

ESTUDIO TEORICO DE PROCESOS DE IONIZACION MULTIPLE EN COLISIONES ENTRE IONES Y MOLECULAS

THEORETICAL STUDY OF MULTIPLE IONIZATION PROCESSES ON COLLISIONS BETWEEN IONS AND MOLECULES

C. A. Tachino, M. E. Galassi, and R. D. Rivarola

Instituto de Física de Rosario – Universidad Nacional de Rosario – CONICET

Av. Pellegrini 250 – (2000) Rosario, Argentina

e-mail: tachino@ifir.edu.ar galassi@fceia.unr.edu.ar rivarola@fceia.unr.edu.ar

En el presente trabajo calculamos secciones eficaces de ionización múltiple, en función de la orientación del eje molecular, para impacto de proyectiles múltiplemente cargados sobre moléculas N_2 y O_2 . Para obtener las probabilidades de ionización simple necesarias para calcular dichas cantidades hemos utilizado diferentes aproximaciones dentro del marco del modelo de electrón independiente. Se analiza la influencia de la orientación molecular sobre las secciones eficaces diferenciales, lográndose un buen acuerdo entre los resultados teóricos obtenidos y los datos experimentales existentes. Se calculan también secciones eficaces totales para blancos CO.

Palabras Claves: ion, molécula diatómica, ionización, orientación molecular.

In the present work we calculate multiple ionization cross sections, as a function of the orientation of the molecular axis, for impact of highly charged ions on N_2 and O_2 molecules. We use different approaches to obtain the single ionization probabilities that are necessary to compute these quantities into the Independent Electron Model. The influence of the molecular orientation on differential cross section is analyzed. An adequate description of existing data is obtained. Total cross sections for CO targets are also calculated.

Key Words: ion, diatomic molecule, ionization, molecular orientation.

I. INTRODUCCION

La emisión electrónica desde blancos atómicos y moleculares por impacto de iones ha sido objeto de estudio durante las últimas décadas¹⁻², no sólo por su importancia teórica sino también por ser un proceso de gran relevancia en diferentes áreas, tales como física atmosférica, física del plasma y física biológica. En el presente trabajo centramos nuestra atención en las reacciones de ionización múltiple de moléculas diatómicas multielectrónicas por impacto de iones.

Los recientes avances producidos en el campo de la tecnología han permitido obtener una descripción muy completa, en el espacio de momentos, de los agregados resultantes de la colisión³. Por otra parte, a energías de impacto suficientemente altas el tiempo de interacción entre el proyectil y el blanco es considerablemente menor que los tiempos de rotación y vibración de este último, pudiendo considerarse que la orientación espacial de la molécula permanece fija durante el proceso de colisión⁴. Esto posibilita un análisis detallado del espectro de emisión en función de la orientación molecular. Al respecto, se pueden mencionar los trabajos experimentales llevados a cabo por Siegmann *et al.*⁵, donde se estudió la distribución angular de fragmentos resultantes de la colisión entre protones a 50 keV/uma y moléculas de CO para varios grados de ionización. Adoui *et al.*⁶ analizaron los efectos de la orientación molecular para colisiones entre blancos de CO y proyectiles múltiplemente cargados empleando un modelo CTMC (de trayectoria clásica de Monte Carlo), mientras que Horvat *et al.*⁷ obtuvieron resultados experimentales para la ionización doble de CO por impacto de Ar^{14+} y Kabachnik *et al.*⁸ presentaron resultados teóricos obtenidos con el modelo

SED (modelo de deposición estadística de energía) para impacto de He^{2+} sobre N_2 para orientaciones definidas de esta molécula. Otros autores que han trabajado en esta temática son Wohrer *et al.*⁹ y Ben-Itzhak *et al.*¹⁰.

