

Colisiones ión-átomo: una oportunidad para estudiar fenómenos dinámicos complejos

A.D. González^{1,2}, D. Fregenal y S. Suárez²

Centro Atómico Bariloche e Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica, 8400, Bariloche, Argentina.

1-Departamento de Física, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires, Ciudad Universitaria Nuñez, Pab I, 1428 Buenos Aires, Argentina,

2-Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (Conicet), Buenos Aires, Argentina

e-mail: agonza@df.uba.ar

La colisión de iones con átomos es un problema que data de la época de Rutherford. En las últimas décadas, la creciente sofisticación en técnicas experimentales ha permitido observar detalles que antes eran impensables, midiendo simultáneamente varias partículas y encontrando sus correlaciones. También nos encontramos con evidencias que son, en muchos casos, muy difíciles de analizar teóricamente, y a veces, difíciles de comparar con ideas previas. En este artículo se plantea el problema básico y se resumen algunos experimentos recientes.

Ion-atom collisions is a subject investigated from Rutherford's time. In the last decades, due to the accelerated advance in experimental techniques, coincidence measurements have allowed to study the problem with great detail. Lately, the experimental evidence is often very complex to be analysed theoretically, and in some cases, difficult to match with previous ideas. In the present paper the basic problem

and some recent experiments are summarised.

En una colisión de un proyectil con un átomo o molécula, se crean varios procesos dinámicos, característicos de las estructuras atómicas propias y de las condiciones cinemáticas de la interacción. Dado que se trata de partículas cargadas en potenciales exclusivamente coulombianos, el problema básico parecería sencillo a simple vista. El hecho de que no es así lo prueban 80 años de investigaciones que conducen, cada vez en un número mayor, a fenómenos que no pueden ser explicados teóricamente.

En lo que llamamos una colisión atómica o molecular participan: i) partículas pesadas, proyectiles y blancos iónicos, deflectados en la colisión; ii) electrones, que pueden ser arrancados, excitados o capturados por otros núcleos cargados; iii) radiación, en un espectro amplio desde el ultravioleta hasta los rayos X.

Al considerar un proceso atómico, los núcleos influyen en cuanto a su carga y masa, pero no en cuanto a reacciones nucleares que los transforman. Son escasos los ejemplos en los que aparecen efectos de las reacciones nucleares en los fenómenos originados en la estructura atómica.⁽¹⁾ Es usual definir el resultado de la colisión atómica a través de lo que le ocurre a los electrones. Por ejemplo, se habla de un fenómeno de ionización cuando uno o varios electrones, ya sea del blanco o del proyectil, son arrancados de estados ligados y puestos en estados del continuo. Cuando uno o varios electrones son transferidos del blanco al proyectil (o viceversa), se habla de un fenómeno de captura.⁽²⁾ De la misma forma definimos excitación a aquellos procesos en donde los electrones cambian de estado pero siguen ligados al mismo centro en el que inicialmente se encontraban. En todos estos procesos físicos, además, se produce emisión de radiación, ya sea de espectro de líneas características, o continua.⁽³⁾

Por un lado, el hecho de tratar con interacciones coulombianas conocidas simplifica el problema. Pero por otro, el número de partículas y el agregado de la radiación generada por las mismas partículas, hace al problema

complejo, y en la mayoría de los casos, no resoluble en forma exacta. Hasta en la colisión atómica más simple posible, la de un protón colisionando con un átomo de hidrógeno, no existe una solución teórica cerrada.^(3,4) Para la obtención de resultados que puedan compararse con los experimentos, deben realizarse aproximaciones, tanto en el problema dinámico, como para la resolución numérica de la ecuación de Schrödinger.

La situación es aún más crítica cuando se trata de sistemas colisionantes que incluyen un blanco multielectrónico y un proyectil multicargado,^(5,6) en este caso el problema no puede ser tratado por ninguno de los métodos teóricos desarrollados hasta el presente, y solamente cálculos basados en simulaciones numéricas clásicas (CTMC, Classical Trajectory MonteCarlo),⁽⁷⁾ han tenido algún éxito en la comparación con los resultados experimentales. Estas simulaciones numéricas no son, para la interpretación del fenómeno atómico, muy útiles. En primer lugar porque sólo proveen un resultado final, y no una interpretación paso a paso como sería necesario para entender los mecanismos dinámicos involucrados. En segundo, no utilizan un modelo cuántico del átomo ni de la interacción, lo cual se aparta de la realidad en la mayor parte de los problemas estudiados. De todos modos, la cantidad de parámetros libres con que se cuenta en el método numérico permite ajustar bien los resultados experimentales en varias situaciones.

En 1979 se publicó el primer trabajo que incluyó la medición de probabilidades en la ionización múltiple de blancos pesados (como Ne, Ar, Kr), a través de la detección de los iones residuales del blanco, ionizados en la colisión con el proyectil.⁽⁸⁾ Los iones del blanco son extraídos de la región de interacción, acelerados y analizados en tiempo de vuelo (espectroscopía de tiempo) y finalmente detectados en un contador. El gran hallazgo de este método fue poder medir simultáneamente las probabilidades de distintos grados de ionización (ionización múltiple), dando un peso relativo a cada uno de ellos. Además, con la medición simultánea del proyectil deflectado, el experimento permite conocer con precisión a qué transformación de carga del proyectil corresponde el estado de carga del blanco residual. En 1979 esta técnica comenzó a utilizarse con detectores simples

