

T.C

FIRAT ÜNİVERSİTESİ

FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**ATOM-MOLEKÜL ETKİLEŞMELERİNDE DİFERANSİYEL TESİR
KESİTLERİNİN HESAPLANMASI**

M. Hanifi KEBİROĞLU

Yüksek Lisans Tezi

Anabilim Dalı: Fizik

Programı: Atom ve Molekül Fiziği

Danışman: Prof. Dr. Niyazi BULUT

MAYIS-2015

**T.C
FIRAT ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**ATOM-MOLEKÜL ETKİLEŞMELERİNDE DİFERANSİYEL TESİR
KESİTLERİNİN HESAPLANMASI**

YÜKSEK LİSANS TEZİ

M. Hanifi KEBİROĞLU

(121114101)

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih:

Tezin Savunulduğu Tarih:

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Niyazi BULUT (F.Ü.)

**Diğer Jüri Üyeleri:
Prof Dr. Sinan AKPINAR (F.Ü.)
Yrd. Doç. Dr. Ezman KARABULUT (B.E.Ü)**

MAYIS 2015

ÖNSÖZ

Öncelikle “**Atom-Molekül etkileşmelerinde Diferansiyel Tesir Kesitlerinin Hesaplanması**” adlı yüksek lisans tezimi hazırladığım süre içerisinde bana yön veren, bilgilerini benimle paylaşan benden maddi ve manevi desteğini hiçbir zaman esirgemeyen çok değerli hocam ve danışmanım Prof. Dr. Niyazi BULUT’ a sonsuz saygılarımı ve teşekkürlerimi sunarım. Ayrıca İspanya’ da bulunduğum sürece çalışmalarına katkıda bulunan Dr. Octavio RONCERO VILLA’ ya saygı ve sonsuz sevgilerimi sunarım.

Lisansüstü eğitimim boyunca bana her konuda yardımcı olan arkadaşım Duygu ÇİMENÖĞLU’ ya teşekkürlerimi sunarım.

Son olarak lisansüstü eğitimim boyunca her zaman yanımda olan en iyi arkadaşım Miraç KAMIŞLIOĞLU’ ya sonsuz teşekkür ediyorum.

Bu tez çalışması TÜBİTAK (TBAG-112T827 numaralı) proje tarafından desteklenmiştir.

M. Hanifi KEBİROĞLU

ELAZIĞ – 2015

İÇİNDEKİLER

ÖNSÖZ	II
İÇİNDEKİLER	III
ÖZET	IV
SUMMARY	V
ŞEKİLLER LİSTESİ	VI
1.GİRİŞ	1
2.TEK BOYUTTA SAÇILMA.....	4
2.1. Moleküler Saçılmalar	7
2.1.1. Elastik Çarpışmalar	7
2.1.2. İnelastik Çarpışma	11
3. REAKTİF SAÇILMA	12
3.1. Reaksiyon İhtimaliyetleri	12
3.2. Dalga Paketinin Analizi ve Diferansiyel Tesir Kesitinin Hesaplanması.....	16
4. SONUÇ VE TARTIŞMA	21
5. KAYNAKLAR	27
ÖZGEÇMİŞ.....	29

ÖZET

Atom-Molekül etkileşmelerinde Diferansiyel Tesir Kesitlerinin Hesaplanması

Yüksek lisans tezi çalışmamda, kuantum dalga paketi metodu kullanılarak toplam diferansiyel tesir kesitleri sabit bir enerji değerinde ve başlangıç molekülünün ilk ($v=0, j=0$) kuantum durumları için hesaplandı. Bu çalışmada örnek olarak $H+F_2 \rightarrow HF+F$ reaksiyonu astrofizikte önemli olması açısından ele alındı. Ayrıca, toplam reaksiyon ihtimaliyetleri, tesir kesitleri de hesaplanıp mevcut literatür ile karşılaştırıldı. Elde edilen sonuçların literatür ile uyumlu olduğu görüldü.

Anahtar kelimeler: İntegral tesir kesiti, reaksiyon ihtimaliyeti, toplam diferansiyel tesir kesiti.

SUMMARY

Calculation of Differential Cross Sections for Atom-molecular Interaction

In this my master thesis, total differential cross-sections have been calculated in a fixed energy by using quantum wave packet method for the first quantum states ($v=0, j=0$) of initial molecules. In this study, due to importance of in astrophysics, $H+F_2 \rightarrow HF+F$ reaction is discussed. Also, total reaction probabilities and cross-sections have been calculated and compared with available literature. The good agreement found obtained with literature.

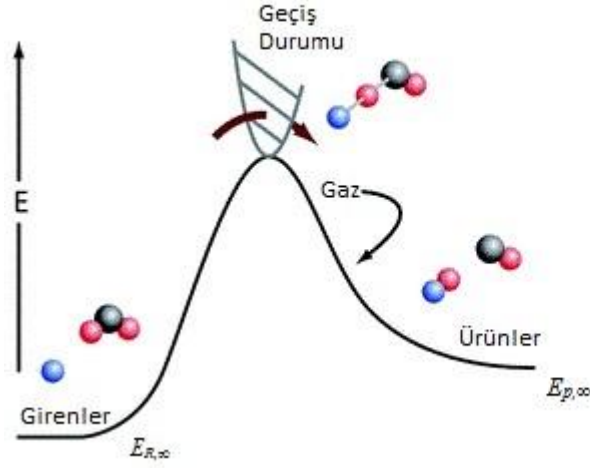
Key words: Total differential cross-sections, reaction probability.

ŞEKİLLER LİSTESİ

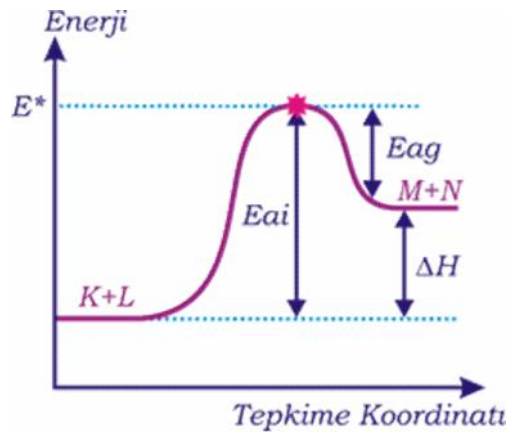
	<u>Sayfa No</u>
Şekil 1.1. Atom-molekül reaksiyon şeması	1
Şekil 1.2. $K+L \rightarrow M+N$ Reaksiyon örneği.....	1
Şekil 3.1. Diferansiyel Tesir kesitleri. (Klasik, makro seviyede).....	17
Şekil 4.1. HF ₂ sistemi için, (a) aynı doğrultuda olan, (b) atomların belli açıda dizilimi... 22	
Şekil 4.2. $H+F_2(v=0, j=0) \rightarrow HF+F$ reaksiyonu için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine göre değişimi.....	23
Şekil 4.3. $v=0, j=0$ başlangıç kuantum durumunda toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinin farklı J değerleri için değişim grafiği.	24
Şekil 4.4. $H+F_2(v=0, j=0) \rightarrow HF+F$ reaksiyonları için toplam integral tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine göre değişimi	25
Şekil 4.5. $v=0, j=0$ için toplam diferansiyel tesir kesitleri.....	26

1.GİRİŞ

Atom ve moleküllerin karakteristik yapıları reaksiyon dinamiği ile çözümlenmektedir. Reaksiyon dinamiği, kimyasal reaksiyonun oluşumu, yönü, yapısı ve şekli hakkında bilgi verir. Hatta fiziksel ve kimyasal maddelerin dönüşümünü de inceler. Bu gibi reaksiyonların nasıl oluştuğunu nanobilim, rasyonel ilaç dizaynı ve astrofizik gibi belirli çalışma alanları içinde ilgi konusudur [1].



Şekil 1.1. Atom-molekül reaksiyon şeması



Şekil 1.2. $K+L \rightarrow M+N$ Reaksiyon örneği

Bir tepkimenin oluşabilmesi için şekil 1.1’ deki gibi, tepkimeye giren tanecikler mutlaka çarpışmalıdır. Fakat sadece taneciklerin çarpışması yeterli olmaz. Bu çarpışmalar belirli bir enerji seviyesinin üzerinde olursa tepkime oluşur. Bu enerji eşiğine “aktivasyon eşik enerjisi” denir. Ancak aktivasyon enerjisinin üzerindeki bir enerji seviyesinde çarpışan tanecikler ürüne dönüşür. Buna göre aktifleşme enerjisinin üzerindeki bir enerji seviyesinde çarpışan tanecikler önce aktifleşerek bir ara kompleks oluştururlar. Bu ara komplekse “aktifleşmiş kompleks” adı verilir. Aktifleşmiş kompleks, kararsız bir ara üründür. Bu ürün kısa bir süre sonra yeni bir bağ oluşumuna ya da reaktanttaki maddelere dönüşür. Şekil 1.1’de $E_{R,\infty}$ ve $E_{P,\infty}$ sırasıyla giriş ve çıkış (ürün) kanalı asimptotik enerjileridir. ΔH , sıfırdan büyük ise endotermik, şayet küçük ise ekzotermik reaksiyondur. Fakat ΔH sıfıra eşit ise termonötral reaksiyon olur [3]. Şekil 1.2.’de $K+L \rightarrow M+N$ endotermik reaksiyon örneğinde, E_{ai} , ileri yönde oluşan tepkimenin aktifleşme enerjisi, E_{ag} , geri yönde oluşan tepkimenin aktifleşme enerjisi, E^* , oluşan kompleksin enerji değeri, ΔH , tepkime entalpisidir [2].

