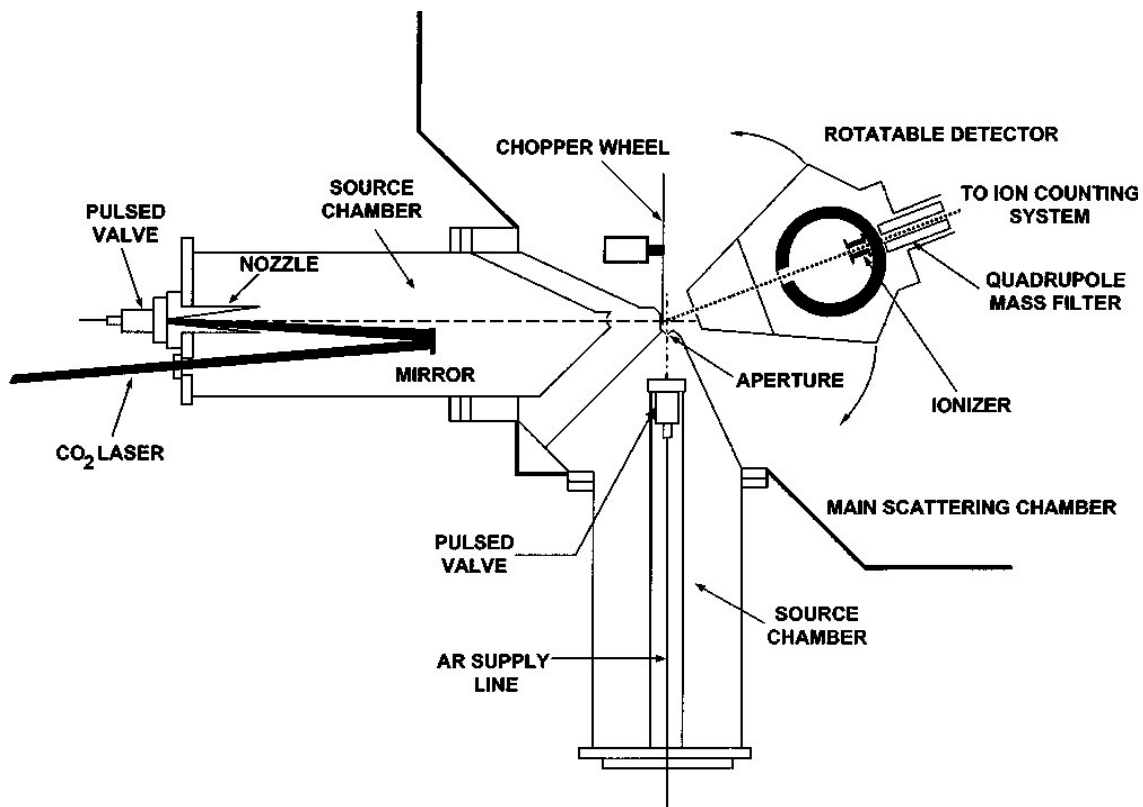


# Szóráselmélet: kísérletek – néhány új példa

Nagy energiájú  $O(^3P) + Ar(^1S)$  ütközés vizsgálata  
JCP, 120, 2238, 2004

- Magaslégköri  $O(^3P)$  reaktivitásának megértése
- Hipertermális reakciók prototípusa
- egyszerű reakció: kvantumkémia

## Kísérleti elrendezés



- hipertermális O forrás (90 kcal/mol, 8 km/s) – előállítása lézertetonációval
- O forrás keresztezve szuperszónikus Ar sugárral (600 m/s)
- forgatható tömegspektrométer (O atomok detektálása) – time-of-flight technikával
- keresztezési régió:  $0.015 \text{ cm}^3$
- O atom fluxus:  $10^{17}$ ,  $10^{18}$  atom/s (2 Hz pulzusszám)

