

# SiH<sub>2</sub> 体系的分子反应动力学\*

冯 兴<sup>1)†</sup> 朱正和<sup>1)†</sup> 刘晓亚<sup>3)</sup> 杨向东<sup>1)</sup> 黄 玮<sup>3)</sup>

1) 四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

2) 四川农业大学生命科学与理学院, 雅安 625014)

3) 中国工程物理研究院, 绵阳 621900)

(2008 年 3 月 27 日收到, 2009 年 4 月 24 日收到修改稿)

基于多体展式方法所导出的 SiH<sub>2</sub>(<sup>1</sup>A<sub>1</sub>) 分析势能函数, 用准经典的 Monte Carlo 轨线法研究了 S(<sup>1</sup>D<sub>g</sub>) + H<sub>2</sub>(0, 0) 和 H(<sup>2</sup>S<sub>g</sub>) + SiH(0, 0) 的原子与分子反应动力学过程. 研究表明 S(<sup>1</sup>D<sub>g</sub>) 与 H<sub>2</sub>(0, 0) 的碰撞在低能时 (小于 209.20 kJ/mol) 生成稳定的络合物 SiH<sub>2</sub>(<sup>1</sup>A<sub>1</sub>), 该反应是无阈能反应, 而 H(<sup>2</sup>S<sub>g</sub>) 与 SiH(0, 0) 碰撞不能生成稳定的络合物, 主要发生交换反应 H(<sup>2</sup>S<sub>g</sub>) + SiH(0, 0) → Si(<sup>1</sup>D<sub>g</sub>) + H<sub>2</sub>(0, 0), 该反应也是无阈能反应.

关键词: SiH<sub>2</sub>, 势能函数, 反应截面, 轨线

PACC: 3410, 3430, 3440

## 1. 引 言

氢化非晶硅已经广泛应用于太阳能电池, 而且作为薄膜场效应管在电视摄像、计算机记忆、平板显示器等领域的应用也取得了很大的进展<sup>[1-3]</sup>. SiH 和 SiH<sub>2</sub> 分子是氢化非晶硅的重要中间物之一, 并且 SiH 和 SiH<sub>2</sub> 在氢化非晶硅中的相对含量是决定其物理和电学特性的主要因素之一. 因此, 长期以来氢化非晶硅的制备方法和红外光谱分析为氢化非晶硅薄膜提供准确的组态信息已成为一个研究热点<sup>[4-6]</sup>. 为了有利于分析氢化非晶硅的组态信息和研究 Si-H 反应体系, 有必要从原子分子的层次上对 SiH 和 SiH<sub>2</sub> 分子进行研究. Allen 等<sup>[7]</sup> 在 CISD/B<sub>2</sub> 的水平上优化了 SiH 和 SiH<sub>2</sub> 的分子结构; 宋晓书等<sup>[8]</sup> 在 B3LYP/aug-cc-PVTZ 的水平上给出了 SiH 分子基态的结构与势能函数. 我们曾应用二次组态相关方法, 采用 D95(3df, 3pd) 基组计算了 SiH 分子和 SiH<sub>2</sub> 分子的结构, 并在此基础上, 利用多体项展式理论方法导出三原子分子 SiH<sub>2</sub> 的解析势能函数. 目前, 用原子分子微观反应动力学研究 S<sub>i</sub> 与 H<sub>2</sub> 气的反应机制尚未见相关文献报道.

## 2. 计算方法

分子反应动力学研究的基础是分析势能函数. 本文的势能函数采用多体项展式理论确定, 其具体方法参见文献 [9-11]. 令  $R_1 = R_2 = R_{\text{SiH}}$ ,  $R_3 = R_{\text{HH}}$ , 并设基态原子的能量为零, 则满足离解极限的多体项展式分析势能函数为

$$V = V_{\text{Si}} + V_{\text{SiH}}^2(R_1) + V_{\text{HSi}}^2(R_2) + V_{\text{HH}}^2(R_3) + V_{\text{SiH}_2}^3(R_1, R_2, R_3). \quad (1)$$

(1) 式中二体项采用 Murrell-Sorbie 势能函数<sup>[12]</sup>, 即  $V^2(\rho) = -E_d(1 + a_1\rho + a_2\rho^2 + a_3\rho^3)\exp(-a_1\rho)$ , (2)

