



REAKTİF SAÇILMADA STEREO-DİNAMİK

Duygu ÇİMENÖĞLU ULUDAĞ

Doktora Tezi

Fizik Anabilim Dalı

Danışman: Prof. Dr. Niyazi BULUT

II. Danışman: Prof. Dr. Octavio RNCERO

HAZİRAN - 2018

T.C.
FIRAT ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

REAKTİF SAÇILMADA STEREO-DİNAMİK

DOKTORA TEZİ
Duygu ÇİMENÖĞLU ULUDAĞ
(141114203)

Anabilim Dalı: Fizik

Programı: Atom ve Molekül Fiziği

Danışman: Prof. Dr. Niyazi BULUT
İkinci Danışman: Prof. Dr. Octavio RNCERO

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih: 11 Mayıs 2018

HAZİRAN-2018

T.C.
FIRAT ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

REAKTİF SAÇILMADA STEREO-DİNAMİK

DOKTORA TEZİ
Duygu ÇİMENÖĞLU ULUDAĞ
(141114203)

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 11 Mayıs 2018

Tezin Savunulduğu Tarih: 22 Haziran 2018

Tez Danışman: Prof. Dr. Niyazi BULUT

İkinci Danışman: Prof. Dr. Octavio RONCERO

Diğer Jüri Üyeleri: Prof. Dr. Sinan AKPINAR

Prof. Dr. Sefa KAZANÇ

Prof. Dr. Raşit ZENGİN

Dr. Öğr. Üyesi. Emine TANIŞ

Dr. Öğr. Üyesi. Ezman KARABULUT

HAZİRAN-2018

ÖNSÖZ

Lisansüstü öğrenimim boyunca ve “**REAKTİF SAÇILMADA STEREO-DİNAMİK**” adlı doktora tezimi hazırladığım süreçte değerli bilgileri ve tecrübeleri ile bana her zaman yön veren, benden maddi ve manevi desteklerini esirgemeyen çok değerli hocam ve danışmanım Prof. Dr. Niyazi BULUT’ a sonsuz saygı, sevgi ve teşekkürlerimi sunarım.

Sadece eğitimim süresince değil, hayatımın her anında verdiğim kararlarda bana güvenen, daima yanımda olan ve dualarını hiçbir zaman üzerimden eksik etmeyen, haklarını hiçbir zaman ödeyemeyeceğim; başta babam Ali ÇİMENÖĞLU ve annem Sema ÇİMENÖĞLU olmak üzere tüm aile fertlerime ve dayım Murat TAŞDELEN’e sevgi, saygı ve teşekkürü bir borç bilirim.

Yol arkadaşım, eşim; Hasan Burak ULUDAĞ desteğin, sabrın ve sevgin için teşekkürler...

Ayrıca, bu tez çalışmasında kullanılan dataların üretilmesinde katkıları geçen ikinci danışmanım Prof. Dr. Octavio RONCERO’ ya teşekkür ederim.

Bu tez çalışması TÜBİTAK (TBAG-112T827 numaralı) ve Fırat Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (FÜBAP) Koordinasyon Birimi (Proje No: FF.16.11) tarafından desteklenmiştir.

Duygu ÇİMENÖĞLU ULUDAĞ

ELAZIĞ – 2018

İÇİNDEKİLER

ÖNSÖZ	II
İÇİNDEKİLER.....	III
ÖZET	IV
SUMMARY	V
ŞEKİLLER LİSTESİ	VI
1.GİRİŞ.....	1
2. ATOM MOLEKÜL ETKİLEŞMELERİNİN TEORİK METOTLARLA İNCELENMESİ.....	4
3.STEREO-DİNAMİK.....	11
4.DALGA PAKETİ METODU İLE STEREO-DİNAMİK ÖZELLİKLERİN İNCELENMESİ.....	12
5. BULGULAR ve TARTIŞMA.....	18
5.1.O ⁺ +HD→OD ⁺ +H Reaktif Saçılma Problemi.....	22
5.2.D+OH ⁺ →OD ⁺ +H Reaktif Saçılma Problemi.....	37
6. KAYNAKLAR.....	43
ÖZGEÇMİŞ.....	46

ÖZET

Bu çalışmada, $O^+ + HD$ ve $OH^+ + D$ reaksiyonları incelendi ve toplam açısal momentum kuantum sayıları J nin farklı değerleri için reaksiyon olasılıkları hesaplandı. Hesaplamalar toplam açısal momentum kuantum sayısı J nin her bir 10 değeri için yapıldı. Ara değerler için ise bir interpolasyon metodu kullanıldı. Toplam reaksiyon olasılıkları elde edildikten sonra, toplam ve bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon tesir kesitleri elde edilen toplam reaksiyon olasılıkları kullanılarak hesaplandı. Bu tezin amacı, atom-iki atom çarpışmalarının stereo-dinamik özelliklerini araştırmaktır. Stereo-dinamik hakkında bilgi verebilecek toplam açısal momentumun iz düşümü olan ve atomların birbirlerine yaklaşımını tanımlayan helissel kuantum sayısına bağlı olarak toplam tesir kesitleri hesaplandı. Toplam tesir kesitleri elde edildikten sonra, reaksiyon hız sabitleri hesaplandı. Yapılan hesaplamalar sonucunda, atomların yatay olarak birbirlerine yaklaşmasının dikey yaklaşıma göre daha reaktif olduğu sonucuna varıldı. Kuantum mekaniksel büyüklüklerin bu şekilde hesaplanması, atom-iki atom etkileşimlerinin stereo-dinamik özellikleri hakkında bilgi verir. Sonuç olarak, $OH^+ + D$ reaksiyonunun $O^+ + HD$ reaksiyonundan daha yavaş olduğu yapılan reaksiyon hız sabitleri hesaplamalarından elde edildi.

Anahtar Kelimeler: Stereo-dinamik, Reaksiyon İhtimaliyeti, Reaksiyon Tesir Kesiti,

SUMMARY

STEREODYNAMICS IN REACTIVE SCATTERING

In this study, $O^+ + HD$ ve $OH^+ + D$ reactions were examined and the reaction probabilities were calculated for different total angular momentum quantum numbers of Js. The calculations were done separately for total angular momentum J in step of 10. After having total reaction probabilities, total and state to state reaction cross sections have been calculated using the obtained total reaction probabilities. One of the main aim of this thesis was to investigate the stereodynamic effects of atom-diatom collisions. Considering that we have been calculated total cross sections depending on the helicity quantum number of total angular momentum which can give some information about the stereodynamic. After having total reaction cross sections, the reaction rate constants have been calculated for considering reactions. We found that the perpendicular approaching is more dominant than the one for horizontal approach. This kind of calculation of quantum quantities gives information about stereodynamics properties of atom-diatom molecules interactions. As a result we found that the $D + OH^+ \rightarrow OD^+ + H$ reaction is more slower than the one of $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaction.

Key Words: Sterodynamics, Reaction Probability, Reaction Cross-section,

ŞEKİLLER LİSTESİ

Sayfa No

Şekil 2.1.Jacobi Koordinat Sistemi.....	9
Şekil 5.1. $O^+ + H_2$ reaksiyonu için minimum enerji yolu.....	19
Şekil 5. 2. $OH^+ + H$ sistemi için kuartet ve doublet elektronik durumları için potansiyel enerjinin açı ve moleküller arası uzaklığa bağlı değişimi	21
Şekil 5.1.1. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi.....	23
Şekil 5.1.2. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün dönme kuantum sayısına bağlı tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi.....	24
Şekil 5.1.3. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün titreşim kuantum sayısına bağlı tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi.....	26
Şekil 5.1.4. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi.....	27
Şekil 5.1.5. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ saçılması için farklı parite durumlarına karşılık reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine göre değişimi	29
Şekil 5.1.6. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+(v'=0, j') + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün dönme kuantum sayısının fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi	30
Şekil 5.1.7. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+(v') + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün titreşim kuantum durumlarının fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi .	31
Şekil 5.1.8. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için paritenin fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi.....	32
Şekil 5.1.9. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi	33
Şekil 5.1.10. $O^+ + HD(v=0, j=0, 1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine göre değişimi	34
Şekil 5.1.11. $O^+ + HD(v=0, j=0, 1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi	35
Şekil 5.2.1. $OH^+ + D \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi.....	38

Şekil 5.2.2. $\text{OH}^+ + \text{D}$ ve $\text{O}^+ + \text{DH}$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi.....	39
Şekil 5.2.3. $\text{OH}^+ + \text{D}(\nu=0, j=0)$ saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi ve $\text{O}^+ + \text{HD}$ ile karşılaştırılması.....	40
Şekil 5.2.4. $\text{OH}^+ + \text{D}(\nu=0, j=0)$ saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi ve $\text{O}^+ + \text{H}_2$ ile karşılaştırılması	41



1.GİRİŞ

Atom-iki atom etkileşmelerinde, reaktant (girenler) ve ürün molekülünün yönelimlerini (alignment) belirleyen reaksiyon dinamiğinin yeni bir çalışma alanı olan stereo-dinamik, moleküler seviyedeki çalışmalar da özellikle güneşin ve atmosferdeki yıldızların oluşturdıkları manyetik alanları belirlemede büyük öneme sahiptir. Atom-atom ve atom-molekül etkileşimleri, femtosaniye (10^{-15} sn) mertebesinde meydana geldiği için, bu süreçte gerçekleşen fiziksel olayların gözlenmesi güçtür. Buna rağmen, Moleküler Demet, Kimyasal Luminesans ve Çok Kısa Kimyasal Lazer Teknikleri gibi deneysel yöntemler yardımıyla belli bir enerji değerinde toplam reaksiyon tesir kesitleri ve reaksiyon hız sabitleri gibi fiziksel büyüklükler ölçülebilmektedir. Girenlerin ve ürünlerin dönme yöneliminin deneysel kontrolü oldukça zor olmasına rağmen, giriş kanalı ve reaksiyon sonucu hakkında ayrıntılı bilgi sağlamaktadır [1]. Üç farklı hafif atom içeren, nispeten basitliği yüzünden tercih edilen $\text{Li} + \text{HF} \rightarrow \text{LiF} + \text{H}$ reaksiyon sisteminde ilk Crossed Beam deneyleri Lee ve çalışma arkadaşları tarafından yapılmıştır. HF molekülünü uyarmak için kızılötesi lazer kullanılarak, girenlerin başlangıç titreşim uyarılma etkisi çalışılmıştır. Dahası, bir elektrik alan tanımlayarak girenlerin nispi yönelimlerinin etkilerini çalışmak mümkün hale gelmiştir [2]. Atom-molekül, molekül-molekül ve foton-molekül etkileşmelerinde oluşan kimyasal değişme sürecinin sonunda "kimyasal bağların kırılması ve yeni bağların oluşumu" meydana gelmektedir. Kimyasal bir reaksiyonda, reaksiyona giren moleküllerin reaksiyon sonrasında ürünlere dönüşmesi verilen bir elektronik düzende çekirdek üzerine etki eden kuvvetlerin tanımlanmasını gerektirir. Reaksiyonu yönlendiren bu kuvvetleri anlamak, genel manada reaksiyon hız sabitlerini tahmin etmeye ve aynı zamanda reaksiyonun nasıl sonuçlanacağını yorumlamaya yardımcı olmaktadır.

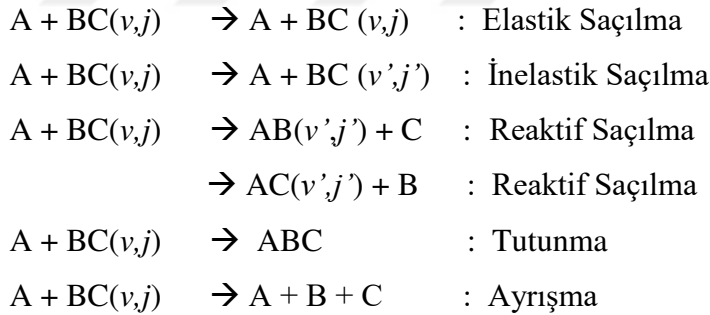
Atom iki atom etkileşmelerinde, reaksiyon dinamiği ve reaksiyon kinetiği şeklinde iki temel kavram karşımıza çıkar. Atom ve moleküllerin özelliklerinin çoğu reaksiyon dinamiği ve saçılma sonuçlarından elde edilmektedir. Kimyasal bir reaksiyonun oluşumu veya oluşum süresince reaksiyonun yönünü ve şeklini yöneten kuvvetlerin yapısının incelenmesi reaksiyon dinamiğinin konularındandır. Reaksiyon dinamiğinin başlıca konuları reaktif saçılma, inelastik saçılma ve foto ayrışma olaylarıdır. Genel olarak moleküler seviyedeki fiziksel ve kimyasal madde dönüşümlerinin incelenmesi bu başlık

altına girer. Reaksiyon tesir kesiti, reaksiyon ihtimaliyeti ve reaksiyon hız sabitlerinin belirlenmesi reaksiyon kinetiğinin konularındandır. Sabit hacimde yürütülen bir reaksiyonda, reaksiyona giren molekülün her bir kuantum durumundan, reaksiyon sonucunda oluşan ürün molekülün her bir kuantum durumuna geçişin oranını belirten büyüklük, reaksiyon ihtimaliyetidir.

Molekülün her bir kuantum durumuna geçiş ihtimaliyetinin mevcut toplam açışal momentum kuantum sayısı (J) üzerinden toplamını ifade eden kavram ise reaksiyon tesir kesitidir. Reaksiyon hız sabiti ise, yine sabit hacimde yürütülen bir reaksiyon için, reaksiyon ortamında bulunan herhangi bir maddenin derişiminin birim zamandaki deęişimi olarak tanımlanabilir.

Reaksiyon dinamięi, genel olarak moleküler seviyedeki fiziksel ve kimyasal madde dönüşümlerini inceler ve kimyasal bir reaksiyonun oluşum süresince reaksiyonun yönünü ve şeklini yöneten kuvvetlerin yapısı hakkında bilgi verir.

Bir A atomu ile titreşim, dönme hareketi yapan bir $BC(v,j)$ molekülü arasındaki etkileşme A atomunun öteleme ve elektronik enerjisi ile BC molekülünün elektronik, titreşim ve dönme enerjilerine baęlı olarak 5 farklı şekilde gerçekleşir;



Gelen atomun öteleme enerjisi hedef molekülün atomları arasındaki kimyasal baęı koparacak ve hedef molekülün kuantum durumlarında bir deęişiklik yapacak kadar büyük olmadığı durumlarda meydana gelen saçılma olayı; elastik saçılma değildir. Saçılma sonucunda hedef molekülün kuantum enerji durumlarında bir deęişme oluşması durumu inelastik saçılma değildir. Bu saçılma olayında, 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.

İnelastik saçılma bir kanala sahip olduğundan tüm hareketi tanımlamak için yalnızca bir koordinat seti yeterlidir ve bu hareketi kuantum mekaniksel olarak tanımlamak ve çözmek için Jacobi koordinatları en uygun eşitliktir[3].

Gelen atomun enerjisi hedef molekül arasındaki bağı koparacak kadar büyük olduğu durumlarda elastik ve inelastik saçılmalar olabileceği gibi reaktif saçılma ya da ayrışmada meydana gelebilir. Reaktif saçılma; hedef moleküldeki bağın bozulmasıyla gelen atomun, moleküldeki atomlardan biri ile yeni bir bağ oluşturması ile meydana gelir. Molekülün parçalanması ve bağın kopması ise ayrışma olayında meydana gelir. $A+BC$ şeklinde tanımlanan basit bir reaksiyon sistemi için inelastik saçılma olayında sistem tek bir reaksiyon kanalına sahip iken, aynı reaksiyon sistemi için reaktif saçılma olayında $AB+C$ ve $AC+B$ şeklinde açık kanallar bulunmaktadır. Bu nedenle, reaktif saçılma olaylarında ($A+BC$) giriş kanalı ile çıkış kanalı ($AB+C$ veya $AC+B$) farklı koordinatlara sahiptir.

2. ATOM MOLEKÜL ETKİLEŞMELERİNİN TEORİK METOTLARLA İNCELENMESİ

Atom molekül etkileşimleri ve kimyasal reaksiyonları incelemek için geliştirilen teorik metotlar gelişme sırasına göre Klasik Yörünge Metodu, Yarı-Klasik Metot, Kuasiklasik Yörünge Metodu ve Kuantum Mekaniksel Metot adı altında dört temel grupta toplanmıştır.

Klasik Yörünge metoduna göre, incelenen sistemin öteleme, titreşim vb. hareketleri klasik mekanik denklemlerinin basit çözümleme tekniğinden yararlanılarak incelenir. Newton veya Hamilton hareket denklemleri çeşitli başlangıç şartları için çözülmekte ve bütün başlangıç durumları üzerinden ortalama alınarak toplam reaksiyon tesir kesitleri ve hız sabitleri gibi sistemin fiziksel özellikleri incelenebilmektedir [4]. Klasik yörünge metodu, incelenen sistemde reaksiyon tesir kesiti, hız sabiti gibi değerler için çözüm sunabilse de, atom-molekül etkileşimleri ve kimyasal reaksiyonlar kuantum mekaniksel yapıya sahip olduklarından tünel olayı ve sıfır nokta enerjisi gibi özelliklerin Klasik Yörünge Metoduyla incelenmesi pek mümkün olamamaktadır.

