

同位素取代和碰撞能对 $N(^4S) + H_2$ 反应立体动力学性质的影响*

夏文泽 于永江[†] 杨传路

(鲁东大学物理与光电工程学院, 烟台 264025)

(2012年6月24日收到; 2012年7月30日收到修改稿)

基于 Poveda 等计算得到的 DMBE 势能面, 运用准经典轨线的方法研究了同位素取代和碰撞能对 $N(^4S)+H_2$ 反应的立体动力学性质的影响. 计算并讨论了两矢量 $\mathbf{k}-\mathbf{j}'$ 相关分布函数 $P(\theta_r)$, 三矢量 $\mathbf{k}-\mathbf{k}'-\mathbf{j}'$ 相关分布函数 $P(\varphi_r)$, 空间分布函数 $P(\theta_r, \varphi_r)$, 微分反应截面和积分反应截面. 研究了碰撞能从 25 kcal/mol 到 80 kcal/mol 变化对三个反应 $N+H_2$, $N+D_2$ 和 $N+T_2$ 的影响. 结果表明: 分子间同位素和碰撞能均会对反应立体动力学性质产生一定的影响.

关键词: 准经典轨线, 立体动力学, 矢量相关, 同位素效应

PACS: 34.50.Lf, 82.20.Kh

1 引言

N, H 元素是生物体内各种有机化合物的重要组成元素, 在自然界中普遍存在, $N+H_2$ 三原子基元反应在大气化学和燃烧化学中有着极其重要的应用, 在理论和实验方面都引起了人们的广泛关注, 与激发态 $N(^2D)$ 原子相比, 基态 $N(^4S)$ 原子与 H_2 反应不易发生, 但仍然有一些研究报道^[1-8].

早在 1990 年, Koshi 等^[1] 使用原子共振吸收实验技术研究了 $N(^4S)$ 与 NO 和 H_2 的反应, 实验研究 $N(^4S)+H_2$ 的反应速率常数, 同时应用量子计算得出了该反应的活化能, 证实了 $N(^4S)+H_2 \rightarrow NH+H$ 的反应机理为直接提取反应. 2000 年, Takayanagi 等^[2] 使用多组态相互作用法 (MRCI) 计算了 $N(^4S, ^2D, ^2P)+H_2$ 反应的势能面. Zhang 等^[3] 构建了 $N(^4S)+H_2$ 势能面, 计算了 $N(^4S)+H_2 \rightarrow NH+H$ 反应的正逆反应势垒各为 29.6 和 0.53 kcal/mol (1 cal = 4.1868 J), 并采用微正则变分过渡态理论计算了该反应的速率常数.

2002 年, Pascual 等^[4] 详细研究了 NHH 反应体系, 计算构建了体系的 GAMESS 势能面, 用准经典轨线 (QCT) 方法计算了反应物分子处在不同振转动激发态时的积分反应截面, 计算了正逆反应速率常数并与实验值^[1,5] 进行了比较, 发现符合的很好. 2005 年, Poveda 等报道了精确的 DMBE 势能面^[6]. 最近, Han 等^[7] 基于 DMBE 势能面^[6] 通过 QCT 方法研究了 $H(^2S)+NH \rightarrow N(^4S)+H_2$ 的反应速率常数, 计算结果与实验结果^[8] 相符得也非常好.

以前人们研究分子反应动力学问题主要关注反应速率常数, 积分截面等反应的标量性质, 然而要得知一个反应的全部信息同样需要考察反应分子的速度方向, 角动量取向等矢量性质, 这些矢量性质携带了更多分子反应动力学信息^[9,10]. 近几十年来, 无论是理论还是实验方面, 对于三原子反应的矢量性质研究越来越多^[11-13]. 本文运用 QCT 方法对 $N(^4S)+H_2$ 及其同位素取代 ($N+D_2$, $N+T_2$) 反应的矢量相关性进行了详细的研究, 同时计算研究了碰撞能对三个反应的矢量相关性质的影响, 得到了一些有意义的结论.

* 国家自然科学基金 (批准号:11174117)、山东省大型科学仪器设备升级改造技术研究专项 (批准号: 2012SJGZ06) 和大学生科技创新项目 (批准号: 10y039) 资助的课题.

[†] E-mail: yjyu@ldu.edu.cn

2 理论

2.1 产物转动极化的相关理论

在 QCT 计算过程中选取的质心坐标系如图 1 所示, z 轴正方向指向反应物分子的相对运动速度 \mathbf{k} 的方向, 产物的相对速度 \mathbf{k}' 位于 x - z 平面内, 该平面称为散射面, y 轴垂直于散射面. \mathbf{k} 和 \mathbf{k}' 的夹角为散射角, 用 θ_t 表示, θ_r 和 φ_r 是产物分子转动角动量 \mathbf{j}' 的极角和方位角.

