

首页信息

发布时间: 2019-10-18 15:12:43 点击: 1543

学院概况

## 谢代前教授课题组在传动力学研究中取得重要进展

学科介绍

分子间非弹性碰撞传能过程广泛存在于气相化学环境中, 研究其动力学性质在燃烧化学、星际化学、大气化学和化学激光等领域有着重要的理论和应用价值。定量研究分子间非弹性碰撞传能动力学性质, 需要采用量子动力学方法。由于该类问题涉及大量初态, 使用含时波包法远不如非含时方法效率高。目前的计算水平已经可以很好地处理三原子传能体系量子动力学问题, 但对于2+2四原子传能体系的全量子动力学研究还比较局限, 仅仅只有几个含氢气 ( $H_2$ ) 体系见刊报导。针对含有两个非氢气“重分子”的传能体系的全量子动力学计算具有巨大的挑战性, 这是因为计算需要包含更大的基函数数目、更多的分波与更多的传播步数。若体系包含深势阱, 则会进一步增大计算难度。为了解决上述问题, 谢代前教授课题组最近发展了“包含最近邻科里奥利耦合的耦合态近似”(CSA-NNCC)方法, 相比于严格的非含时动力学方法, 新方法在保证计算精度的前提下大大节省了计算成本 (*J. Chem. Phys.* 148, 084101 (2018))。该动力学方法已被成功地应用于  $H_2$ -HF 传能体系的研究 (*J. Chem. Phys.* 148, 184301 (2018)、*J. Comput. Chem.* 40, 1084(2019))。

师资力量

组织机构

科学研究

人才培养

谢代前教授课题组最近构建了 HF-HF 体系全维高精度的从头算势能面, 然后采用 CSA-NNCC 方法开展了 HF-HF 振动弛豫过程的动力学研究。通常认为, 分子间非弹性碰撞可以由简单的硬球碰撞模型来描述, 碰撞传能过程基本遵循内能守恒定则。即, 对于给定的初态, 能量更倾向于传到与初态内角动量相等、内能相近的末态。这个所谓的传能过程中的能隙定则已经在许多体系中证实并在大气和激光模拟中广泛应用。但对 HF-HF 的态-态量子动力学计算表明, 对于给定的初态, 传能末态并不是由几个特定的量子态所主导, 而分布在较宽的能量区间中的末态均具有较大的传能积分截面。进一步的分析表明, 由于 HF-HF 体系具有较深的势阱深且碰撞中间络合物寿命较长, 所以硬球模型不能很好地描述其动力学过程, 使得该体系不遵守内能守恒的一般传能规律。

学生园地

校友天地

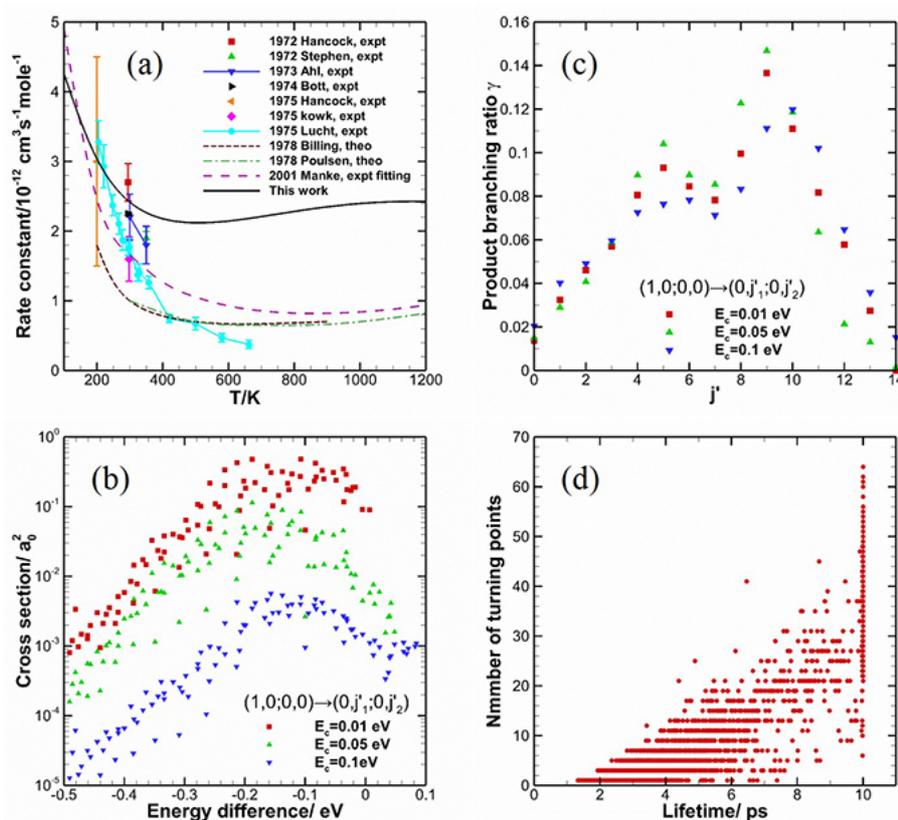
人才招聘

该工作完成了非氢气重分子间振动传能的全量子动力学计算, 首次发现传能过程中能隙定则的反例, 提供了深刻的物理洞见, 为加深对分子间相互作用和传能规律的认识迈出了重要一步, 并为 HF 激光器的改进和设计提供了有益的信息。

院务管理

办事指南

相关研究成果以“Breakdown of Energy Transfer Gap Laws Revealed by Full-Dimensional Quantum Scattering between HF Molecules”为题, 于2019年10月11日在线发表在 *Nature Communications* 上。博士生杨东铮为文章的第一作者, 胡茜茜博士和谢代前教授为通讯作者。该工作获得了国家自然科学基金和国家重点研发计划的资助。



(a) HF 振动弛豫速率常数与其他报导对比 (b) 态-态传能积分截面  
 (c) 振动弛豫产物转动态分布 (d) 由 QCT 计算所得 (HF)<sub>2</sub> 络合物寿命

