

# CAPTURA ELECTRÓNICA POR AGREGADOS DE SODIO CON EMISIÓN DE FOTONES

M.R. SPINELLA<sup>†</sup>, M. BERNATH<sup>†</sup>, O. DRAGÚN

Departamento de Física, Comisión Nacional de Energía Atómica,  
Av. del Libertador 8250, 1429 Buenos Aires, Argentina.

<sup>†</sup>Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas.

Se analiza el proceso de captura de electrones en colisiones con agregados de  $\text{Na}_n$  ( $n = 8, 20$  y  $40$ ). En el proceso estudiado el electrón incidente es capturado en un nivel desocupado del sodio blanco y pierde su energía a través de la emisión, en un solo paso, de un fotón. Se realizan cálculos teórico-cuánticos para electrones incidentes en el rango de energías 0-2 eV. Se halla que las magnitudes y estructuras de las secciones eficaces totales del proceso de fotoemisión inversa (IP) obtenidas están dominadas por las transiciones que involucran la presencia de estados cuasi-ligados en el canal de entrada.

The electron attachment to bound unoccupied levels of spherical neutral  $\text{Na}_n$  clusters ( $n = 8, 20$  and  $40$ ) is analyzed using electron-cluster collisions. In the direct process here studied the captured electron loses its energy in a single step via the emission of a photon. We perform a quantum-theoretical calculation for incoming electrons in the range 0-2 eV. The magnitudes and patterns of the total inverse photoemission (IP) cross sections are dominated by transitions which involve quasi-bound states in the incoming channel.

## I. INTRODUCCIÓN

Las colisiones electrón-agregado(cluster) han ido ganando atención dentro de la física. En particular en el campo de la física experimental se han realizado mediciones de secciones eficaces absolutas (inclusivas) inelásticas con agregados de sodio para energías en el rango entre 0.1 eV y 6 eV. Dichas mediciones se han llevado a cabo empleando técnicas espectroscópicas de disminución de partículas en haces de cluster que colisionan con haces de electrones. Esta reducción de partículas observada en el haz de clusters puede deberse a distintos mecanismos de interacción. Para bajas energías (menores que las energías de ligadura o de ionización) el proceso dominante es probablemente la captura del electrón incidente y la formación temporaria de un sistema  $\text{Na}_n^-$  seguido de algún mecanismo de relajación. Por otra parte, para energías superiores a  $\approx 1$  eV los electrones incidentes producirán principalmente fragmentación.

De todos esos mecanismos, se investiga aquí uno de los procesos de captura electrónica conocido como fotoemisión inversa (IP) en el cual el electrón incidente pierde una cantidad discreta de energía y efectúa de este modo una transición desde un estado del continuo a un nivel desocupado ligado del agregado a través de la emisión de un fotón. Este tipo de proceso provee in-

formación acerca de los estados desocupados del cluster y nos permitirá estimar su alcance dentro de las mediciones experimentales mencionadas.

## II. FORMALISMO

El Hamiltoniano que describe la interacción  $e^-$ -fotón (a primer orden y despreciando el espín) puede escribirse:

$$H_{int} = -\frac{e}{2m_e c} [\vec{p} \cdot \vec{A} + \vec{A} \cdot \vec{p}] \quad (1)$$

donde  $\vec{A}$  es el vector potencial de la radiación electromagnética y  $\vec{p}$  es el vector momento lineal del electrón incidente. En el caso de fotoemisión inversa el estado inicial no tiene fotones sino que los mismos son creados en el proceso; esto hace necesaria la cuantificación del campo electromagnético. En consecuencia el vector potencial clásico  $\vec{A}$  debe ser reemplazado por el operador de campo  $\vec{A}(\vec{x}, t)$  dado por:

$$\vec{A}(\vec{x}, t) = \frac{1}{\sqrt{V}} c \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{\omega}} \sum_{\vec{k}} \sum_{\alpha} [a_{\vec{k}, \alpha}(t) \hat{\epsilon}^{(\alpha)} e^{i\vec{k} \cdot \vec{x}} + a_{\vec{k}, \alpha}^{\dagger}(t) \hat{\epsilon}^{(\alpha)} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{x}}] \quad (2)$$