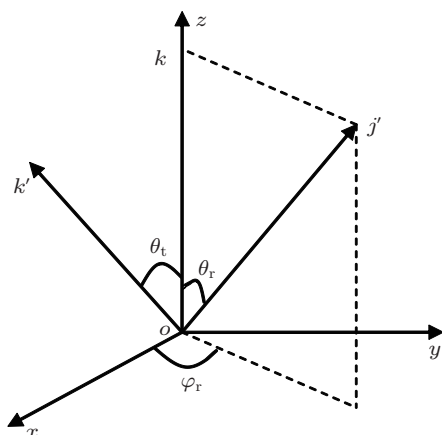


图 1 描述 \mathbf{k} , \mathbf{k}' 和 \mathbf{j}' 分布的质心坐标系

通常情况下, 描述 \mathbf{k} - \mathbf{j}' 两矢量相关的分布函数 $P(\theta_r)$ 能展开为 Legendre 多项式^[14,15]

$$P(\theta_r) = \frac{1}{2} \sum_k (2k+1) a_0^{(k)} P_k(\cos \theta_r), \quad (1)$$

其中 $a_0^{(k)} = \langle P_k(\cos \theta_r) \rangle$, 尖括号表示对所有的轨线求平均, $a_0^{(k)}$ 又称为极化参数, 当 k 是偶数时称其为取向参数, k 是奇数时称其为定向参数, 在计算中, $P(\theta_r)$ 一般展开到 $k = 18$ 分布函数就收敛了.

三维空间内, 描述 \mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{j}' 三矢量相关性的二面角分布函数 $P(\varphi_r)$ 可以用 Fourier 级数展开

$$P(\varphi_r) = \frac{1}{2\pi} \left[1 + \sum_{\text{even}, n \geq 2} a_n \cos(n\varphi_r) + \sum_{\text{odd}, n \geq 1} b_n \sin(n\varphi_r) \right], \quad (2)$$

其中 $a_n = 2 \langle \cos(n\varphi_r) \rangle$, $b_n = 2 \langle \sin(n\varphi_r) \rangle$, 在计算中, $P(\varphi_r)$ 展开到 $n = 24$ 分布函数就收敛了.

在上述的质心坐标系中, 通过角 θ_r 和 φ_r 就可以确定 \mathbf{j}' 的方向, 产物旋转角动量 \mathbf{j}' 的空间分布

函数 $P(\theta_r, \varphi_r)$ 可用如下公式展开^[16]:

$$P(\theta_r, \varphi_r) = \frac{1}{4\pi} \sum_k \sum_{q \geq 0} [a_{q\pm}^k \cos(q\varphi_r)] - a_{q\mp}^k i \sin(q\varphi_r) C_{kq}(\theta_r, 0), \quad (3)$$

其中 $C_{kq}(\theta_r, \varphi_r)$ 表示修正的球谐函数, k 为偶数时有 $a_{q\pm}^k = 2 \langle C_{k|q|}(\theta_r, 0) \cos(q\varphi_r) \rangle$, k 为奇数时有 $a_{q\mp}^k = 2i \langle C_{k|q|}(\theta_r, 0) \sin(q\varphi_r) \rangle$, 在计算中, $P(\theta_r, \varphi_r)$ 被展开到 $k = 7$ 分布函数就收敛了.

在上述质心坐标系下, 描述 \mathbf{k} - \mathbf{k}' - \mathbf{j}' 三矢量相关性的全三维角分布函数可以写为^[15]

$$P(\omega_t, \omega_r) = \sum_{kq} \frac{2k+1}{4\pi} \frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma_{kq}}{d\omega_t} C_{kq}(\theta_r, \varphi_r)^*, \quad (4)$$

其中 $\omega_t = \theta_t, \varphi_t, \omega_r = \theta_r, \varphi_r$, σ 是积分反应截面, $C_{kq}(\theta_r, \varphi_r)$ 是修正的球谐函数, $\frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma_{kq}}{d\omega_t}$ 叫广义极化微分反应截面 (PDDCS_s), 可以写为

$$\frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma_{kq\pm}}{d\omega_t} = \sum_{k_1} \frac{2k_1+1}{4\pi} S_{kq\pm}^{k_1} C_{k_1q}(\theta_t, 0), \quad (5)$$

其中 $k_1 > q$,

$$S_{kq\pm}^{k_1} = \left\langle C_{k_1q}(\theta_t, 0) C_{kq}(\theta_r, 0) \times [(-1)^q e^{iq\phi_r} \pm e^{-iq\phi_r}] \right\rangle, \quad (6)$$

尖括号表示对所有角度求平均.

在大多数双分子实验中, 人们只关注 $k = 0$ 和 $k = 2$ 的极化分量, 特别是 $k = 0$ 的情形对应的唯一分量是 $\frac{1}{\sigma} \frac{d\sigma_{00}}{d\omega_t}$, 可以简单地理解为微分反应截面, 它能很好地反映出产物分子的散射方向. 为保证收敛, 在计算中, 广义极化微分反应截面展开到 $k_1 = 7$.

2.2 DMBE 势能面的性质

我们选用 $\text{N}(^4S) + \text{H}_2 (v = 0, j = 0) \rightarrow \text{NH} + \text{H}$ 反应的势能面是 DMBE 势能面, 该势能面中分子碰撞反应的最小能量反应路径如图 2 所示. 其中 $R_{\text{H-H}}$ 是两个氢原子之间的核间距, $R_{\text{N-H}}$ 是氮原子与生成产物分子 (NH) 相对应的那个氢原子之间的核间距. 显然该反应为吸热反应, 且反应势垒较大, 约为 29.2 kcal/mol, 与实验值相符^[1,5]. 在使用 QCT 方法研究碰撞反应时, 关于势能面信息, 对碰撞能的选择具有指导意义.