式中  $\rho = R - R_e$ ,  $R$  和  $R_e$  分别为核间距和平衡核间距,  $E_d$  为离解能,  $a_1, a_2, a_3$  为势能函数参数, 这三个参数可由从头计算的单点能拟合得出. 三体项  $V_{\text{SiH}_2}^3(R_1, R_2, R_3)$  为

$$V^3(R_1, R_2, R_3) = PT, \quad (3)$$

式中  $P$  为对称内坐标  $S_i$  的多项式,  $T$  为量程函数. 其表达式分别为

$$P = C_0 + C_1 S_1 + C_2 S_2 + C_3 S_2^2 + C_4 S_3^2 + C_5 S_1 S_2 + C_6 S_3^4 + C_7 S_1^2 + C_8 S_1(S_2^2 + S_3^2) + C_9 S_2 S_3^2, \quad (4)$$

\* 国家自然科学基金(批准号: 10576029)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: scyalf@163.com

$$T = [1 - \tanh(\gamma_1 S_1/2)] [1 - \tanh(\gamma_2 S_2/2)] \times [1 - \tanh(\gamma_3 S_3/2)]. \quad (5)$$

(4)和(5)式中  $S_i$  定义如下:

$$\begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{bmatrix} = \begin{pmatrix} 1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 1/\sqrt{2} & -1/\sqrt{2} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{bmatrix} \rho_1 \\ \rho_2 \\ \rho_3 \end{bmatrix}. \quad (6)$$

(6)式中  $\rho_i = R_i - R_i^0$  ( $i = 1, 2, 3$ ) 为选取  $C_{2v}$  结构作为参考坐标的内坐标。(2)(4)和(5)式的参数见表 1(其中  $H_2(X^1\Sigma_g^+)$  的势能函数引自文献 [12]) 和表 2.

表 1 SiH 和  $H_2$  二体项参数

电子态	$E_d/\text{eV}$	$R_e/\text{nm}$	$\alpha_1/\text{nm}^{-1}$	$a_2/\text{nm}^{-2}$	$a_3/\text{nm}^{-3}$
SiH( $X^2\Pi_r$ )	3.2534	0.15205	31.924	253.34	$1.0000 \times 10^3$
$H_2(X^1\Sigma_g^+)$	4.747	0.07414	39.61	406.4	$3.574 \times 10^3$

表 2 SiH<sub>2</sub> 分析势能函数的三体项参数

参数	取值
$C_0$	$-9.48526 \times 10^{-3}$
$C_1$	0.28248
$C_2$	1.62161
$C_3$	-2.75738
$C_4$	-2.32771
$C_5$	1.50682
$C_6$	1.33839
$C_7$	$3.96841 \times 10^{-2}$
$C_8$	-2.24229
$C_9$	-0.18997
$\gamma_1$	1.25
$\gamma_2$	1.1
$\gamma_3$	2.6
$E_d$	7.41104 eV

$$\frac{\partial H}{\partial p_i} = \dot{q}_i, \quad (7)$$

$$\frac{\partial H}{\partial q_i} = -\dot{p}_i,$$

式中  $i = 1, 2, \dots, 9$ . 在质心坐标系中(7)式经坐标变换得到相对运动的 12 个方程为

$$\begin{cases} \frac{\partial H_{\text{rel}}}{\partial P_i} = \dot{Q}_i, \\ \frac{\partial H_{\text{rel}}}{\partial Q_i} = -\dot{P}_i, \end{cases} \quad (8)$$

式中  $i = 1, 2, \dots, 6$  哈密顿函数  $H_{\text{rel}}$  为

$$H_{\text{rel}} = \frac{1}{2\mu_{BC}} \sum_{i=1}^3 P_i^2 + \frac{1}{2\mu_{A,BC}} \sum_{i=4}^6 P_i^2 + U(Q_1, Q_2, \dots, Q_6). \quad (9)$$