donde  $\hat{\epsilon}^{(\alpha)}$  ( $\alpha = 1, 2$ ), vectores lineales de polarización, son vectores unitarios cuyas direcciones forman una terna derecha con la dirección del vector  $\vec{k}$  de propagación del fotón. Los operadores  $a_{\vec{k},\alpha}^+$ ,  $a_{\vec{k},\alpha}$  crean o destruyen un fotón en el estado  $(\vec{k}, \alpha)$ , respectivamente,  $V$  es el volumen de normalización para el fotón y  $\hbar\omega$  es la energía del fotón saliente.

La sección eficaz total correspondiente a un estado final particular  $(n, \ell)$  puede desarrollarse empleando la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo hasta primer orden en la interacción [2]. Ésta, junto con la aproximación dipolar para el cálculo de los elementos de matriz de la interacción [3], conducen a la siguiente expresión en función del momento  $q_i$  del electrón incidente:

$$\sigma_{n\ell}(q_i) = \frac{16\pi m_e e^2 \omega^3 (2\ell + 1)}{c^3 \hbar^3 3q_i^3} \times \sum_{m', m} \left\{ |G_{\ell m m'}^+|^2 + |G_{\ell m m'}^-|^2 \right\} \quad (3)$$

La sección eficaz total se halla sumando las secciones eficaces para los estados finales permitidos  $(n, \ell)$  a una dada energía electrónica incidente como:

$$\sigma_{tot}(q_i) = \sum_{(n, \ell)} \sigma_{n\ell}(q_i) \quad (4)$$

En (3) las cantidades  $G$  están dadas por:

$$G_{\ell m m'}^\pm = \sqrt{2(\ell \pm 1) + 1} i^{\ell \pm 1} R_{n, \ell, \ell \pm 1} \times \begin{pmatrix} \ell & 1 & \ell \pm 1 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \ell & 1 & \ell \pm 1 \\ -m & m - m' & m' \end{pmatrix} \quad (5)$$

en donde

$$R_{n\ell\ell'}(q_i) = \int u_{n\ell}^*(r) f_{\ell'}(q_i, r) r dr, \quad (7)$$

son los factores de forma que conectan al estado inicial y final del electrón para cada transición. Estos estados están representados por:

$$\chi_i(\vec{q}_i, \vec{r}) = \frac{4\pi}{q_i r} \sum_{\ell', m'} i^{\ell'} f_{\ell'}(q_i, r) Y_{\ell' m'}^*(\hat{q}_i) Y_{\ell' m'}(\hat{r}) \quad (8)$$

$$\chi_f(\vec{q}_f, \vec{r}) = \frac{u_{n\ell}(q_f, r)}{r} Y_{\ell m}(\hat{r}), \quad (9)$$

correspondiendo  $\chi_i(\vec{q}, \vec{r})$  a un electrón entrante moviéndose en el campo medio creado por el agregado y  $\chi_f(\vec{r})$  a un electrón en un estado ligado encima del nivel de Fermi. La parte radial de estas funciones de onda,  $\frac{f_{\ell'}(q_i, r)}{q_i r}$  y  $\frac{u_{n\ell}(q_f, r)}{r}$  se obtuvieron resolviendo numéricamente la ecuación de Schroedinger con el potencial de campo medio:

$$V(r) = V_{LDA} - \frac{\alpha_p e^2}{2(r^2 + d^2)^2} \quad (10)$$

El potencial  $V_{LDA}$  es el resultante de resolver las ecuaciones de Kohn-Sham en el marco de la aproximación local (LDA) usando el modelo de jalea [4]. El segundo término de la ec. (9) da cuenta de la polarización inducida en el agregado por el electrón incidente, siendo dentro de la aproximación adoptada [4],  $\alpha_p$  la polarizabilidad estática del cluster y  $d$  un parámetro de "cutoff" del orden del tamaño del agregado. Se emplearon los valores experimentales de  $\alpha_p$  de la ref. [5] y en los cálculos se utilizaron unidades atómicas ( $\hbar = m_e = e = 1$ ,  $c \simeq 137$ ).