Para analizar teóricamente el proceso de emisión múltiple de electrones desde blancos moleculares es preciso abordar un problema mecánico-cuántico sumamente complejo, ya que deben considerarse las interacciones entre los electrones emitidos y la estructura de la molécula. Por este motivo se utilizan aproximaciones que permitan simplificar su estudio. Una de las aproximaciones empleadas consiste en considerar a las moléculas como una asociación de dos átomos independientes separados entre sí por una distancia equivalente a la de equilibrio molecular. En cuanto a la evolución electrónica, se ha decidido trabajar dentro del marco del modelo de electrón independiente (MEI)¹¹⁻¹² en el cual se considera que los electrones evolucionan independientemente unos de otros en un potencial efectivo, despreciándose de esta manera efectos de correlación electrónica. Para el cálculo de las probabilidades de partícula simple se han utilizado diferentes aproximaciones, como el modelo CDW-EIS (onda distorsionada del continuo-estado inicial eikonal) y el modelo exponencial (EM).

Las probabilidades de ionización múltiple han sido obtenidas utilizando distribuciones binomiales.

En este trabajo estudiamos el caso de los blancos moleculares diatómicos N_2 , O_2 y CO. En los cálculos se utiliza la versión de trayectoria rectilínea dentro de la aproximación parámetro de impacto. Se emplean unidades atómicas excepto que se indique lo contrario.

II. TEORIA

Considérese un blanco molecular con $c = 2$ centros. Cada uno de estos centros posee n_c orbitales con N_{n_c} electrones equivalentes. La probabilidad *exclusiva*^{13–14} de ionización de grado q del blanco molecular se define como:

$$P_q(\bar{\mathbf{b}}) = \sum_{\substack{N_1, \dots, N_n \\ q_1, \dots, q_n=0 \\ q_1 + \dots + q_n = q}}^{N_1, \dots, N_n} \prod_{j=1}^c \prod_{k_j=1}^{n_j} P_{k_j}(\bar{\mathbf{b}}_j) \quad (1)$$

donde el subíndice $n = n_1 + n_2$ indica el número total de orbitales del blanco. La probabilidad $P_{k_j}(\bar{\mathbf{b}}_j)$ de ionizar *exclusivamente* q_{k_j} de N_{k_j} electrones del orbital k_j , está dada por¹⁵:

$$P_{k_j}(\bar{\mathbf{b}}_j) = \frac{N_{k_j}!}{(N_{k_j} - q_{k_j})!} p_{k_j}^{q_{k_j}}(b_j) [1 - p_{k_j}(b_j)]^{N_{k_j} - q_{k_j}} \quad (2)$$

En esta última ecuación, el término $[1 - p_{k_j}(b_j)]^{N_{k_j} - q_{k_j}}$ indica que se excluyen los procesos de ionización de los restantes $N_{k_j} - q_{k_j}$ electrones del orbital.

En las ecuaciones (1) y (2), $\bar{\mathbf{b}}$ y $\bar{\mathbf{b}}_j$ representan los vectores parámetro de impacto considerados con respecto al centro de masas de la molécula y al centro molecular j , respectivamente, y p_{k_j} es la probabilidad de ionización simple por electrón correspondiente al orbital k_j , cuya forma dependerá del modelo teórico empleado.

La sección eficaz diferencial para emisión de q electrones del blanco como función del ángulo polar θ de orientación molecular, con respecto a la dirección de incidencia del proyectil, se obtiene a partir de la fórmula:

$$\sigma_q(\theta) = \frac{d\sigma_q}{d\theta} = 2\pi \sin \theta \int_0^{2\pi} \int_0^\infty P_q(\bar{\mathbf{b}}) b db d\varphi \quad (3)$$

Si la ecuación (3) es integrada en la variable θ , y luego es promediada en todas las posibles orientaciones de la molécula en el espacio, se obtiene la sección eficaz total de ionización de grado q :

$$\sigma_q = \frac{1}{2} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \int_0^\infty P_q(\bar{\mathbf{b}}) \sin \theta b db d\varphi d\theta \quad (4)$$

Es necesario ahora determinar la probabilidad p_{k_j} que describe el proceso de ionización simple. En el presente trabajo se han empleado dos modelos teóricos diferentes.