1920’li yıllardan itibaren kullanılan Yarı-Klasik yaklaşım, klasik mekanikle kuantum mekaniği arasındaki ilişkiyi veren metottur. Yarı-Klasik metotla, bir A+BC reaksiyonunda bulunan BC molekülünün enerji seviyelerinin sürekli olduğu prensibine uyulduğu için, titreşim kuantum durumları arasındaki geçiş ihtimaliyetleri tam olarak hesaplanamadığından atom veya moleküllerin öteleme hareketleri klasik olarak, titreşim ve dönme hareketleri ise kuantum mekaniksel olarak incelenmektedir [5].

Reaksiyona giren molekülün BC, gönderilen atomun A olduğu düşünülürse, A atomu ile BC molekülünün etkileşmesinde tüm hareket denklemleri klasik olarak tanımlanabilir. Bu yöntemde çekirdeklerin hareketi klasik Hamiltonyen ile tanımlanır. Konum ve momentum cinsinden Klasik Hamiltonyen ifadesi,

$$H'(q, p) = \frac{1}{2m_A} \sum_{i=1}^3 p_i^2 + \frac{1}{2m_B} \sum_{i=4}^6 p_i^2 + \frac{1}{2m_C} \sum_{i=7}^9 p_i^2 + V[q_1, \dots, q_9] \quad (2.1)$$

şeklindedir[6,7]. Genelleştirilmiş koordinatlara dönüştürülmesi ile klasik Hamiltonyen,

$$H = \frac{1}{2\mu_{BC}} \sum_{j=1}^3 P_j^2 + \frac{1}{2\mu_{A,BC}} \sum_{j=4}^6 P_j^2 + V(\mathbf{R1}, \mathbf{R2}, \mathbf{R3}) \quad (2.2)$$

şeklini alır [8]. Burada, $V(\mathbf{R1}, \mathbf{R2}, \mathbf{R3})$; sistemdeki üç atomun çekirdeği arasındaki uzaklığın bir fonksiyonu olarak toplam potansiyel enerjisi, μ_{BC} ve $\mu_{A,BC}$ sırasıyla iki atomlu BC molekülü ile A+BC sisteminin indirgenmiş kütlesidir. Hamiltonyen denklemlerinin konuma ve momentuma göre değişimi Hamilton hareket denklemlerini verir [9]. Hamilton hareket denklemleri,

$$\dot{Q}_j = \frac{dQ_j}{dt} = \frac{\partial H}{\partial P_j} = \frac{\partial T}{\partial P_j} \quad (j = 1, 2, \dots, 6) \quad (2.3)$$

$$\dot{P}_j = \frac{dP_j}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial Q_j} = -\frac{\partial V}{\partial Q_j} = -\sum_{k=1}^3 \frac{\partial V}{\partial R_k} \frac{\partial R_k}{\partial Q_j} \quad (j = 1, 2, \dots, 6) \quad (2.4)$$

ile verilir. Hamilton hareket denklemlerinin çözümü ile her bir atomun konumunu ve momentumunu belirler. Farklı başlangıç şartları için, Hamilton hareket denklemlerinin çözülmesi sonucu çok sayıda atom yörüngesi elde edilir ve bu yörüngelerin incelenmesi sonucunda atom molekül etkileşmelerinin reaktif saçılma ile sonuçlanıp sonuçlanmayacağına karar verilir [10]. Serbest radikalleri veya atom-molekül etkileşmeleri çok kısa sürede gerçekleştiklerinden dolayı, yapılarının incelenebilmesi ve sistem hakkında tüm bilgileri elde edebilmek için sisteme ait Hamiltonyen işlemcisi yazılıp Schrödinger denkleminin çözülmesi gerekmektedir. Bu metot Kuantum Mekaniksel metottur.

m kütleli serbest bir parçacık Kuantum Mekaniğinde;

$$\Psi(r, t) = A e^{i(kr - wt)} = A e^{i(Pr - Et)/\hbar} \quad (2.5)$$

şeklinde bir düzlem dalga ile ifade edilir. Zamana göre türevi ile;

$$\frac{\partial}{\partial t} \Psi(r, t) = -\frac{iE}{\hbar} \Psi(r, t) \quad (2.6)$$

Buradan

$$E \Psi(r, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(r, t)}{\partial t} \quad (2.7)$$

ifadesi elde edilir. Konuma göre iki kez türev alınırsa,

$$\hat{V}^2 \Psi(\mathbf{r}, t) = -\frac{P^2}{\hbar^2} \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.8)$$

ifadesi elde edilir. Lineer momentum ve kinetik enerji arasındaki $P = \sqrt{2mE}$ ifadesi yerine yazılırsa,

$$\hat{V}^2 \Psi(\mathbf{r}, t) = -\frac{2mE}{\hbar^2} \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.9)$$

olur. Bu ifade düzenlenerek,

$$E \Psi(\mathbf{r}, t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \hat{V}^2 \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.10)$$

elde edilir. Bu eşitlikler dikkate alındığında,

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = -\frac{\hbar^2}{2m} \hat{V}^2 \Psi(\mathbf{r}, t) \quad (2.11)$$

elde edilir. Bu denklem 1926 yılında Erwin Schrödinger tarafından bulunan Schrödinger denklemdir [11].

$U(\mathbf{r},t)$ potansiyel alanı içinde hareket eden m kütleli bir parçacık için ise,

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \hat{\nabla}^2 \Psi(\mathbf{r},t) + U(\mathbf{r},t) \right] \Psi(\mathbf{r},t) \quad (2.12)$$

şeklini alır. Potansiyel alanı zamandan bağımsız ise potansiyel enerji olarak adlandırılır. Böylece;

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r},t)}{\partial t} = \left[\frac{\hbar^2}{2m} \hat{\nabla}^2 + V(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r},t) \quad (2.13)$$

şeklini alır.

Kuantum mekaniğine göre Hamiltonyen operatörü birbirinden bağımsız değişkenlerin fonksiyonu olan terimlerin toplamı şeklinde yazılırsa;

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m} \hat{\nabla}^2 + V(\mathbf{r}) = H(\mathbf{r}) + H(t), \quad (H(t) = 0) \quad (2.14)$$

dalga fonksiyonları da aynı değişkenleri temsil eden fonksiyonların çarpımı şeklinde

$$\Psi(\mathbf{r},t) = \Psi(\mathbf{r})\Psi(t) \quad (2.15)$$

ifade edilir. Bu ifade (2.13) denkleminde yerine yazılıp, her iki taraf $\Psi(\mathbf{r})\Psi(t)$ 'ye bölüldüğünde

$$\frac{i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r},t)}{\partial t}}{\Psi(t)} = \frac{\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \hat{\nabla}^2 + V(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r})}{\Psi(\mathbf{r})} \quad (2.16)$$

şeklini alır. Eşitliğin her r ve t için sağlanabilmesi, her iki tarafın aynı sabite eşit olması halinde mümkün olabilir. Böylece,

$$\frac{i\hbar \frac{\partial \Psi(r,t)}{\partial t}}{\Psi(r,t)} = E \rightarrow i\hbar \frac{\partial \Psi(r,t)}{\partial t} = E\Psi(r,t) \quad (2.17)$$

$$\frac{\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) \right] \Psi(r)}{\Psi(r)} = E \rightarrow \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) \right] \Psi(r) = E\Psi(r) \quad (2.18)$$

denklemleri bulunur. E toplam enerji olup; kuantum mekaniğinde Hamiltonyen operatörü (H) ile gösterilmektedir. Böylece denklemler sırası ile;

$$i\hbar \frac{\partial \Psi(r,t)}{\partial t} = \hat{H} \Psi(r,t) \quad (2.19)$$

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(r) \right] \Psi(r) = E\Psi(r) \quad (2.20)$$

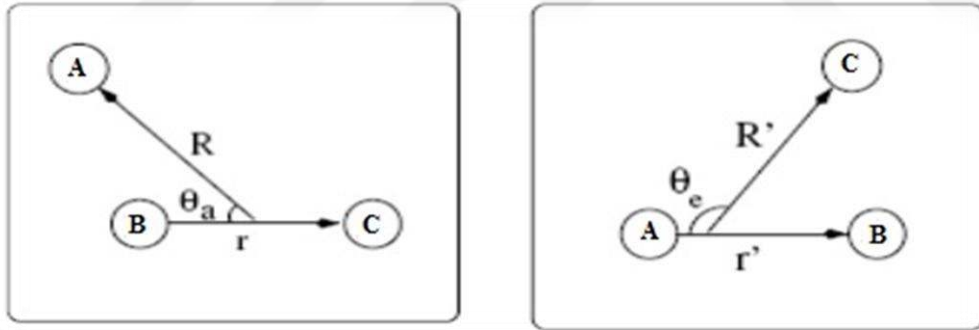
şeklinde ifade edilebilir.

Bu denklemlerden birincisi Zamana Bağlı, ikincisi ise Zamandan Bağımsız Schrödinger denklemleridir. Schrödinger Denklemleri fiziksel olarak $V(r)$ potansiyeli içerisinde hareket eden m kütleli parçacığın hareketini temsil eder [11]. Zamana Bağlı ve Zamandan Bağımsız Schrödinger denklemlerinin çözümleri kuantum mekaniksel metodu oluşturur. Kuantum mekaniksel metot, kuşkusuz saçılma problemlerini en iyi inceleyen metottur.

Zamandan Bağımsız Kuantum Mekaniksel metot; bir sınır değer problemi olan zamandan bağımsız Schrödinger denkleminin çözümüne dayanır. Nispeten daha hafif atomları (H, He, Li, gibi) içeren sistemler için çalışılan bu denklemi çözmek için iki metot geliştirilmiştir. Bunlardan ilki matrislerin köşegen haline getirilmesini gerektiren ve varyasyon prensibine dayanan Kapalı Bağlaşım metodudur. Bu metotla, sistemin

hareketini tanımlayan dalga fonksiyonu bir baz seti cinsinden seriye açılıp, sınır şartlarının uygulanması ve Hamiltonyen matrisinin köşegen hale getirilmesiyle açılım katsayıları ve enerji özdeğerleri elde edilir. Açılım katsayıları ile elde edilen dalga fonksiyonunun, asimptotik davranışından saçılma genlikleri elde edilir. Saçılma genliklerinin mutlak kareleri ise reaksiyon ihtimaliyetlerini verir. Reaksiyona giren atomların kütleleri ve sayıları arttıkça daha fazla baz vektörünün kullanılmasını gerektirmesi bu metodun dezavantajıdır. Hamiltonyen matrisinin boyutu artar ve bu durum köşegen hale getirilmesini zorlaştırır. Bu metottaki ikinci çözüm yolu, zamandan bağımsız Schrödinger denkleminin nümeriksel çözümüne dayanan tekrarlanan integrasyondur. Bu çözümle doğrudan deneysel sonuçlarla karşılaştırılabilen sonuçlar elde edilebilmektedir.

Bir çarpışma enerjisi değeri için bütün kuantum seviyeleri arasındaki geçiş ihtimalleri (saçılma matrisinin tüm elemanları), reaksiyon tesir kesitleri ve reaksiyon hız sabitleri hesaplanabilmekte, atom–iki atom reaksiyonlarına dayanan birçok teorik çalışma bu metotla yapılabilmektedir.



Şekil 2. 1 Jacobi Koordinat sistemi

Şekil 2.1' de Jacobi koordinat sisteminde $\mathbf{R}$ giriş kanalında, A atomu ile BC molekülü arasındaki uzaklığı; r , BC molekülünün atomları arasındaki mesafeyi, θ_a ise $\mathbf{R}$ ve r arasındaki açıyı temsil etmektedir. Aynı şekilde $\mathbf{R}'$ çıkış kanalında C atomu ile AB molekülü arasındaki uzaklığı, r' AB molekülünün atomları arasındaki mesafeyi ve θ_e , $\mathbf{R}'$ ve r' arasındaki açıyı temsil eder. Jacobi koordinat sistemi yardımıyla etkileşme potansiyeli ifade edildikten sonra, aynı koordinat sistemi kullanılarak A-BC sistemine ait Hamiltonyen ifadesi ve toplam dalga fonksiyonu tanımlanır.

Bu $A+BC$ etkileşmesinde, toplam açısal momentum (J) ve toplam enerji (E) etkileşme boyunca sabit kaldığından Schrödinger dalga denkleminin her bir J ve E değeri için ayrı çözülmesi gerekir [4].

Kapalı bağlaşım açılımında, dalga fonksiyonu tanımlanırken N tane baz fonksiyonu kullanılırsa, çözülmesi gereken N tane 2.mertebeden diferansiyel denklem var demektir. Enerji değerinin molekülün titreşim-dönme enerjisinden küçük olduğu ($E < \epsilon_{vj}$) durumlarda ise kuantum durumları kapalı kanal olarak adlandırılır. Kuantum durumunun kapalı ya da açık olması demek, iki atomlu molekülün söz konusu kanala uyarılıp uyarılmayacağını göstermesi demektir. İki atomlu bir molekülde, her bir titreşim durumunun en az 10 ile 20 arasında dönme kuantum durumu vardır. Her j dönme kuantum durumu için (iz düşümü) Ω 'nın farklı değerleriyle beraber $2j+1$ durum olduğundan iki atomlu bir molekülün ilk titreşim enerji seviyesine eşit bir enerjide molekül uyarıldığında, gerekli kuantum mekaniksel denklemlerin çözümleri kolayca yapılabilir [12].

3. STEREO-DİNAMİK

Deneysel ve teorik olarak araştırılabilen stereo-dinamik özellikler, bize reaktif, reaktif olmayan (nonreaktif) olayların ve moleküler dinamiğin kapsamlı ve titiz bir resmini sunar [13]. Reaksiyonların vektör özellikleri, yani reaktantların ve ürünlerin nispi hız yönleri, açısal momentum yönelimleri ve bu vektörler arasındaki ilişkiler reaksiyon sürecinin incelenmesinde önemli rol oynar. Stereo-dinamik, reaksiyonların bu vektör özelliklerini dikkate alarak kimyasal süreçlere direkt bir bakış açısı sağlar [14]. İlk olarak Fano, Macek, Herscbach ve çalışma arkadaşları, reaktantların ve ürünlerin açısal momentumlarının çoklu yönelimlerini ve onlar arasındaki ilişkiyi inceleyerek reaktif saçılma dinamiğinin üç boyutlu resmini sunmuşlardır[14]. Bu öncü çalışmalarla beraber, son zamanlarda reaksiyonların vektör özelliklerini temel alan teorik çalışmaların da sayısı artmıştır.

Teorik çalışmalar kadar, deneysel çalışmalarda stereo-dinamik alanının gelişmesini sağlamıştır. Bu deneysel çalışmalardan bazıları; homojen elektrik alanlarda saptırma, Crossed Beam ve Doppler profili şeklindeki çalışmalardır. Loesch ve çalışma arkadaşları bir Crossed Beam deneyinde, HF molekülünü lineer kutuplanmış lazer kullanarak uyarmışlardır. Geçişin paralel olması sebebiyle, HF molekülü $v=1, j=1, m=0$ 'a uyartılmıştır. Polarizasyon eksenini alanı değiştiği zaman, molekül nispi hız vektörü $\mathbf{k}$ 'ya paralel ya da dik olarak yönelmiş olur [15]. Bu deney sonucunda elde edilen integral tesir kesiti ve diferansiyel kesiti değerleri reaksiyon sürecini belirlemede önemli rol oynamıştır.

Teorik açıdan bakıldığında, dönme- yönelim (rotational alignment) parametresi, $P(\Theta_r)$, $P(\phi_r)$ ve $P(\Theta_r, \phi_r)$ açısal dağılımları ve kutuplanmaya bağlı diferansiyel tesir kesiti gibi stereo-dinamik özellikleri incelemek için Kuasi-klasik ve Kuantum mekaniksel metotları son dönemlerde yaygın kullanılmaya başlamıştır. Kuasi-klasik ve Kuantum mekaniksel metotlar kullanılarak üç atomlu ve çok atomlu reaksiyonların özellikleri çalışılabilmektedir[13]. Bu çalışmada stereo-dinamik özellikler Dalga Paketi Metodu ile incelenecektir.