Reaksiyona giren maddelerden birinin derişiminin birim zamandaki azalmasına reaksiyon hızı denir. Reaksiyona başlamasından t zaman sonra reaksiyona giren A maddesinin derişimi $[A]$ ise, reaksiyon hızı; Reaksiyon hızı = $- d[A] / dt$. Reaksiyona giren maddenin derişimi azaldığı için (-) işareti koyulur. Eğer reaksiyon hızı ürüne göre yazılacak olursa, t zaman sonra oluşacak ürünün derişimi X ise; Reaksiyon hızı = $+ d[X] / dt$ olur [4].

Atom - molekül etkileşmelerinin temelini oluşturan saçılma problemleri son zamanlarda oldukça önem kazanmıştır. Teorik olarak hesaplanan diferansiyel tesir kesitleri (DTK) artık deneysel olarak da sabit bir enerji değeri için ölçülebilmektedir. Teorik olarak hesaplanan DTK çoğu zaman deneysel sonuçlar ile uyum içerisinde olup, yaklaşık metotlar kullanılarak elde edilen sonuçlar ise farklılık gösterebilmektedir. Kuantum mekaniksel bir büyüklük olan DTK’ lerinin teorik olarak hesaplanması için birkaç yöntem geliştirilmiştir. Bu yöntemlerden biri de zamana bağlı Schrödinger denkleminin çözümüne dayanan zamana bağlı kuantum metodudur. Bu metotta başlangıç dalga paketinin her bir durumu için kuantum mekaniksel denklemler çözülerek saçılma matrisleri elde edilir. Bu matrisler bütün toplam açısal momentum kuantum sayıları için tekrarlanır. Saçılma matrisleri elde

edildikten sonra tüm açılar üzerinden enerjiye bağılı olarak integralin (toplam) alınmasıyla kuantum mekaniksel büyüklükler (DTK) hesaplanır. Bu büyüklükler, saçılmanın şekli ve durumu hakkında bilgi verir.

Bu tez çalışmasında kuantum mekaniksel büyüklükleri hesaplanacak sistem olarak $H+F_2$ reaksiyonu ele alındı. Bu reaksiyon için gerekli test çalışmaları yapıldıktan sonra toplam reaksiyon ihtimaliyetleri hesaplandı. Bu ihtimaliyetler kullanılarak toplam reaksiyon tesri kesitleri ve diferansiyel tesir kesitleri elde edildi. Bu sistem son zamanlarda sıkça çalışılan bir sistem olması bakımından ele alınmıştır ve sonuçların yorumlanması literatür ile karşılaştırılmıştır.

2.TEK BOYUTTA SAÇILMA

Atom - molekül saçılma olaylarının kuantum mekaniksel olarak anlaşılması biraz daha zor olduğundan dolayı, saçılma kavramını biraz daha anlaşılabilir hale getirmek için klasik çalışmalara değinmenin yararı olabilir. Bu yüzden, ilk olarak sabit bir atom tarafından saçılan bir elektronu düşünelim; bu süreç boyunca elektronun yönü üç şekilde olacaktır;

- Elektron atoma serbest bir parçacık olarak yaklaşır. (asimptotta)
- Elektron güçlü etkileşim bölgesine ulaşır. (atomun yakınında)
- Elektron serbest bir parçacık olarak etkileşim güçlü bölgesinden sapar. (asimptot dışında)

Asimptot → Saçılma yörüngeleri → Asimptot dışı

Mikroskobik sistemler açısından baktığımız zaman, örneğin; yörünge etkileşim bölgesinde gözlenemez, sadece iki asimptotik davranış gözlenebilir. Her iki asimptotun bir yörüngeyi tanımladığı göz önüne alınır, fakat her yörüngeyin asimptotu yoktur, çünkü bağlı yörüngelerin desteklediği potansiyeller vardır, bağlı ve saçılma yörüngelerinin sistemin muhtemel bütün yörüngelerini tanımlaması gerekir. Asimptotlar gibi serbest parçacıklara sahip olan çarpışma yörüngelerinin var olması, potansiyelin nasıl bir hızla sönüğüne bağlıdır, bu nedenle sonsuz mesafeye yaklaştığı zaman potansiyel yeterince hızla azalmaz, saçılmış parçacık etkileşim bölgesinden kaçamaz. Böylelikle serbest bir parçacık gibi davranamaz. Bu potansiyele en iyi örnek Coulomb Kuvveti'dir [5].

Klasik saçılmada ise, asimptotik saçılma davranışı serbest bir parçacığın davranışına karşılık gelir ve böyle bir parçacığın hareketine karşılık gelen Schrödinger eşitliği çözülerek zamana bağlı öz fonksiyonu

$$\Phi(R, E, t) = Ae^{\pm(iR - Et/\hbar)} \quad (2.1)$$

olarak elde edilir.

Burada R, bir boyutlu uzayda küresel koordinatı, $k=p/\hbar$ dalga vektörünü ve E ise enerjiyi temsil eder. Daha eskiden kullanılan çözüm fonksiyonları düzlem dalgaların uzayda her yerde yayılmasını ifade etmesine rağmen, fakat bu tarz çözümler fiziksel bir bakış açısı vermez ve sınır şartları olmadığı için normalize edilemezler. Bu çözümlerin daha iyi bir fiziksel formu; normalize edilen düzlem dalgaların lineer bir kombinasyonunun olacağı ve fiziksel olarak daha anlamlı olan dalga paketi metodudur. Düzlem dalgaların lineer bir kombinasyonu olarak bir dalga paketi $t=0$ anında göz önüne alınırsa;

$$\Phi(R, t = 0) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dk \Phi(k) e^{ikR} \quad (2.2)$$

Burada $\Phi(k)$ $t = 0$ 'da dalga paketinin Fourier dönüşümüdür yani;

$$\Phi(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dR \Phi(R, t = 0) e^{-ikR} \quad (2.3)$$

şeklindedir. Bu durum göz önüne alınarak düşünüldüğünde $\Phi(t) = \Phi_{t=0} e^{Et/\hbar}$ ifadesi serbest bir parçacık için zamana bağlı dalga paketi ifadesini verir;

$$\Phi(R, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dk \Phi(k) e^{(ikR - Et/\hbar)} \quad (2.4)$$

;

Bu serbest parçacığın $u(R)$ potansiyeli altında $y(R,t)$ dalga fonksiyonu ile asimptotik davranışını tanımlarsak;

$$\lim_{t \rightarrow -\infty} \Psi(R,t) = \lim_{t \rightarrow -\infty} \Phi(R,t) = \Phi(R,t=0) \quad (2.5)$$

$$\lim_{t \rightarrow +\infty} \Psi(r,t) = \lim_{t \rightarrow +\infty} \Phi(R,t) \quad (2.6)$$

şeklinde olur. İfadenin zamana bağlı olarak yayılımı için ilk önce $t=t_0$ 'da sistemin başlangıç dalga fonksiyonunu tanımlanması gerekir ve dalga fonksiyonunun zaman açılımı; açılım operatörünün zamandan bağımsız Hamiltonyeni içeren bir sisteme uygulanması ile elde edilebilir [15];

$$U(t,t_0) = e^{-iH(t-t_0)/\hbar} = 1 \quad (2.7)$$

olur. Bu fonksiyonun sisteme uygulanmasıyla,

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} U(t,t_0) = HU(t,t_0) \quad (2.8)$$

elde edilir. Dalga fonksiyonu

$$\Psi(t) = U(t,t_0)\Psi(t_0) \quad (2.9)$$

şeklini alır.