El modelo CDW–EIS

Dado que nuestro principal interés está centrado en procesos de colisión con proyectiles cargados, produciendo potenciales coulombianos de largo rango, éstos deben ser tenidos en cuenta a la hora de definir las funciones de onda de los estados inicial y final. Considerando este hecho, hemos calculado las probabilidades de ionización de cada uno de los centros moleculares utilizando la aproximación de Onda Distorsionada del Continuo–Estado Inicial Eikonal (CDW–EIS)^{16–17}. En el canal de entrada los orbitales atómicos se describen mediante funciones de onda de Roothaan–Hartree-Fock (RHF)¹⁸, las cuales son distorsionadas por fases eikoniales proyectil–electrón ligado. En el canal final, el estado del continuo del electrón se describe como un producto de una función del continuo coulombiano efectivo del blanco y un factor del continuo coulombiano del proyectil.

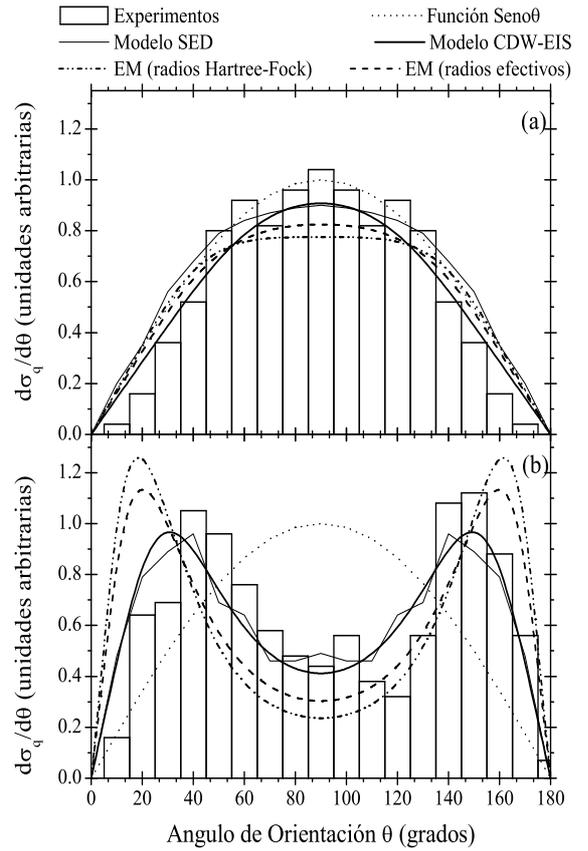


Figura 1. Secciones eficaces diferenciales de ionización múltiple para impacto de Xe^{18+} (5.9 MeV/uma) sobre moléculas N_2 : (a) ionización de grado 6, (b) ionización de grado 10.

El modelo exponencial (EM)

En el modelo EM se supone que las probabilidades de emisión simple desde cada capa atómica dependen en forma exponencial decreciente con el parámetro de impacto definido por el proyectil con respecto a cada centro atómico^{19–20}, siendo este parámetro función de los ángulos de orientación de la molécula. De esta manera, la forma de estas probabilidades queda definida como:

$$p_{k_j}(b_j) = P_{0k_j} \exp^{-b_j/R_{k_j}} \quad (5)$$

Se asume aquí que el orbital atómico k_j posee simetría esférica con radio medio R_{k_j} y el parámetro P_{0k_j} se obtiene ajustando el valor de la sección eficaz total de emisión electrónica simple por electrón para cada orbital atómico, obtenida a partir de la ecuación (4), con la correspondiente sección eficaz CDW–EIS. El radio R_{k_j} de la ecuación (5) se determina de acuerdo a cálculos de Hartree–Fock²¹ o empleando la prescripción $R_{effk_j} = n_{k_j}/\sqrt{-2\varepsilon_{k_j}}$, siendo n_{k_j} el número cuántico principal y ε_{k_j} la energía de ligadura Roothaan–Hartree-Fock (RHF)¹⁸ del orbital en cuestión. Si las probabilidades $p_{k_j}(b_j)$ son mayores que uno, se emplea un procedimiento de unitarización similar al propuesto por Sidorovich y Nikolaev²² para determinar P_{0k_j} .