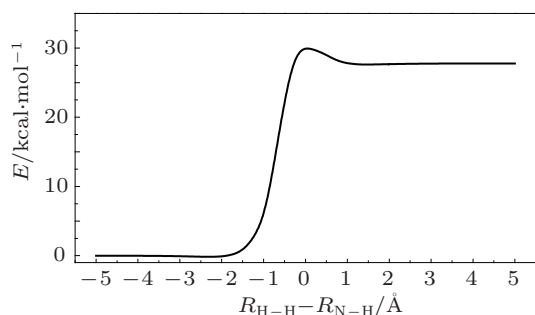


图2 势能面中最小能量反应路径示意图

2.3 准经典轨线计算

采用文献 [18–28] 相同的 QCT 计算方法, 在 DMBE 势能面上, 反应物分子 H_2 的振动和转动量子数 $v = 0$ 和 $j = 0$ 时, 对反应 $N(^4S)+H_2$ ($v = 0, j = 0$) $\rightarrow NH+H$ 及其同位素取代反应 $N(^4S)+D_2$ ($v = 0, j = 0$) $\rightarrow ND+D$ 和 $N(^4S)+T_2$ ($v = 0, j = 0$) $\rightarrow NT+T$ (简称三个反应) 进行了详细研究. 计算时选取的碰撞能为 40 kcal/mol 时, 对同位素效应进行了比较研究. 研究碰撞能变化对反应的影响时, 碰撞能的选择从 25 kcal/mol 开始, 每间隔 5 kcal/mol 选取一个碰撞能, 直到 80 kcal/mol. 采用每个预设的碰撞能进行计算时, 积分步长为 0.1 fs, 运行轨线为 100000 条, N 原子与 H_2 , D_2 或 T_2 分子质心之间的初始距离被设定为 15.000 Å.

3 结果与分析

3.1 同位素取代对反应立体动力学性质的影响

图 3 描述的是碰撞能为 40 kcal/mol 时, 三个反应的产物分子 $k-j'$ 相关函数 $P(\theta_r)$ 分布图. 可以很明显的看出在 θ_r 为 90° 处, $P(\theta_r)$ 有一明显的峰且图形关于 90° 对称, 这说明产物分子转动角动量都在垂直于反应物相对速度方向上有强烈的取向. 而且三个分布有明显的不同, $N(^4S)+H_2 \rightarrow NH+H$ 取向性最强, $N(^4S)+D_2 \rightarrow ND+D$ 次之, 而 $N(^4S)+T_2 \rightarrow NT+T$ 取向最弱, 三个反应中产物分子转动角动量的取向强弱应该与其质量因子有关, 质量因子越大, 取向越强. 三个反应的质量因子见表 1. 对于 $A + BC \rightarrow AB + C$ 三原子反应, $P(\theta_r)$ 分布对

两个因素比较敏感: 一是势能面的结构; 二是质量因子. 设三个原子的质量各为 m_A, m_B, m_C , 质量因子用 $\cos^2 \beta$ 表示, 那么质量因子定义为

$$\cos^2 \beta = \frac{m_A m_C}{(m_A + m_B)(m_B + m_C)}. \quad (7)$$

对于基于同一势能面的计算, 上述三个反应的 $P(\theta_r)$ 的分布不同只能与质量因子有关.

表 1 反应体系的质量因子

反应体系	$\cos^2 \beta$
$N(^4S)+H_2 \rightarrow NH+H$	0.4664
$N(^4S)+D_2 \rightarrow ND+D$	0.4371
$N(^4S)+T_2 \rightarrow NT+T$	0.4118

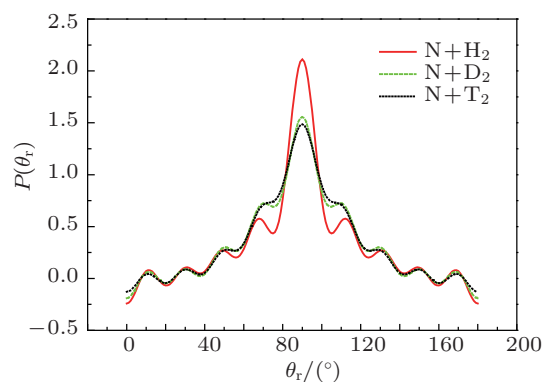


图3 $k-j'$ 两矢量相关函数 $P(\theta_r)$ 的分布图

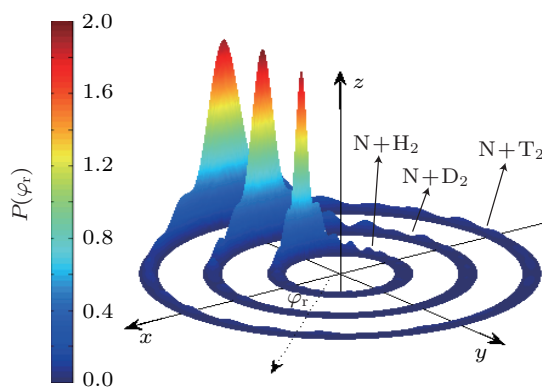


图4 $k-k'-j'$ 矢量相关的二面角分布函数 $P(\varphi_r)$ 的分布图

碰撞能为 40 kcal/mol 时, 描述三个反应的 $k-k'-j'$ 矢量相关的二面角分布函数 $P(\varphi_r)$ 分布图见图 4. 图中 z 轴表示 $P(\varphi_r)$, 由里到外各自表示 $N+H_2, N+D_2$ 和 $N+T_2$ 反应, φ_r 的定义与质心坐标系相同. 从图 4 中可以看出 $P(\varphi_r)$ 在 $\varphi_r = 270^\circ$ 处有一明显的峰, 说明 j' 定向于 y 轴的负方向. 并且从图中发现三个反应的定向程度相近, 说明质