## Eredmények: Potenciális energia görbék

→ ab initio számított eredmények (MP2/cc-pVQZ) három elektron állapotra ( $^3\Sigma$  és két degenerált  $^3\Pi$  állapot)

→ eredmények fittelése

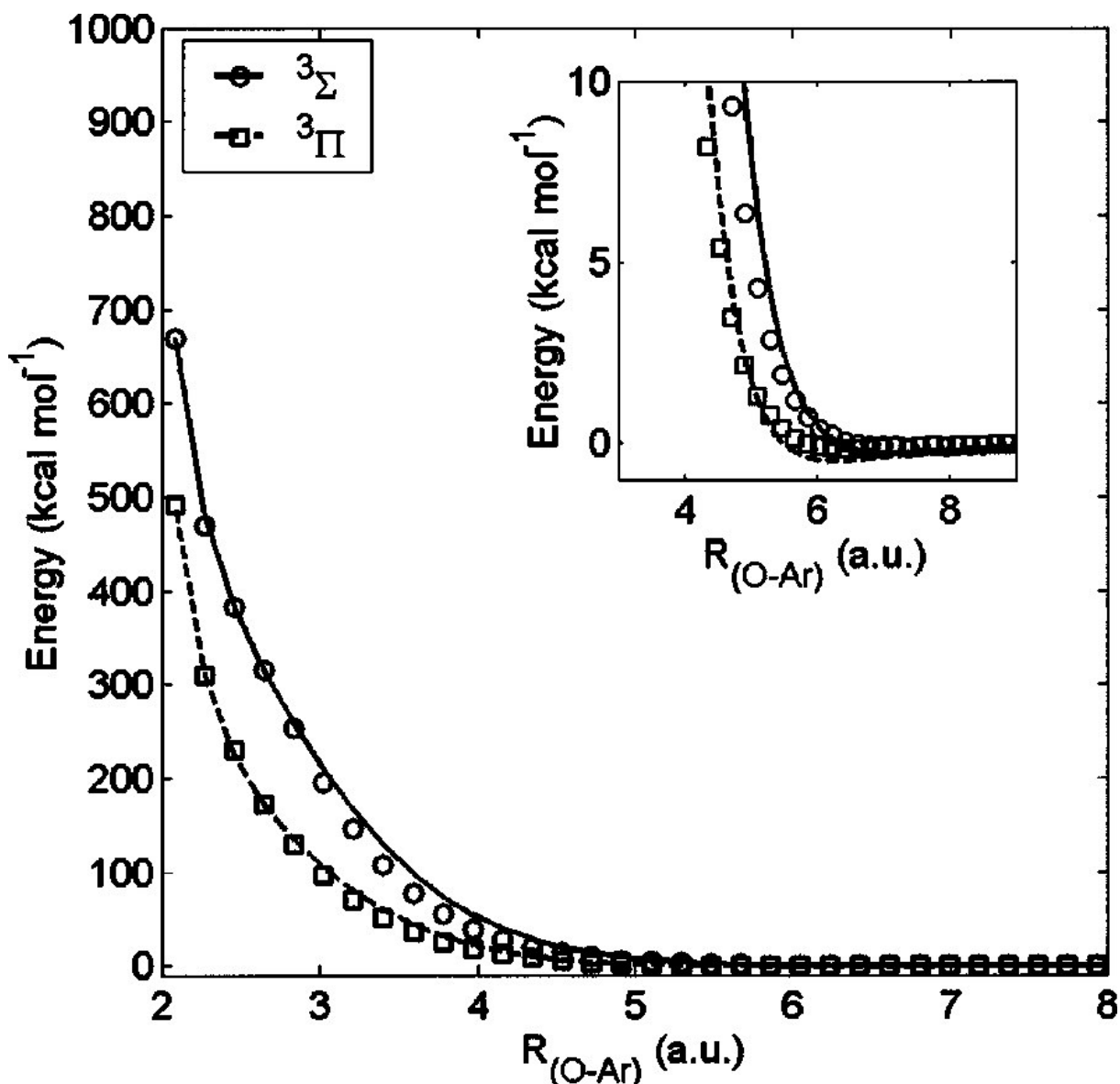


FIG. 2. Computed (symbols) and fitted (lines) potential energy curves according to Eq. (3) for  $O(^3P) + Ar(^1S)$ . Solid lines and circles are for the  $^3\Sigma$  state, and dashed lines and squares are for the  $^3\Pi$  state. Upper right inset shows the same results on a 1/100 energy scale.