4. DALGA PAKETİ METODU İLE STEREO-DİNAMİK ÖZELLİKLERİN İNCELENMESİ

Kimyasal reaksiyonların stereo-dinamik özelliklerini anlamak için reaksiyon tesir kesitinin, girenlerin ve ürünlerin, başlangıç ve final uyarılma durumları arasındaki ilişki incelenmelidir. Stereo dinamik, bir atomun molekül üzerine yönelimini baz alarak hangi yönelimde daha fazla reaksiyon olma ihtimalini inceler. Atom, molekül üzerine dik, kolinear ya da başka bir açı ile yaklaştığı zaman reaksiyon ihtimaliyetlerinin değişimini incelemek için stereo-dinamik özellikleri çalışmak gerekir. Bunun için ilk olarak Hamiltonyen ifadesi belirlenmelidir. Toplam reaksiyon ihtimaliyetini hesaplamak için reaktant Jacobi koordinatlarının kullanıldığı Hamiltonyen ifadesi;

$$\mathbf{H} = \frac{\hbar^2}{2m} \left(\frac{2}{\mathbf{R}} \frac{\partial}{\partial \mathbf{R}} + \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{R}^2} \right) + \frac{l^2}{2m\mathbf{R}^2} - \frac{\hbar^2}{2\mu} \left(\frac{2}{\mathbf{r}} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} + \frac{\partial^2}{\partial \mathbf{r}^2} \right) + \frac{j^2}{2\mu\mathbf{r}^2} + V(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma) \quad (4.1)$$

şeklindedir. Bu ifade de;

$\mathbf{r}$: BC molekülünün atomları arası mesafe

$\mathbf{R}$: BC molekülünün kütle merkezinin A atomuna olan uzaklığı

γ : iki vektör arasındaki açığı

temsil eder. j ve l (aynı şekilde indirgenmiş kütle μ ve m) sırasıyla $\mathbf{r}$ ve $\mathbf{R}$ ile ilişkili açısal momentum operatörleridir ve $V(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma)$ etkileşim potansiyelidir. Bu çözümde cisim merkezli sistemi kullanmak uygundur. $\mathbf{R}$ vektörü z eksenini boyunca olmak üzere diğer 3 atom x-z düzleminde. Burada, iç koordinatlar $\mathbf{r}$, $\mathbf{R}$ ve γ arasında cisim merkezli eksenin yönelimi uzay merkezli sisteme gelince üç Euler açısı θ, ϕ ve χ ile ayırt edilebilir. Böylece (4.1) eşitliğinde gösterilen açısal momentum operatörleri $l^2 = J^2 + j^2 - 2J.j$ ile ifade edilir [6].

$$j^2 = -\hbar^2 \left\{ \cot \gamma \frac{\partial}{\partial \gamma} + \frac{\partial^2}{\partial \gamma^2} + \frac{1}{\sin^2 \gamma} \frac{\partial^2}{\partial \chi^2} \right\},$$

$$\begin{aligned}
J^2 &= -\hbar^2 \left\{ \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \cot \theta \frac{\partial}{\partial \theta} + \frac{1}{\sin^2 \theta} \left(\frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial \chi^2} - 2 \cos \theta \frac{\partial^2}{\partial \chi \partial \phi} \right) \right\}, \\
J \cdot \mathbf{j} &= -\hbar^2 \left\{ (1 - \cot \gamma \cot \theta \cos \chi) \frac{\partial^2}{\partial \chi^2} - \cot \theta \sin \chi \frac{\partial^2}{\partial \chi \partial \gamma} + \cos \chi \frac{\partial^2}{\partial \theta \partial \gamma} \right. \\
&\quad \left. + \frac{\cot \gamma \cos \chi}{\sin \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi \partial \chi} + \frac{\sin \chi}{\sin \theta} \frac{\partial^2}{\partial \phi \partial \gamma} - \cot \gamma \sin \chi \frac{\partial^2}{\partial \theta \partial \chi} \right\} \quad (4.2)
\end{aligned}$$

Belirlenen Hamiltonyen ifadesinin, başlangıç dalga paketine uygulanması gerekir. Başlangıç toplam dalga paketi üç boyutta;

$$\psi^{JM}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t) = \sum_{\Omega} \left(\frac{2J+1}{8\pi^2} \right)^{1/2} D_{M\Omega}^{J*}(\phi, \theta, \chi) \frac{\phi_{\Omega}^J(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma, t)}{\mathbf{rR}} \quad (4.3)$$

olarak yazılabilir. $D_{M\Omega}^J$ toplam açısal momentum operatörü $\hat{J} = \hat{j} + \hat{l}$ ile ilişkilendirilen toplam açısal momentum J ' ye uyan Wigner dönme matrisleridir ($\hat{j}$ ve $\hat{l}$ sırasıyla $\mathbf{r}$ ve $\mathbf{R}$ ile ilişkilendirilen açısal momentum operatörleridir). M ve Ω sırasıyla cisim merkezli ve uzay merkezli sistemde z ekseninde, J ' nin iz düşümleridir. z eksen $\mathbf{R}$ ' ye paralel olduğundan, Ω ayrıca j ' nin $\mathbf{R}$ üstündeki izdüşümüdür. $\phi_{\Omega}^J(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma, t)$ katsayıları, iç koordinatlar $\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma$ için sonlu gridlerde temsil edilir. $\phi_{\Omega}^J(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma, t)$ katsayıları zamana-bağılı Schrödinger eşitliğinin integrasyonu ile elde edilir[16]. $t = 0$ anında başlangıç dalga paketi;

$$\psi_{v_0, j_0, \Omega_0}^{JM}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t = 0) = \left(\frac{2J+1}{8\pi^2} \right)^{1/2} D_{M\Omega_0}^{J*}(\phi, \theta, \chi) \times Y_{j_0, \Omega_0}(\gamma, 0) \frac{\phi_{v_0, j_0}(r)}{\mathbf{r}} \frac{G(\mathbf{R})}{R} \quad (4.4)$$

tanımlanabilir. $\phi_{v_0, j_0}(\mathbf{r})$, $BC(v_0, j_0)$ ' ın öz durumunun radyal kısmı, ilişkili Legendre fonksiyonlarıyla normalize edilmiş $E_{v_0, j_0}, Y_{j_0, \Omega_0}$ öz değerleri ve kompleks Gauss fonksiyonları $G(\mathbf{R})$ ile merkezi uzaklık $\mathbf{R}_0$ etrafında asimptotik bölgede yer alır. Coriolis bağlaşımında, $\mathbf{R}_0$ yeterince büyük olduğu için cisim merkezli sistemde $\hat{l}^2$ terimi nedeniyle ihmal edilebilir ($\mathbf{R}_0 = \mathbf{R}_{\infty}$). Fakat Coriolis bağlaşimleri $\mathbf{R}^{-2}$ için yavaşça azalır. Yüksek J değerleri için bu durum girenler arasında son derece uzun mesafeler ve çok detaylı

nümerik hesaplamalar gerektirir. Orta düzeyli mesafeler de ise girenler arasındaki potansiyel etkileşim sıfırdır. Bununla birlikte, Coriolis bağlaşımları ihmal edilemez ve başlangıç dalga paketi Ω bileşeninin bir süper pozisyonu olarak ifade edilir. Bu tür bir toplam, $\mathbf{R}_0$ ' da nümerik integrasyona başlamak için $\mathbf{R}_\infty$ ' da yalnız Ω_0 ' a karşılık gelen başlangıç dalga paketinin integrasyonu ile belirlenir[17]. Bu analiz uzay merkezli sistemden cisim merkezli sisteme dönüşüm düşünülerek yapılabilir;

$$\begin{aligned}
& \psi_{v_0, j_0, \Omega_0}^{JM}(\mathbf{R}, \mathbf{r}, t = 0) \\
&= \frac{\phi_{v_0, j_0}(r)}{r} \left(\frac{2J+1}{8\pi^2} \right)^{1/2} \sum_{\Omega} D_{M\Omega}^{J*}(\phi, \theta, \chi) Y_{j_0\Omega}(\gamma, 0) \\
&\times \int dE_{a_0}(E) \left(\frac{\mu}{2\pi\hbar^2 k_0} \right)^{1/2} \frac{\mathcal{H}_{\Omega_0\Omega}^{Jj_0}(k_0\mathbf{R})}{\mathbf{R}}
\end{aligned} \tag{4.5}$$

Burada, $\mathcal{H}_{\Omega_0\Omega}^{Jj_0}(k_0\mathbf{R})$ cisim merkezli Bessel fonksiyonu;

$$\begin{aligned}
& \mathcal{H}_{\Omega_0\Omega}^{Jj_0}(k_0R) \\
&= (-1)^{-\Omega_0-\Omega} \exp[i(J+j_0)\pi/2] \sum_l (-i)^l (2l+1) h_l^{(2)}(k_0R) \\
&\times \begin{pmatrix} j_0 & l & J \\ \Omega_0 & 0 & -\Omega_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j_0 & l & J \\ \Omega & 0 & -\Omega \end{pmatrix}
\end{aligned} \tag{4.6}$$

şeklindedir. Burada, μ $\mathbf{R}$ ile ilişkili indirgenmiş kütle ve $k_0 = [2\mu(E - E_{v_0j_0}/\hbar^2)]^{1/2}$ ' dır. (4.6) eşitliğinde $h_l^{(2)}$, $h_l^{(2)} \underset{R \rightarrow \infty}{\sim} \exp[-i(k\mathbf{R} - l\pi/2)]/k\mathbf{R}$ ifadesi Küresel Bessel fonksiyonudur. Burada problem, giriş kanalında E enerjisinde akı genliği $a_0(E)$ katsayısının kararlılığıdır;

$$a_0(E) = \left(\frac{\mu}{2\pi\hbar^2 k_0} \right)^{1/2} \int k_0\mathbf{R} h_{lcs}^{(2)*}(k_0\mathbf{R}) G d\mathbf{R} \tag{4.7}$$

$G(R)$ eşitlik (4.4)' teki kompleks Gauss ve l_{CS} katsayısı l 'ye en yakın yeterli tamsayıdır; $l(l+1) = J(J+1) + j_0(j_0+1) - 2\Omega_0^2$ şeklinde ifade edilir. Bireysel kuantum seviyeleri reaksiyon ihtimaliyetleri hesaplanırken, cisim merkezli Bessel fonksiyonları aracılığıyla yapılabilen uygun sınır şartlarını göz önüne almak önemlidir. Bunun aksine kararlı enerji toplam reaksiyon ihtimaliyeti, ürün bölgesinde bir yüzey yoluyla dalga paketinin enerji iz düşümünün toplam akısıyla hesaplanır[18];

$$P_{v_0 j_0 \Omega_0}^J(E) = \frac{1}{2\pi m} \sum_{\Omega} \int dR \sin \gamma d\gamma \times \text{Im} \left[\Psi_{\Omega}^{+*}(r^*, R, \gamma, E) \frac{\partial \Psi_{\Omega}^+(r, R, \gamma, E)}{\partial r} \Big|_{r^*} \right] \quad (4.8)$$

$$\Psi_{\Omega}^+(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma, E) = \frac{1}{a_0(E)} \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp\left(\frac{iEt}{\hbar}\right) \phi_{\Omega}^J(\mathbf{r}, \mathbf{R}, \gamma, t) \quad (4.9)$$

Burada $\mathbf{R}$ asimptotta z cisim merkezli eksen ve ona paralel bağlı dalga vektörü $\mathbf{k}$ 'yı belirler. j 'nin iz düşümü Ω ve $(\mathbf{k}, j)$ ilişkileri bu çerçevede belirlenir[14]. Başlangıç hız vektörüyle ilgili iki atomlu eksenlerin yönelimlerinin rolü hakkında fiziksel bakış açısı veren, Jacobi vektörleri $\mathbf{r}$ ve $\mathbf{R}$ arasında başlangıç nispi yönelim dağılımı $Y_{j_0 \Omega_0}(\gamma, 0)$ ile verilir. Örneğin, $j_0 = 1, \Omega_0 = 0$ için $\mathbf{r}, \mathbf{k}$ ' ya paralel iken, $\Omega_0 = \pm 1$ olduğunda birbirlerine diktirler. Bu tez çalışmasında her bir Ω_0 başlangıç değeri için ihtimaliyetler elde edilecek ve bu ihtimaliyetlerin yorumlanması ile her bir iz düşüm bileşeninin reaksiyona katkısı ve buradan da atomun molekül ile etkileşme şekli netleştirilecektir[19]. Belirli bir giriş kanalı için (v_0, j_0, Ω_0) , $Y_{j_0 \Omega_0}$ tüm J değerleri için aynıdır, j 'nin ve $\mathbf{k}$ 'nin başlangıç doğrultuları arasındaki ilişki helisite bağlı reaksiyon tesir kesitinde $\sigma_{v_0, j_0, \Omega_0}$ şöyle tanımlanır[20];

$$\sigma_{v_0, j_0, \Omega_0}(E) = \frac{\pi}{k_0^2} \sum_{J=\Omega_0}^{\infty} (2J+1) P_{v_0 j_0 \Omega_0}^J(E) \quad (4.10)$$

$\sigma_{v_0,j_0,\Omega_0}$ atom iki atom reaksiyonlarının stereo-dinamiğinin bir kısmını tanımlayan k-j ilişkisi hakkında önemli bilgiler içerir[11]. Özellikle yüksek j_0 değerleri için, reaksiyonda j_0 ' ın farklı polarizasyonlarının nispi katkılarının bütününe içeren çoklu kutup durumlarını $(2j_0+1)$ ifade etmek daha kullanışlıdır. Burada, tekli kutup momenti σ_{v_0,j_0} 'ye oranlanır ve j'nin izotropik dağılıma uyan toplam reaksiyon tesir kesiti;

$$\sigma_{v_0,j_0}(E) = \frac{1}{2j_0+1} \sum_{\Omega_0=-j_0}^{j_0} \sigma_{v_0,j_0,\Omega_0}(E) \quad (4.11)$$

şeklinde elde edilir. Dönme düzlemi hakkında bilgi veren, kuadropol (dört kutuplu) moment ve yönelim parametreleri;

$$\mathcal{A}_{v_0,j_0}(E) = \sum_{\Omega_0} \left[\frac{3\Omega_0^2}{j_0(j_0+1)} - 1 \right] \rho_{v_0,j_0,\Omega_0} \quad (4.12)$$

ve

$$\rho_{v_0,j_0,\Omega_0} = \sigma_{v_0,j_0,\Omega_0} / \sum_{\Omega} \sigma_{v_0,j_0,\Omega}$$

şeklinde tanımlanabilir. Bu eşitlik, reaksiyon üretmek için j_0 ile k'nın tercihli başlangıç yönelimleri ve benzer şekilde foto ayrışmada sıklıkla kullanılan dönme yönelim parametreleri hakkında bilgi verir. Yüksek j_0 değerleri için yarı-klasik limit kullanılabilir.

$$\cos \theta_j = \Omega / [j_0(j_0+1)]^{1/2} \quad \text{ve} \quad \mathcal{A}_{v_0,j_0}(E) \propto \langle 2P_2(\cos \theta_j) \rangle$$

Burada θ_j , j_0 ve z eksenleri arasında kalan açıdır. Buda j_0 ve $\mathbf{k}$ arasındaki açı hakkında kullanışlı bir durum sağlar. Yarı-klasik limitte $\mathcal{A}_{v_0,j_0}$ parametresi -1 ve 2 arasında değerler alır; sırasıyla $\mathcal{A}_{v_0,j_0}$ parametresinin değerinin -1 ve 2 olması demek, j_0 z eksenine dik ya da paralel olduğu zaman reaksiyonun büyük bir ihtimalle oluşması demektir. $\mathcal{A}_{v_0,j_0} = 0$ olması durumu ise; reaksiyonun Ω 'dan bağımsız olduğu anlamına gelir.

(4.10) ve (4.11) tanımlamalarını kullanarak, herhangi bir T sıcaklığında hız sabiti ifadesi;

$$K_{v_0,j_0}(T) = \frac{1}{2\pi h} \left(\frac{\mu k T}{2\pi h^2} \right)^{-3/2} \int dE \sigma_{v_0,j_0}(E) \exp(-E/kT) \frac{k_0^2}{\Pi} \quad (4.13)$$

şeklini alır. Buradan E kinetik enerjisi ve k Boltzman sabitidir. Bütün sıcaklıklar üzerinden toplam alındığı zaman sonuç olarak termal hız sabiti;

$$K(T) = \left[\sum_{v_0,j_0} (2j_0 + 1) \exp(-E_{v_0,j_0}/kT) \right]^{-1} \times \sum_{v_0,j_0} (2j_0 + 1) \exp(-E_{v_0,j_0}/kT) K_{v_0,j_0}(T) \quad (4.14)$$

şeklini alır. J değerinin artmasıyla, hesaplamalar için daha fazla çaba gerekeceğinden; reaksiyon tesir kesitini belirlemek için kısmi bir dalga toplamı yapılabilir. Bu çabayı en aza indirmek için yaygın kullanılan yaklaşım eşitlik (4. 3) ve (4. 8) de Ω üzerinden toplam limit $\Omega=\Omega_0$ içerir. Bu yaklaşım Centrifugal Sudden Approximation (CSA) yaklaşımıdır. Böylelikle, her J hesaplamasında $J = 0$ olması gerekir. Ayrıca böyle bir yaklaşımda, başlangıç dalga paketi eşitlik (4.4)' deki gibi ifade edilir[21].