且有

势能函数确定以后,由准经典的 Monte Carlo 轨线法<sup>[13]</sup>求解给定势能函数下的运动方程.对于三粒子的保守体系,为了完整地描述体系在指定时间所处的状态,必须说明这三个质点的位置和速度,因此需要 9 个坐标和 9 个动量.设三原子体系 ABC,它们的质量分别为  $m_A, m_B, m_C$ ,在直角坐标系下,它们的坐标分别为  $A(q_1, q_2, q_3), B(q_4, q_5, q_6), C(q_7, q_8, q_9)$ .因此,三粒子体系的运动方程有 18 个,即

$$\frac{1}{\mu_{BC}} = \frac{1}{m_B} + \frac{1}{m_C},$$

$$\frac{1}{\mu_{A,BC}} = \frac{1}{m_A} + \frac{1}{m_B + m_C}.$$

这里  $U(Q_1, Q_2, \dots, Q_6)$  为分析势能函数.经过坐标再变换,可以建立起内坐标  $(R_1, R_2, R_3)$  表示的势能函数的 12 个哈密顿运动方程.对此方程可进行 Runge-Kutta-Gill 法和 Adms-Moulton 法联合数值求解.反应截面用下式计算:

$$\sigma_r(E_t, V, J) = 2\pi \int_0^{b_{\text{max}}} P(E_t, V, J, b) b db = \pi b_{\text{max}}^2 \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{N_r(E_t, V, J)}{N(E_t, V, J)} \quad (10)$$

式中  $N$  与  $N_r$  分别为计算的总轨线与指定生成物的轨线数,  $b_{\text{max}}$  为最大碰撞参数,  $E_t$  为初始相对平动能,  $V$  和  $J$  分别为振动量子数和转动量子数.在计算中  $N$  取有限值,其大小由结果所允许误差的范围来确定.本文实际计算  $10^5$  条轨线.  $b_{\text{max}}$  值的确定方法如下:预先给定初始平动能  $E_t$ ,选取一系列碰撞参数进行试算( $N = 2000$ ),取刚好处于非弹性碰撞和弹性碰撞临界状态时的  $b$  值,该值即为最大碰撞参数  $b_{\text{max}}$ <sup>[13]</sup>.

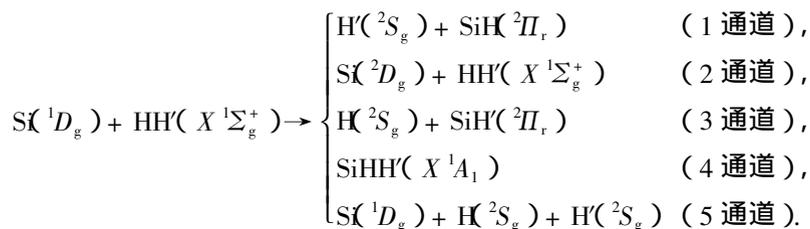
### 3. 结果与讨论

#### 3.1. Si + $H_2(0, 0)$ 碰撞的轨线计算结果

Si 原子碰撞  $H_2$  分子的初始相对平动能  $E_t$  如表 3 所列,  $H_2(X^1\Sigma_g^+)$  的初始振转量子数均取零, Si 到

H<sub>2</sub> 分子质心之间的初始距离取 2 nm, Si 分子初始振动相位及体系的方位均由 Monte Carlo 方法随机选

取,  $b^2$  在  $0-b_{\max}^2$  之间均匀分布. Si(<sup>1</sup>D<sub>g</sub>) 与 H<sub>2</sub> (<sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>,  $V=0, J=0$ ) 碰撞后有 5 种反应通道,



其分布情况如表 3 所列.

表 3 Si + H<sub>2</sub>(0,0) 反应产物的分布情况

$E_i/\text{kJmol}^{-1}$	$b_{\max}/\text{nm}$	1 通道	2 通道	3 通道	4 通道	5 通道	总数
0.4184	0.6575		44850		43005		87855
4.1840	0.5600		40063		48539		88602
8.3680	0.5280		43324		46322		89646
25.1040	0.4767		65325		28430		93755
41.8400	0.4522		83842		13177		97019
62.7600	0.4318		95337		3646		98983
83.6800	0.4155		98734		949		99683
146.4400	0.1630	2150	95552	2162	77		99941
209.2000	0.2300	10689	78396	10903	2		99990
251.0400	0.2295	11831	76284	11878			99993
334.7200	0.2240	8692	81403	9898			99993
418.4000	0.2165	5813	85365	8815			99993
523.0000	0.1915	3927	86964	7160		1937	99988
732.2000	0.1730	2611	87012	6760		3615	99998
1255.2000	0.1575	1043	75080	3255		20616	99994