2.1. Moleküler Saçılmalar

İki ya da daha fazla sayıda atomlu molekülün çarpışması sonucunda eğer bir reaksiyon oluşuyorsa, ürün sisteminin durumunda bir değişiklik meydana gelir. Bu ya hız vektörlerinde olan değişimdir ya bu türlerin iç durumunda (titreşim ve dönme kuantum sayılarının değişimi) meydana gelen değişimdir ya da bu türler yeni bir kimyasal bileşik meydana getirmesiyle olan değişimdir. Bu değişimin tipine göre üç şekilde çarpışma meydana gelir. Bunlar elastik, inelastik ve bir sonraki bölümde görülecek olan reaktif saçılmadır. Sadece elastik saçılma da ürünün titreşim-dönme kuantum seviyelerinde bir değişiklik meydana gelmez. Deneysel ve teorik çalışmalarda, saçılma olaylarının anlaşılabilmesi için ve ilgili sistemin bilgilerini elde edebilmek için en önemli kuantum mekaniksel bilgilerden biri de saçılma açısına bağlı olarak hesaplanan diferansiyel tesir kesitidir. Diferansiyel tesir kesiti belirlenmiş katı bir açı sisteminde saçılmış bir parçacık için ihtimaliyet olarak tanımlanabilen ve yine katı açı sisteminde “ j ” saçılmış bir parçacığın akı oranı, “ i ” ise parçacığın bir birimdeki akısını göstermek üzere (i ve j rasgele seçilmiş simgelerdir) $\frac{dS_{ij}}{\Omega}$ şeklinde tanımlanabilir. Bu saçılmaların teorileri detaylı olarak aşağıdaki gibi verilebilir [15].

2.1.1. Elastik Çarpışmalar

Kuantum mekaniğinde, her bir atom ya da molekül bir dalga fonksiyonu ile temsil edilip bu fonksiyon, parçacıklar arasındaki mesafeyi gösteren R vektörüne bağlı olarak merkezi kuvvet alanındaki çarpışmayı tanımlar. Dalga fonksiyonu merkezde sıfır olmalıdır ve $R \rightarrow \infty$ olduğu durumda asimptotik forma yaklaşmalıdır;

$$\Phi(R) \rightarrow \Phi(R) + f(q) \frac{e^{ikR}}{R} \quad (2.1.1.1)$$

Burada $\Phi(R) = e^{-ikz}$, uzun mesafe de gelen düzlem dalga ve saçılan küresel dalga kombinasyonu olan dalga fonksiyonu olduğunu gösterir. $f(q)$ fonksiyonu saçılan dalgaların açısal bir dağılımını açıklar ve çarpışma büyüklüğü olarak adlandırılır. Çarpışma büyüklüğü diferansiyel tesir kesiti ile şu şekilde ilişkilidir;

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f(q)|^2 \quad (2.1.1.2)$$

Bu sistem için Schrödinger eşitliğini aldığımız da;

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(R) - E \right] \Phi(R) = 0 \quad (2.1.1.3)$$

Bu eşitliğin çözümü azimutal açı (ϕ)' dan bağımsız olmalıdır ve çözümlerin bir seti Legendre polinomlarından türetilmiş olarak;

$$\Phi(R) = \frac{1}{R} \sum_{l=0}^{\infty} A_l \Phi_l(R) P_l(\cos(\theta)) \quad (2.1.1.4)$$

Burada $\Phi_l(R)$ katsayıları eşitliğin çözümleridir;

$$\left[\frac{d^2}{dR^2} - k^2 - \frac{l(l+1)}{R^2} - \frac{2mV(R)}{\hbar} \right] \Phi_l(R) = 0 \quad (2.1.1.5)$$

ve burada asimptotik çözümler aradığımız için, son eşitlikte potansiyeli sıfır alabiliriz;

$$\Phi_l(R) \rightarrow B \sin(kR - l \frac{p}{2} + u_l) \quad (2.1.1.6)$$

$B = \sqrt{\frac{2m}{p \hbar k^2}}$ ifadesi de benzer olarak elde edilebilir;

$$\Phi(R) = \frac{1}{R} \sum_{l=0}^{\infty} \overline{A_l \Phi_l(R)} P_l(\cos(q)) \quad (2.1.1.7)$$

Legendre polinomları açısından iki vektörün iç çarpımının üssel olarak genişletilmesiyle ve Bessel fonksiyonu da alınarak;

$$e^{ikR} = e^{ikz} = \sum_{l=0}^{\infty} i^l (2l+1) j_l(kR) P_l(\cos q_k) \quad (2.1.1.8)$$

elde edilir. Burada q_k , $R \rightarrow \infty$ olduğu zaman q ' ya eşit olan R ve k arasındaki açı ve benzer olarak $\bar{\Phi}_l(R)$, ise; (n_l hariç)

$$\bar{\Phi}_l(R) \rightarrow B \sin(kR - l \frac{p}{2}) \quad (2.1.1.9)$$

$R \rightarrow \infty$ olduğu zaman $j_l(kR)$ ' nin asimptotik davranışı;

$$J_l(kR) \rightarrow B \sin(kr - l \frac{p}{2}) \quad (2.1.1.10)$$

Buradan (2.1.1.7), (2.1.1.8), (2.1.1.9) ve (2.1.1.10) eşitliklerinde göz önünde bulundurarak

$$\overline{A_l} = i^l (2l+1) / k \quad (2.1.1.11)$$

$$\Phi(R) - \overline{\Phi}(R) = \frac{B}{R} \sum_l \left[A_l \sin \left(kR - l \frac{p}{2} + n_l \right) - \overline{A}_l \sin \left(kR - l \frac{p}{2} \right) \right] P_l(\cos q) \quad (2.1.1.12)$$

ifadesiyle karşılaştırarak;

$$\Phi(R) - \overline{\Phi}(R) = \frac{B f(q) e^{ikR}}{R} \quad (2.1.1.13)$$

$$A_l = \overline{A}_l e^{n_l} = i^l (2l+1) \frac{e^{n_l}}{k} \quad (2.1.1.14)$$

$$f(q) = \frac{1}{2ik} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(S-1) P_l(\cos q) \quad (2.1.1.15)$$

denklemleri elde edilir. Burada $S = e^{2n_l}$ saçılma matrisidir, buradan hareketle S matrisini içeren diferansiyel tesir kesiti şeklindedir.

$$\frac{dS}{d\Omega} = \frac{1}{4k} \left| \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(S-1) P_l(\cos q) \right|^2 \quad (2.1.1.16)$$

Bu ifade saçılma açısına bağlı olarak diferansiyel tesir kesitini veren bir bağıntı olup saçılma olaylarının incelenmesinde oldukça önemli olan bir ifadedir [15]. Cisim merkezli bir koordinat sisteminde üç parçacık için saçılma büyüklüğü ya da genliği;

$$f_{j'\Omega'}^{j\Omega}(\mathbf{R}') = \sum_J \frac{2J+1}{2k_j} \left[S_{j\Omega, j'\Omega'}^J(E) - d_{jj'} d_{\Omega\Omega'} \right] D_{\Omega\Omega'}^{J*}(\mathbf{q}^n) \quad (2.1.1.17)$$

ve diferansiyel tesir kesiti;

$$\frac{dS_{j \rightarrow j'}}{d\Omega} = \frac{1}{(2j+1)4k_j^2} \sum_{\Omega\Omega'} \left| \sum_J (2J+1) \left[s_{j\Omega, j'\Omega'}^J(E) - d_{jj'} d_{\Omega\Omega'} \right] D_{\Omega\Omega'}^J(\mathbf{q}) \right|^2 \quad (2.1.1.18)$$

olarak verilir. Burada $D_{\Omega\Omega'}^J(\mathbf{q})$ Wigner dönme matrisidir.

2.1.2. İnelastik Çarpışma

Saçılma sonucunda hedef molekülün kuantum enerji durumlarında bir değişme söz konusu olduğu durumdur. Yani; gelen atomun öteleme hareketi ile hedef molekülün titreşim, dönme ve elektronik durumları arasında bir enerji alışverişi olmaktadır. Dönme, titreşim ve elektronik durumların uyarılması daha çok inelastik saçılmayla ilgilidir. Dönme ve titreşim durumlarının uyarılması genelde aynı anda olmasına rağmen, küçük öteleme enerjilerinde titreşim durumlarının uyarılması sağlanmayabilir, merkezci kuvvetin ihmal edilmesiyle de titreşim ve dönme uyarılmaları ayırt edilebilir [3]. Elastik saçılmada elde edilen diferansiyel tesir kesiti ifadesi burada da geçerli olup sadece ürün molekülün titreşim ve dönme kuantum sayılarına bağlı olarak bir takım değişiklikler mevcut olacaktır.

Bu çalışmada ana hedef olarak reaktif saçılma ele alındığı için, bu saçılma ile ilgili olarak önce genel hatlar, denklemler ve tanımlamalar yapıp daha sonra diferansiyel tesir kesitinin nasıl hesaplandığı ayrı bir başlık altında verilecektir.

