学学报, 2004,20(06): 621-625
34. 王利江; 张聪杰; 武海顺. C_nB^δ (δ=0, ±1; n=1~6)团簇的结构、稳定性和光谱[J]. 物理化学学报, 2005,21(03): 244-249
35. 陈文武; 高毅勤; 吴国胜; 杨达林; 盛六四; 武国华; 叶为全; 张允武. 六氦吡啶团簇的研究[J]. 物理化学学报, 1996,12(12): 1067-1070
36. 马晨生; 李海洋; 白吉玲; 何国钟. 幻数团簇离子Mnⁿ⁺₈[J]. 物理化学学报, 1996,12(10): 926-928
37. 许宗荣; 高艳玲. Si₄, Si₃反应动力学: 振动激发态对反应的影响[J]. 物理化学学报, 1996,12(05): 396-399
38. 杨忠志. 刘永军. 精密从头算与ABEEM/MM模型对水团簇(H₂O)₁₁ 9种低能结构的计算[J]. 物理化学学报, 2009,25(05): 928-934
39. 葛桂贤; 唐光辉, 井群, 罗有华. CO与Pd_n(n=1-8)团簇的相互作用[J]. 物理化学学报, 2009,25(06): 1195-1200
40. 李向富; 陈宏善; 孟凡顺; 刘百幸. (AgI)_n团簇熔化行为的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2009,25(01): 103-106
41. 陈莹; 王秀英; 赵俊卿. 小尺寸金属团簇熔化过程的分子动力学模拟[J]. 物理化学学报, 2008,24(11): 2042-2046
42. 葛桂贤. 罗有华. 张建玮. FMBen (FM=Fe, Co, Ni; n=1-12)团簇结构和电子性质[J]. 物理化学学报, 2008,24(10): 1891-1896
43. 雷雪玲; 祝江江; 王先明. 罗有华. 用密度泛函理论研究Zr_nB(n=1-13)团簇的结构及性质[J]. 物理化学学报, 2008,24(09): 1655-1661
44. 邱玮玮; 林梦海. 过渡金属团簇Nb_n·Co_n(n≤4)和Nb₂Co_n(x+y≤8)的芳香性[J]. 物理化学学报, 2008,24(09): 1573-1578
45. 张强; 杨忠志. 水分子团簇分子力场方法的比较研究[J]. 物理化学学报, 2007,23(10): 1565-1571
46. 姜勇; 储伟; 江成发; 王耀林. Pd_n(n=1-7)团簇及其与甲烷相互作用的密度泛函理论研究[J]. 物理化学学报, 2007,23(11): 1723-1727
47. 熊海灵; 袁勇智; 李航; 朱华玲; 蒋先军. 长程范德华力导向作用下胶体凝聚的计算机模拟[J]. 物理化学学报, 2007,23(08): 1241-1246
48. 王艳宾; 马文瑾; 张静. 武海顺. C_nAl (n=2-11)团簇的结构特征与稳定性[J]. 物理化学学报, 2007,23(06): 873-876
49. 黄卡玛; 贾国柱; 杨晓庆. 微波频率下氯化钠溶液电导率的非线性特性[J]. 物理化学学报, 2008,24(01): 20-24
50. 张静; 王艳宾; 武海顺. (BCO)_n (n=1-12)团簇的结构与稳定性[J]. 物理化学学报, 2007,23(05): 733-737
51. 吴国胜; 高毅勤; 陈文武; 杨达林; 盛六四; 武国华; 叶为全; 张允武. 四氦吡啶的同步辐射光电离研究[J]. 物理化学学报, 1997,13(02): 188-192
52. 王丽; 衣粟; 边秀房. Ni₃Al合金液态与非晶中的原子团簇 [J]. 物理化学学报, 2002,18(04): 297-301