量因子对 j' 的定向效应影响不明显. 同时发现三个反应的 $P(\varphi_r)$ 分布关于 $\varphi_r = 180^\circ$ 不对称, 根据瞬时碰撞模型^[11], 产物分子的转动角动量 j' 表示为 $j' = L \sin^2 \beta + j \cos^2 \beta + J_1 m_B / m_{AB}$, L 和 j 分别为反应物的轨道角动量和转动角动量, $J_1 = \sqrt{\mu_{BC} R} (\mathbf{r}_{AB} \times \mathbf{r}_{CB})$. μ_{BC} 是 BC 分子的约化质量, \mathbf{r}_{AB} 和 \mathbf{r}_{CB} 分别是由 B 原子指向 A 原子和由 B 原子指向 C 原子的单位矢量, R 是排斥能. 在模型中, 当反应的化学键形成与断裂时, $L \sin^2 \beta + j \cos^2 \beta$ 是对称的, 但由于排斥能的影响使得 $J_1 m_B / m_{AB}$ 不具有对称性, 导致了产物分子转动角动量的定向效应.

为了深入研究同位素取代对反应的影响, 我们计算了产物分子转动角动量 j' 取向的空间分布函数 $P(\theta_r, \varphi_r)$, 并在球坐标系下绘制了 $P(\theta_r, \varphi_r)$ 的空间分布如图 5 所示. 假设在图 5 所示的曲面上某一点 M 的球坐标为 (r, θ_r, φ_r) , 其中 θ_r 和 φ_r 的定义与质心坐标系相同, r 表示 M 点到坐标系原点的距离, 那么, r 的大小表示 j' 的方向指向 \overrightarrow{OM} 方向的概率大小, 并在曲面上的 M 点处用色度加以表示. 可以看到该曲面上各点 r 坐标最大值都在 $\theta_r = 90^\circ$, $\varphi_r = 180^\circ$ 处, 说明 j' 定向于该方向, 其表现的信息与 $P(\theta_r)$ 和 $P(\varphi_r)$ 反映的信息完全相同.