## Kvantum szórás számítása a potenciális energia felületekkel

- Helmholtz egyenlet felhasználása
- parciális hullám szórási állapotok módszerének használata
- differenciális szórási hatáskeresztmetszet számolása:

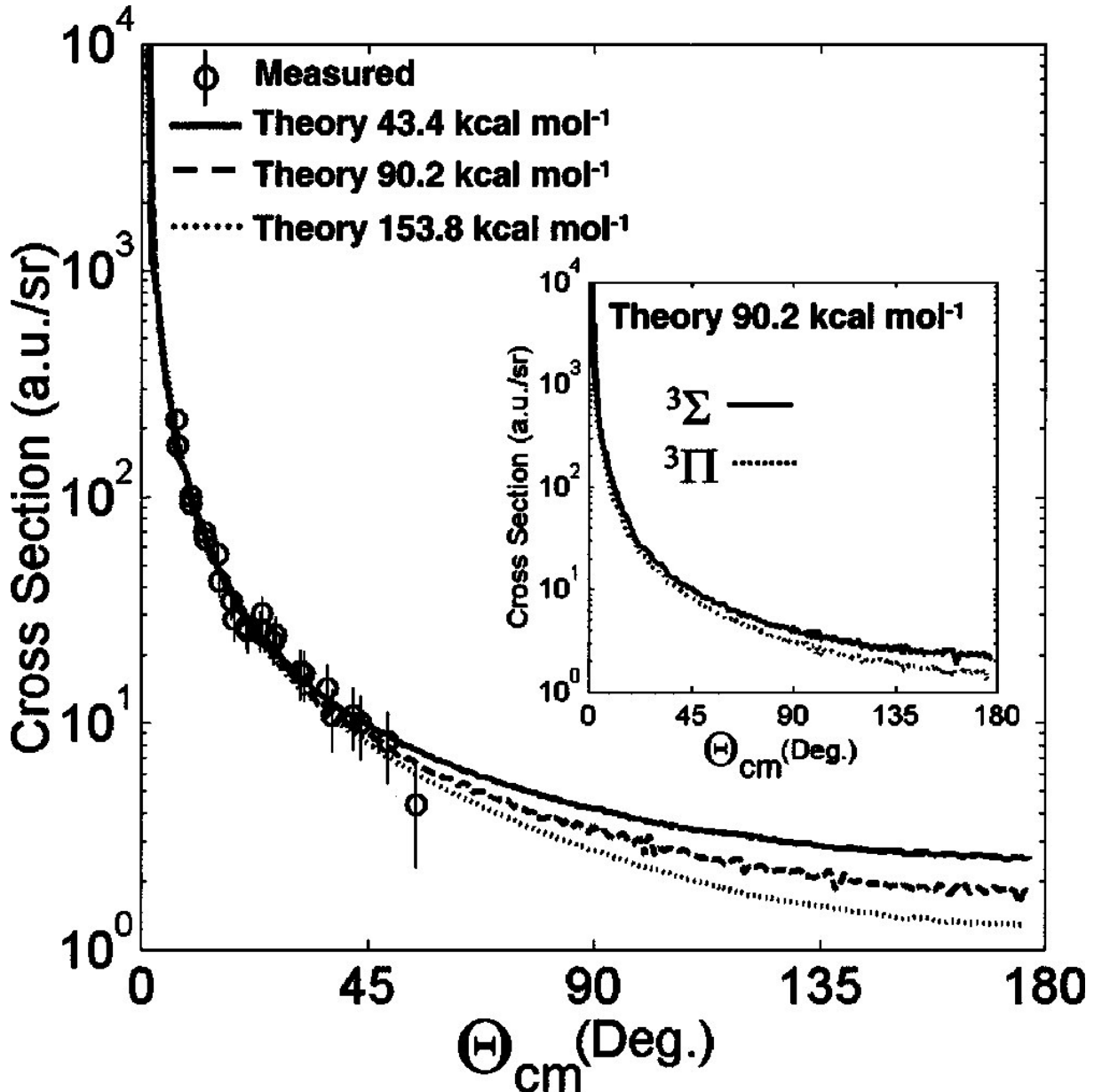


FIG. 3. Experimental (circles) and theoretical (lines) angular differential cross sections for  $O(^3P) + Ar(^1S)$ . Experimental results correspond to a collision energy of 86.467 kcal mol<sup>-1</sup> and have been arbitrarily scaled to match theory. Experimental error bars are a best estimate based on Poisson statistics. The inset shows the theoretical results at 90.2 kcal mol<sup>-1</sup> collision