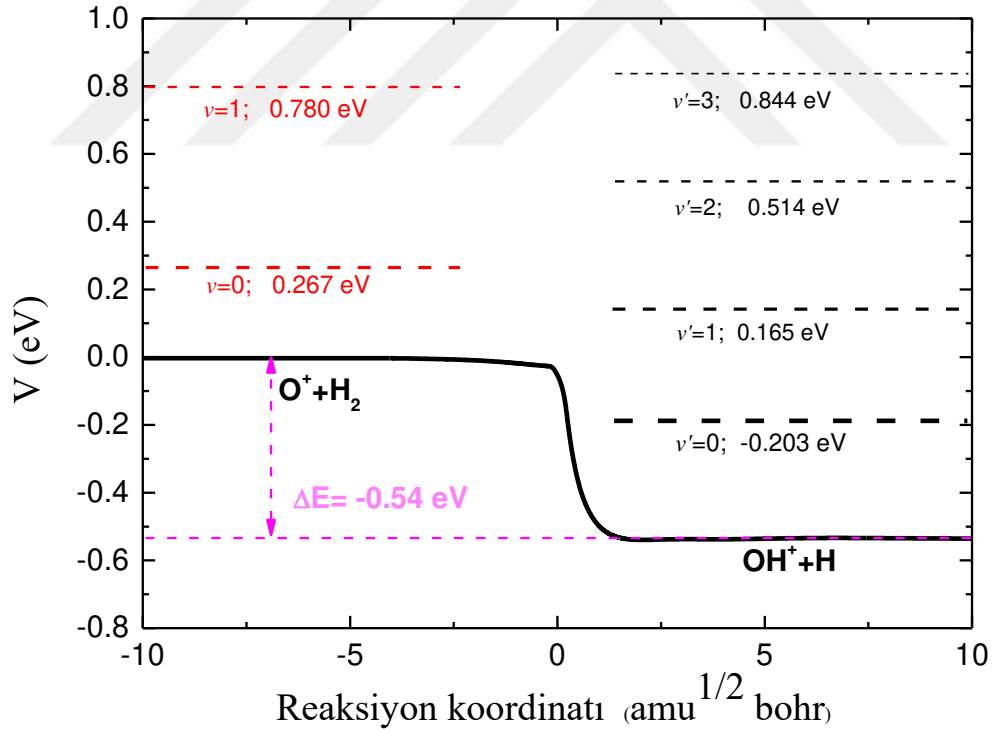
5.BULGULAR ve TARTIŞMA

Uzayda, döteryumlanmış türler şaşırtıcı derecede çok bol miktarda bulunmaktadır. Son zamanlarda OH^+ molekülünün keşfinin ardından, yıldızlararası ortamda OD^+ molekülünün de olası oluşumu için çok sayıda düşünce mevcuttur. Bunun için $\text{O}^+ + \text{HD}$ reaksiyonu dalga paketi metodu ile doublet ve kuartet elektronik potansiyel enerji kullanılarak çalışıldı. Hesaplamalar, 1 meV ila 0.7 eV aralığındaki çarpışma enerjilerinde stereo-dinamik etkiyi araştırmak için reaktif moleküllerinin farklı başlangıç dönme uyarımları için de gerçekleştirilmiştir. Bu tür hesaplamalar bize atom iki atomlu moleküllerin çarpışmaları sonucunda oluşacak yeni ürünler ve yapısı hakkında ayrıntılı bilgi sağlayabilir. Tüm hesaplamalar için Bölüm 4 te verilen denklemler kullanılarak zamana bağlı Schrödinger denklemi paralel programlama yardımıyla çözüldü. $\text{O}^+ + \text{HD}$ ve $\text{OH}^+ + \text{D}$ reaksiyonları için ilk kez gerçek hesaplamalar yapıp bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon ihtimaliyetleri, tesir kesitleri ve hız sabitleri hesaplandı. Ayrıca, tez çalışmamızın temelini oluşturan ve çalışmamıza orijinallik katan stereo-dinamik özellikler çalışılıp elde edilen kuantum mekaniksel veriler detaylı olarak yorumlandı.

Hafif hidritler, yıldızlararası kimyanın birinci basamağını oluşturur. Bu hafif hidritler, kompleks moleküllerin oluşumunu başlatan, kimyasal reaksiyon döngülerini oluştururlar. Bu durum yıldızlararası ortamda moleküler yoğunluğa sebep olur. Ayrıca, bu oluşumların ve uyarılma yollarının çeşitliliği sebebi ile dönme çizgileri (yolları) yıldızlararası ortamdaki, fiziksel ve kimyasal süreçlerin güçlü tanısını oluşturur [22]. Yapılan hesaplamalar ve araştırmalar, 2010 yılında Herschel uydusunun fırlatılması ile Dünya atmosferinin bulanıklığı tarafından gizlenen spektral alanı açığa çıkarmıştır. Bu spektral bölgede, hafif moleküler hidritlerin çizgileri farklı astro fiziksel bölgelerde gözlemlenmiştir. Bunlardan bazıları, örneğin OH^+ ilk kez görüntülenmiştir. Hidritler, ağır elementlerin önemli ölçüde rezervuarı olarak moleküler astro fizikte önemli bir rol oynar. Aslında, Hidrojen yıldızlararası ortamda diğer elementlerden daha belirgin olduğu için, hidritler oluşacak ilk moleküller ve yıldızlararası kimya çalışmalarında hassas testlere önemli katkı sağlarlar. Ayrıca, dönme emisyonları analizi, sıcak foto ayrışma alanlarından soğuk moleküllü bulutlara, çok çeşitli yıldızlararası alandaki fiziksel koşullar hakkında

bilgi sağlar [23]. İyon-molekül temel reaksiyonları, yıldızlararası bulutların fiziki ve kimyası, iyonosferler, plazmalar ve yanma süreçlerinde de geniş bir alana sahiptir.

$O^+(^4S) + H_2(^1\Sigma^+_g) \rightarrow OH^+(^3\Sigma^-) + H(^2S)$ ekzotermik reaksiyonunda oluşan OH^+ ürün molekülü H_2O^+ ve H_3O^+ molekül iyonlarını oluşturmak için H_2 molekülü ile reaksiyona girmektedir. Bu nedenle, $O^+(^4S) + H_2(^1\Sigma^+_g)$ reaksiyonunun yoğun yıldızlararası bulutların evrimi için önemli olduğu bilinmektedir.[24] H atom transferi içeren ekzotermik iyon molekülü reaktif sisteminin ilk örneği olan bu reaksiyon hem deneysel hem de teorik olarak çalışılmıştır. Flowing afterglow, ion-cyclotron resonance şeklindeki deneysel çalışmalar bunlardan birkaçıdır. Bulut ve çalışma arkadaşları tarafından $O^+ + H_2 \rightarrow OH^+ + H$ iyon molekül reaksiyonu zamana bağlı dalga paketi metodu ile çalışılmış olup, toplam reaksiyon ihtimaliyetleri ve tesir kesitleri hesaplanmıştır ve deneysel metotlarla elde edilen sonuçlarla uyum gösterdiği görülmüştür [25]. Kuantum mekaniksel hesaplamalar arasında, zamana bağlı metot, bu alandaki araştırmalar için önemli bir tekniktir [26].

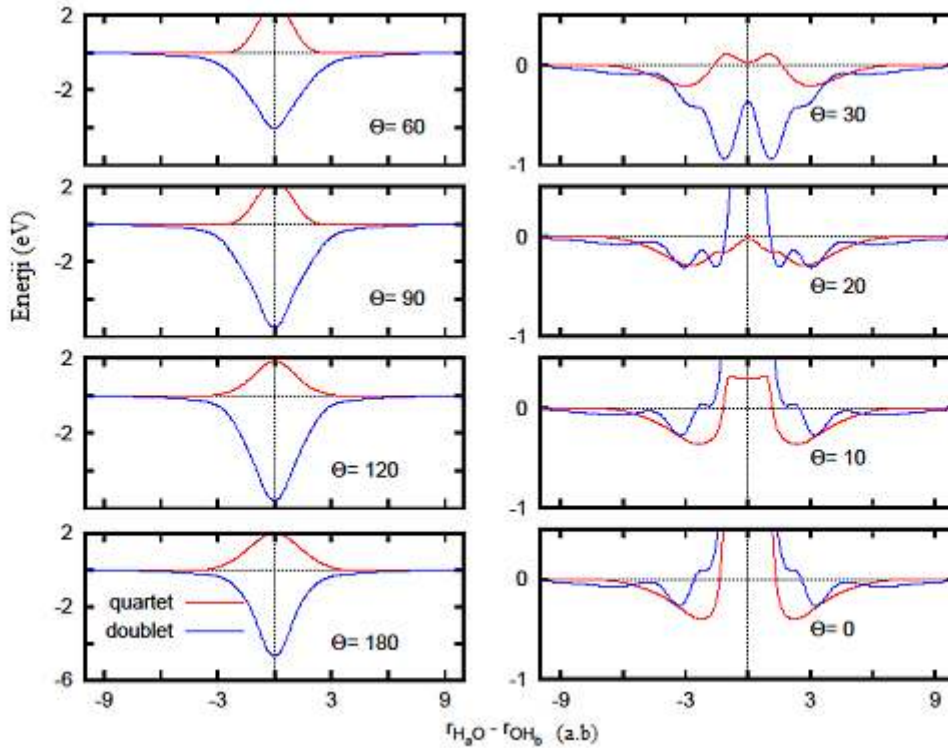


Şekil 5.1. $O^+ + H_2$ reaksiyonu için minimum enerji yolu

Şekil 5.1' de bu tez çalışmasında ele alınan reaktif saçılma sisteminin etkileşme boyunca potansiyel enerji değişimini gösteren iki boyutta reaksiyon koordinatı görülmektedir. Bu grafikten, $O^+ + H_2(HD)$ atom molekül çarpışmasının ekzotermik bir reaksiyon olduğu ve reaksiyondan sonra -0.54 eV değerinde bir enerjinin açığa çıkacağı çok rahat bir şekilde görülebilir. Yine bu grafikten, oluşan ürün molekülünün enerji seviyesinin reaksiyona giren molekülünün enerji seviyesinden küçük olduğu ve bunun sonucu olarak reaksiyonun kendiliğinden gerçekleşeceği sonucuna varılır. Reaksiyonun başlaması için herhangi bir başlangıç enerjisi vermeye gerek yoktur. Aynı grafik üzerinde reaksiyona giren ve ürün molekülün titreşim enerji seviyeleri verilmiştir. Bu titreşim enerji seviyeleri, Schrödinger denkleminin çözülmesi ile elde edilmiş olup bu seviyeler bize sistemin titreşim ve dönme kuantum seviyeleri arasındaki ilişki ile ilgili bilgi verir. Çalışılan sistem ile ilgili olarak bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon ihtimaliyetleri hesaplandığında, ihtimaliyetlerin hangi titreşim seviyesinden itibaren bir eşik davranışı göstereceği bu grafikten açıkça tahmin edilebilir. Örneğin reaksiyona giren $H_2(HD)$ molekülünün başlangıç kuantum durumu için ($v=0$) kuantum mekaniksel hesaplamalar yapıldığında ürün molekülün ilk iki titreşim durumu için ($v'=0,1$) reaksiyon kendiliğinden gerçekleşecektir. Çünkü $v=0$ ' a karşılık gelen enerji durumu $v'=0$ ve $v'=1$ durumlarına karşılık gelen enerji seviyesinden yüksektir. Fakat $v'=2$ den itibaren reaksiyon ihtimaliyetleri artık bir eşik değerinden itibaren başlamaları gerekir. Bu eşik değeri, yani reaksiyon ihtimaliyeti çizilirken yatay eksen olan enerji ekseninde nümerik değerlerin başlayacağı yer (x eksenini kesim yeri) $v=0$ kuantum seviyesine karşılık gelen enerji değeri ile $v'=2$ kuantum seviyesine karşılık gelen enerji değeri arasındaki farka eşit olacaktır. Burada v reaksiyona giren molekülün titreşim kuantum seviyesi olup v' ise ürün molekülün titreşim kuantum seviyesidir. Şekil 5.1' deki önemli görüntülerden biri de reaksiyon yolu boyunca ciddi bir potansiyel derinliğinin/çukurunun olmamasıdır. Potansiyel derinliği reaksiyon ihtimaliyetleri üzerinde büyük bir etkiye sahiptir. Bu potansiyel derinliğine bakılarak reaksiyon sonucunda elde edilecek olan reaksiyon ihtimaliyetlerinin keskin rezonanslara sahip olup olmayacağı önceden tahmin edilebilir. Ayrıca reaksiyon yolu üzerinde herhangi bir potansiyel bariyerinin olmadığı görülmektedir.

Bu tez çalışmasında ele alınan reaksiyon tersinir bir reaksiyondur. Potansiyel enerji hesaplanırken molekülün iki farklı durumu için potansiyel hesaplanmıştır. Bunlar kuartet ve doublet durumları içindir. Doublet durumu için belli açılarda potansiyel enerji yüzeyi çok derin potansiyel kuyusuna sahip olabilmektedir.

Molekölün farklı mesafeleri ve molekül üzerine gönderilen atomun farklı açıları için hesaplanan potansiyel enerji Şekil 5.2 de gösterilmiştir. Şekilden de görüldüğü gibi çoğu açılarda doublet durumu için potansiyel enerji çok derin bir potansiyel kuyusuna sahiptir. Bir reaksiyonun çok derin bir potansiyel kuyusuna sahip olması o sistemin çalışılmasının çok zor olacağı ile ilgili bir ipucu verir. Buradaki zorluk şudur: Dalga fonksiyonu/paketi potansiyel enerji yüzeyi üzerinde yayılırken reaksiyon yolu üzerindeki potansiyel kuyusuna girip buradan ürün molekülün çıkış kanalının asimptotik bölgesine ulaşması çok uzun zaman alacaktır hatta bir kısım dalga paketi bileşenleri (düşük enerjili olanlar) bu potansiyel kuyusundan hiç çıkmayacaktır. Bu da, reaksiyonun tamamlanması için geçen sürenin oldukça uzun olması, bilgisayar imkânları bakımından hesaplamaların (iterasyonların) aylarca sürmesine sebep olacaktır. Sonuçta sağlıklı bir sonuç elde edilemeyecektir. Bu nedenlerden ötürü doublet potansiyel enerji yüzeyi çalışmalarda bir kenara bırakılıp sadece kuartet yüzey kullanılarak kuantum mekaniksel hesaplamalar yapıldı ve bu hesaplamalar sonucunda reaksiyon ihtimaliyeti, tesir kesitleri, hız sabitleri gibi büyüklükler elde edildi. Bu büyüklükler reaksiyon mekanizması hakkında önemli bilgiler verir [27]. Atomun molekül üzerine yönelme durumunu temsil eden ya da tanımlayan stereo-dinamik özellikler de ayrıca incelendi.



Şekil 5. 2. $\text{OH}^+ + \text{H}$ sistemi için kuartet ve doublet elektronik durumları için potansiyel enerjinin açı ve moleküller arası uzaklığa bağlı değişimi [23].

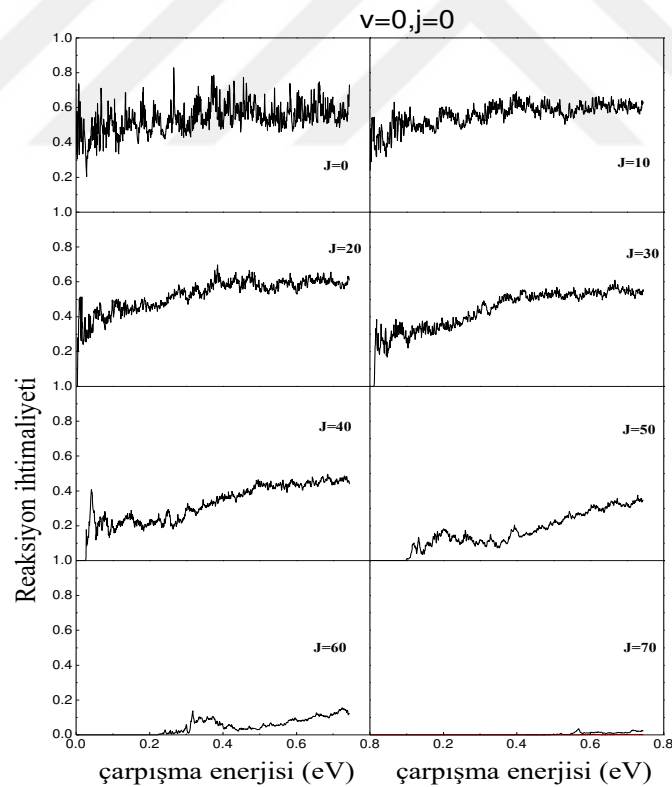
Şekil 5.2' de görüldüğü gibi kuartet durumu için (kırmızı ile gösterilen çizgi) potansiyel fonksiyonu doublet durumuna göre daha düşük bir potansiyel çukuruna sahiptir. Bu da bizim bu tez çalışmasında kuartet durumu için potansiyel enerji yüzeyini kullanma tercihimiz oldu. Bu tercih nedeni yukarıda detaylı ve fiziksel olarak açıklandı. Şekil 5.2' de reaksiyonun her iki tarafında potansiyel kuyularının olduğu görülmektedir. Bu potansiyel kuyuları elde edilecek kuantum mekaniksel sonuçlar üzerinde reaksiyon ihtimaliyetlerinin rezonanslı yapıda olmasına sebep olacaktır. Çünkü reaksiyon yolu üzerindeki potansiyel kuyusuna giren dalga paketi bileşenlerinden bazıları kuyu içindeki yarı kararlı seviyelerden bir miktar bekledikten sonra kinetik enerjilerinin bir kısmını dönme ve titreşim enerjilerine aktararak orada bulunan yarı kararlı durumlardan aniden kurtulacaktır. Bu ani kurtulmalar reaksiyon ihtimaliyetlerinde rezonans yapılarının oluşmasına sebebiyet verecektir.