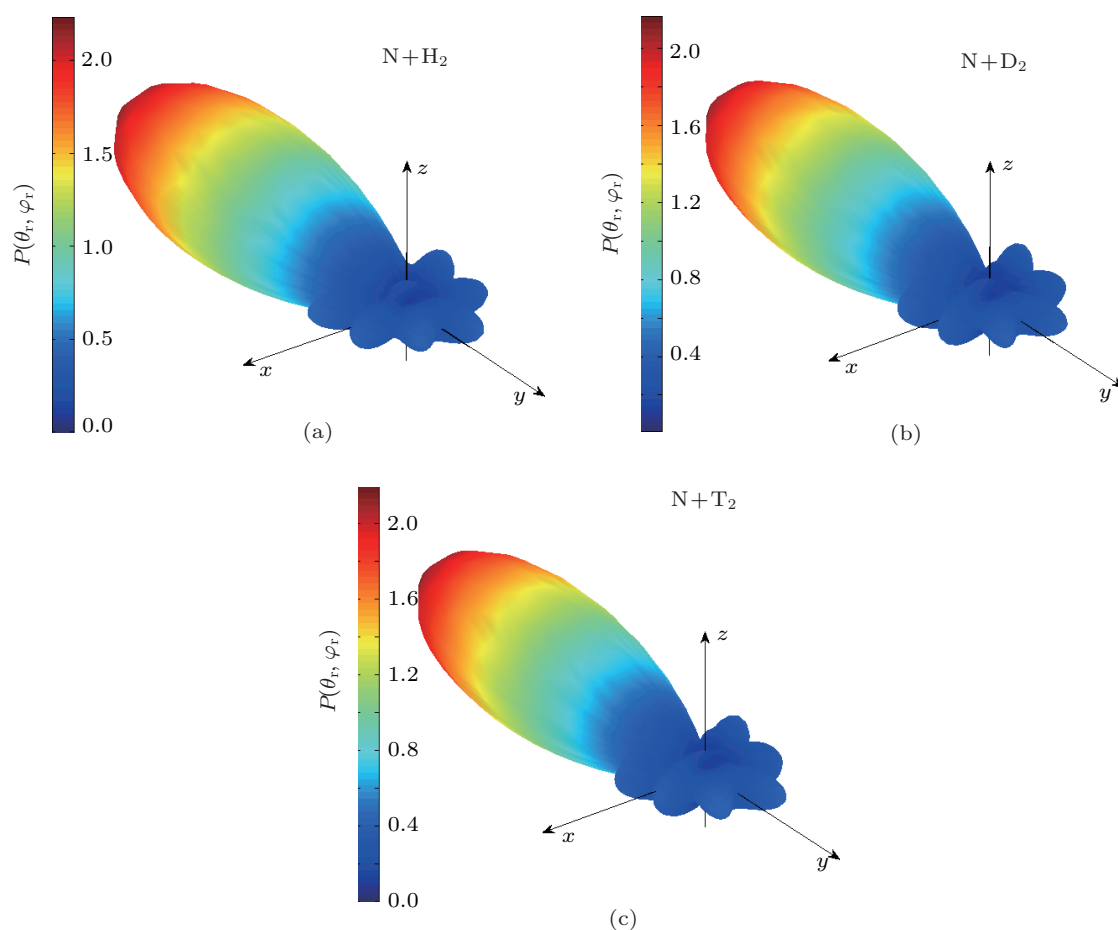


图 5 空间分布函数 $P(\theta_r, \varphi_r)$ 的分布图

图 6 描述的是以 40 kcal/mol 的碰撞能发生反应时, 三个反应的 $(2\pi/\sigma)(d\sigma_{00}/d\omega_t)$ 分布, $(2\pi/\sigma)(d\sigma_{00}/d\omega_t)$ 描述的是 $\mathbf{k}-\mathbf{k}'$ 两矢量的相关性, 由图 6 容易发现, 三个反应均具有向后散射的特点, 但 $N(^4S)+T_2 \rightarrow NT+T$ 向后散射的程度最强, $N(^4S)+D_2 \rightarrow ND+D$ 次之, $N(^4S)+H_2 \rightarrow NH+H$ 向

后散射的程度最弱, 对比表 1 中质量因子的数据, 发现质量因子越大向后散射程度就越小. 主要原因是, N 原子接近 H 分子发生碰撞反应时, 过渡态构型是 N-H-H, NH 键形成, NH-H 排斥分离, 在这个过程中, 因为 NH 约化质量为 0.933 稍微小于 H 原子质量, 所以被排斥开, 倾向于后向散射. ND 的

约化质量为 1.75, NT 的约化质量为 2.47, 各自都小于 D 和 T 原子质量, 同样倾向于向后散射. 在这三个反应中, 产物分子 NH 的约化质量与 H 原子质量之比最大, 产物分子 NT 的约化质量与 T 原子质量之比最小, 因此 $N+T_2$ 反应向后散射最明显, $N+H_2$ 反应向后散射程度最弱.

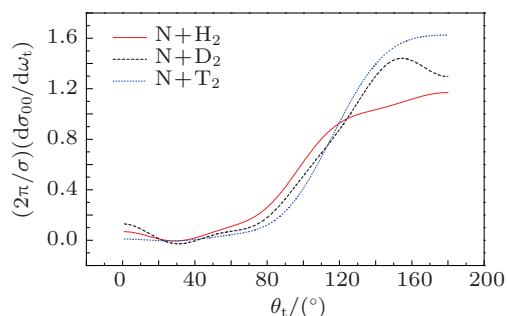


图 6 描述 \mathbf{k} 与 \mathbf{k}' 两矢量相关性的 $(2\pi/\sigma)(d\sigma_{00}/d\omega_t)$ 分布图