3. REAKTİF SAÇILMA

Gelen atomun enerjisi hedef molekül arasındaki bağı koparacak kadar büyükse reaktif saçılma olayı gerçekleşir. Reaktif saçılmada hedef moleküldeki bağı bozulmasıyla gelen atom, moleküldeki atomlardan biri ile yeni bir bağ oluşturur. $A + BC$ gibi iki atomlu bir molekül içeren reaksiyon için reaktif saçılma incelenmesi en zor olan saçılmadır. Bunun sebebi, reaksiyona giren ve reaksiyondan çıkan yeni ürünlerin koordinatlarının farklı olmasıdır. İnelastik saçılmada reaksiyon $A + BC$ şeklinde tek bir kanala sahip olduğu için bütün hareket tek bir koordinat setiyle tanımlanabilir [10]. Fakat reaktif saçılma; böyle basit bir reaksiyonda bile $AB + C$ ve $AC + B$ gibi iki açık kanala sahiptir. Özetle $(A + BC)$ giriş kanalı ile çıkış kanalı ($AB + C$ veya $AC+B$) farklı koordinatlara sahiptir. Çözümler yapılırken en önemli durum iki farklı Jacobi koordinat sisteminin kullanılmasıdır. Bunlar girenler ve ürünler için tanımlanan farklı koordinatlarıdır. Reaktif saçılma olayında, başlangıç molekülünün tüm hareketlerini tanımlayan başlangıç dalga fonksiyonu ilk önce giriş kanalı koordinatları cinsinden tanımlanır ve zamana bağlı Schrödinger denkleminin çözülmesi suretiyle yapılan yayılım boyunca bu koordinatlar kullanılır. Fakat bireysel kuantum seviyeleri gibi kuantum mekaniksel büyüklükler hesaplanırken ürün molekülün yani çıkış kanalının asimptotik (etkileşmenin olmadığı) bölgesine kadar yayılım devam etmelidir. Fakat bu yayılım ürün molekülün koordinatları cinsinden değerlendirilmelidir. Ürün molekülün asimptotik bölgesinde belirlenen bir analiz çizgisi boyunca her bir zaman adımı için dalga fonksiyonu kontrol edilerek reaksiyon ihtimaliyetleri elde edilmeye çalışılır. Bu ihtimaliyetler için kuantum mekaniksel denklemler aşağıdaki başlık altında verilmiştir.

3.1. Reaksiyon İhtimaliyetleri

İlk olarak toplam reaksiyon ihtimaliyetini hesaplamak için reaktant Jacobi koordinatlarının kullanıldığı Hamiltonyen ifadesi;

$$H = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{2}{R} \frac{\partial}{\partial R} + \frac{\partial^2}{\partial R^2} \right) + \frac{l^2}{2mR^2} - \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} \right) + \frac{j^2}{2mr^2} + V(r, R, g) \quad (3.1.1)$$

belirlenir. Burada r ; BC molekülünün atomları arası mesafe; R ; BC ' nin kütle merkezinin A atomuna olan uzaklığı ve g bu iki vektör arasındaki açıyı temsil eder. Sırasıyla r ve R ile ilişkili açısal momentum operatörleri j ve l (aynı şekilde indirgenmiş kütle m ve m) ve $V(r, R, g)$ etkileşim potansiyelidir. Burada cisim merkezli sistemi kullanmak uygundur ve bu sistemde R vektörü z eksenini boyunca olmak üzere diğer 3 atom x - z düzleminde. Bu yapıda, iç koordinatlar r , R ve γ arasında cisim merkezli eksenin yönelimi uzay merkezli sisteme gelince üç Euler açısı q, f ve c ile ayırt edilebilir. Böylece (3.1.1) eşitliğinde gösterilen açısal momentum operatörleri $l^2 = J^2 + j^2 - 2J \cdot j$ şöyle ifade edilir [3];

$$\begin{aligned} j^2 &= -\hbar^2 \left\{ \cot g \frac{\partial}{\partial g} + \frac{\partial^2}{\partial g^2} + \frac{1}{\sin^2 g} \frac{\partial^2}{\partial c^2} \right\}, \\ J \cdot j &= -\hbar^2 \left\{ (1 - \cot g \cot q \cos c) \frac{\partial^2}{\partial c^2} - \cot q \sin c \frac{\partial^2}{\partial c \partial g} + \cos c \frac{\partial^2}{\partial q \partial g} + \frac{\cot g \cos c}{\sin q} \frac{\partial^2}{\partial f \partial c} + \frac{\sin c}{\sin q} \frac{\partial^2}{\partial f \partial g} - \cot g \sin c \frac{\partial^2}{\partial q \partial c} \right\} \\ J^2 &= -\hbar^2 \left\{ \frac{\partial^2}{\partial q^2} + \cot q \frac{\partial}{\partial q} + \frac{1}{\sin^2 q} \left(\frac{\partial^2}{\partial f^2} + \frac{\partial^2}{\partial c^2} - 2 \cos q \frac{\partial^2}{\partial c \partial f} \right) \right\}, \\ J \cdot j &= -\hbar^2 \left\{ (1 - \cot g \cot q \cos c) \frac{\partial^2}{\partial c^2} - \cot q \sin c \frac{\partial^2}{\partial c \partial g} + \cos c \frac{\partial^2}{\partial q \partial g} + \frac{\cot g \cos c}{\sin q} \frac{\partial^2}{\partial f \partial c} + \frac{\sin c}{\sin q} \frac{\partial^2}{\partial f \partial g} - \cot g \sin c \frac{\partial^2}{\partial q \partial c} \right\} \end{aligned} \quad (3.1.2)$$

Hamiltonyen ifadesi belirledikten sonra bu ifadenin başlangıç dalga paketine uygulanması gerekir. Bunun için başlangıç toplam dalga paketi üç boyutta;

$$y^{JM}(R, r, t) = \sum_{\Omega} \left(\frac{2J+1}{8\pi^2} \right)^{1/2} D_{M\Omega}^{J*}(f, q, c) \frac{f_{\Omega}^J(r, R, g, t)}{rR} \quad (3.1.3)$$

olarak yazılabilir. Burada $D_{M\Omega}^J$; toplam açısal momentum operatörü $\hat{J} = \hat{j} + \hat{i}$ ile ilişkilendirilen toplam açısal momentum J ' ye uyan Wigner dönme matrisleridir ($\hat{J}$ ve $\hat{i}$ sırasıyla r ve R ile ilişkilendirilen açısal momentum operatörleridir). M ve Ω sırasıyla cisim merkezli ve uzay merkezli sistemde z ekseninde, J ' nin iz düşümleridir. z eksenini R ' ye paralel olduğundan, Ω ayrıca j ' nin R üstündeki izdüşümüdür. $f_{\Omega}^J(r, R, g, t)$ katsayıları, iç koordinatlar r, R, g için sonlu gridlerde temsil edilirler. $f_{\Omega}^J(r, R, g, t)$ zamana bağlı Schrödinger eşitliğinin integrasyonu ile elde edilir. $t = 0$ anında başlangıç dalga paketi şöyle tanımlanabilir;

$$\Psi_{n_0, j_0, \Omega_0}^{JM}(R, r, t = 0) = \left(\frac{2J+1}{8\pi^2} \right)^{1/2} D_{M\Omega_0}^{J*}(f, q, c) Y_{j_0, \Omega_0}(g, 0) \frac{f_{n_0 j_0(r)} G(R)}{r R} \quad (3.1.4)$$

gibi verilebilir. Burada $f_{n_0 j_0}(r)$ $BC(n_0, j_0)$ ' ın öz durumunun radyal kısmı, ilişkili Legendre fonksiyonlarıyla normalize edilmiş $E_{n_0, j_0}, Y_{j_0 \Omega_0}$ öz değerleri ve kompleks Gauss fonksiyonları $G(R)$ ile merkezi uzaklık R_0 etrafında asimptotik bölgede yer alır. R_0 yeterince büyük olduğu için Coriolis bağlaşımında, cisim merkezli sistemde $\hat{i}^2$ terimi nedeniyle ihmal edilebilir ($R_0 = R_{\infty}$). Fakat Coriolis bağlaşımaları R^{-2} için yavaşça azalır ve yüksek J için bu durum girenler arasında son derece uzun mesafeler ve böylece pratik olmayan nümerik hesaplamalar gerektirir. Orta düzeyli mesafede ise girenler arasındaki potansiyel etkileşim sıfırdır, fakat Coriolis bağlaşımaları ihmal edilemez, başlangıç dalga paketi Ω bileşeninin bir süper pozisyonu olarak ifade edilir. Bu tür bileşenlerin bir toplamı, R_0 ' da nümerik integrasyona başlamak için R_{∞} ' da yalnız Ω_0 ' a karşılık gelen başlangıç dalga paketinin integrasyonu ile belirlenir [3]. Uzay merkezli sistemden cisim merkezli sisteme dönüşümle bu analiz yapılabilir;