5.1. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ Reaktif Saçılma problemi

Yıldızlar arası bölgelerde OH^+ molekülünün keşfinin ardından, yapılan spektroskopik gözlemler neticesinde OD^+ molekülünün de olası oluşumu için çok sayıda veri ve düşünce mevcuttur. Bunun için $O^+ + HD$ reaksiyonu dalga paketi metodu kullanılarak kuartet elektronik potansiyel enerji yüzeyi kullanılarak çalışıldı ve toplam ve bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon ihtimaliyetleri ve tesir kesitleri ile hız sabitleri elde edildi. Sistemin stereo dinamik özelliklerini incelenmek için ise reaksiyona giren HD molekülünün ilk iki dönme kuantum durumu ele alınarak işlem yapıldı. Başlangıç kuantum durumu $j_0 = 1$ için $2(j_0 + 1)$ tane izdüşüm olacaktır. Bu izdüşümler $\Omega_0 = 0$ ve $\Omega_0 = \pm 1$ olarak tanımlanır. $\Omega_0 = 0$ atomun molekül üstüne kolinear olarak geldiğini ve $\Omega_0 = \pm 1$ ise molekül üstüne dik bir açı ile geldiğini ifade eder. Bu nedenle başlangıç dönme kuantum sayısının sıfırdan farklı olarak seçilip işlem yapılması stereo dinamik özelliklerin araştırılması açısından önemlidir. Bu özellikler incelenerek, ihtimaliyetlerin yorumlanması ile her bir iz düşüm bileşeninin reaksiyona katkısı ve buradan da atomun molekül ile etkileşme şekli ortaya çıkarılmış olunur.

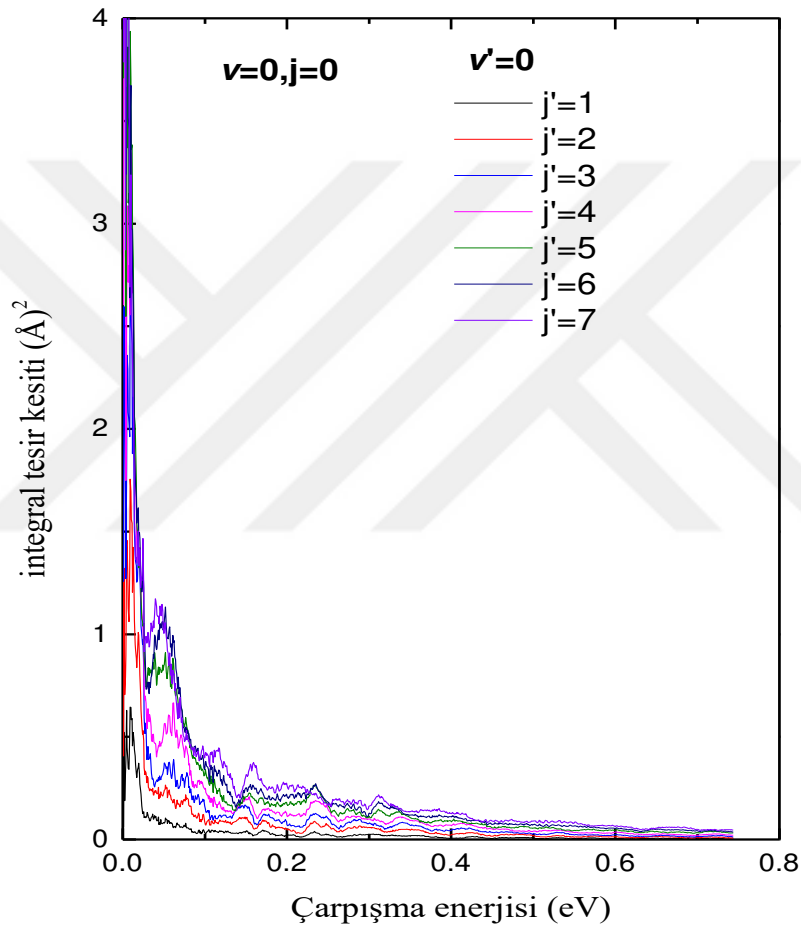
Toplam tesir kesitlerin elde edilebilmesi için denklem (4.10)' nun nümerik olarak çözülmesi gerekir. Bu denklemde görüleceği üzere toplam tesir kesitleri birkaç parametrenin fonksiyonu olarak ifade edilmiştir. Bunlardan en önemli olanı ve toplam

tesir kesitlerinin elde edilebilmesi için toplam reaksiyon ihtimaliyetinin, toplam açısal momentumun farklı değerleri için hesaplanması gerekir. Şekil 5.1.1' te $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi başlangıç titreşim ve dönme kuantum sayıları için elde edilip gösterilmiştir. Bu grafiklere bakıldığı zaman toplam reaksiyon ihtimaliyeti tüm J değerleri için çok sayıda keskin rezonans yapısına sahiptir. Bu rezonans yapıları J nin artması ile birlikte belli bir azalış içerisinde. Bu davranış, çalışılan sistemin potansiyel enerji yüzeyine bağlı olup daha önce belirtildiği gibi potansiyel kuyusunun derinliğinden kaynaklanmaktadır. Şekil 5.1.1' de toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinin $J=30$ değeri için bir eşik davranışı gösterdiği ve J nin artması ile birlikte bu eşik değerinin hızlı bir şekilde artan enerji değerine doğru kaydığını görmekteyiz. Bu durum potansiyelin merkezci (centrifugal) teriminden kaynaklanıp bu terim potansiyele eklendiği zaman bir bariyer görevi üstlenip buna göre davranış sergiler. Potansiyel bariyeri J' nin değeri ile doğru orantılı olarak artar.



Şekil 5.1.1. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi

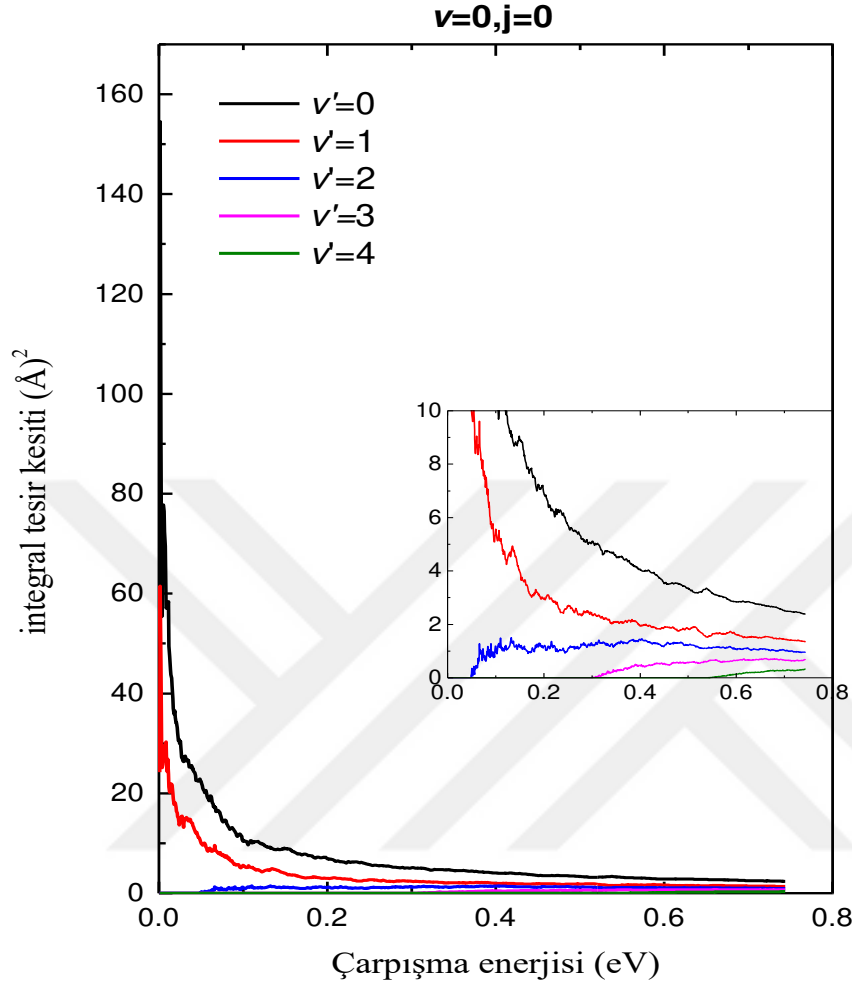
Toplam reaksiyon ihtimaliyeti bir reaksiyon için 0-1 aralığında olması gerekir. Bu sistem için elde edilen reaksiyon ihtimaliyeti $J=0$ değeri için ortalama olarak 0.5 değerinde olup J değeri arttıkça bu ortalama değer de azalmaktadır. Şekil 5.1.1.' de görülen en önemli özelliklerden biri de $J=70$ için yaklaşık olarak 0.7 eV' a kadar toplam tesir kesitinin hesaplanabileceğini gösterir.



Şekil 5.1.2. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için ürün molekülünün dönme kuantum sayısına bağlı tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

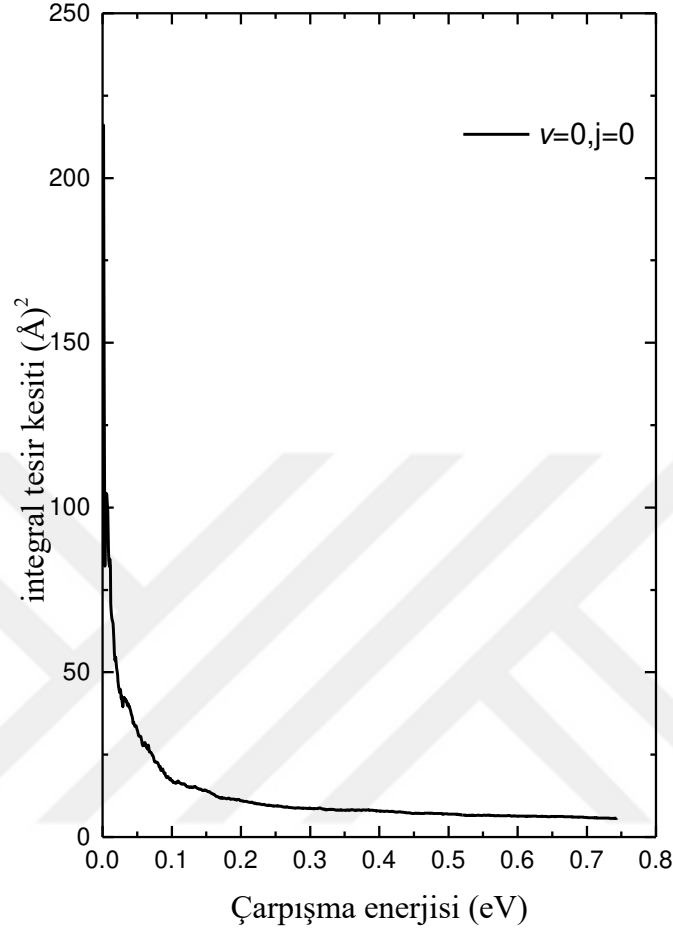
Toplam tesir kesiti, bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaktif saçılma tesir kesitlerinin toplamı ile elde edilir. Bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaktif saçılma tesir kesitleri ise astro fizik ve astro kimyada oluşan kimyasal süreçlerin yorumlanmasında

ve modellenmesinde oldukça önemlidir. Şekil 5.1.2, $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için tesir kesitlerinin ürün molekülün dönme kuantum sayısına bağlı olarak değişimi görülmektedir. Sonuçlar ürün molekülün ilk titreşim seviyesi ve aynı titreşim seviyesinin ilk yedi dönme kuantum durumu için gösterilmiştir. Şekilden de görüldüğü gibi hiçbir tesir kesiti bir eşik davranışı göstermemiştir. Bu sonuç beklenen bir sonuç olup çalışılan reaksiyonun ekzotermik olduğunu gösterir. Ürün molekülünün tüm dönme kuantum sayıları için elde edilen tesir kesitlerinin toplanması ile yine ürün molekülünün titreşim bireysel kuantum seviyeleri arasındaki tesir kesitleri elde edilir. Elde edilen bu tesir kesitleri Şekil 5.1.3' te verilmiştir. Bu grafikte ürün molekülünün ilk iki ($v' = 0$, $v' = 1$) titreşim kuantum durumu için tesir kesitleri ekzotermik bir davranış gösterip artan çarpışma enerjisine bağlı olarak azalmakta ve belli bir enerji (yaklaşık 0.2 eV) değerinden sonra sabit kalmaktadır. Şekil 5.1 de görülen potansiyel enerji diyagramı ve titreşim enerji seviyeleri göz önüne alındığında, ürün molekülün ilk iki kuantum durumu ($v' = 0$, $v' = 1$) reaksiyona giren molekülün ilk kuantum durumunun ($v=0$, $j=0$) enerji seviyesi olarak altında kalmaktadır. Dolayısıyla ilk iki ürün molekülünün kuantum durumu için reaksiyon kendiliğinden gerçekleşecektir. Bunun için $v' = 0$ ve $v' = 1$ kuantum durumlarında tesir kesiti bir eşik davranış göstermemiştir. Fakat $v = 0$ kuantum durumundan $v' = 2$ ve daha yukarı kuantum durumlarına reaksiyon için dışarıdan iki enerji seviyesi kadar bir ek enerji verilmesi gerekir. Bundan dolayı $v' = 2$ ve $v' = 3$ ve $v' = 4$ kuantum durumları için tesir kesitinin bir eşik enerjisi değeri vardır. Çalışılan enerji aralığında ürün molekülün toplamda dört titreşim kuantum sayısı uyarılmıştır.



Şekil 5.1.3. $\text{O}^+ + \text{HD} \rightarrow \text{OD}^+ + \text{H}$ reaktif saçılması için ürün molekülün titreşim kuantum sayısına bağlı tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

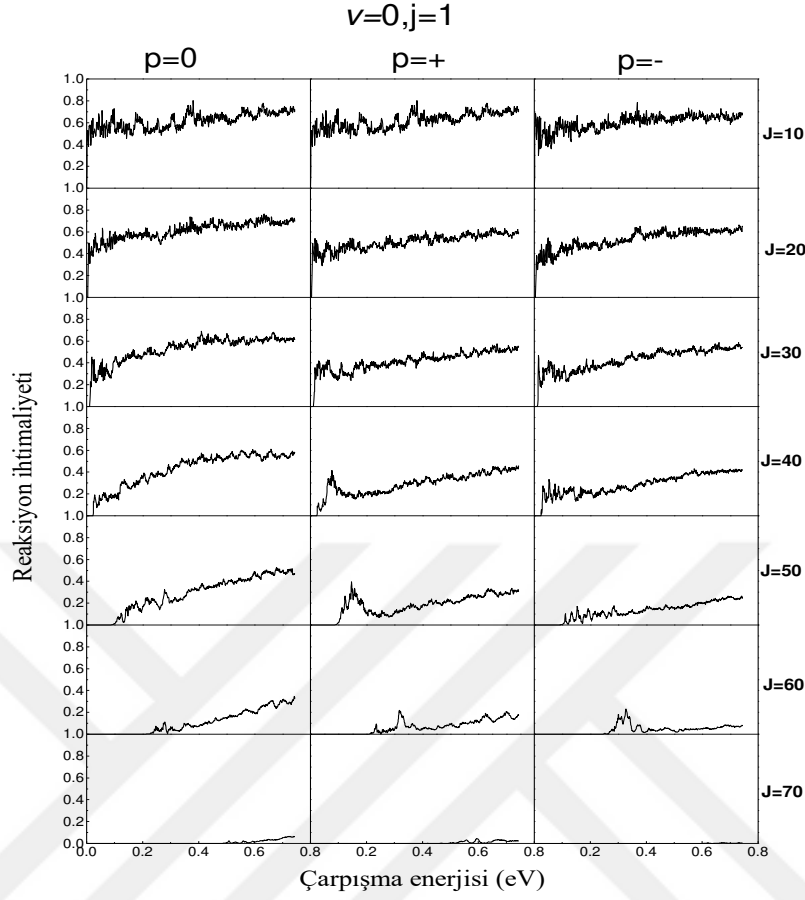
Her bir ürün titreşim kuantum durumu için elde edilen tesir kesitlerinin toplanması ile reaksiyonun toplam tesir kesitleri elde edilir. Elde edilen bu toplam tesir kesitleri şekil 5.1.4' de verilmiştir.