### III. RESULTADOS

Se han efectuado cálculos de fotoemisión inversa en blancos de  $\text{Na}_8$ ,  $\text{Na}_{20}$  y  $\text{Na}_{40}$  correspondientes a los distintos estados finales permitidos en cada caso para electrones incidentes en el rango entre 0 y 2 eV. Se presenta a continuación un resumen de los resultados obtenidos concentrándonos principalmente en el agregado  $\text{Na}_{20}$ , pero las conclusiones pueden extenderse a los otros clusters. Debe notarse que el hecho de utilizar en el cálculo la aproximación dipolar hace que sólo contribuyan en la captura electrónica las componentes de impulso angular de la función de onda del electrón incidente que difieren sólo en una unidad de momento angular con respecto a la del estado final ligado como se puede apreciar en la ec. (5).

El estudio de los distintos factores de forma en función de la coordenada radial, dados por el integrando de la ecuación (7), brindó información acerca de la probabilidad espacial del proceso de captura a un determinado estado final ligado  $(n, \ell)$ . Se observó así que los estados desocupados cerca del nivel de Fermi presentan una probabilidad espacial de captura mayor en el interior del agregado mientras que los estados que se hallan más alejados de dicho nivel conducen a factores de forma con distribuciones espaciales dispersadas fuera del volumen del cluster. Como ejemplo se presentan en la Fig. 1 integrandos para dos estados finales particulares del  $\text{Na}_{20}$  correspondientes a distintas energías electrónicas inci-

dentos. En la Fig. 1.a) se muestra la captura en el estado final  $1h$ , cercano al nivel de Fermi, proveniente de una de las dos ondas parciales del continuo ( $\ell' = 6$ ) mientras que en la Fig. 1.b) se muestra la captura en el estado  $2f$  más alejado de dicho nivel (proveniente de  $\ell' = 2$ ). Pueden notarse, para todas las energías, que todos los integrandos correspondientes al  $2f$  se hallan más dispersos hacia distancias  $r$  mayores. En la Fig. 1.a) se observa también que a 1.1 eV hay un crecimiento del integrando y en consecuencia del factor de forma correspondiente. Dicha energía es aproximadamente la magnitud en la cual se produce un estado cuasi-ligado del electrón incidente en el canal elástico de entrada correspondiente al impulso angular  $\ell' = 6$ . Luego este efecto observado aquí y en los demás factores de forma a las energías e impulso angulares apropiados, permite concluir que la captura electrónica ocurrirá con mayor probabilidad para electrones incidentes con energías en las cuales existan estados cuasi-ligados (resonancias) en el canal elástico.

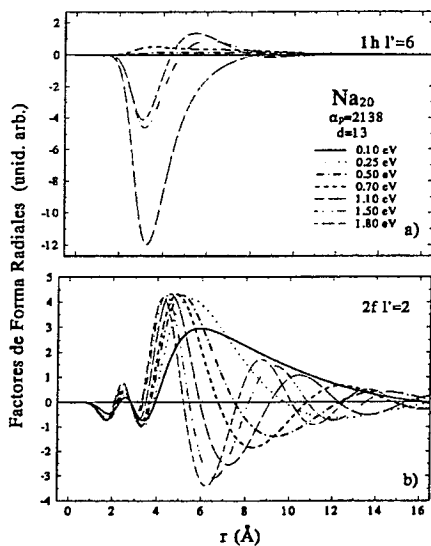


Figura 1.