$$\Psi_{n_0, j_0, \Omega_0}^{JM}(R, r, t=0) = \frac{f_{n_0, j_0}(r)}{r} \left(\frac{2J+1}{8p^2} \right)^{1/2} \sum_{\Omega} D_{M\Omega}^{J*}(f, q, c) Y_{j_0\Omega} \quad (3.1.5)$$

$$\int dE_{a_0}(E) \left(\frac{m}{2p\hbar^2 k_0} \right)^{1/2} \frac{H_{\Omega_0\Omega}^{j_0}(k_0 R)}{R}$$

olarak yazılabilir. Burada $H_{\Omega_0\Omega}^{j_0}(k_0 R)$ cisim merkezli Bessel fonksiyonu;

$$H_{\Omega_0\Omega}^{j_0}(k_0 R) = (-1)^{-\Omega_0-\Omega} \exp[i(J+j_0)p/2] \sum_l (-i)^l (2l+1) h_l^{(2)}(k_0 R)$$

$$\begin{pmatrix} j_0 & l & J \\ \Omega_0 & 0 & -\Omega_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_0 & l & J \\ \Omega & 0 & -\Omega \end{pmatrix}$$

ve tesir kesiti; (3.1.6)

$$s(E, n, j \rightarrow n', j') = \frac{\Pi}{k_{nj}^2} \frac{1}{2j+1} \sum_{\Omega\Omega'} \sum_J (2J+1) \left| S_{n, j, \Omega \rightarrow n', j', \Omega'}^J(E) \right|^2$$

olarak elde edilir. Burada m_R ile ilişkili indirgenmiş kütle ve $k_0 = \left[2m(E - E_{n_0 j_0} / \hbar^2) \right]^{1/2}$,

dır. (3.1.6) eşitliğinde $h_l^{(2)}, h_l^{(2)} R \rightarrow \infty \exp[-i(kR - lp/2)] / kR$ şeklinde davranan Bessel fonksiyonlarının üç çeşidinden bir tanesi olan küresel Bessel fonksiyonudur. Problem, giriş kanalında E enerjisinde akı genliği $a_0(E)$ katsayısının kararlılığıdır;

$$a_0(E) = \left(\frac{m}{2p\hbar^2 k_0} \right)^{1/2} \int k_0 R h_{l_{cs}}^{(2)*}(k_0 R) G dR \quad (3.1.7)$$

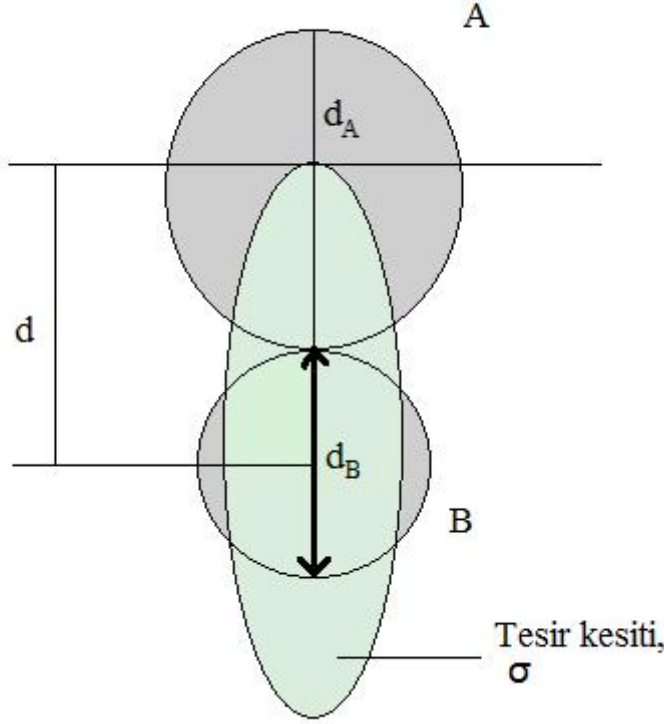
$G(R)$ eşitlik (3.1.4)' teki kompleks Gauss ve l_{cs} katsayısı l' ye en yakın yeterli tamsayıdır $l(l+1) = J(J+1) + j_0(j_0+1) - 2\Omega_0^2$. Reaksiyon ihtimaliyetlerini hesaplamak için, cisim merkezli Bessel fonksiyonları aracılığıyla yapılabilen uygun sınır şartlarını göz önüne

almak da önemlidir. Aksine kararlı enerji toplam reaksiyon ihtimaliyeti, ürün bölgesinde bir yüzey yoluyla dalga paketinin enerji iz düşümünün toplam akısıyla hesaplanır [3];

$$P_{v_0 j_0 \Omega_0}^J(E) = \frac{1}{2\pi m} \sum_{\Omega} \int dR \sin g \, dg \times \text{Im} \left[\Psi_{\Omega}^{+*}(r^*, R, g, E) \frac{\partial \Psi_{\Omega}^{+}(r, R, g, E)}{\partial r} \Big|_{r^*} \right] \quad (3.1.8)$$

3.2. Dalga Paketinin Analizi ve Diferansiyel Tesir Kesitinin Hesaplanması

Günümüzde, diferansiyel tesir kesitlerin hesaplanması için zamana bağlı, zamandan bağımsız ve kuasiklasik yöntemler gibi birçok metot kullanılmaktadır. Yakın zamana kadar, reaktif çarpışmalar için diferansiyel tesir kesitlerin çoğu kuantum simülasyonu ile hiper-küresel koordinatlara dayanan ve zamandan bağımsız yöntemi elde edilmiştir [8,9,10]. Hiper-küresel koordinatlar sadece güçlü etkileşme bölgesinde temsil edilir [11]. Kitlesel paralel bilgisayarlarının gelişmesiyle, dalga paketinin bir tek set hesaplamalar mümkün olmaktadır [12,13]. Bireysel kuantum durumları arasındaki tesir kesitini ve başlangıç kuantum durumları verir [16]. Klasik olarak tesir kesitinin resimsel anlamda tanımı şekil 3.1 de verilmiştir. Bu başlık altında kuantum mekaniksel olarak reaktif saçılma için diferansiyel tesir kesitinin denklemleri türetilecektir. Bunun için ilk önce başlangıç dalga paketi



Şekil 3.1. Diferansiyel Tesir kesitleri (Klasik, makro seviyede).

$$q(R^a, r^a, g^a; t=0) = w(R^a - R_0) e^{-ik_0(R^a - R_0)} j_{n,j}^{BC}(r^a, g^a) \quad (3.2.1)$$

olarak yazılır. Burada $w(R^a - R_0)$ bir $\sin c$ ya da Gaussian dalga şekli, $j_{n,j}^{BC}(r^a, g^a)$ iki atomlu reaktantın başlangıç dalga fonksiyonu ifadesini belirledikten sonra gerekli koordinat dönüşümleri yapılır.

$$q^{J\Omega'}(R^c, r^c, g^c) = q^{J\Omega}(R^a, r^a, g^a) \frac{R^c r^c}{R^a r^a} d_{\Omega\Omega'}^J(b) \quad (3.2.2)$$

$d_{\Omega\Omega'}^J(b) = D_{\Omega\Omega'}^J(0b0)$ indirgenmiş dönme matrisi ve b , R^a ve R^c vektörleri arasındaki açıdır. Buradan hareketle tam anlamıyla ürün Jacobi koordinatlarıyla çalışırız.

$$C_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(t) = \int j_{n',j'}^*(r,g) q^{J\Omega'}(R_{\infty,r,g,t}) dr dg \quad (3.2.3)$$

$j_{n',j'}^*(r,g)$ iki atomlu ürünün öz fonksiyonu ve $q^{J\Omega'}(R=R_{\infty,r,g,t})$ dalga paketinin gerçek kısmıdır.

$$A_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(E) = \frac{1}{2\Pi} \int_0^\infty e^{iEt/\hbar} C_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(t) dt \quad (3.2.4)$$

S matrisini tam anlamıyla doğru hesaplayabilmek için cisim merkezli koordinatlardan uzay merkezli koordinatlara dönüştürmemiz gerekmektedir, bazı eksik kısımlar eklenir ve sonra tekrar geri dönüştürülür;

$$A_{n,j,l \rightarrow n',j',l'}^J(E) = \sum_{\Omega'\Omega}^{\min(j',J)} Z_{l\Omega}^J A_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(E) Z_{l'\Omega'}^J \quad (3.2.5)$$