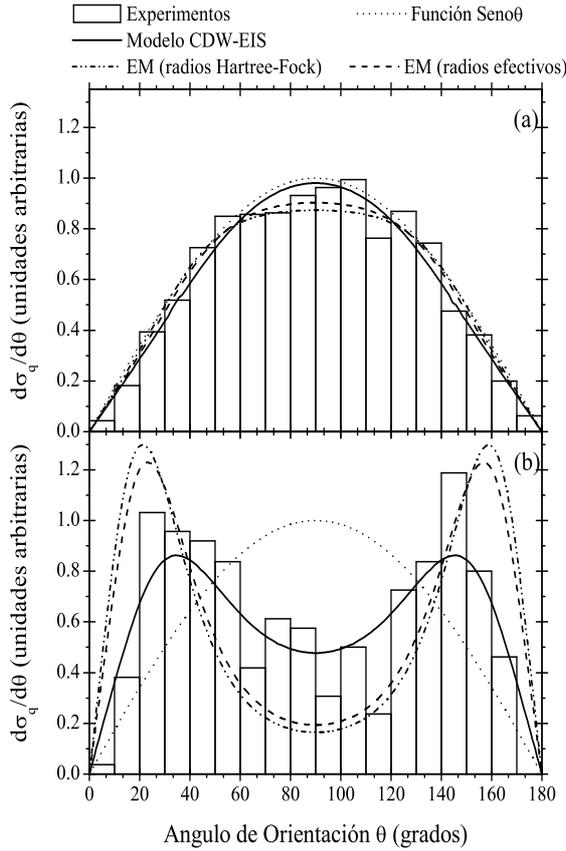


Figura 2. Secciones eficaces diferenciales de ionización múltiple para impacto de Xe^{18+} (5.9 MeV/uma) sobre moléculas O_2 : (a) ionización de grado 6, (b) ionización de grado 10.

III. RESULTADOS Y DISCUSIONES

En las figuras 1 y 2 se pueden observar los resultados obtenidos para secciones eficaces diferenciales de ionización en el caso de impacto de Xe^{18+} a una energía de 5.9 MeV/uma sobre moléculas N_2 y O_2 , respectivamente. Para ambos sistemas se presentan los casos de ionización de grados 6 y 10. Para realizar los cálculos se consideró que el proyectil estaba formado por un núcleo efectivo de carga $Z=18$ con el fin de tener en cuenta el efecto de apantallamiento producido por los electrones del mismo. Los histogramas representan los datos experimentales^{23,24}. En ambas figuras pueden observarse los resultados obtenidos con el modelo CDW-EIS y con las dos versiones del modelo exponencial. Se incluye también la función $\text{sen}\theta$, que representa una dependencia isotrópica de las secciones eficaces diferenciales con la orientación molecular. Todos los resultados teóricos están normalizados al área de los histogramas experimentales correspondientes. El comportamiento cualitativo correspondiente a los resultados teóricos y experimentales es diferente para los casos $q=6$ y $q=10$, para ambos blancos moleculares. El modelo CDW-EIS es el que presenta un mejor acuerdo con las mediciones existentes. Este mismo modelo también se encuentra en muy buen acuerdo con resultados teóricos SED previamente obtenidos para el caso de N_2 ⁸. En cuanto a EM, sólo se obtiene una descripción cualitativa de los experimentos tanto en el caso de la utilización de radios orbitales efectivos como en el caso de radios obtenidos según cálculos de Hartree-Fock.

Los efectos de orientación pueden explicarse en términos de los parámetros de impacto *efectivos* que contribuyen al proceso de ionización múltiple. Dado que estamos tratando con proyectiles múltiplemente cargados, en principio, el proceso de emisión electrónica se encuentra dominado por parámetros de impacto mayores que el tamaño de la molécula (*colisiones lejanas*). Al parecer ese es el caso para el grado de ionización $q=6$ para el cual se obtiene una débil dependencia con la orientación molecular. Sin embargo, a medida que el grado de ionización aumenta el momento K transferido por el proyectil al blanco molecular también debe incrementarse, de forma tal que los parámetros de impacto $b \sim 1/K$ que dominan la reacción disminuyen (*colisiones cercanas*). En el caso en que el eje de la molécula se encuentra perpendicular a la dirección de incidencia, para una dada trayectoria del proyectil, el número de electrones que éste encuentra en su camino será menor que para otras orientaciones moleculares. Esto brinda una explicación cualitativa de la dependencia con la orientación del blanco observada tanto en los resultados experimentales como en los teóricos.