energy broken down into unweighted contributions from  $^3\Sigma$  and  $^3\Pi$  electronic states.

## $O(^3P) + C_3H_3 \rightarrow C_3H_2 + OH$ reakció vizsgálata

JCP, 120, 2215, 2004

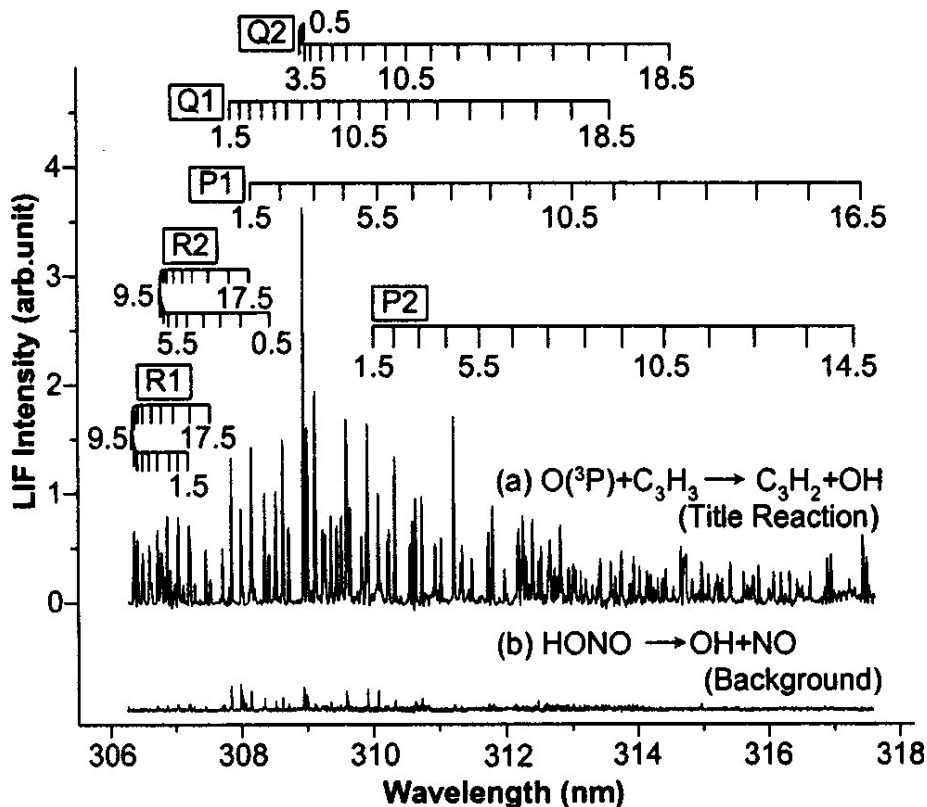
- rugalmatlan + reaktív ütközés
- gyök – gyök reakció
- fontosság: kémiai szintézisek, égések, atmoszférikus kémia

### Kísérlet:

- gyökök létrehozása:  $NO_2$  fotodisszociációja (355 nm lézer) és propargil-bromid szuperszónikus „villanó v. pillanatszerű” (flash) pirolízise
- kersztezett molekulásugár elrendezés, szuperszónikus molekulanyalábokkal
- OH gyökök eloszlásának detektálása lézer fény indukálta fluoreszcenciával (LIF).