$Z_{l'\Omega'}^J$ ürünler için, $Z_{l\Omega}^J$ ise reaktantlar için dönüşüm elemanlarını içerir. Dönüşüm matrisi $Z_{l'\Omega'}^J$ elemanı ile Coriolis Coupling matrisinin diyagonalize edildiği matristir. S matris elemanları uzay merkezli koordinat sisteminde şöyle verilir;

$$S_{n,j,l \rightarrow n',j',l'}^J(E) = -\frac{\hbar^2}{(1-E_s^2)^{1/2}} \frac{2}{\Delta E} \left(\frac{k_{n',j'} k_{n,j}}{m_r m_p} \right)^{1/2} \quad (3.2.6)$$

$$\frac{2A_{n,j,l \rightarrow n',j',l'}^J(E)}{g(-k_{n,j})} e^{-i(k_{n',j'} R_\infty + d\hbar_{n',j'l' \rightarrow n,jl})}$$

Burada E_s , E enerjisine karşılık gelen orantılı enerjidir. m_r ve m_p sırasıyla saçılma için sırasıyla reaktant ve ürün Jacobi koordinatlarında indirgenmiş kütleler olup, $k_{n',j'}$ ürün kanalıyla ilgili bileşen olan dalga vektörüdür ve şöyle hesaplanır;

$$k_{n'j'} = \sqrt{2m_p \left(E - \left(e_{n'j'} + \frac{l(l'+1)}{2m_p R_\infty^2} \right) \right)} \quad (3.2.7)$$

Eşitlik (3.2.6) de $dh_{n'jl'}$ ve dh_{njl} faz düzeltmelerinde ortaya çıkan büyüklüklerdir. Çünkü merkezkaç potansiyeli analiz çizgisinde sıfır değildir. Çıkış kanalındaki faz düzeltmesi;

$$dh_{v'jl'} = \int_{R_\infty}^{\infty} dR \left\{ \sqrt{2m_p \left(E - \left(e_{v'j'} + \frac{l(l'+1)}{2m_p R_\infty^2} \right) \right)} - \sqrt{2m_p (E - e_{v'j'})} \right\} \quad (3.2.8)$$

iken giriş kanalında ki düzeltme;

$$dh_{vj} = \int_{R_\infty}^{\infty} dR \left\{ \sqrt{2m_p \left(E - \left(e_{vj} + \frac{l(l'+1)}{2m_p R^2} \right) \right)} - \sqrt{2m_p (E - e_{vj})} \right\} \quad (3.2.9)$$

olur. Uzay merkezli sistemde hesapladığımız S matrisini, şimdi cisim merkezli sisteme dönüştürebiliriz;

$$S_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(E) = \sum_{l'l'} Z_{\Omega l}^J S_{n,j,l \rightarrow n',j',l'}^J(E) Z_{\Omega' l'}^J \quad (3.2.10)$$

Bütün bu işlemlerden sonra açığa bağlı olan tesir kesiti (diferansiyel tesir kesiti);

$$s(E, q, n, j \rightarrow n', j') = \frac{1}{2j+1} \sum_{\Omega \Omega'} \frac{1}{4k_{nj}^2} \left| \sum_J (2J+1) S_{n,j,\Omega \rightarrow n',j',\Omega'}^J(E) d_{\Omega \Omega'}^J(q) \right|^2 \quad (3.2.11)$$

Olarak verilir ve bireysel kuantum seviyeleri arasındaki toplam tesit kesitleri ise

$$s(E, n, j \rightarrow n', j') = \frac{\Pi}{k_{nj}^2} \frac{1}{2j+1} \sum_{\Omega} \sum_J (2J+1) \left| S_{n, j, \Omega \rightarrow n', j', \Omega}^J(E) \right|^2 \quad (3.2.12)$$

şeklindedir.

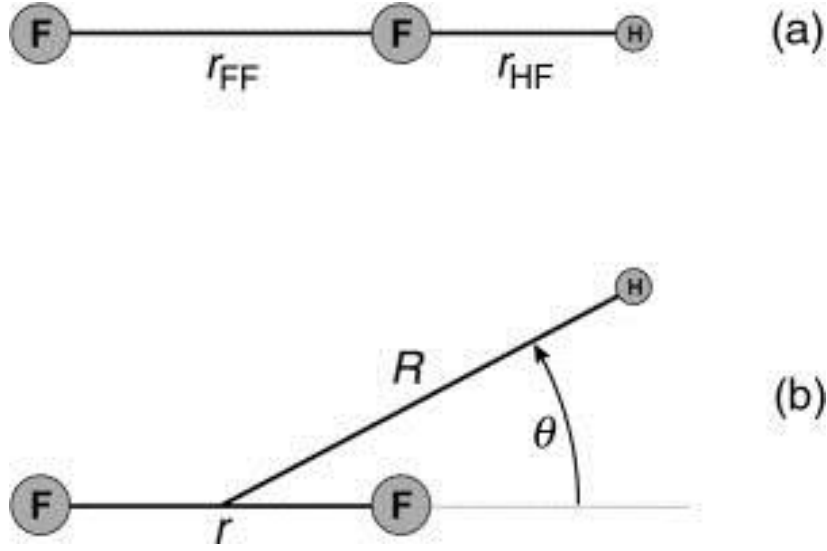
.

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Önceki bölümlerde metot ve teorisi verilen kuantum mekaniksel denklemler $H+F_2$ etkileşmesine uygulanarak ilgili sistemin potansiyel enerji yüzeyi (PEY) test edildi. Daha sonra bu potansiyel üzerinde dinamik çalışmalara başlamak için aşağıdaki işlemler sırasıyla gerçekleştirildi.

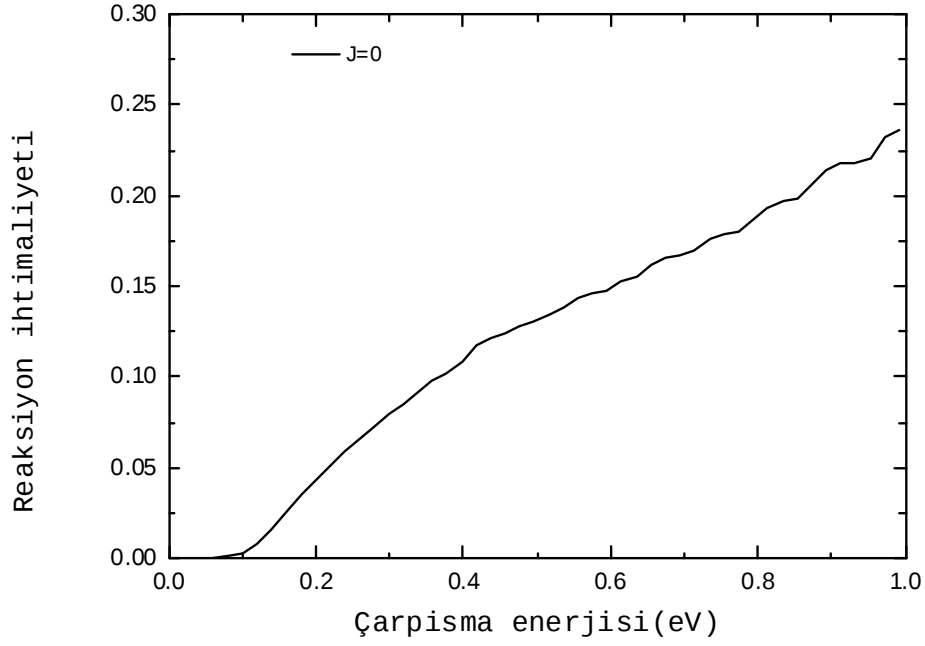
- 1- $H+F_2$ şeklindeki atom - iki atomlu molekül etkileşme problemi için toplam Hamiltonyen operatörü, cisim merkezli koordinat sisteminde tanımlandı.
- 2- Tepkimeye girecek olan (F_2) molekülün başlangıç dönme ve titreşim kuantum durumu ($v=0, j=0$) için toplam açısal momentum kuantum sayısının bütün değerleri için toplam reaksiyon ihtimaliyetleri hesaplandı.
- 3- Elde edilen bu toplam reaksiyon ihtimaliyetleri açılar üzerinden integral alınarak toplam diferansiyel tesir kesitleri elde edildi.

Hesaplamalarımızda, $H+F-F$ bağlantısının tanımlamasında kullanılan sistem için; şekil 4.1 (b)' de r, R, θ koordinatları, F-F mesafesi gösterildi, F-F kütesinin merkezinden itibaren H atomunun Jacobi açısı ile bağlantının, F-F eksenine ve H atomu arasında oluşur. Kolaylık için şekil 4.1 (a) 'da, bağlantı ile aynı doğrultuda olan geometrik şerit koordinatları kullanıldı $r_{FF} (= r)$ ve r_{HF} .