Şekil 5.1.4. $O^+ + HD \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.4' e bakıldığında, toplam tesir kesiti düşük enerji bölgesinde büyük tesir kesiti değerlerine sahip ve artan çarpışma enerjisi ile birlikte de tesir kesiti azalmakta ve belli bir enerji değerinden sonra da neredeyse sabit kalmıştır. Toplam reaksiyon ihtimaliyetlerinde görülen rezonans yapılar toplam tesir kesiti grafiğinde görülmemektedir. Çünkü tüm ihtimaliyetlerin toplamından toplam tesir kesitleri elde edildi ve bu toplam sırasında rezonanslar birbirlerini yok etmektedir. Tüm bu sonuçlar için dalga paketi metodu kullanılıp zamana bağlı Schrödinger denkleminin çözümü sonucunda sayısal değerler elde edildi. Schrödinger denklemi çözülürken başlangıç değer problemi olarak ele alındı ve başlangıçta çok sayıda test sonucundaki hesaplamalarda kullanılmasına karar

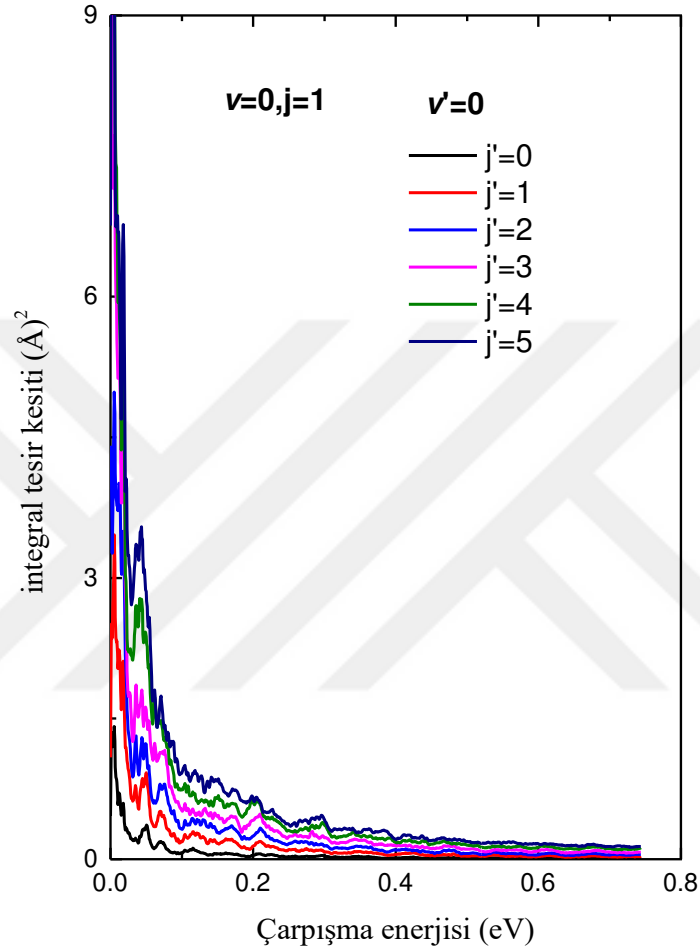
verilen başlangıç şartları şu şekilde alındı. İki atomlu molekül doğrultusunda tespit ettiğimiz uzunluk 0.01 a.b ilk değer olmak üzere maksimum 36.0 a.b olacak şekilde ve atom ile molekül arasındaki etkileşme boyunca ise yine ilk değerimiz 0.01 a.b ve maksimum değer 36.0 a.b olacak şekilde ayarlandı. Başlangıç dalga fonksiyonu molekül üzerine gönderilen atomun ve hedef molekülün özelliklerini içermek üzere 15.0 a.b mesafeye yerleştirildi. Bu başlangıç dalga fonksiyonuna 1900 cm^{-1} lik bir kinetik enerji verilerek güçlü etkileşme bölgesine doğru dalganın yayılımı sağlandı. Dalga bileşenlerinden yüksek enerjili bileşenler güçlü etkileşme bölgesini geçtikten sonra çıkış kanalında potansiyelin etkisiz olduğu bir bölgeye ulaşarak reaktif saçılmaya sebep olur. Çıkış kanalının bu bölgeye gelen yüksek enerjili dalga paketi bileşenleri ile başlangıç dalga paketi karşılaştırılarak kuantum mekaniksel bilgiler elde edildi. Bunun için çıkış kanalının 11.0 a.b lik bir mesafesine bir analiz çizgisi kondu. Her bir zaman adımında bu analiz çizgisinden geçen dalga paketi bileşenleri analiz edildi. İki boyutlu bir grid düşünüldüğünde hedef molekülün etkileşmesi boyunca kullanılan koordinat 256 küçük bölmeye/gride, atom ile molekülün etkileşmesi koordinatı ise 620 küçük bölmeye ayrıldı. Açısal etkileşimde ise toplamda 160 ayrı değere bölünerek hesaplamalar yapıldı. Bu çalışmada toplam kullanılan parametre sayısı $J=0$ için $256 \times 620 \times 160$ sayısı kadardır. Tüm dalga paketinin güçlü etkileşme bölgesinden çıkıp analiz çizgisine gelmesi için toplamda 90000 iterasyon yapıldı. Tüm bu hesaplamalar paralel programlama yolu ile kendi Server sistemlerimizde ve TR-Grid alt yapısındaki sistemler kullanılarak çalışıldı. Çalışılan sistem toplam açısal momentum kuantum sayısı ve ilk dönme kuantum sayısının artması ile boyutunun daha da artacağı ve buna bağlı olarak hesaplama zamanının da artacağı açıktır. Çünkü $v=0$, $j=1$ kuantum durumu için hesaplamalar yapıldığında başlangıç dönme kuantum sayısının her bir iz düşümü için ayrı ayrı hesaplamaların yapılması gerekir. Bu da hesaplama zamanını arttırmak anlamına gelir.



Şekil 5.1.5. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ saçılması için farklı parite durumlarına karşılık reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.5’ de farklı parite durumları için ve reaksiyona giren molekülün $v=0, j=1$ kuantum durumu için reaksiyon ihtimaliyetlerinin çarpışma enerjisine bağlı olarak değişimi görülmektedir. Her bir parite için (atom-molekül etkileşme geometrisi durumunu gösterir) reaksiyon ihtimaliyetleri toplam açısal momentum kuantum sayısının sıfır ($J=0$) değeri için bir eşik davranış göstermemektedir. Toplam açısal momentum kuantum sayısı arttıkça reaksiyon ihtimaliyetleri tıpkı $v=0, j=0$ da olduğu gibi azalmakta ve artan çarpışma enerjisine bağlı olarak yüksek enerji değerine doğru artmaktadır. Bu ihtimaliyetler $v=0, j=0$ ihtimaliyetleri ile karşılaştırıldığında ortalama olarak biraz daha büyük değerlere sahip

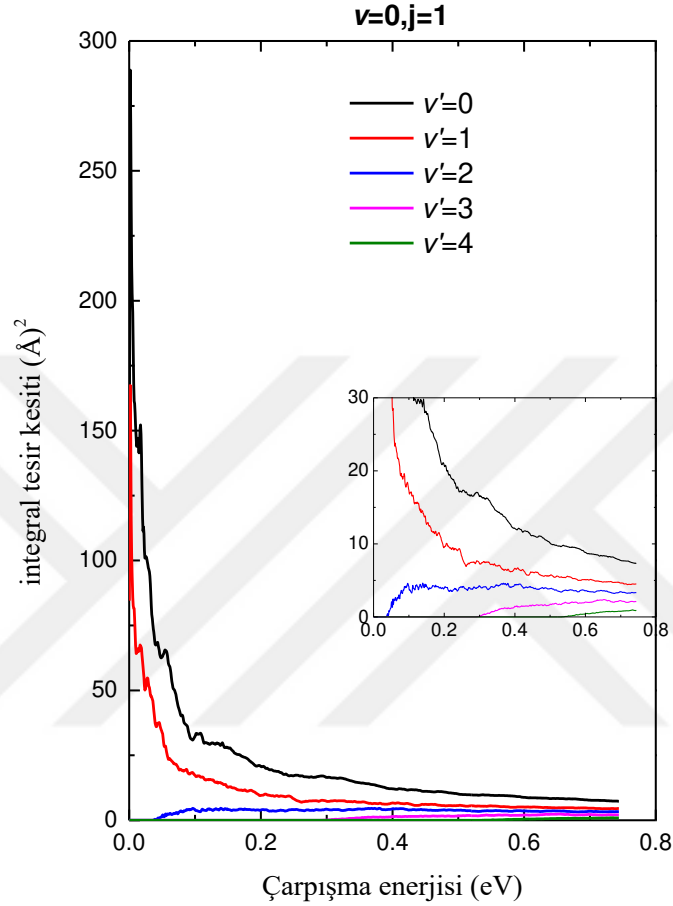
olduğu görülmektedir. Fakat kesin büyüklük konusunda toplam tesir kesitleri hesaplandıktan sonra buna karar verilir.



Şekil 5.1.6. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+(v'=0, j') + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün dönme kuantum sayısının fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.6' da $v=0, j=1$ başlangıç kuantum durumundan ürün molekülün ilk titreşim kuantum durumuna ($v' = 0$) ve tüm dönme kuantum durumuna reaksiyon ihtimaliyetleri görülmektedir. Bu değerler sadece ürün molekülün ilk beş değeri için gösterilmiştir.

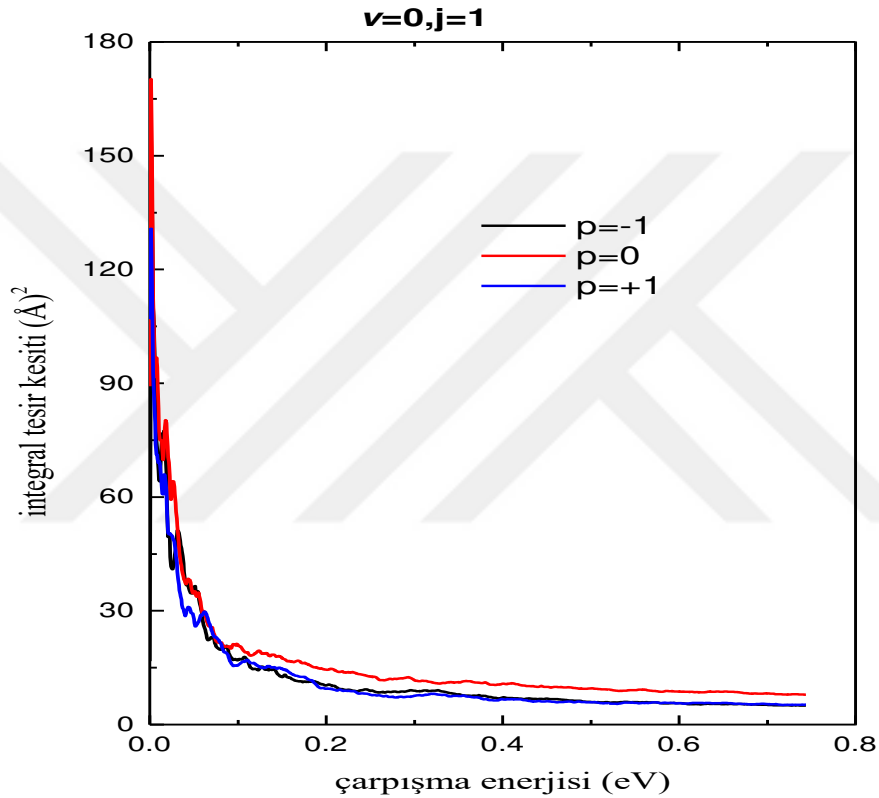
Tüm değerler düşük enerji bölgesinde çeşitli rezonans yapılar göstermektedir. Fakat yüksek enerji bölgesinde bu rezonans yapıların azaldığı görülüyor.



Şekil 5.1.7. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+(v') + H$ reaktif saçılması için ürün molekülün titreşim kuantum durumlarının fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.6' da gösterilen ürün molekülün dönme kuantum durumları için elde edilen sonuçların toplanması ile Şekil 5.1.7' de gösterilen ürün molekülün titreşim kuantum durumları için tesir kesitleri elde edilir. Bu tesir kesitleri çarpışma enerjisinin bir fonksiyonu olarak elde edilmiş olup artan enerji değerlerine bağlı olarak azalmakta ve belli bir değerden sonra neredeyse sabit kalmaktadır. Şekil 5.1.6' da düşük enerji bölgesinde görülen rezonans yapılar burada görülmemektedir. Yine $v'=2$ değeri için tesir

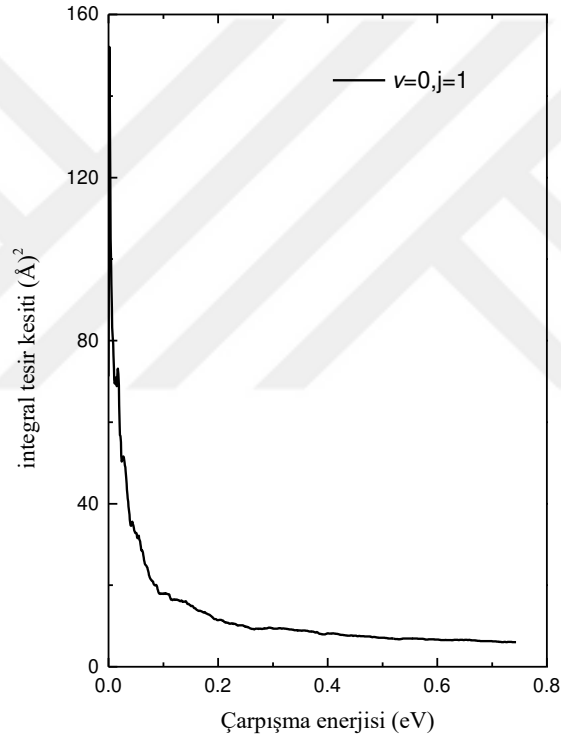
kesitleri bir eşik değerinden başlamış ve bu eşik değeri $v=0, j=0$ için elde edilen eşik değerinden daha düşüktür. Bu da yine enerji seviyeleri arasındaki enerji farkından kaynaklanmaktadır. Çünkü $v=0, j=0$ için enerji değeri 0.267 eV iken $v=0, j=1$ için enerji değeri 0.269 eV değerine sahiptir. Buradaki 0.002 eV luk fark bile tesir kesiti ve reaksiyon ihtimaliyetinde görülen eşik enerjisi üzerinde büyük bir etkiye sahip olup eşik değerini değiştirmektedir.



Şekil 5.1.8. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için paritenin fonksiyonu olan tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Bu tez çalışmasının ana hedeflerinden biri olan stereo-dinamik özellikler için $v=0, j=1$ için çalışılan reaksiyonda başlangıç molekülünün açısal momentum kuantum sayısının iz düşümleri için Bölüm 4’te verilen denklemlerin kullanılması ile elde edilen tesir kesitleri Şekil 5.1.8’de verilmiştir. Şekil 5.1.8’de verilen tesir kesitleri negatif ve pozitif parite için aynı değer elde edilmiştir. Normal şartlarda da bu iki parite için elde edilen tesir

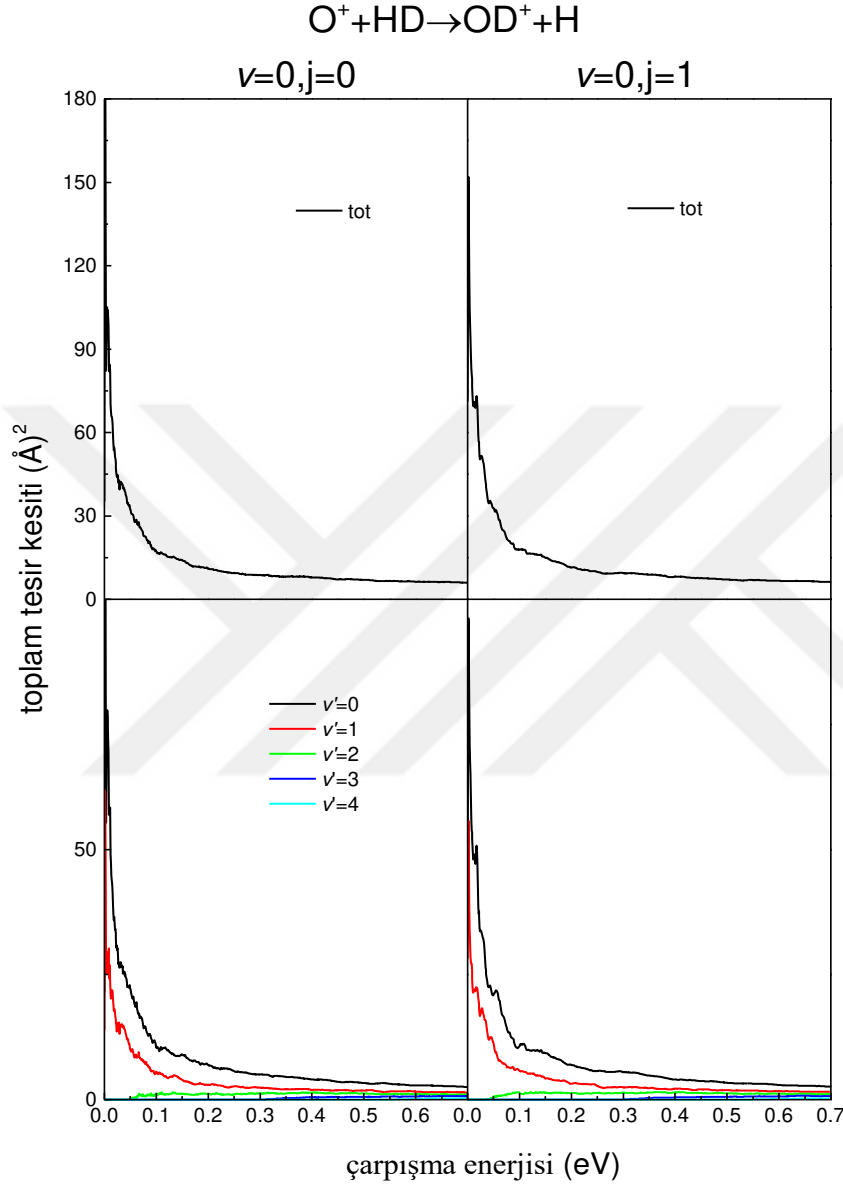
kesitlerinin birbirlerine eşit olması gerekir. Çünkü biri diğerinin simetriği şeklinde ve her ikisi de atomun molekül üzerine dik gelmesine karşılık gelir. Sıfır pariteli sonuç için ki bu kolineer çarpışmaya denk gelmektedir tesir kesitlerinin daha büyük olduğu görülebilir. Buradan, bu sonuçlara bakarak bu çarpışmanın kolineer olarak daha etkin olduğu ve kolineer çarpışma sonucunda reaksiyonun oluşma ihtimalinin dik çarpışmaya göre daha fazla olduğu söylenebilir. Tüm bu pariteli sonuçlar için elde edilen tesir kesitlerinin toplanıp bir faktöre $(2j+1)$ bölünmesi ile toplam tesir kesitleri elde edildi. Elde edilen bu tesir kesitleri Şekil 5.1.9’ da verilmiştir.