### Eredmények:

FIG. 2. a The LIF spectrum in the 0–0 band region of the nascent  $OH(A^2\Sigma^+ - X^2\Pi)$  produced in the reaction of  $O(^3P)$  with propargyl radical.



## OH rotációs állapot eloszlás – két spin-pálya csatolt állapotban

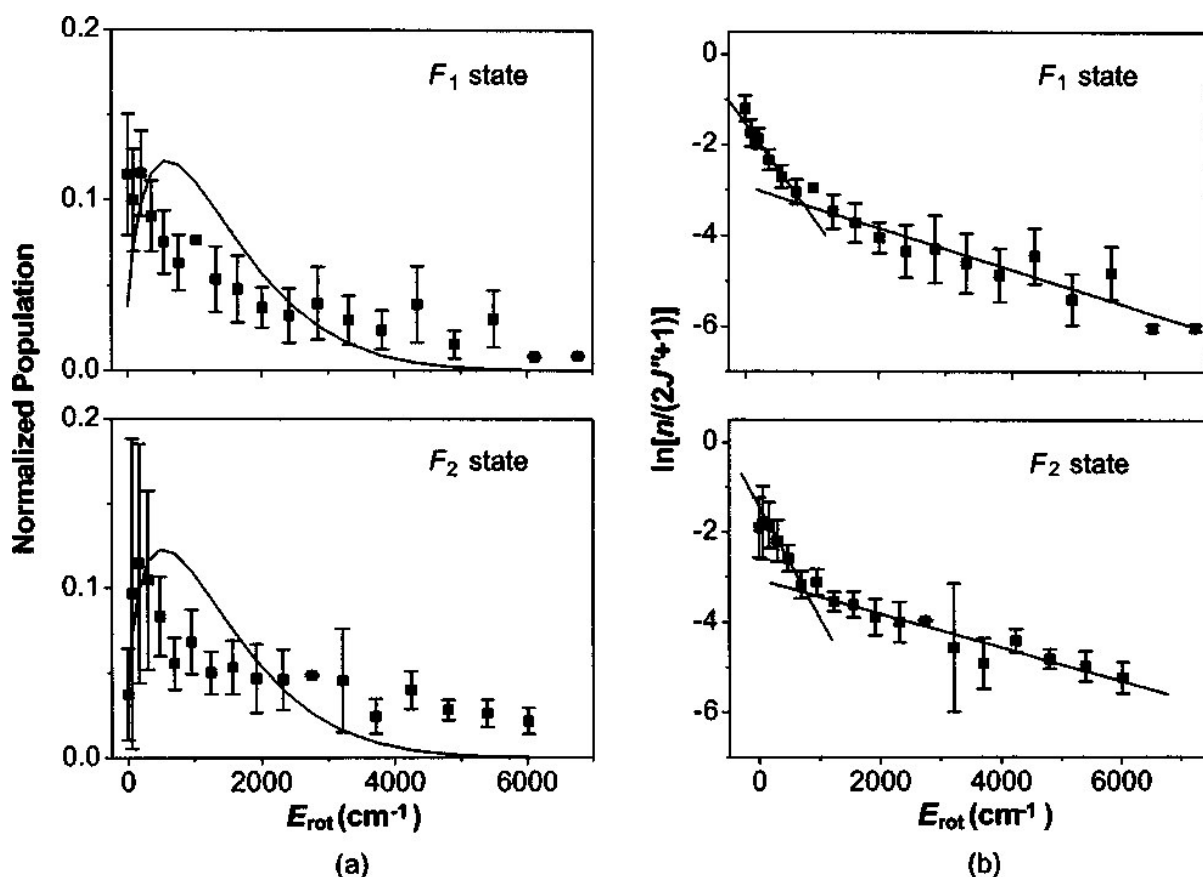
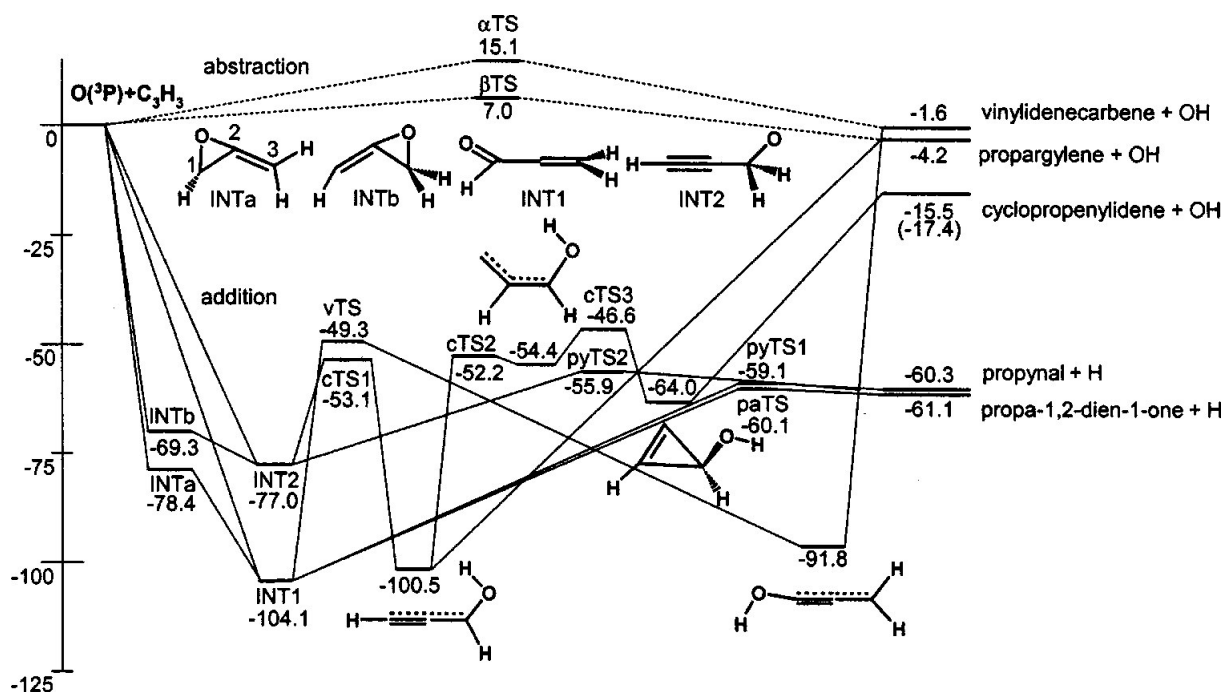


FIG. 3. (a) Normalized rotational populations (filled squares) with statistical *prior* (—) plots for the nascent OH produced in the reaction of  $O(^3P)$  with propargyl radical for  $F_1$  and  $F_2$  states of  $v''=0$ . (b) Boltzmann plots of the nascent OH distributions as a function of rotational energy for  $F_1$  and  $F_2$  states of  $v''=0$ . The slope of the straight line was used to assign a rotational temperature.

## Számítások:

→ DFT számítások egy bonyolult reakciómechanizmus felderítésére.



Még egy hasonló példa:

$Cl + \text{metanol vagy dietil-éter} \rightarrow HCl + \dots$

JCP, 120, 2230, 2004.