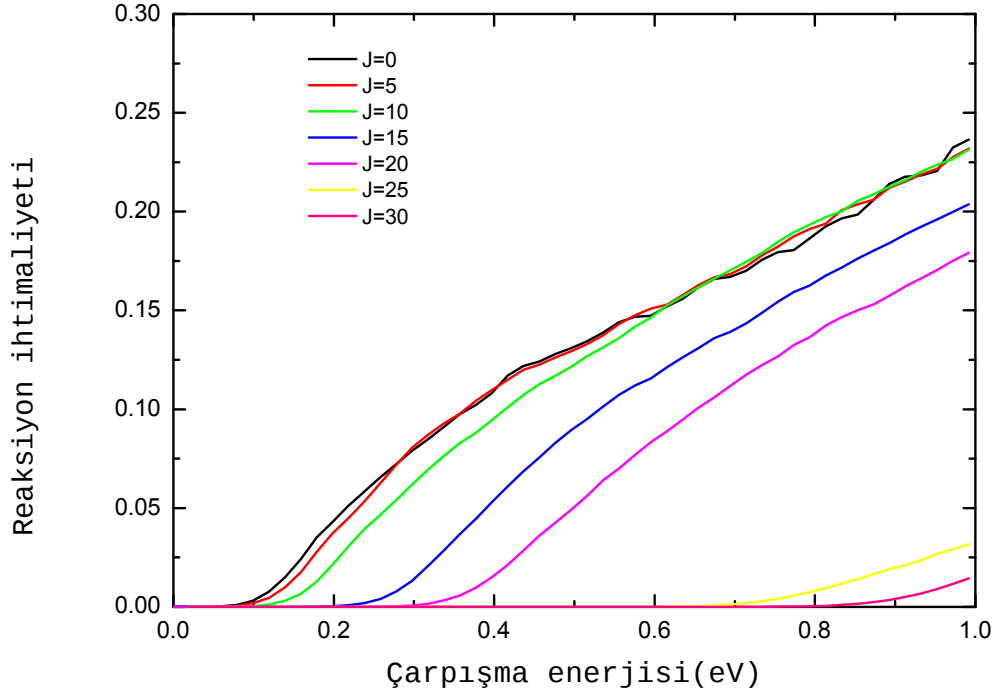
Şekil 4.1. HF_2 sistemi için, (a) aynı doğrultuda olan, (b) atomların belli açıda dizilimi.

Zamana bağlı 3 boyutta kuantum reaktif saçılma hesaplamaları HFF potansiyel enerji yüzeyinde uygulanmıştır. Bunun için ilk önce başlangıç dalga paketi reaktantların asimtotik bölgesine yerleştirildi ve bu başlangıç dalga paketine bir ilk momentum verilerek güçlü etkileşme bölgesine doğru yayılım sağlandı. Güçlü etkileşme bölgesine ulaşan ve buradan da çıkış kanalına giden dalga paketi bileşenleri reaktif saçılma ile ilgili bilgileri içerir. Bu bileşenler çıkış kanalının asimtotik bir bölgesinde bir analiz çizgisi belirlemek koşuluyla her bir zaman adımında bu çizgiden geçen akı analiz edilerek kontrol edilir ve kuantum mekaniksel bilgilerde, analiz çizgisinden geçen dalga paketi bileşenlerinin başlangıç dalga paketi ile karşılaştırılmak suretiyle elde edilir. Bu kapsamda, bu tez çalışmasında astrofizikte önemli olması bakımından $\text{H} + \text{F}_2 \rightarrow \text{HF} + \text{F}$ reaksiyonu detaylı olarak ele alınıp incelendi. Bu reaksiyonun toplam reaksiyon ihtimaliyetleri, toplam tesir kesitleri ve diferansiyel tesir kesitleri hesaplandı.



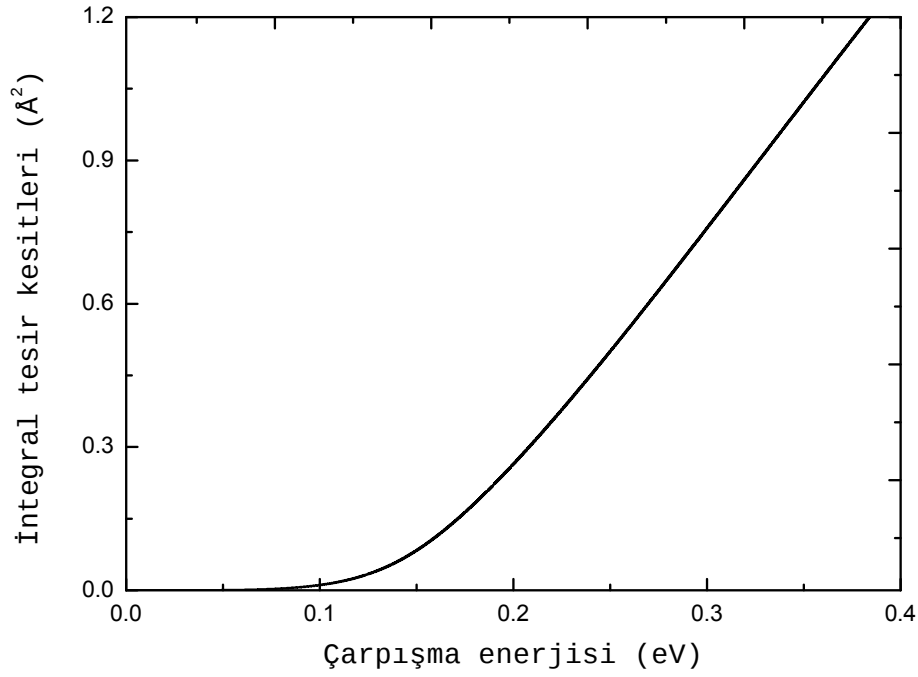
Şekil 4.2. $\text{H}+\text{F}_2(\text{v}=0, \text{j}=0) \rightarrow \text{HF}+\text{F}$ reaksiyonu için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine göre değişimi.

Şekil 4.2. $\text{H}+\text{F}_2(\text{v}=0, \text{j}=0) \rightarrow \text{HF}+\text{F}$ reaksiyonu için $J=0$ kuantum durumu için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine göre değişimini vermektedir. Bu sonucun elde edilmesi için dalga paketi metodu kullanıldı. Şekilden de görüldüğü gibi reaksiyon ihtimaliyeti bir eşik değerinden itibaren 0.089 eV başlamakta olup artan enerji değeri ile ihtimaliyet arttığı görülmektedir. Reaksiyon ihtimaliyetinin eşik davranışı göstermesi bu reaksiyonun 0.089 eV gibi bir reaksiyon bariyerine sahip olduğu anlamına gelir. Elde edilen toplam reaksiyon ihtimaliyeti, reaksiyon yolu boyunca sistemin derin bir potansiyel kuyusuna sahip olmamasından dolayı herhangi bir rezonans yapısı göstermemektedir.



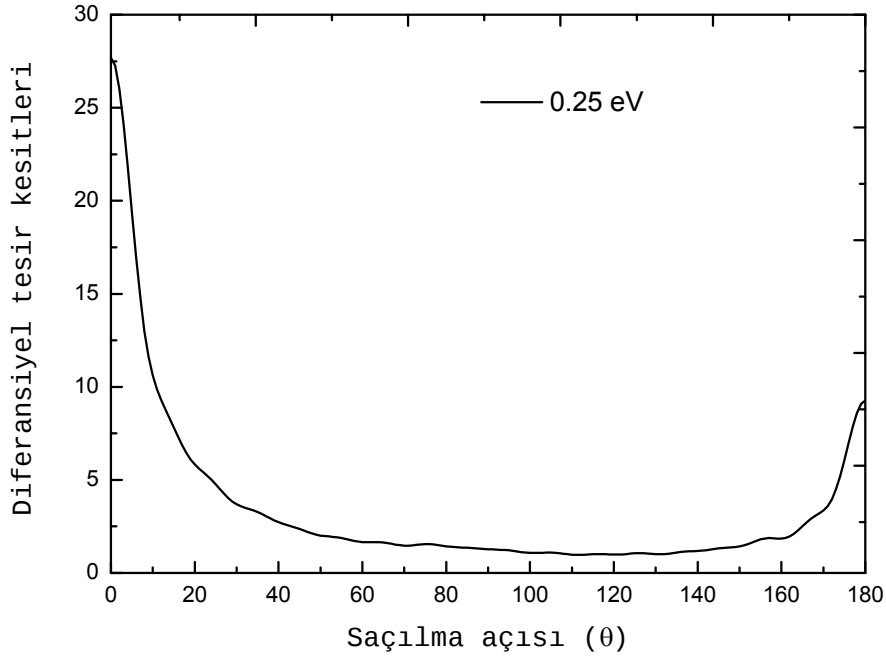
Şekil 4.3. $v=0$, $j=0$ başlangıç kuantum durumunda toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinin farklı J değerleri için değişim grafiği.