3.2 碰撞能对反应立体动力学性质的影响

当碰撞能从 25 kcal/mol 到 80 kcal/mol 变化时,

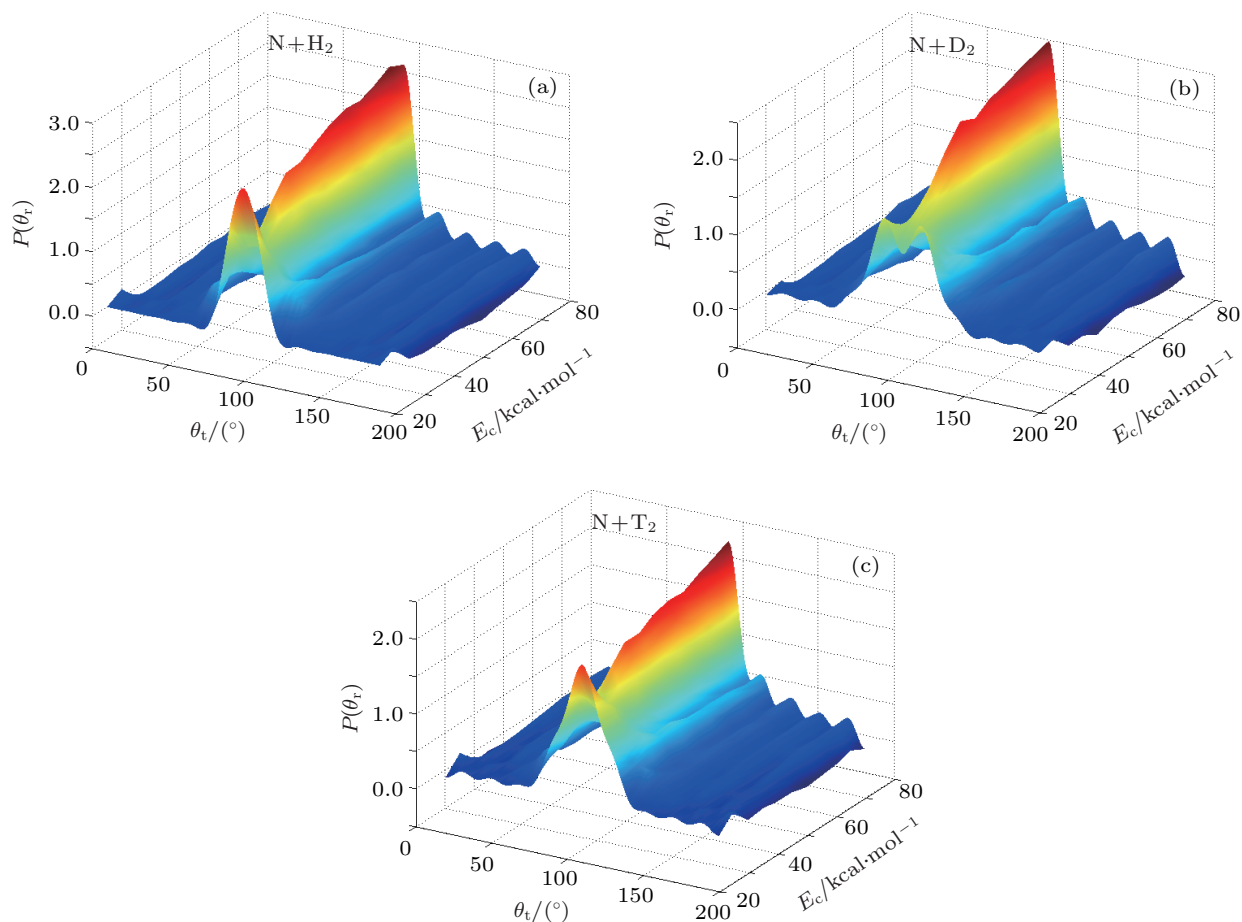


图 7 $\mathbf{k}-\mathbf{j}'$ 两矢量相关函数 $P(\theta_t)$ 随碰撞能的变化图

三个反应的 $P(\theta_r)$ 分布随能量的变化情况如图 7 所示. 图 7 中可以发现三个反应的 $P(\theta_r)$ 随碰撞能变化的趋势大体相同, 不管是哪个反应以及对应的哪个能量, $P(\theta_r)$ 的峰值均出现 $\theta_r = 90^\circ$ 处. 说明产物转动角动量有强烈的取向效应, 且极化程度随碰撞能的增加而增加.

图 8 描述的是碰撞能从 25 kcal/mol 到 80 kcal/mol 变化时, 三个反应的 $P(\varphi_r)$ 分布的变化情况, 从图中我们可以很明显的看出, 无论对应的那个碰撞能, $P(\varphi_r)$ 分布的峰值均出现在 $\varphi_r = 270^\circ$ 处. 说明产物分子转动角动量矢量有定向效应, 定向程度随碰撞能的增加而减小.

碰撞能从 25 kcal/mol 到 80 kcal/mol 变化时, 三个反应 $(2\pi/\sigma)(d\sigma_{00}/d\omega_t)$ 的变化情况, 如图 9 所示. 从图中我们可以发现三个反应的变化情况几乎相同, 均是向后散射的程度随碰撞能的增加而减小, 这一点可以理解为碰撞能越大则相对运动的速度越大, 分子被弹射回来的几率就越小, 则向后散射的程度会变小.

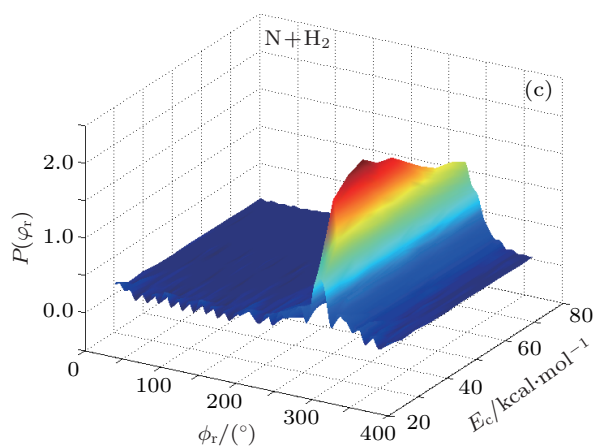
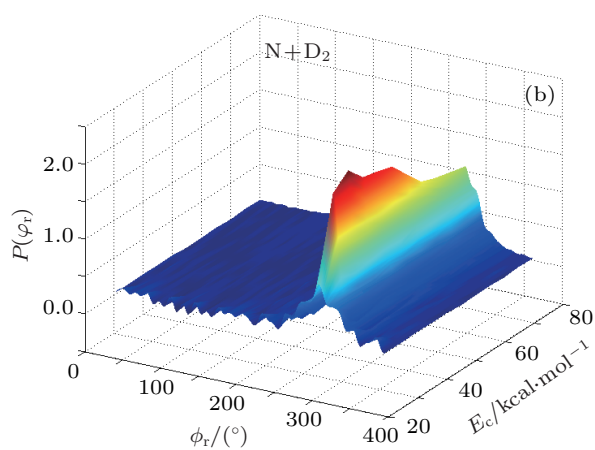
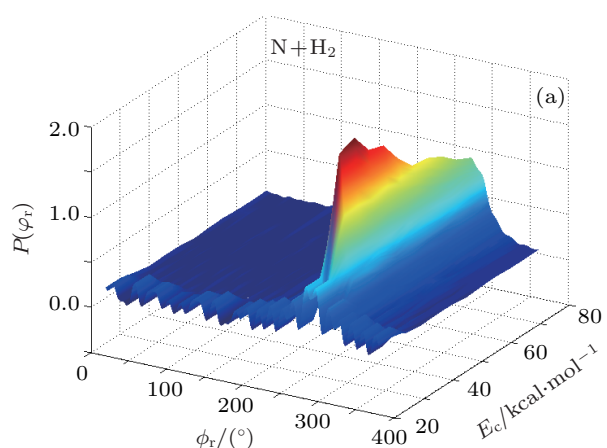