Şekil 5.1.9. $O^+ + HD(v=0, j=1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.9’ da verilen toplam tesir kesiti $v=0, j=1$ başlangıç kuantum durumu için elde edilmiş olup hesaplamalarda herhangi bir yaklaşık metot kullanılmamıştır. Tıpkı $v=0, j=0$ için elde edilen toplam tesir kesiti gibi burada da toplam tesir kesiti artan çarpışma enerjisine bağlı olarak azalmakta ve belli bir çarpışma enerji değerinden sonra sabit

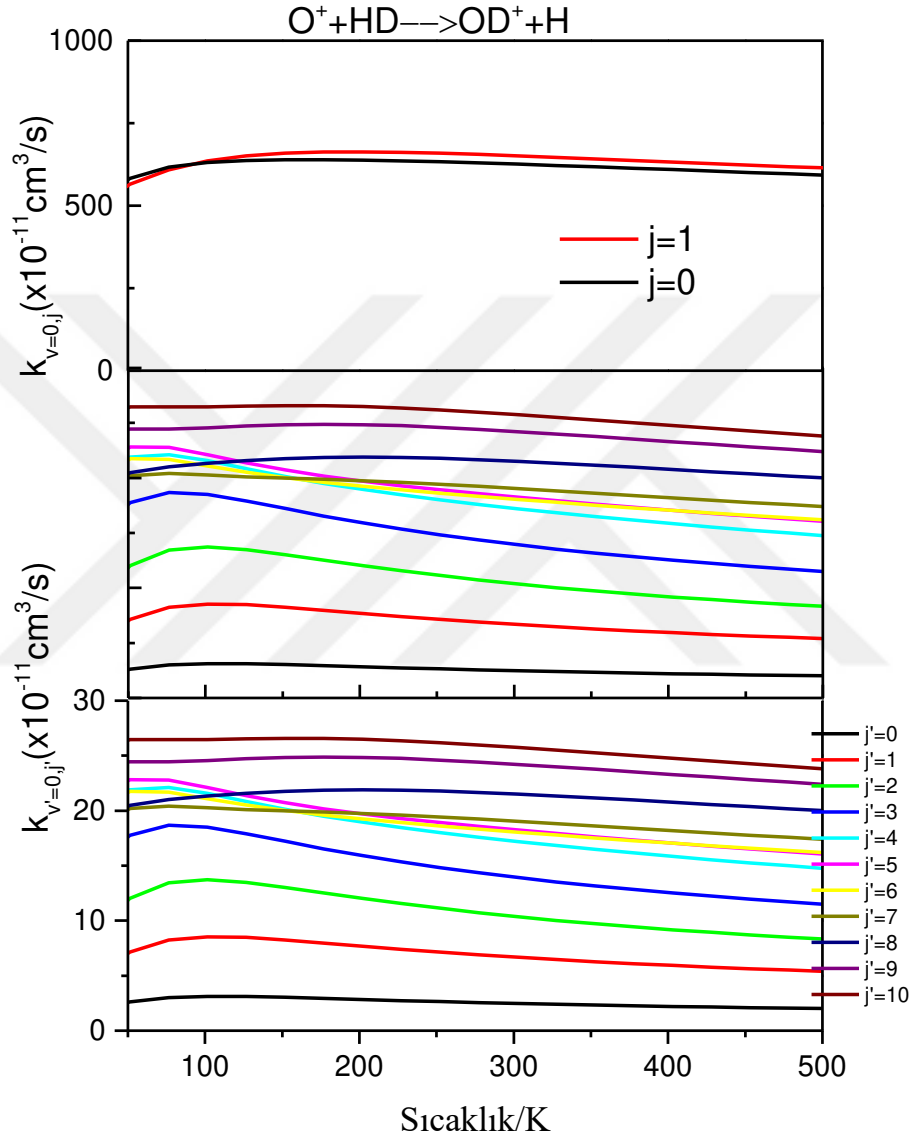
kalmaktadır. Düşük enerji aralığında reaksiyon ihtimaliyetlerinde görülen keskin pikler burada yok olmuştur.



Şekil 5.1.10. $O^+ + HD(v=0, j=0, 1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine göre değişimi

Şekil 5.1.10’ da $v=0, j=0$ ve $v=0, j=1$ için yapılan toplam tesir kesiti hesaplaması karşılaştırma amaçlı olarak aynı grafik üzerinde verilmiştir. Şekilde de görüldüğü gibi $j=1$

için elde edilmiş olunan toplam tesir kesitleri $j=0$ için elde edilenden biraz büyüktür. Bu fark büyük ihtimalle reaksiyon hız sabitleri hesaplanırken reaksiyon hız sabitleri üzerinde büyük bir etkiye sebep olacaktır.



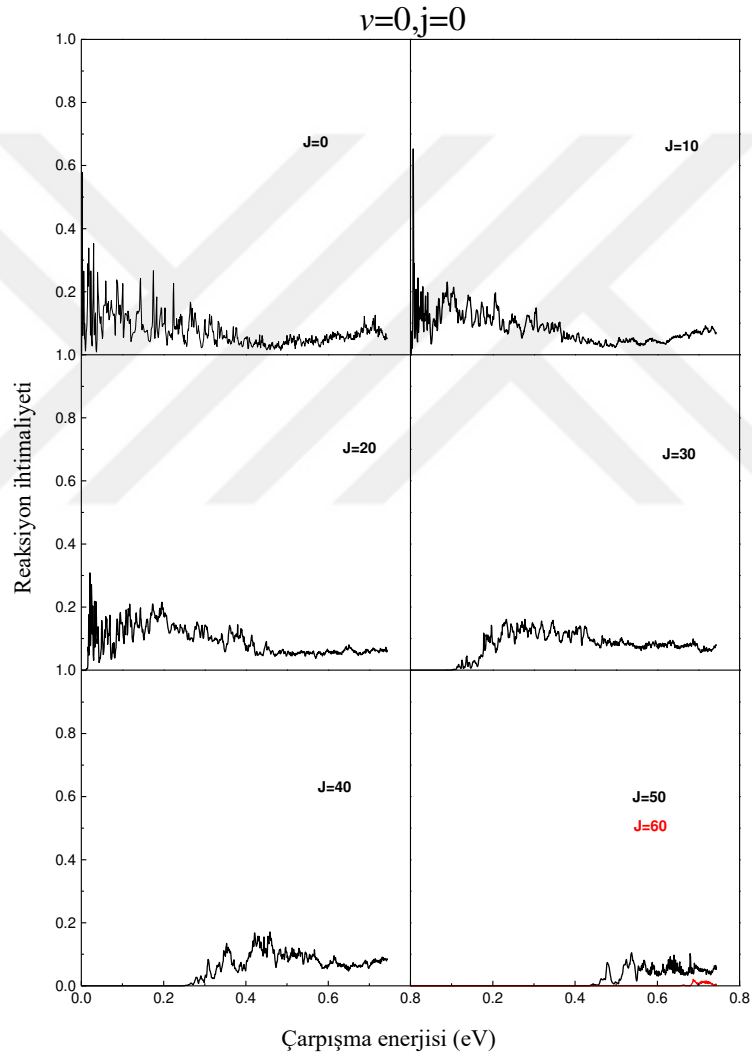
Şekil 5.1.11. $O^+ + HD(v=0, j=0,1) \rightarrow OD^+ + H$ reaktif saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi

Şekil 5.1.10’ da elde edilen tesir kesitlerinin Maxwell Boltzmann dağılımı alınarak sıcaklığa bağlı reaksiyon hız sabitleri elde edilir. Elde edilen reaksiyon hız sabitleri Şekil 5.1.11’ de verilmiştir. Hesaplamalar 10-500 K aralığında yapılmıştır. Şekil 5.1.11’e bakıldığında düşük sıcaklıkta reaksiyon hız sabitleri sıcaklıkla birlikte üstel olarak bir artış göstermiş bu artış 200 K kadar devam etmiş ve daha sonra büyük bir değişim gözlenmemiştir. $j=1$ kuantum durumu için elde edilen reaksiyon hız sabiti $j=0$ için elde edilen reaksiyon hız sabiti değerinden daha büyüktür. Bu da, başlangıç dönme kuantum durumunun reaksiyonun tesir kesitleri ve dolayısıyla hız sabitleri üzerinde etkili olduğunu göstermektedir. Reaksiyon hız sabiti değeri 10^{-9} mertebesinde olup reaksiyonun diğer nötral reaksiyonlara göre daha hızlı bir reaksiyon olduğu söylenebilir. Çünkü nötral reaksiyonlar genelde 10^{-10} ya da daha düşük hızlarda gerçekleşir. Aynı grafik üzerinde durumdan duruma hız sabitleri de verilmiştir. Bu bireysel kuantum seviyeleri arasındaki hız sabitlerinin hesaplanması astro kimyacılar için çok büyük öneme sahip olup bu değerlerin kullanılması ile bazı modellemeler yapılmakta ve bu modellemeler ile OD^+ molekülünün evrende yıldızlar arası bölgede olup olmadığı ile ilgili bazı yorumlar yapılabilmektedir. Tezin bitiminden sonra bu kısım ile ilgili olarak bazı uluslararası gruplar ile işbirliği yapıp datalarımız bu yönde değerlendirilecektir.

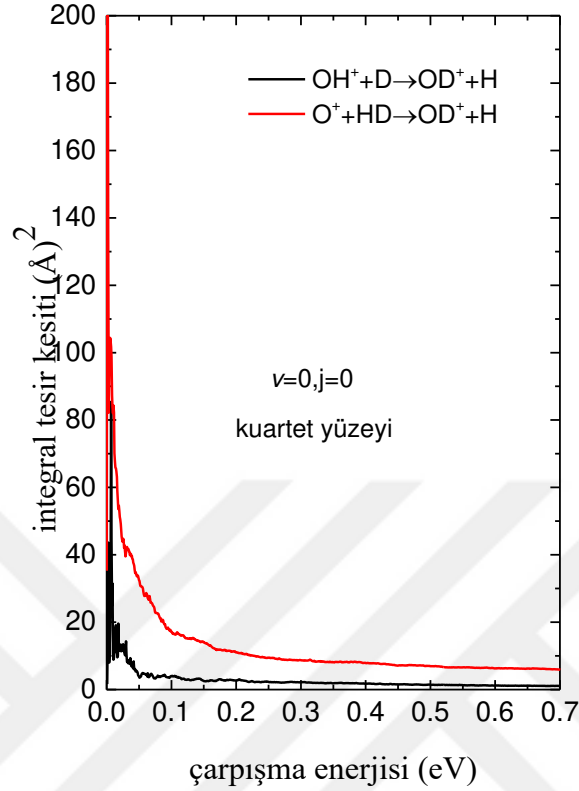
5.2. $D+OH^+ \rightarrow OD^+ + H$ Reaktif Saçılma Problemi

OD^+ molekülünün oluşum mekanizmalarından biri de yıldızlar arası bölgedeki $D+OH^+$ etkileşimindeki ürünlerin incelenmesi ile elde edilmektedir. Bu durumda yeni bir etkileşme ve yeni bir reaksiyon gerçekleşmektedir. Bölüm 4 de verilen metot ve yöntemler uygulanarak $D+OH^+$ reaksiyonu için zamana bağlı Schrödinger denklemi çözülmek suretiyle toplam ve bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon ihtimaliyetleri, tesir kesitleri ve reaksiyon hız sabitleri hesaplandı. Reaksiyon dinamiği hakkında detaylı bilgiler, reaksiyon ihtimaliyetleri, tesir kesitleri ve reaksiyon hız sabitleri incelenerek elde edilir [28]. Elde edilen tüm sonuçlar farklı biçimlerdeki OD^+ üretimi için elde edilen diğer reaksiyonların sonuçları ile karşılaştırıldı. Bu reaksiyon için kullanılan parametreler şu şekildedir. İki atomlu molekül doğrultusunda tespit ettiğimiz uzunluk 0.01 a.b ilk değer olmak üzere maksimum 36.0 a.b olacak şekilde ve atom ile molekül arasındaki etkileşme boyunca ise yine ilk değerimiz 0.01 a.b ve maksimum değer 56.0 a.b olacak şekilde ayarlandı. Başlangıç dalga fonksiyonu molekül üzerine gönderilen atomun ve hedef molekülün özelliklerini içermek üzere 34.0 a.b mesafeye yerleştirildi. Bu başlangıç dalga fonksiyonuna 2500 cm^{-1} lik bir kinetik enerji verilerek güçlü etkileşme bölgesine doğru dalganın yayılımı sağlandı. Dalga bileşenlerinden yüksek enerjili bileşenler güçlü etkileşme bölgesini geçtikten sonra çıkış kanalında potansiyelin etkisiz olduğu bir bölgeye ulaşarak reaktif saçılmaya sebep olur. Çıkış kanalının bu bölgesine gelen yüksek enerjili dalga paketi bileşenleri ile başlangıç dalga paketi karşılaştırılarak kuantum mekaniksel bilgiler elde edildi. Bunun için çıkış kanalının 10.0 a.b lik bir mesafesine bir analiz çizgisi kondu. Her bir zaman adımında bu analiz çizgisinden geçen dalga paketi bileşenleri analiz edildi. İki boyutlu bir grid düşünüldüğünde hedef molekülün etkileşmesi boyunca kullanılan koordinat 360 küçük bölmeye/gride, atom ile molekülün etkileşmesi koordinatı ise 512 küçük bölmeye ayrıldı. Açısal etkileşimde ise toplamda 160 ayrı değere bölünerek hesaplamalar yapıldı. Bu çalışmada toplam kullanılan parametre sayısı $J=0$ için $360 \times 512 \times 160$ sayısı kadardır. Tüm dalga paketinin güçlü etkileşme bölgesinden çıkıp analiz çizgisine gelmesi için toplamda 120000 iterasyon yapıldı. Bu iterasyon sonucunda farklı toplam açısal momentum kuantum sayıları için elde edilen toplam reaksiyon ihtimaliyetleri Şekil 5.2.1 de verilmiştir. Bu reaksiyonda da görüleceği gibi tüm reaksiyon ihtimaliyetleri ufak rezonans yapıları sahiptir ve bu yapılar tüm J değerleri için mevcuttur.

Toplam ihtimaliyetler J arttıkça büyük enerji değerine doğru kaymaktadır ve 0.7 eV değeri için elde edilecek tesir kesitleri için 60 tane toplam açısal momentum kuantum sayısı için hesaplama yapmanın yeterli olduğu görülmektedir. Hesaplamalar J nin her 10 adımdaki değerleri için yapıldı ve J nin kalan ara değerler için bir interpolasyon metodu kullanılarak reaksiyon ihtimaliyetleri elde edildi. Tüm bu ihtimaliyetler toplanarak toplam reaksiyon tesir kesitleri hesaplandı. Elde edilen bu tesir kesitleri Şekil 5.2.2 de verilmiştir.