从表 3 可见, 随初始相对平动能的增加, 通道 2 的数量增加, 通道 4 的数量减少, 即低碰撞能有利于形成 SiH<sub>2</sub> 络合物. 当  $E_i > 209.200$  kJ/mol 时, 不能形成 SiH<sub>2</sub> 络合物. 碰撞能量大于 83.680 kJ/mol 后, 逐渐出现置换产物 SiH. 随碰撞能进一步增大, 置换产物 SiH 数量减少, 最后趋势是分子将被完全碰散成 Si, H, H 原子.

所计算的轨线可分为非反应轨线(通道 2)和反应轨线两类, 图 1 为反应碰撞轨线的 3 种典型表示, 反映了核间距离随时间的变化. 图 1(a) 示出了 Si + H<sub>2</sub> 发生交换反应的轨迹, 在碰撞初期 Si 原子向 H<sub>2</sub> 分子靠近,  $R_{\text{SiH}}$  逐渐减少, 行成了中间体 Si...H...H, 平动能  $E_i = 627.6$  kJ/mol 时, 络合物的寿命为  $0.16 \times 10^{-13}$  s, 为短寿命络合物, 很快分解为 SiH 和 H. 图 1(b) 示出了 Si + H<sub>2</sub> 发生络合反应的轨迹, 络合物的

寿命至少为  $9.0 \times 10^{-12}$  s, 约为其转动周期( $\tau = 1.0057 \times 10^{-12}$  s)的 9 倍, 形成了长寿命络合物, 使得  $R_{\text{SiH}}$  作上下振动, 由于反应势能面的势阱较深(7.41104 eV), 入射 Si 原子质量较轻, 在初始相对平动能不大时(小于 209.20 kJ/mol), 易于环绕靶分子运动, 于是形成了稳定的碰撞络合物. 随初始相对平动能的增大, 该反应产物先是置换出 SiH 和 H, 最后的趋势是完全碰散成 Si, H, H 原子(见图 1(c)).

Si + H<sub>2</sub> 体系的反应截面  $\sigma_r$  计算结果列于表 4 和表 5, 初始相对平动能  $E_i$  对反应截面  $\sigma_r$  和最大碰撞参数  $b_{\max}$  的关系曲线如图 2 和图 3 所示.

从图 2 可见, 通道 4 随初始相对平动能的增加, 最大碰撞参数随之减小, 反应截面  $\sigma_r$  也随之减小. 在低能区,  $\sigma_r$  减小较快; 在能区,  $\sigma_r$  减小较为缓慢. 当  $E_i > 209.20$  kJ/mol,  $\sigma_r = 0$ . 反应过程表现为无