图8 $\mathbf{k}-\mathbf{k}'-j'$ 矢量相关的二面角分布函数 $P(\varphi_r)$ 随碰撞能的变化图

图 10 描述的是三个反应的积分反应截面随碰撞能变化曲线, 同时与文献 [4] $N(^4S)+H_2$ 反应的计算结果进行了比较, 碰撞能在 50—55 kcal/mol 范围内它们符合的很好. 从图 10 中可以发现随碰撞能的增加, 三个反应的积分反应截面都变大. 对

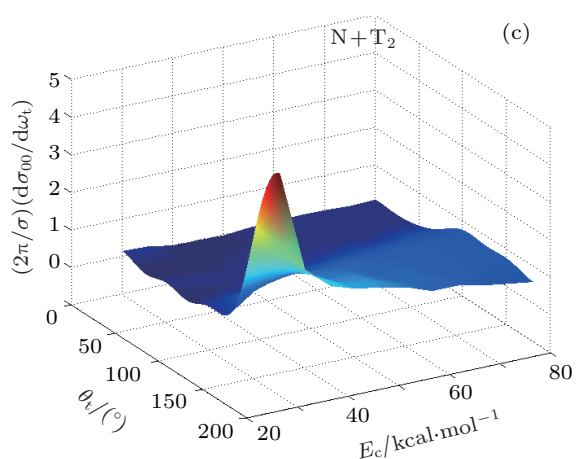
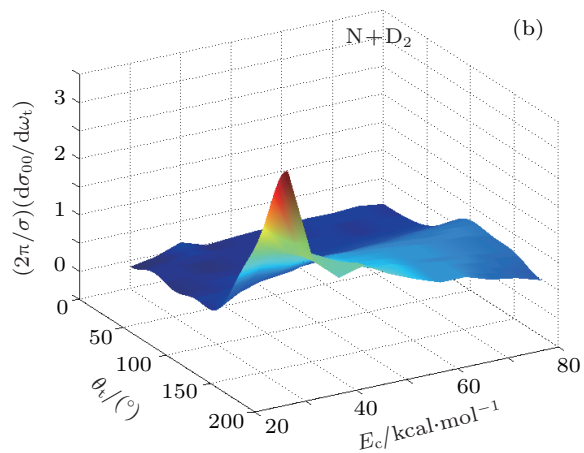
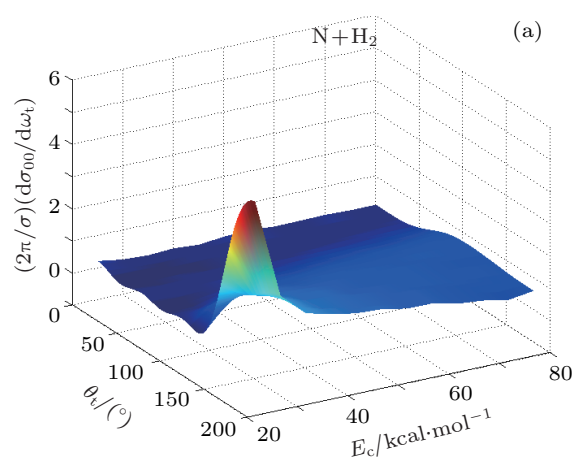


图9 $(2\pi/\sigma)(d\sigma_{00}/d\omega_t)$ 随碰撞能的变化图

于相同碰撞能, $N(^4S)+H_2$ 反应更易发生, $N(^4S)+T_2$ 反应最弱, 即随质量因子的减小, 反应变的不易发生. 主要原因可能是 N 原子与 H_2 及其同位素发生反应时, 在相同的碰撞能情况下, 三个反应随着反应物分子质量的增加即反应体系的质量

因子的减小, 反应物分子的相对运动速度减小, 分子间相互碰撞变得平缓, 从而减小了有效碰撞, 抑制了反应的发生.

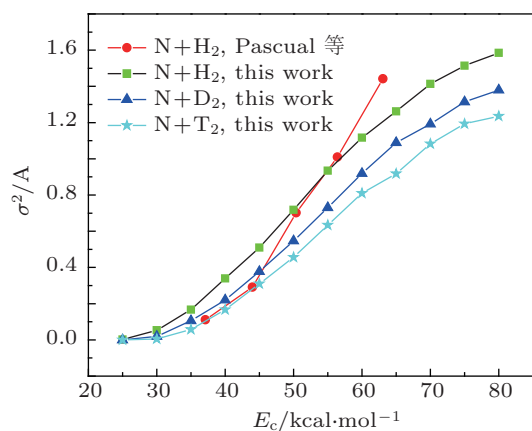


图 10 积分反应截面随碰撞能的变化图

4 结论

本文基于 DMBE 势能面, 运用准经典轨线的方法, 计算研究了碰撞能为 40 kcal/mol 时, $N(^4S)+H_2$ ($v=0, j=0$), $N(^4S)+D_2$ ($v=0, j=0$) 和 $N(^4S)+T_2$ ($v=0, j=0$) 反应的立体动力学性质, 进一步研究了碰撞能变化对这三个反应的影响. 研究发现, 同位素取代和碰撞能对反应的立体动力学性质都有一定的影响. 在碰撞能为一定的情况下, 随着质量因子的减小, 产物分子转动角动量取向程度减弱, 反之增强; 产物分子转动角动量定向程度受质量因子的影响不明显; 产物分子向后散射的程度随质量因子的减小而增强. 当碰撞能发生 25 kcal/mol 到 80 kcal/mol 的变化时, 随碰撞能的增加产物分子转动角动量取向程度增强, 定向程度减弱, 产物分子向后散射程度减弱, 积分反应截面增大, 质量因子的减小会抑制反应的发生.