En la figura 3 se presentan secciones eficaces totales para ionización múltiple de grados 1, 2, 3 y 4 de moléculas CO debido al impacto de protones. En esta figura se comparan los experimentos existentes²⁵ con los resultados obtenidos aplicando tanto el modelo CDW-EIS como el EM en sus dos versiones.

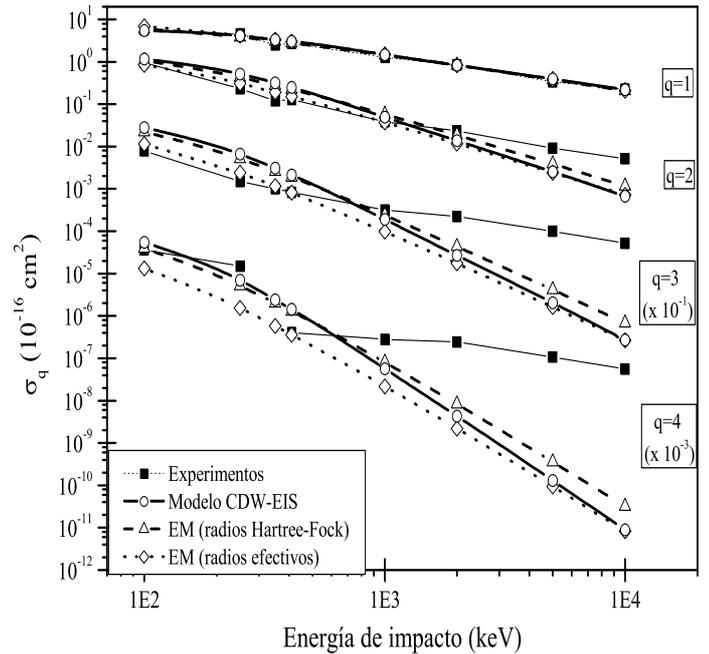


Figura 3. Secciones eficaces totales de ionización múltiple para impacto de H^+ sobre moléculas CO en función de la energía de impacto.

Se observa, para el caso de ionización simple, un excelente acuerdo entre los experimentos y los resultados teóricos de ambos modelos en todo el rango de energías. En la región de energías intermedias ($\lesssim 1$ MeV) se obtiene, para todos los grados de ionización, una notable coincidencia entre los resultados del modelo CDW-EIS y los correspondientes al EM con radios de Hartree-Fock. En cambio, para energías superiores se advierte un mayor acuerdo entre el modelo CDW-EIS y EM calculado con radios orbitales efectivos. A medida que aumentan el grado de io-

nización q de la molécula y la energía de impacto de los protones se evidencian diferencias cada vez mayores entre teoría y experimentos. Una posible causa de estas discrepancias podría atribuirse a la presencia de los denominados efectos post-colisionales (efectos Auger y Coster-Kronig), los cuales no han sido tenidos en cuenta en los cálculos de ionización múltiple, pero han sido observados para blancos atómicos²⁶⁻²⁸.

IV. CONCLUSIONES

Se ha estudiado la dependencia de espectros de ionización múltiple con la orientación de blancos moleculares N_2 y O_2 para el caso de impacto de iones múltiplemente cargados. A tal efecto, se ha empleado un modelo molecular CDW-EIS obteniéndose una adecuada descripción de los experimentos existentes para energías de impacto suficientemente altas. Se han empleado también modelos simples del tipo EM, los cuales dan una representación cualitativa de los espectros medidos. Finalmente, se han comparado secciones eficaces totales teóricas y experimentales de ionización simple y múltiple de moléculas CO por impacto de protones, observándose la posible necesidad de la inclusión de efectos post-colisionales en la descripción de la reacción. Este último tema será motivo de investigaciones futuras.