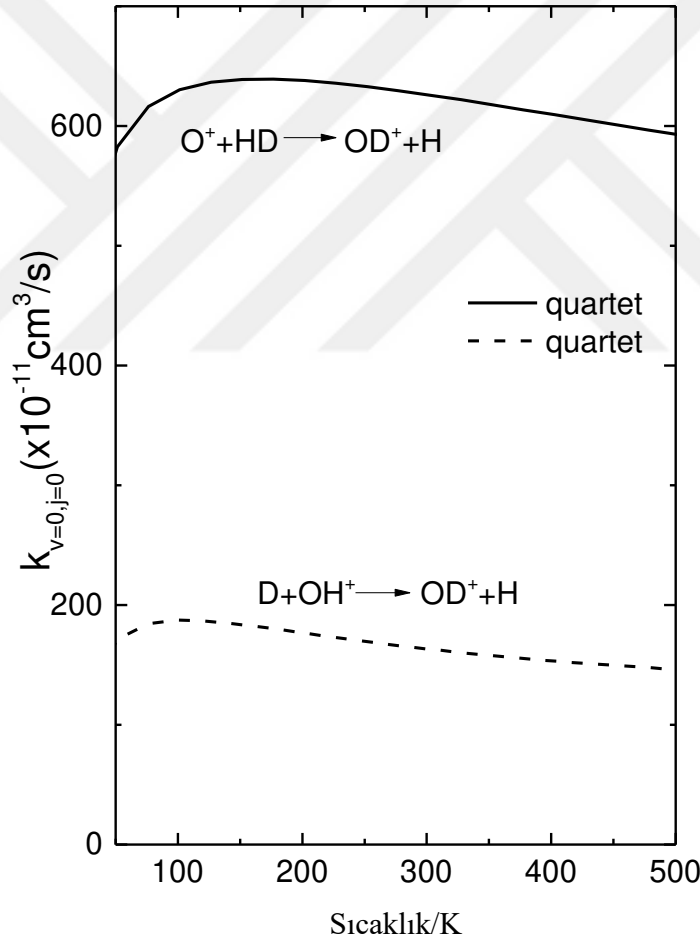
Şekil 5. 2. 1 $\text{OH}^+ + \text{D} \rightarrow \text{OD}^+ + \text{H}$ reaktif saçılması için reaksiyon ihtimaliyetinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi



Şekil 5. 2. 2. $\text{OH}^+ + \text{D}$ ve $\text{O}^+ + \text{DH}$ reaktif saçılması için toplam tesir kesitlerinin çarpışma enerjisine bağlı değişimi

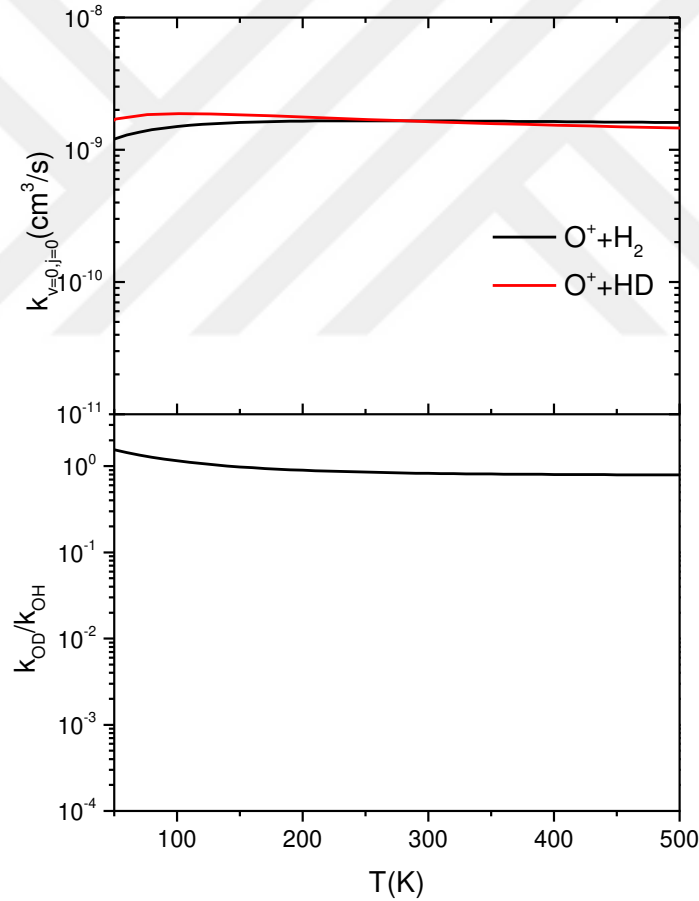
Bu sonuçlardan, amacımız olan OD^+ molekülünün oluşumu ve iki farklı reaksiyon için oluşma ihtimali Şekil 5.2.2 de görülmektedir. Her iki reaksiyonda da ürün molekülümüz OD^+ molekülü olup bu molekülün oluşumu için $\text{O}^+ + \text{DH}$ etkileşmesinde oluşum ihtimalinin daha yüksek olduğu şekildeki kırmızı ile çizilen sonuçta görülmektedir. Bu reaksiyon için düşük enerji bölgesinde tesir kesitleri herhangi bir rezonans yapısına sahip değilken $\text{OH}^+ + \text{D}$ reaksiyonu için elde edilen tesir kesitleri düşük enerji bölgesinde bazı keskin rezonans yapılarına sahiptir. Bu rezonanslar iki şekilde açıklanabilir. Dalga paketi hesaplamalarında çok düşük enerji değerleri için (0.001 eV' dan daha düşük) grid sonlarında kullanılması gereken yok edici potansiyellerin çok dikkatli seçilmesi ve ayrıca çok büyük gridlerin kullanılması gerekir. Bu tez çalışmasında R yönünde 512 grid alındı.

Daha büyük değerler alındığında bilgisayarda hafıza problemleri ile karşılaşmaktadır. Bu çalışma için en iyi değerler alınıp hesaplamalar yapılmış ve sonuçlar elde edilmiştir. Elde edilen toplam tesir kesitlerinin Maxwell Boltzmann dağılımı alınarak sıcaklığa bağlı reaksiyon hız sabitleri elde edildi ve bu sonuçlar Şekil 5.2.3' te karşılaştırılmalı olarak verilmiştir. Bu sonuçlara bakıldığında $O^+ + HD$ reaksiyonu için hız sabitlerinin daha büyük olduğunu görüyoruz. Bu beklenen bir sonuç olup toplam tesir kesitlerinden tahmin edilebilir. $O^+ + HD$ reaksiyonu için elde edilen reaksiyon hız sabitlerinin $D + OH^+$ için elde edilen reaksiyon hız sabitleri değerlerinden 3 kat daha büyük olduğu görülmüştür.



Şekil 5.2.3. $OH^+ + D(v=0, j=0)$ saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi ve $O^+ + HD$ ile karşılaştırılması

Son olarak $O^+ + HD$ reaksiyonu için elde ettiğimiz reaksiyon hız sabitleri literatürde mevcut olana $O^+ + H_2$ reaksiyonun hız sabiti değerleri ile Şekil 5.2.4' te karşılaştırmalı olarak verilmiştir. Şekilde görüldüğü gibi düşük sıcaklıklarda $O^+ + HD$ reaksiyonunun hız sabitleri $O^+ + H_2$ reaksiyonunun hız sabiti değerinden daha büyük, sıcaklığın artması ile hız sabitleri arasında ciddi bir fark yoktur ve iki sonuçta hemen hemen aynıdır. Aynı grafiğin altında ise oluşan ürün molekülünün birbirlerine oranı verilmiştir. Bu oran ile OD^+ molekülünün yıldızlar arası bölgede bulunma ihtimali ile ilgili bir yorum yapılabilir. Düşük sıcaklık değerinde 10^{-8} mertebesinde ve bu değer OD^+ molekülünün büyük ihtimalle yıldızlar arasındaki bölgelerde bulunma ihtimalinin yüksek olduğunu gösterir.



Şekil 5.2.4. $OH^+ + D(v=0, j=0)$ saçılması için reaksiyon hız sabitlerinin sıcaklığa bağlı olarak değişimi ve $O^+ + H_2$ ile karşılaştırılması

Sonuç olarak bu tez çalışmasında $O^+ + HD$ ve $OH^+ + D$ reaksiyonları ele alınıp OD^+ molekülünün yıldızlar arası bölgelerde bulunma ihtimali araştırıldı. Bunun için toplam reaksiyon ihtimaliyetleri farklı J değerleri için hesaplandı. Bireysel kuantum seviyeleri arasındaki reaksiyon ihtimaliyetleri de hesaplandı. Toplam reaksiyon ihtimaliyetleri, çalışılan sistem çalışma zamanı olarak çok zaman almasından dolayı, J' nin her 10 değeri için hesaplama yapıldı. Diğer ara J değerleri için ihtimaliyetler interpolasyon metodu kullanılarak elde edildi. Tüm toplam reaksiyon ihtimaliyetleri elde edildikten sonra bu ihtimaliyetler kullanılmak suretiyle toplam ve bireysel kuantum seviyeleri arasındaki tesir kesitleri hesaplandı. Hesaplanan tesir kesitleri kullanılarak Bölüm 4 de verilen hız sabiti denklemi kullanılarak reaksiyon hız sabitleri hesaplandı. $O^+ + HD$ molekülü için, molekülün $v=0, j=1$ kuantum durumda başlangıç dönme kuantum sayısının her bir iz düşümü için ki bunlar reaksiyonun stereo-dinamik özelliklerini verir, reaksiyon ihtimaliyetleri ve toplam tesir kesitler elde edildi. Elde edilen bu sonuçlardan reaksiyonun kolineer çarpışma durumundaki ihtimaliyetinin büyük olduğu görüldü.

6.KAYNAKLAR

- [1] **Gonzalez-Sanchez,L., Vasyutinskii,O., Zanchet,A., Sanz-Sanz,C., Roncero,O.,** 2011,Quantum Stereodynamics of Li+HF Reactive Collisions: the role of Reactants Polarization on the Differential Cross Section, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 13,13656-13669.
- [2] **Aguado,A., Paniagua,M., Lara,M., Roncero,O.,** 1997, Quantum Study of the Li+HF→Li+H Reaction, *J. Chem. Phys.* 107, 10085.
- [3] **Göğtaş,F., Akpınar,S., Bulut,N.,**2004, Reactive and Inelastic Scattering Probabilities for the Cl+ H₂ Scattering: Time-Dependent Calculations, *Journal of Molecular Structure (Theochem)* 676 (2004) 185–192.
- [4] **Bulut,N., (2002),** Üç Boyutta Atom-İki Atom Reaktif Saçılma Probleminin Kuantum Dalga Paketi Metodu ile İncelenmesi, *Doktora Tezi*, F.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [5] **Rapp,D. ve Kassal, T.,** (1969), The Theory of Vibrational Energy Transfer between Simple Molecules in Nonreactive Collisions, *Chem.Phys.*, 69, 61.
- [6] **Xu,W., Zhao,G.,** 2011 , Stereodynamics of Chemical Reactions Quasi-classical, Quantum and mixed Quantum-Classical Theories, *Cent. Eur. J. Phys.*, 253-270.
- [7] **K.L.Han,G.Z.He,N.Q.Lou,** 1993,*Chinese Chem. Lett.* 4,51.
- [8] **Karplus M., Porter R. N., Sharma R. D.,** 1965, Exchange Reactions with Activation Energy. I. Simple Barrier Potential for (H, H₂), *Journal of Chemical Physics*, 43, 3259.
- [9] **Bolton K., Hase W. L., Peshlherbe G. H.,**1998, Direct Dynamics Simulations of Reactive Systems In Modern Methods for Multidimensional Dynamics Computations in Chemistry, Thompson D. L., *Ed. World Scientific*, Singapore, s. 143-189.
- [10] **Muz,İ., Bulut,N.,** 2013, H⁺ + H₂(v=0,j=0-3)→H₂⁺ + H(v'=0-2,j'=0) Reaksiyonunun Kuasiklasik Yörünge Metodu İle İncelenmesi, *Nevşehir Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Dergisi*.Cilt 2(1) 1.
- [11] **Tutuk,R.,** 2000, He+H₂⁺ (v,j) Saçılmasının Zamana Bağlı Kuantum Dalga Paketi Metodu ile İncelenmesi, *Yüksek Lisans Tezi*, F.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.

- [12] **Aslan, E.**,2013, Atom Molekül Etkileşmelerinin Paralel Programlama Kullanılarak Dalga Paketi Metodu ile İncelenmesi, *Doktora Tezi*,F.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [13] **Qiang W.**, 2013, Stereodynamics study of the $H(^2S) + NH(X^3\Sigma^-) \rightarrow N(^4S) + H_2$ Reaction, *Chinese Physics. B*, Volume 23, Number 2 , 023401.
- [14] **Gonzales-Sanchez,L., Gomez-Carrasco,S., Aguado,A., Paniagua,M., Luz Hernandez,M., M.Alvarino,J., Roncero,O.**, 2004, Quantum Stereodynamics of the $F+OH(v,j)$ Reactive Collision on the $1^3A''$ state, *Molecular Physics*, 21-22,2381-2392.
- [15] **Demir,M.**, 2006, Reaktif Olmayan $C(^1D_1)+H_2$ Üç Boyutlu Saçılmasında Geçiş Olasılıkları ve Tesir Kesitlerinin Hesaplanması, *Yüksek Lisans Tezi*, F.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü, Elazığ.
- [16] **Balakhsrhnan, N., Kalyanaraman, C. ve Sathyamurthy, N.**, 1997, Time-Dependet Quantum Mechanical Approach to Reactive Scattering and Related Approach, *Phys. Reports*, 280,79.
- [17] **Mahaparata, S., Sathyamurthy, N.**, 1997, Negative Imaginary Potentials in Time Dependent Quantum Molecular Scattering, *J.Chem. Phys.*, 51,1253.
- [18] **Sui X., Wang M., Yang C., Wang P., Ma X.** 2016, Effects of Collision on the Stereodynamics of the Reaction $O+H_2+ \rightarrow OH+H^+$, *Chemical Physics*,156-162.
- [19] **Wei Q., Li T., Zhou B., Wei-Keh Wu V.**, 2009, The Stereodynamics of the O (D-1) plus HCL Reaction and its Isotopic Variants (DCL), *Journal of Molecular Structure : THEOCHEM*, 162-166.
- [20] **Xu,W., Zhao,G.**, 2011 ,Stereodynamics of Chemical Reactions Quasi-classical, Quantum and mixed Quantum-Classical Theories, *Cent. Eur. J. Phys.*, 253-270.
- [21] **Gray, S. K., Balint-Kurti, G. G.**,1998, Quantum Dynamics with Real Wave Packets, Including Application to Three Dimensional ($J=0$) $D+H_2 \rightarrow HD+H$ Reactive Scattering, *J.Chem. Phys.*, 108, 950.
- [22] **Gomez-Carrasco S., Godard B., Lique F., Bulut N., Klos J., Roncero O., Aguado A., Aoiz F.J., Castillo J.F., Goicoechea J.R., Etxaluze M., Cernicharo J.**, 2014, OH^+ In Astrophysical Media: State-to-State Formation Rates, Einstein Coefficients and Inelastic Collision Rates With He, *The Astrophysical Journal*, 794:33.

- [23] **Bulut N., Lique F., Roncero O.**, 2015, Exchange and Inelastic $\text{OH}^+ + \text{H}$ Collisions on the Doublet and Quartet Electronic States, *The Journal Physical Chemistry A* 119, 12082-12089.
- [24] **Lique F., Bulut N., Roncero O.**, 2016, Hyperfine Excitation of OH^+ by H, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society MNRAS* 461, 4477-4481 .
- [25] **Bulut N., Castillo J.F., Jambrina P.G., Klos J., Roncero O., Aoiz F.J., Banares L.**, 2015, Accurate Time-Dependent Wave Packet Calculations for the $\text{O}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{OH}^+ + \text{H}$ Ion-Molecule Reaction, *The Journal Physical Chemistry A* 119, 11951-11962.
- [26] **Leforestier C., Bisseling R.H., Cerjan C., Feit, M.D., Friesner R., Guldberg A., Hammerich A., Jolicard G., Karrlein W., Meyer H.D., Lipkin N., Roncero O., Kosloff R.**, 1991, A Comparison of Different Propagation Schemes for the Time Dependent Schrödinger Equation, *Journal of Computational Physics* 94, 59-80.
- [27] **Lara M., Aguado A., Roncero O., Paniagua M.**, 1998, Quantum Stereodynamics of the $\text{Li} + \text{HF}(v,j)$ Reactive Collision for Different Initial States of the Reagent, *The Journal of Chemical Physics* 109, 9391.
- [28] **Carrasco-Gomez S., Roncero O.**, 2006, Coordinate Transformation Methods to Calculate State-to-State Reaction Probabilities with Wave Packet Treatments, *The Journal of Chemical Physics* 125, 054102.

ÖZGEÇMİŞ

KİŞİSEL BİLGİLER

Adı Soyadı : Duygu ÇİMENÖĞLU ULUDAĞ

Doğum Yeri : Elazığ

Doğum Tarihi : 10.01.1989

Uyruk : T.C

Tel : (0534) 339 58 79

Mail : duygucimenoglu@gmail.com

EĞİTİM

- Elazığ Balakgazi Lisesi (2002-2005)
- Fırat Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümü (2008-2012)
- Fırat Üniversitesi Eğitim Fakültesi Tezsiz Yüksek Lisans (2010-2012)
- Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Tezli Yüksek Lisans (2012-2014)
- Fırat Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Doktora (2014-2018)