Distribuição Angular das Seções de Choque da Reação $H + Li_2$: um Estudo Convergente de Espalhamento Quântico Independente do Tempo

Henrique Vieira Rivera Vila ^{1*} (PQ), Luiz Antônio Ribeiro Júnior ¹ (PQ), Luiz Guilherme Machado de Macedo ² (PQ), Ricardo Gargano ¹ (PQ).

E-mail: henriquerivera@gmail.com

¹ Instituto de Física, Universidade de Brasília, Brasil.

² Faculdade de Biotecnologia, Instituto de Ciências Biológicas, Universidade Federal do Pará, Brasil.

Palavras-chave: seções de choque, coeficientes térmicos de taxa de reação, espalhamento quântico independente do tempo, programa ABC, reação $H+Li_2$.

Reações de três corpos do tipo $A+BC$ possuem um papel central em Físico-Química, uma vez que fornecem informações mecânicas essenciais sobre reações químicas na fase gasosa, o que pode ser destacado pelo Prêmio Nobel em Química de 1986, concedido a Herschbach, Lee e Polanyi por suas contribuições concernentes à dinâmica de processos químicos elementares.

Reações envolvendo hidrogênio e metais alcalinos mais leves como o lítio têm atraído grande interesse de experimentalistas: além do hidrogênio, o lítio é um elemento chave em cosmologia, na evolução das galáxias e em modelos estelares. A reação entre hidrogênio e lítio forneceu provavelmente a primeira estrutura condensada no universo primitivo, hidreto de lítio, que é também relevante para a blindagem de nêutron e para o armazenamento de hidrogênio. Ademais, a quimissorção de hidrogênio em aglomerados de lítio e a formação e depleção de LiH têm sido extensivamente investigados no campo teórico; é também nesse contexto que a importância de se estudar a reação $H + Li_2 \rightarrow LiH + Li$ está inserida.

O propósito deste trabalho consistiu em dar prosseguimento às investigações de espalhamento quântico independente do tempo para a reação $H + Li_2$, considerando agora tantos valores não-triviais do momento angular total quantos necessários para se atingir uma convergência suficiente nas seções de choque. Os coeficientes térmicos de taxa de reação também foram calculados, e nossos resultados foram comparados a resultados prévios tanto qualitativa como quantitativamente.

A metodologia utilizada está fundamentalmente implementada no programa computacional ABC, que resolve o problema do espalhamento quântico independente do tempo empregando o método Coupled-Channel (CC), expressando o conjunto de coordenadas hiperesféricas na parametrização de Delves. Para este fim, utilizaram-se uma superfície de energia potencial e parâmetros de entrada convenientes de modo que a convergência obtida fosse satisfatória. A fim de organizar e interpretar os inúmeros arquivos de saída gerados pelas execuções do referido programa, tivemos que desenvolver um código FORTRAN que os interpretasse corretamente e a partir deles calculasse as seções de choque integrais, diferenciais e os coeficientes térmicos de taxa de reação.

Com isso, tivemos êxito em identificar um decréscimo na seção de choque com o aumento da energia, como se esperava de antemão por se tratar de uma reação altamente exotérmica e sem barreira. Uma boa concordância, tanto qualitativa como quantitativa, foi observada com relação a estudos teóricos prévios, enrobustecendo nossos resultados e disponibilizando-os para futura validação ou confronto com dados experimentais de que ainda carece a literatura.

Tendo calculado as seções de choque diferenciais para a avaliação da dependência angular do espalhamento, identificamos na reação um comportamento essencialmente isotrópico, o que contradiz as previsões anteriores, onde se observou que o autor deixou de contabilizar o fator multiplicativo senoidal oriundo do elemento de área do ângulo sólido. Além dessa análise, obtivemos que a excitação puramente vibracional/rotacional dos reagentes inibe a reação, algo observado mais intensamente no caso rotacional, em que se reporta uma promoção significativa que aumenta até $j = 4$ e depois começa a se retrair, eventualmente se tornando uma inibição para j maiores.

Por fim, nossos resultados foram plotados e comparados àqueles provenientes de pesquisas independentes. Muito embora se tenha uma certa similaridade no comportamento dos coeficientes térmicos de reação, principalmente no que diz respeito à fuga ao padrão de Arrhenius, com o crescimento da curva até temperaturas ambientes seguido por um decréscimo quando T aumenta, a discrepância considerável com a aproximação J-shifting nos leva a concluir que a aplicação desta provavelmente conduz a erros para a reação em destaque.

Esperamos que os resultados obtidos sirvam de referência para estudos futuros, sobretudo os de cunho experimental ainda pendentes na literatura. Muito embora seja difícil de se esperar algum resultado estereodinâmico particularmente relevante para uma reação estatística como a nossa, trabalhos que estão sendo conduzidos em colaboração com outros grupos de pesquisa buscam ainda assim encontrar padrões de comportamento, como concentrações privilegiadas das representações geométricas de Majorana na esfera para momentos angulares, ou projeções vetoriais desses momentos em direções especialmente importantes.