References

- [1] Stolterfoht, N., DuBois, R. D. y Rivarola, R. D. en "Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions", Berlin: Springer (1997)
- [2] Rivarola, R. D. y Fainstein, P. D., Nucl. Inst. Methods B **205**, 448 (2003)
- [3] Ullrich, J. y Shevelko, V. P. en "Many-Particle Quantum Dynamics in Atomic and Molecular Fragmentation", Berlin: Springer (2003)
- [4] Galassi, M. E., Rivarola, R. D. y Fainstein, P. D., Phys. Rev. A **48**, 4784 (2004)
- [5] Siegmann, B., Werner, U., Kaliman, Z., Roller-Lutz, Z., Kabachnik, N. M. y Lutz, H. O., Phys. Rev. A **66**, 052701 (2002)
- [6] Adoui, L., Caraby, C., Cassimi, A., Lelièvre, D., Grandin, J.P. y DuBois, A., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **32**, 631 (1999)
- [7] Horvat, V., Heber, O., Watson, R. L., Parameswaran, R. y Blackadar, J. M., Nucl. Inst. Methods B **99**, 94 (1995)
- [8] Kabachnik, N. M., Kondratyev, V. N., Roller-Lutz, Z. y Lutz, H. O., Phys. Rev. A **57**, 990 (1998)
- [9] Wohrer, K., Sampoll, G., Watson, R. L., Chabot, M., Heber, O. y Horvat, V., Phys. Rev. A **46**, 3929 (1992)
- [10] Ben-Itzhak, I., Ginther, S. G. y Carnes, K. D., Phys. Rev. A **47**, 2827 (1993)
- [11] Hansteen, J. M. y Mosebekk, O. P., Phys. Rev. Lett. **29**, 1361 (1972)
- [12] McGuire, J. H. y Weaver, O. L., Phys. Rev. A **16**, 41 (1977)
- [13] Ben-Itzhak, I., Gray, T. J., Legg, J. C. y McGuire, J. H., Phys. Rev. A **37**, 3685 (1988)
- [14] McGuire, J. H. en "Electron Correlation Dynamics in Atomic Collisions", Cambridge University Press (1997)
- [15] Sant'Anna, M. M., Montenegro, E. C. y McGuire, J. H., Phys. Rev. A **58**, 2148 (1998)
- [16] Fainstein, P. D., Ponce, V. H. y Rivarola, R. D., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **21**, 287 (1988)
- [17] Galassi, M. E., Abufager, P. N., Martínez, A. E., Rivarola, R. D. y Fainstein, P. D., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **35**, 1727 (2002)
- [18] Clementi, C. y Roetti, C., At. Data Nucl. Data Tables **14**, 177 (1974)
- [19] Wohrer, K. y Watson, R., Phys. Rev. A **48**, 4784 (1993)
- [20] Caraby, C., Cassimi, A., Adoui, L. y Grandin, J., Phys. Rev. A **55**, 2450 (1997)
- [21] Froese, Fischer C., At. Data Nucl. Data Tables **4**, 301 (1972)
- [22] Sidorovich, V. A. y Nikolaev, V. S., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **16**, 3243 (1983)
- [23] Siegmann, B., Werner, U., Mann, R., Kaliman, Z., Kabachnik, N. M. y Lutz, H. O., Phys. Rev. A **65**, 010704 (2002)
- [24] Siegmann, B., Werner, U., Lebius, H., Huber, B., Lutz, H. O. y Mann, R., Nucl. Inst. Methods B **205**, 629 (2003)
- [25] Wells, E., Krishnamurthi, V., Carnes, K., Johnson, N., Baxter, H., Moore, D., Bloom, K., Barnes, B., Tawara, H. y Ben-Itzhak, I., Phys. Rev. A **72**, 022726 (2005)
- [26] Cavalcanti, E. G., Sigaud, G. M., Montenegro, E. C., Sant'Anna, M. M. y Schmidt-Böcking, H., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **35**, 3937 (2002)
- [27] Cavalcanti, E. G., Sigaud, G. M., Montenegro, E. C. y Schmidt-Böcking, H., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **36**, 3087 (2003)
- [28] Spranger T. y Kirchner T., J. Phys.B: At. Mol. Opt. Phys. **37**, 4159 (2004)