53. 曾祥华; 徐秀莲; 王铎; 张丰收. 新团簇形成的动力学研究[J]. 物理化学学报, 2002,18(01): 26-29
54. 梁汉东; 刘敦一. 金-硫团簇负离子组成特征的探讨 [J]. 物理化学学报, 2001,17(09): 859-864
55. 蔡永; 朱熙文; 颜星; 陈永泰; 高克林. 过渡金属团簇Mⁿ⁺₂ (M=Fe, Co, Ni)与CO的化学反应[J]. 物理化学学报, 1999,15(02): 162-166
56. 刘剑波; 韩春英; 郑卫军; 高振; 孔繁放. 铅、硫团簇的形成、反应与光解[J]. 物理化学学报, 1999,15(01): 22-27
57. 韩春英; 刑小鹏; 张霞; 高振; 朱起鹤. 铁、钴、镍/磷二元团簇离子的形成与光解[J]. 物理化学学报, 2000,16(09): 818-824
58. 李月; 胡勇军; 吕日昌; 王秀岩. C₄H₂N·(NH₃)₂氢键团簇的多光子电力与从头计算[J]. 物理化学学报, 2000,16(09): 810-817
59. 王诚; 刘磊; 李郁芬. (SiO₂)_n团簇的基态能量和结构[J]. 物理化学学报, 1999,15(02): 143-149
60. 王利江; 张聪杰. B₂C_n⁻ (n=1~9)团簇的结构及其稳定性[J]. 物理化学学报, 2006,22(06): 726-731
61. 曹玉群; 黄荣彬; 郑兰芬. 激光照射下原子团簇生长的非平衡动力学[J]. 物理化学学报, 1999,15(04): 345-350
62. 石土金; 刘力; 杨达林; 朱起鹤. 1,4-二氧六环和氨分子氢键团簇的从头算[J]. 物理化学学报, 2000,16(05): 416-421
63. 曹玉群; 黄荣彬; 郑兰芬. 激光照射下原子团簇生长的非平衡动力学[J]. 物理化学学报, 2000,16(07): 621-626
64. 刘剑波; 韩春英; 曾峡; 高振; 朱起鹤. 硅、锗、锡、铅/磷二元原子团簇的形成、光解和结构[J]. 物理化学学报, 1999,15(10): 883-889

65. 郑化柱, 曾京辉, 梁家和, 刘方新. 溶剂化团簇银的制备及表征[J]. 物理化学学报, 1999, 15(11): 980-985
66. 刘鹏, 曾嵘, 高振, 朱起鹤. 银和硫团簇的反应[J]. 物理化学学报, 2000, 16(01): 93-95
67. 胡义华, 刘美希, 王小滔, 周金运, 杨新, 杨世和. 两聚物(C₆H₅F)₂⁺的光解离光谱[J]. 物理化学学报, 1999, 15(12): 1057-1059
68. 钱萍, 杨忠志. 应用ABEEM/MM模型研究水分子团簇(H₂O)_n (n=11~16)的性质[J]. 物理化学学报, 2006, 22(05): 561-568
69. 陈莹, 边秀房, 孙民华, 王丽. 铝原子Bernal多面体团簇的理论研究[J]. 物理化学学报, 2003, 19(03): 242-245
70. 张树东, 朱湘君, 王艳, 孔祥和. 甲醇团簇的多光子电离质谱及其从头算[J]. 物理化学学报, 2007, 23(03): 379-383
71. 史扬, 张南, 高振, 朱起鹤, 孔繁放. 铝硫二元团簇的组分及其光解规律[J]. 物理化学学报, 1993, 9(03): 299-301
72. 马文瑾, 王艳宾, 张静, 武海顺. BmN (m=2~9)团簇结构的特征与稳定性[J]. 物理化学学报, 2007, 23(02): 169-172
73. 高廷红, 刘让苏, 周丽丽, 田泽安, 谢泉. 液态Ca₇Mg₃合金快速凝固过程中团簇结构的形成特性[J]. 物理化学学报, 2009, 25(10): 2093-2100