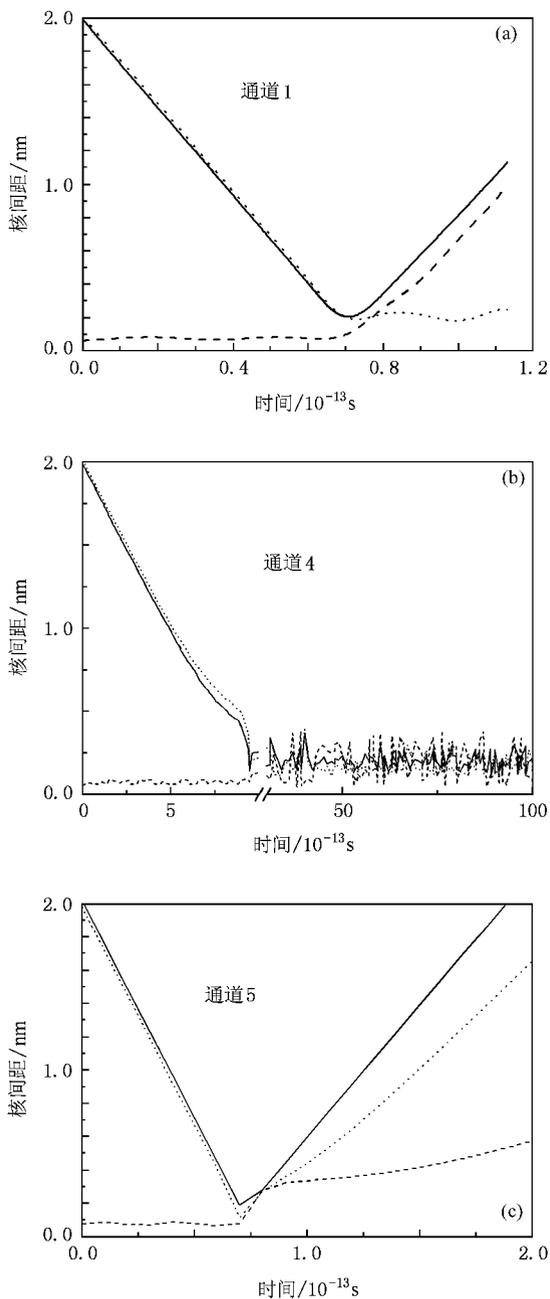


图1  $\text{Si} + \text{H}_2$  反应轨迹 (a)  $E_t = 627.6 \text{ kJ/mol}$ ,  $b = 0.0359 \text{ nm}$ ; (b)  $E_t = 4.1840 \text{ kJ/mol}$ ,  $b = 0.5163 \text{ nm}$ ; (c)  $E_t = 627.6 \text{ kJ/mol}$ ,  $b = 0.0976 \text{ nm}$

阈能反应,即络合物反应  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_2$  为无阈能反应.而从图3可知,反应截面  $\sigma_r$  有一最大值,因而  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH} + \text{H}$  的反应过程表现为有阈能反应.通过表4和表5比较可知,交换反应的截面较络合物的截面要小得多,这说明在低能时络合物很容易生成,而交换反应的发生相对要困难一些.

表4  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_2$  的反应截面

$E_t/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	$b_{\text{max}}/\text{nm}$	$\sigma_r/10^{-1} \text{ nm}^2$
0.4184	0.6575	6.648
4.1840	0.5600	5.397
8.3680	0.5280	4.526
25.1040	0.4767	2.165
41.8400	0.4522	0.873
62.7600	0.4318	0.216
83.6800	0.4155	0.052
146.4400	0.1630	0.0006

表5  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH} + \text{H}$  的反应截面

$E_t/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	$b_{\text{max}}/\text{nm}$	$\sigma_r/10^{-2} \text{ nm}^2$
146.44	0.1630	0.3601
209.20	0.2300	3.589
251.04	0.2295	3.924
334.72	0.2240	2.931
418.40	0.2165	2.154
523.00	0.1915	1.277
732.20	0.173	0.8811
1255.2	0.1575	0.3350

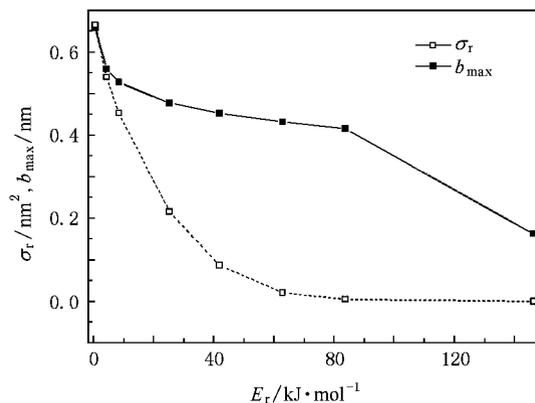


图2  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_2$  的反应截面

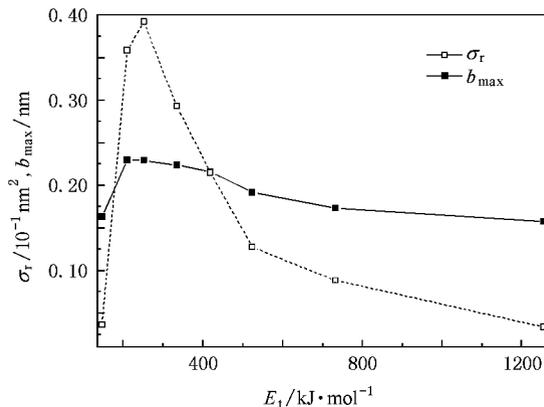
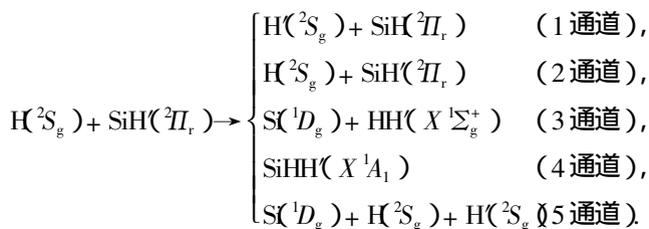


