

项目名称：原子分子碰撞反应动力学研究

申报奖种：山东省自然科学奖一等奖

完成人：楚天舒（青岛大学）；韩克利（中国科学院大连化学物理研究所）

项目简介：

本项目属于物理学科原子分子物理学研究领域。研究原子分子碰撞反应过程和反应机理是原子分子物理研究领域十分重要的一门学科分支。原子分子碰撞中的非绝热过程和非绝热动力学现象，是原子分子碰撞反应研究中具有挑战性和较高难度的课题。在原子分子碰撞过程中，非绝热过程主要包括：发生在不同电子态之间的电荷转移、系间窜越、能量传递等过程。非绝热现象普遍存在于各种光物理、光化学和光生物过程中，对于激发态分子的能量淬灭、发光淬灭等起决定性的作用或产生极为重要的影响。另一方面，科里奥利耦合效应在原子分子碰撞反应的量子散射动力学研究中也起着十分重要的作用，针对科里奥利耦合效应的研究，尤其是针对非绝热过程的科里奥利耦合效应的研究，会揭示其在原子分子碰撞反应动力学研究中的角色和地位，在研究效率和研究精度等方面至关重要。本项目以现代物理中的量子散射理论为研究基础，提出和发展了非绝热动力学理论计算方法和计算软件，从理论上系统地、准确地研究了原子分子碰撞反应中的动力学过程尤其是非绝热动力学过程和相应的反应机理以及科里奥利耦合效应所产生的影响。

项目取得了如下的创新性研究成果：

1. 提出并发展了非绝热含时量子波包理论计算方法。项目首次将含时量子波包方法引入非绝热动力学的研究，从而解决了深势阱反应体系非绝热过程的精确量子动力学计算以及精确处理电子态之间无辐射跃迁的问题，编写了具有自主知识产权的计算软件。所提出和发展的理论方法已经被用于研究非绝热碰撞反应动力学、非绝热光解动力学、非绝热碰撞传能动力学、金属表面的光诱导动力学等研究。
2. 前瞻性、系统性的研究了科里奥利耦合效应在原子分子碰撞动力学中的影响。最先研究并揭示了在原子分子非绝热碰撞过程中的科里奥利耦合效应。提炼出了如科里奥利耦合效应在研究具有长程势的离子-分子碰撞反应时起到十分重要的作用等多条具有普适性、规律性和启发性的的重要研究结论。这些结论的获得，对于深刻理解科里奥利耦合效应和原子分子碰撞机理尤其是非绝热碰撞机理，具有良好的促进作用，对于后续的研究工作也具有很好的借鉴和启示。

本项目的 8 篇代表性论文总他引 956 次，SCI 总他引共 762 次，其中单篇 SCI 他引超过 100 次有 2 篇，单篇最高 SCI 他引 308 次，得到了包括美国国家科学院院士在内的国内外专家的正面引用，并给予了“首次”，“第一个”等高度评价。项目执行期间，应邀撰写了 2 篇非绝热动力学方面和科里奥利耦合效应方面的综述性论文，这些综述性论文系统地总结了本项目在原子分子碰撞中的非绝热动力学研

究和科里奥利耦合效应研究方面所开展的具有原始创新性的科学研究工作。

贡献:

楚天舒: 项目主要完成人, 对本项目的重要科学发现点 1 和 2 均有重要贡献。全部参与了理论研究、程序开发、论文撰写工作。发展了非绝热量子含时波包理论方法和相应的动力学计算程序, 并采用所发展的理论方法和计算程序, 系统性的研究了基元化学反应中的非绝热动力学, 对非绝热化学反应, 非绝热电荷转移, 非绝热碰撞传能等过程开展了详细的理论研究工作, 是八篇代表性论文的第一作者或兼通讯作者。

韩克利: 项目完成人, 对本项目重要科学发现 1 和 2 均有贡献。指导了本项目的总体思路和方案设计, 实施了本项目的研究工作。发展了非绝热含时量子波包方法, 并应用于研究非绝热反应动力学、非绝热传能动力学、非绝热光解动力学和强场下分子动力学; 发展了理论计算方法, 使之可用于研究立体化学反应动力学。是 6 篇代表性论文的通讯作者。

代表性论文:

序号	论文 (论著) 名称	发表刊物 (出版社)	发表 (出版) 时间	作者 (按刊物发表顺序)
1	Quantum Mechanics and Quasiclassical Study of the H/D plus FO -> OH/OD plus F, HF/DF plus O Reactions: Chemical Stereodynamics	JOURNAL OF COMPUTATIONAL CHEMISTRY	2010. 05	Chu TS (楚天舒)

2	A Comparative Study of the H plus FO ($v=0, j=0$) \rightarrow (OH plus F)/(HF plus O) Reaction from QM and QCT Methods	JOURNAL OF PHYSICAL CHEMISTRY A	2009. 04	Chu TS (楚天舒), Zhang H(张宏), Yuan SP(袁淑萍), Fu AP(傅爱萍), Si HZ(司宏宗), Tian FH(田凤惠), Duan YB(段云波)
3	A five-dimensional quantum dynamics study of the F(P-2)+CH ₄ reaction	JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS	2009. 12	Chu TS(楚天舒), Han KL(韩克利), Espinosa-Garcia, Joaquin
4	Effect of Coriolis coupling in chemical Reaction dynamics	PHYSICAL CHEMISTRY CHEMICAL PHYSICS	2008. 03	Chu TS(楚天舒), Han KL(韩克利)
5	The time-dependent quantum wave packet approach to the electronically nonadiabatic processes in chemical reactions	INTERNATIONAL REVIEWS IN PHYSICAL CHEMISTRY	2006. 01	Chu TS(楚天舒), Zhang Y(张岩), Han KL(韩克利)
6	A time-dependent wave-packet quantum scattering study of the reaction H-2(+)($v=0-2,4,6; j=1$)+He \rightarrow HeH++H	JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS	2005. 06	Chu TS(楚天舒), Lu RF(陆瑞峰), Han KL(韩克利), Tang XN(唐晓南), Xu HF(许海锋), Ng CY(伍灼耀)
7	A quantum wave-packet study of intersystem crossing effects in the O(P-3(2,1,0),D-1(2))+H-2 reaction	JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS	2005. 06	Chu TS(楚天舒), Zhang X(张鑫), Han KL(韩克利)
8	Nonadiabatic time-dependent wave packet study of the D++H ₂ reaction system	JOURNAL OF PHYSICAL CHEMISTRY A	2005. 03	Chu TS(楚天舒), Han KL(韩克利)