El comportamiento observado en los factores de forma trae como consecuencia que la magnitud y estructura de las secciones eficaces de captura electrónica se vea dominada por los estados finales que admitan resonancias en el canal elástico de salida. Esto se pone de manifiesto en la Fig. 2 donde se ha graficado la sección eficaz total correspondiente a la captura de electrones con energías entre 0 y 2 eV por el blanco Na<sub>20</sub>. Las dos ondulaciones y el pico que se observan corresponden a estados resonantes del electrón incidente en estados cuasi-ligados de impulsos angulares  $\ell' = 2, 4$  y  $6$  respectivamente.

También se ha investigado el comportamiento teórico del proceso de fotoemisión inversa a muy bajas energías entrantes, como puede verse en el gráfico insertado en la Fig. 2. A estas energías solo la dispersión de la onda parcial incidente sobrevive poblando el estado ligado final  $p$  verificándose en consecuencia la conocida regla de la variación inversa con  $q$  de la sección eficaz inelástica a bajas energías. Se comprobó que las energías a partir de las cuales la regla comienza a cumplirse corresponde aproximadamente con la energía en la cual la dispersión elástica comienza a adquirir un valor constante.

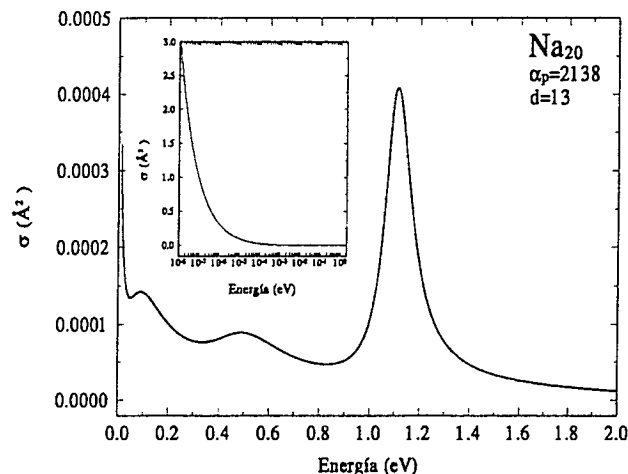


Figura 2.

En las Figuras 3, 4 y 5 se muestran las secciones eficaces de captura electrónica obtenidas en función de la energía del fotón saliente (entre 0 y 4 eV) para los tres agregados estudiados. Estas figuras muestran una estructura más rica y permitirían estudiar los espectros de partícula independiente por encima del nivel de Fermi que se obtienen con el potencial de campo medio usado en el cálculo. En ellas se observa la presencia de las resonancias para algunos valores de impulso angular del electrón entrante antes mencionadas (debe señalarse que algunos picos se superponen debido a la cercanía de las energías involucradas). La distancia entre las energías de los máximos correspondientes a iguales valores de  $\ell'$  permitiría estimar la separación entre esos niveles y a través de su comparación con los experimentos de fotoemisión inversa determinar el grado de validez del modelo de potencial empleado en la descripción del cluster y su posterior perfeccionamiento. También puede apreciarse en el gráfico la apertura de canales de transición. En los casos de máximos abruptos, estos se deben a la consideración de energías fotónicas muy bajas, en

consecuencia estos máximos probablemente no se observen en la práctica. En estos casos las diferencias entre las energías de apertura de canales observables también proveerá información sobre los estados por arriba del nivel de Fermi.

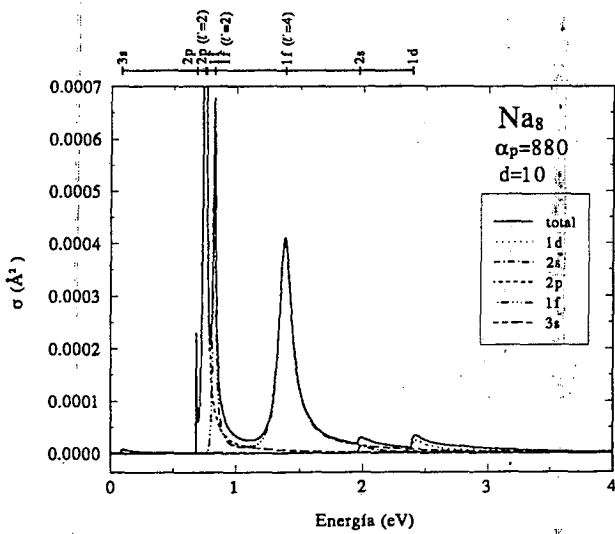


Figura 3.