图3  $\text{Si} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH} + \text{H}$  的反应截面

### 3.2. H + SiH(0,0) 碰撞的轨线计算结果

对于 H + SiH 体系的碰撞反应产物有下列 5 种通道 :



当 H 原子的初始平动能为  $E_i = 0.4184\text{--}1046.000$  kJ/mol 时 ,H + SiH(0,0) 反应产物的结果见表 6.

从表 6 可见 ,随 H 原子初始相对平动能的增加 ,交换反应 1 通道的数量逐渐增加 ,在  $E_i > 167.360$  kJ/mol 以后又逐渐降低 ;交换反应 3 通道的

数量随 H 原子初始相对平动能的增加逐渐减少 ;非反应 2 通道的数量随 H 原子初始相对平动能的增加而逐渐增加 ;反应 4 通道(生成络合物的通道)的数量随 H 原子初始相对平动能的增加而增加 ,稍后又减小 ,在  $E_i = 41.84$  kJ/mol 时就几乎没有络合物生成 ;第 5 通道(碰散的通道)在  $E_i > 313.800$  kJ/mol 后 ,其数量逐渐增加而后开始减少 ,主要原因是由于 SiH 的离解能为 1.7724 eV(约为 313.9 kJ/mol) ,只要 H 原子的初始平动能大于 313.9 kJ/mol 就有碰散的可能性 ,因此到  $E_i > 313.800$  kJ/mol 时第 5 通道就有反应了 .从整个计算结果看 ,在低能部分(0.4184—41.84 kJ/mol) ,H 原子把 Si 置换出来相对其他反应较为容易 ;而在高能部分(167.36—1046.000 kJ/mol) ,非反应碰撞占主要地位 ,即 H + SiH 碰撞主要产物为 Si + H<sub>2</sub> 和非反应碰撞 .

表 6 H + SiH(0,0) 反应产物的分布情况

$E_i/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	$b_{\text{max}}/\text{nm}$	1 通道	2 通道	3 通道	4 通道	5 通道	总数
0.4184	0.6765	12746	30140	57053	12		99951
4.1840	0.5960	14148	34206	51227	162		99743
8.3680	0.5685	16355	36490	46712	206		99763
25.1040	0.5218	24275	43329	32278	54		99936
41.8400	0.4965	28732	47818	23439	2		99991
167.3600	0.3895	32698	62080	5214			99992
313.8000	0.3595	24950	72065	2621		351	99987
502.0800	0.3405	13479	77805	1701		7009	99993
836.8000	0.3280	1696	84034	453		13810	99993
1046.0000	0.3195	251	87035	224		12478	99988

H + SiH(0,0) 体系的反应截面  $\sigma_r$  计算结果列于表 7 ,初始相对平动能  $E_i$  对反应截面  $\sigma_r$  和最大碰撞参数  $b_{\text{max}}$  的关系曲线如图 4 所示 .

表 7 H + SiH(0,0) 体系的  $E_i$  ,  $b_{\text{max}}$  和  $\sigma_r$

$E_i/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	$b_{\text{max}}/\text{nm}$	$\sigma_r(1 \text{ 通道})/\text{nm}^2$	$\sigma_r(3 \text{ 通道})/\text{nm}^2$	$\sigma_r(4 \text{ 通道})/\text{nm}^2$
0.4184	0.6765	0.1833	0.8207	0.0002
4.1840	0.5960	0.1583	0.5731	0.0018
8.3680	0.5685	0.1665	0.4754	0.0021
25.1040	0.5218	0.2078	0.2763	0.0005
41.8400	0.4965	0.2225	0.1853	0.0000
167.3600	0.3895	0.1559	0.0249	
313.8000	0.3595	0.1013	0.0106	
502.0800	0.3405	0.0491	0.0062	
836.8000	0.3280	0.0057	0.0015	
1046.0000	0.3195	0.0008	0.0007	