Şekil 4.3. te ise farklı toplam açısal momentum değerleri için reaksiyon ihtimaliyetleri verilmiştir. Toplam açısal momentum değeri arttıkça centrifugal (merkezcil) terimden dolayı reaksiyon ihtimaliyetindeki eşik değeri de artan enerji değerine doğru kaymıştır. Bu reaksiyon ihtimaliyetleri göz önüne alınarak toplam integral tesir kesitleri hesaplandığında $J=30$ tane toplam açısal momentum kuantum sayısının işleme katılması ile 0.80 eV değerine kadar integral tesir kesitlerinin yakınsama olması için yeterli olacağı açıktır. Bütün eğrilerde reaksiyon ihtimaliyeti artan enerji değerine bağlı olarak artmış ve toplam açısal momentumun artması ile birlikte ise bir azalma olduğu görülmektedir.



Şekil 4.4. $\text{H}+\text{F}_2(v=0, j=0) \rightarrow \text{HF}+\text{F}$ reaksiyonları için toplam integral tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine göre değişimi.

Bütün bu toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinin toplanması ile integral (toplam) tesir kesitleri elde edildi. Elde edilen bu sonuçlar Şekil 4.4. te görülmektedir. Bu sonuçlardan da görüleceği üzere integral tesir kesitleri bir eşik davranışı gösterip bu davranış toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinden de görülmüştür. Çarpışma enerjisinin artması ile integral tesir kesitleri de artmaktadır. Elde edilen bu sonuç literatürde mevcut olan sonuçlar ile uyum içindedir [14].



Şekil 4.5. $v=0, j=0$ için toplam diferansiyel tesir kesitleri.

Şekil 4.5. te $H+F_2(v=0, j=0) \rightarrow HF+F$ reaksiyonu için $v=0, j=0$ başlangıç kuantum durumu için diferansiyel tesir kesitinin açıya bağlı değişimi görülmektedir. Bu açı H atomunun F_2 molekülüne yaklaşım açısı olup aynı zamanda Jacobi koordinatlarındaki açıdır. Bu sonuçlara bakıldığında reaksiyonun en büyük ihtimalle gerçekleşme durumu sıfır derecede yani kolineer geometride olduğu söylenebilir. Reaksiyonun gerçekleşme ihtimalinin en düşük olduğu açılar ise $60^\circ - 160^\circ$ aralıklarında olduğu söylenebilir. Bu diferansiyel tesir kesitleri 0.25 eV 'lük sabit enerji değerinde hesaplanmıştır. Sonuç olarak bu grafikten saçılma açısının değişimi ile tesir kesitlerinin ilk etapta yüksek değerde olduğu ve belli bir azalmadan sonra tekrar yükseldiği görülmektedir.

Sonuç olarak, bu tez çalışmasının ana amacı olan diferansiyel tesir kesitleri, yukarıda teori ve metotlar kısmında verilen kuantum mekaniksel denklemler kullanılarak $H+F_2$ reaksiyonu için hesaplanmıştır ve ayrıca aynı sistem için toplam reaksiyon ihtimaliyetleri, toplam integral tesir kesitleri de hesaplandı ve elde edilen sonuçların literatür ile uyumlu oldukları görülmektedir.

5. KAYNAKLAR

[1]. Muz,İ. Bulut,N. 2013, ‘ $H^+ + H_2(v=0,j=0-3) \rightarrow H_2^+ + H(v'=0-2, j'=0)$ Reaksiyonunun Kuasiklasik Yörünge Metodu İle İncelenmesi’ , Nevşehir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi. Cilt 2(1) 1.

[2].<http://superetut.com/11-sinif/kimya2010/reaksiyon-hizlari-ve-kimyasal-denge/reaksiyon-hizlari/carpisma-teorisi-2630/oku-1113020103>.

[3]. Çimenoglu, D. Mayıs-2014, Yüksek lisans Tezi, “Atom-İki Atomlu Molekül Etkileşmelerinin Stereo-Dinamik Özelliklerinin Araştırılması” , Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.

[4]. <http://lisanskimya.balikesir.edu.tr/~f20512/Kimyasalkinetik.html>

[5]. SUN De-Sheng^{a,b}, WANG Zun-Yao^b, YANG Chun-Sheng^b, “Theoretical Study on the Reaction Mechanism of $F_2+2HBr = 2HF+Br_2$ ” , ^a(School of Chemical Engineering, Nanjing University of Technology, jiangsu, Nanjing 210009, China), ^b(Department of Chemical Engineering, Yancheng Institute of Technology, Jiangsu, Yancheng 224003, China)

[6]. D. Skouteris, J. F. Castillo, D. E. Manolopoulos, Comp. Phys. Comm. 133 (2000) 128.

[7]. Aslan, E. Ocak-2013, Doktora Tezi, “Atom Molekül etkileşmelerinin Paralel Programlama Kullanılarak Dalga Paketi Metodu İle İncelenmesi”, Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü.

[8]. Launay, J. M. Le Dourneuf, M. Chem. Phys. Lett. 1989, 163, 178.

[9]. Kuppermann, A. ; Hipes, P. G. J. Chem. Phys. 1986, 84, 5962.

[10]. Castillo, J. F. ; Manolopoulos, D. E. ; Stark, K. ; Werner, H.-J. J. Chem. Phys. 1996, 104, 6531.

[11]. Göğtaş, F, G.G. Balmt. Kurti, A.R. Offer, Quantum Mechanical Three Dimasional Wave Packet study of Li +HF Reaction, Journal of Cha. Phys. Vol.104, No:20, 7927 (1996).

[12]. Hankel, M. Smith, S. C. Allan, R. J. Gray, S. K. Balint-Kurti, G. G. J. Chem. Phys. 2006, 125, 164303.

[13]. Lin, S. Y. ; Guo, H. Phys. ReV. A 2006, 74, 022703.

[14]. F. Gogtas, E. Karabulut, T. Tanaka, T. Takayanagi ve R. Tutuk, Real wave packet and flux analysis studies of the $H+F_2 \rightarrow HF+F$ Reaction, International Journal of Quantum Chemistry, Vol.112, issue 11, 2012, 2348-2354.

[15]. Huran, A., External Practices Report, 05, 2014.

[16]. R.Padmanaban, Time-Dependant Wave Packet Dynamics of the $H+HLi$ Reaction, PhD Thesis, Hyderabad University, Cuonisty school, Hyderabad, Indian, 2005.

ÖZGEÇMİŞ

Kişisel Bilgiler

Adı Soyadı: Mehmet Hanifi KEBİROĞLU

Doğum Yeri: MALATYA

Doğum Tarihi: 02.04.1982

Uyruk: T.C.

Tel: +90 531 505 75 34

E-Posta: hanifi007@hotmail.com

EĞİTİM

- Malatya Lisesi (1996-2000)
- Fırat Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü (2008-2012)
- Fırat Üniversitesi Eğitim Fakültesi Tezsiz Yüksek Lisans (2014-2015)
- Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tezli Yüksek Lisans (2012-)

BU TEZ ÇALIŞMASI İÇİN YARARLANILAN PROJELER

1. I-LINK0775, "Quantum simulation of state-to-state rate constants for the formation of hydrides in reactive collisions and their radiative transfer constants for chemical pumping models in astrophysical media", Uluslar arası proje. coord. Octavio RONCERO VILLA, 2014-2016. (8-22 Kasım 2014 (15 gün) Madrid CSIC Enstitüsünde çalışmalarda bulunmak)
2. Teorik Astrokimya: Reaksiyon Dinamik ve Kinetiklerinin Kuantum Mekaniksel Metotlar ile Hesaplanması, Evrensel Araştırmacı (Evrena) Programı ve Uluslararası Bilimsel Araştırma Projelerine Katılma Programı, TBAG-112T827, coord. N. Bulut, 2013- 2016. (Bursiyer).

YAYIN ve BİLDİRİLER

1. D.Cimenoglu, **H.Kebiroglu** and N.Bulut, 'The Effect of Projection Quantum Numbers on the Reaction Dynamics', 22. Istanbul İstatistiksel Fizik Günleri, Haziran 25- 27, 2015-İstanbul, TURKEY.
2. **H.Kebiroglu**, D.Cimenoglu and N.Bulut, 'The Dynamics of the $H+F_2(v=0,j=0) \rightarrow HF+F$ Reaction' , Organic Electronic Material Technologies Conference, March 25-28, 2015-Elazig, TURKEY.
3. **H.Kebiroglu**, D.Cimenoglu and N.Bulut, 'Reaction Probabilities for the $H+F_2(v=0,j=0) \rightarrow HF+H$ Reaction', 31th International Physics Congress, July 21-24, 2014-Bodrum, TURKEY.

4. D.Cimenoglu, **H.Kebiroglu**, O.Roncero and N.Bulut, 'The Effect of Initial Rotation Quantum Number on the $O^{++}H_2(v=0,j=2) \rightarrow OH^+ + H$ Reaction', 31th International Physics Congress, July 21-24, 2014-Bodrum, TURKEY.