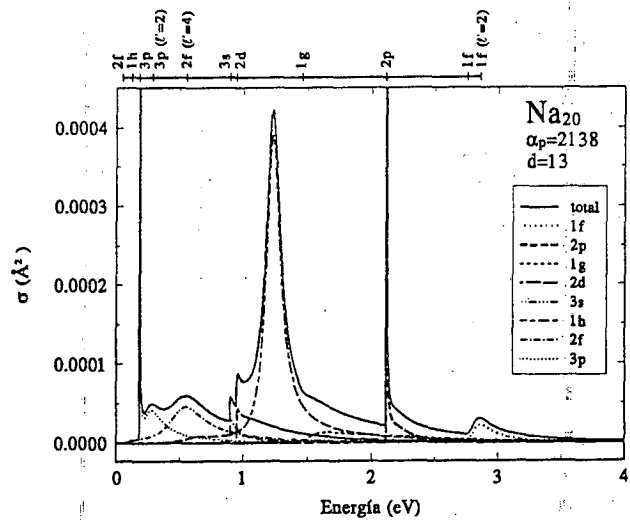


Figura 4.

Una comparación de la magnitud de los espectros aquí obtenidos con los resultados experimentales de la Ref. [1] permite deducir que la contribución del proceso de fotoemisión inversa en un paso es muy pequeña. Por lo tanto la captura electrónica encontrada experimentalmente debe incluir otros mecanismos de relajación di-

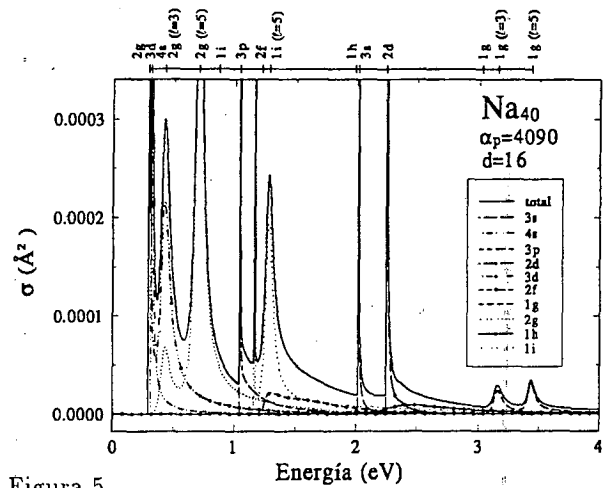


Figura 5.

ferentes de la emisión de fotones. Por otra parte los resultados teóricos aquí hallados muestran que la presencia de estados cuasi-ligados del electrón incidente en el canal elástico de entrada constituye una vía favorable para la captura a dichas energías. Asimismo la estructura de estas secciones eficaces sirven para verificar la estructura de niveles del agregado y en consecuencia los potenciales de campo medio empleados en su descripción.

#### Referencias

- [1] V.V. Kresin, A. Scheidemann, W.D. Knight, Phys. Rev. **A44**, R4106 (1991).
- [2] J. Sakurai, Advanced Quantum Mechanics (Addison-Wesley, Reading, PA, 1967).
- [3] P.D. Johnson and J.W. Davenport, Phys. Rev. **B31**, 7521 (1985).
- [4] W. Ekardt, Phys. Rev. **B29**, 1558 (1984).
- [5] M. Mittleman and K. Watson, Phys. Rev. **113**, 198 (1959).
- [6] W.D. Knight, K. Clemenger, W.A. de Heer and W.A. Saunders, Phys. Rev. **B31**, 445 (1985).

CEILAP  
CITEFA - CONICET  
ZUFRIATEGUI Y VARELA  
1603 VILLA MARTELLI  
REPUBLICA ARGENTINA