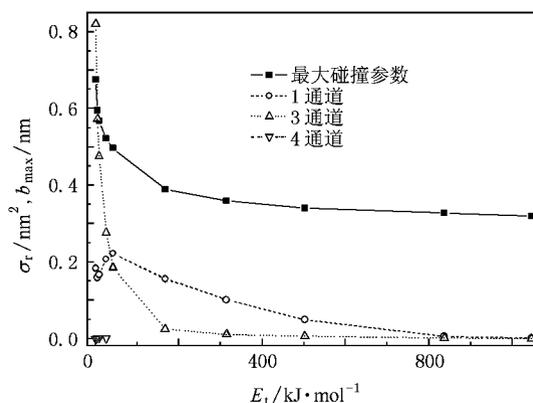


图 4 H + SiH(0,0) 体系的  $\sigma_r$ - $E_i$  和  $b_{\text{max}}$ - $E_i$  关系曲线

在所计算的能量范围内 ,H + SiH(0,0) 的反应碰撞主要表现为 3 通道的交换反应  $\text{H} + \text{SiH}(0,0) \rightarrow \text{Si} + \text{H}_2$  和非反应碰撞 ,在 0.4184—41.840 kJ/mol 低能量范围伴随有 1 通道和 4 通道的反应 ,在 41.840—

1046.000 kJ/mol 能量范围主要为非反应碰撞.  $\text{H} + \text{SiH}(0,0) \rightarrow \text{Si} + \text{H}_2$  交换反应(3通道反应)是强烈无阈能的放热反应,虽然在低能时有1通道和4通道的反应发生,但相比较而言,其截面远小于3通道的反应截面.这说明  $\text{H} + \text{SiH}(0,0) \rightarrow \text{Si} + \text{H}_2$  交换反应容易些,而其他反应相对要困难一些.表7和图4显示在1通道和4通道初始相对平动能  $E_i$  与反应截面  $\sigma_r$  关系中,反应截面  $\sigma_r$  有一最大值,因而1通道和4通道反应过程表现为有阈能反应.

## 4. 结 论

用准经典的 Monte Carlo 轨线法考察了  $\text{SiH}_2$  体系的分子动力学过程.在计算结果的基础上,提出了硅与氢气反应的机理.这对氢化非晶硅的制备和分析氢化非晶硅的组态信息的研究具有一定的指导意义.

计算了  $\text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+)$ ,  $\text{H}({}^2S_g) + \text{SiH}({}^2\Pi_r)$  两体系的分子动力学过程.对于  $\text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+)$  碰撞反应,主要生成  $\text{SiH}_2({}^1A_1)$ ,且此

过程是无阈能反应,交换反应生成  $\text{SiH}({}^2\Pi_r)$  相对要困难一些.对于  $\text{H}({}^2S_g) + \text{SiH}({}^2\Pi_r)$  碰撞,反应主要为无阈能的第3通道反应,即  $\text{H}({}^2S_g) + \text{SiH}({}^2\Pi_r) \rightarrow \text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+)$  以及非反应碰撞.由此计算结果,可以说明为什么在气相淀积方法( $\text{H}_2/\text{SiH}_4$ )制备的氢化非晶硅中容易生成  $\text{SiH}_2$  这种组态形式的中间产物,而生成  $\text{SiH}$  组态相对要难一些, $\text{SiH}$  组态在氢化非晶硅中的含量就要少一些.同时也可以推断, $\text{Si}$  和  $\text{H}_2$  反应生成  $\text{SiH}_3$  的过程应该为以下两步: (1)  $\text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+) \rightarrow \text{SiH}_2({}^1A_1)$  (2)  $\text{SiH}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_3$ , 而不是  $\text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+) \rightarrow \text{H}({}^2S_g) + \text{SiH}({}^2\Pi_r)$ ,  $\text{SiH} + \text{H}_2 \rightarrow \text{SiH}_3$ . 因为从计算结果可知:  $\text{Si}({}^1D_g) + \text{H}_2({}^1\Sigma_g^+)$  生成  $\text{SiH}$  的反应截面比生成  $\text{SiH}_2$  的反应截面要小得多,另一方面,由于  $\text{H}_2({}^1\Sigma_g^+)$  的离解能为 4.746 eV,  $\text{Si}$  原子接近  $\text{H}_2$  时,它较难以离解  $\text{H}_2$  生成  $\text{SiH}$ ,而拉长  $\text{H}-\text{H}$  键重组生成  $\text{SiH}_2$  要相对容易得多.此推断结果为进一步研究  $\text{SiH}_3$  和  $\text{SiH}_4$  提供了一定的指导意义.