- [1] Koshi M, Yoshimura M, Fukuda K, Matsui H, Saito K, Watanabe M, Imamura A, Chen C G 1990 *J. Chem. Phys.* **93** 8703
- [2] Takayanagi T, Kurosaki Y, Yokoyama K 2000 *Chem. Phys. Lett.* **321** 106
- [3] Zhang S W, Truong T N 2000 *J. Chem. Phys.* **113** 5
- [4] Pascual R Z, Schatz G C, Lendvay G, Troya D 2002 *J. Phys. Chem. A* **106** 4125
- [5] Davidson D F, Hanson R K 1990 *Int. J. Chem. Kinet.* **22** 843
- [6] Poveda L A, Varandas A J C 2005 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **7** 2867
- [7] Han B, Yang H, Zheng Y J, Varandas A J C 2010 *Chem. Phys. Lett.* **493** 225
- [8] Adam L, Hack W, Zhu H, Qu Z W, Schinke R 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 114301
- [9] Wang M L, Han K L, He G Z 1998 *J. Phys. Chem. A* **102** 10204
- [10] Zhang W Q, Cong S L, Zhang C H, Xu X S, Chen M D 2009 *J. Phys. Chem. A* **113** 4192
- [11] Li R J, Han K L, Li F E, Lu R C, He G Z, Lou N Q 1994 *Chem. Phys. Lett.* **220** 281
- [12] Han K L, He G Z, Lou N Q 1996 *J. Chem. Phys.* **105** 8699
- [13] Chu T S 2010 *J. Comput. Chem.* **31** 1385
- [14] Shaferray N E, Orrewing A J, Zare R N 1995 *J. Phys. Chem.* **99** 7591
- [15] Brouard M, Lambert H M, Rayner S P, Simons J P 1996 *Mol. Phys.* **89** 403
- [16] Wang M L, Han K L, He G Z 1998 *J. Chem. Phys.* **109** 9
- [17] Chen M D, Han K L, Lou N Q 2003 *J. Chem. Phys.* **118** 8
- [18] Chen M D, Han K L, Lou N Q 2002 *J. Chem. Phys.* **283** 463
- [19] Zhang X, Han K L 2006 *Int. J. Quant. Chem.* **106** 1815
- [20] Han K L, Zhang L, Xu D L, He G Z, Lou N Q 2001 *J. Phys. Chem. A* **105** 2956
- [21] Zhang J P, Yang H P, Han K L, Deng W Q, He G Z, Lou N Q 1997 *J. Phys. Chem. A* **101** 7486
- [22] Zhang L, Chen M D, Wang M L, Han K L 2000 *J. Chem. Phys.* **112** 7
- [23] Ju L P, Han K L, Zhang J Z H 2009 *J. Comput. Chem.* **30** 305
- [24] Zhang J, Chu T S, Dong S L, Yuan S P, Fu A P, Dan Y B 2011 *Chin. Phys. Lett.* **28** 093403
- [25] Yu Y J, Xu Q, Xu X W 2011 *Chin. Phys. B* **20** 123402
- [26] Yue X F 2012 *Chin. Phys. B* **21** 073401
- [27] Zhao J, Xu Y, Meng Q T 2010 *Chin. Phys. B* **19** 063401
- [28] Yue D G, Zheng X Y, Liu H, Meng Q T 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1479

Influences of isotopic variant and collision energy on the stereodynamics of the $N(^4S)+H_2$ reactive system*

Xia Wen-Ze Yu Yong-Jiang[†] Yang Chuang-Lu

(School of Physics and Opto-Electronic Engineering, Ludong University, Yantai 264025, China)

(Received 24 June 2012; revised manuscript received 30 July 2012)

Abstract

The influences of isotopic variant and collision energy on the stereodynamics in the $N(^4S)+H_2$ reaction are investigated by using the quasi-classical trajectory method on the calculated DMBE potential energy surface. The angular distributions of $P(\theta_r)$, $P(\varphi_r)$ and $P(\theta_r, \varphi_r)$, which reflect the vector correlation of $\mathbf{k}\cdot\mathbf{j}'$ and $\mathbf{k}\cdot\mathbf{k}'\cdot\mathbf{j}'$, differential cross sections, integral cross sections are calculated and discussed in detail. Moreover, the influences of collision energy variant in a collision energy range of 25–80 kcal/mol in the three reactions $N+H_2$, $N+D_2$ and $N+T_2$ are also studied. The results indicate that the stereodynamic properties of the reactions are influenced by intermolecular isotope and collision energies.

Keywords: quasi-classical trajectory, vector correlation, isotopic effects

PACS: 34.50.Lf, 82.20.Kh

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11174117), the Precision Instruments Upgrading Project Fund of Shandong Province (Grant No. 2012SJGZ06), and the Science Fund of Ludong University for College Students (Grand No. 10y039).

[†] E-mail: yjyu@ldu.edu.cn