- [1] Jiang T, Li Y, Liu C J 2002 *Catalysis Today* **72** 229
- [2] Jiang T, Liu C J 2001 *Fuel Proc. Technol.* **73** 143
- [3] Goossens O, Dekempeneer E, van Geneugden D 2001 *Thin Solid Films* **386** 133
- [4] Lucovsky G, Nemanich R J, Knights J C 1978 *Phys. Rev. B* **19** 2064
- [5] He D Y 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 779 (in Chinese) [贺德衍 2001 物理学报 **50** 779]
- [6] Luo Z 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 169 (in Chinese) [罗志 2003 物理学报 **52** 169]
- [7] Allen W D, Schaefer H F 1986 *Chem. Phys.* **108** 243
- [8] Song X S, Yang X D, Wang R K, Linghu R F, Liu Z J 2006 *J. Sichuan Univ. (Nat. Sci. Ed.)* **43** 1083 (in Chinese) [宋晓书、杨向东、汪荣凯、令狐荣锋、刘子江 2006 四川大学学报(自然科学版) **43** 1083]
- [9] Wang H Y, Zhu Z H 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 2215 (in Chinese) [王红艳、朱正和 1999 物理学报 **48** 2215]
- [10] Meng D Q, Jiang G 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1268 (in Chinese) [蒙大桥、蒋刚 2001 物理学报 **50** 1268]
- [11] Xue W D, Wang H Y, Zhu Z H 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2475 (in Chinese) [薛卫东、王红艳、朱正和 2002 物理学报 **51** 2475]
- [12] Zhu Z H, Yu H G 1997 *Molecular Structure and Potential Energy Function* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [朱正和、俞华根 1997 分子结构与分子势能函数(北京:科学出版社)]
- [13] Gao T 1999 *J. At. Mol. Phys.* **16** 164 (in Chinese) [高涛 1999 原子与分子物理学报 **16** 164]

# Theoretical study on molecular reaction dynamics of the SiH<sub>2</sub> system \*

Feng Xing<sup>1,2)</sup> Zhu Zheng-He<sup>1)†</sup> Liu Xiao-Ya<sup>3)</sup> Yang Xiang-Dong<sup>1)</sup> Huang Wei<sup>3)</sup>

1) *Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China*

2) *College of Life and Physical Science, Sichuan Agriculture University, Ya'an 625014, China*

3) *China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China*

( Received 27 March 2008 ; revised manuscript received 24 April 2008 )

## Abstract

The atomic and molecular reaction dynamics for  $\text{Si}(^1D_g) + \text{H}_2(0,0)$  and  $\text{H}(^2S_g) + \text{SiH}(0,0)$  have been studied on the potential energy function  $\text{SiH}_2(X^1A_1)$  by Monte-Carlo quasi-classical trajectory approach. It is shown that the reaction  $\text{Si}(^1D_g) + \text{H}_2(0,0)$  has no threshold energy and the principal product of this reaction is  $\text{SiH}_2(X^1A_1)$ . However, the reaction  $\text{H}(^2S_g) + \text{SiH}(0,0)$  gives a great number of products of the interchange reaction of  $\text{H}(^2S_g) + \text{SiH}(0,0) \rightarrow \text{Si}(^1D_g) + \text{H}_2(0,0)$  and it has also no energy threshold.

**Keywords :** SiH<sub>2</sub>, potential function, reactive section, trajectory

**PACC :** 3410, 3430, 3440

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10576029 ).

† Corresponding author. E-mail : scyalf@163.com