contadores, sin embargo al poco tiempo se desarrollaron detectores y analizadores de energía que permitieron una detección bidimensional, y con ello la posibilidad de medir detalles finos, como ser el ángulo polar y azimutal de la deflexión del proyectil.^(9,10) Es decir, en estos experimentos detallados las probabilidades de emitir o capturar o excitar varios electrones se miden en función de variables que llamamos diferenciales, como ser ángulo de deflexión, pérdida o ganancia de energía de proyectil o blanco, energía de los electrones. Las probabilidades y secciones eficaces de choque diferenciales dan mayor detalle que las totales,⁽¹¹⁾ ya que éstas sólo contienen información integrada. Al tener más detalles la comparación entre experimento y teoría se vuelve más aguda, y comenzaron a aparecer problemas que de otra manera no podían ser observados. Por ejemplo, en la reacción $500\text{keV H}^+\text{+He} \rightarrow \text{H}^+\text{+He}^+\text{+e}^-$, que describe la ionización de un electrón por impacto del protón, el estudio del momento del He^+ en función del ángulo de deflexión del proyectil permitió identificar fenómenos no clásicos para parámetros de impacto grandes (deflecciones pequeñas).^(12,13)

Últimamente, con el desarrollo de detectores de gran área sensibles a la posición, junto con el uso de blancos enfriados a 14°K (y por lo tanto de velocidad térmica controlada), ha sido posible medir el momento de los iones residuales del blanco con una precisión enorme. Dörner *et al*⁽¹⁴⁾ desarrollaron un sistema de detección con una resolución en este momento de 0.025 a.u. ⁽¹⁵⁾ A modo de comparación, en la ionización simple del átomo de He por fotones blandos, el momento del ión He^+ tiene un valor de aproximadamente 2 a.u. Con esta técnica novedosa la espectroscopía del ión del blanco sirve para medir, indirectamente, el momento del proyectil. Lo que “antiguamente” (una década atrás) se realizaba directamente con una resolución más baja y con un límite experimental mínimo para el ángulo polar de deflexión de 10^{-4} rad , al medir el momento del ión del blanco se han obtenido probabilidades que corresponden a ángulos de deflexión de 10^{-6} rad .

Ilustraremos con un ejemplo concreto la medición de un fenómeno complejo de emisión electrónica, por dos métodos, uno de medición detallada

directa de los momentos, y el otro, integrando parte de la información. La Figura 1 muestra esquemáticamente dos posibles fenómenos de captura electrónica, que pueden ocurrir cuando un ión positivo colisiona con un átomo. El proyectil A^+ con velocidad v_p colisiona con el átomo B con un cierto parámetro de impacto. Si la colisión es tal que en el estado final el electrón viaja junto al proyectil con su misma velocidad v_p , entonces cinemáticamente la condición de velocidades y ángulos durante la interacción debe ser como muestra el esquema a); una primera colisión entre el proyectil y el electrón, siendo el ángulo de deflexión del electrón de 60° y el del proyectil 0.47 mrad, seguida de una segunda colisión del electrón con el blanco residual B^+ . Al salir el electrón con la misma veloci-

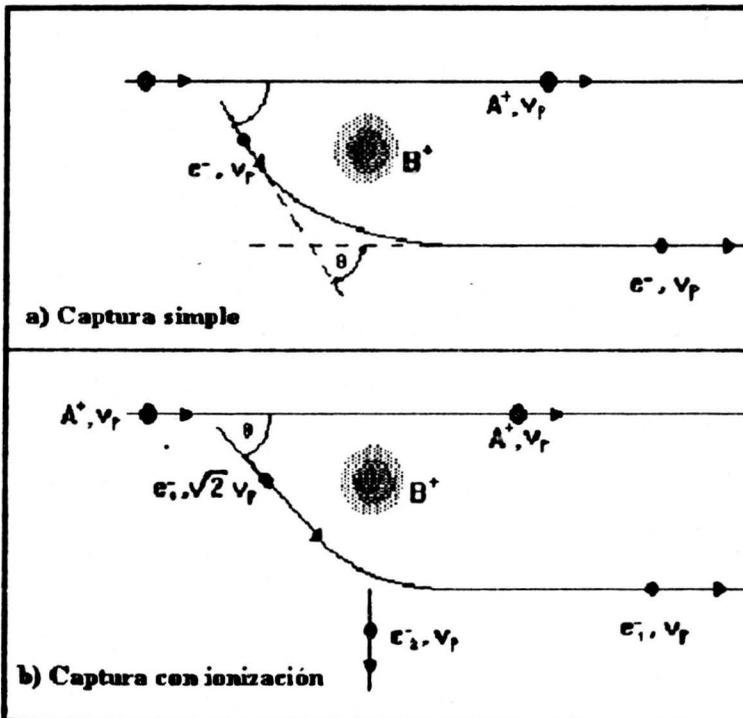


Figura 1: Representación esquemática de: a) captura electrónica simple, b) captura con ionización transversal simultánea. $e_{1,2}$ son dos electrones indistintos ligados inicialmente al blanco B, v_p es la velocidad del ion incidente A^+ , y B^+ es el ión blanco residual.

dad y ángulo que el proyectil, este lo captura, bien en el continuo o en un estado ligado. La captura electrónica es un fenómeno ya descrito por Thomas en el año 1927,⁽¹⁶⁾ y recién medido por Horsdal-Pedersen et al en 1983.⁽¹⁷⁾ De todos modos, la captura única es un mecanismo que involucra un electrón activo, es decir, en total tres cuerpos: A^+ , B^+ y e^- ,⁽²⁾

En la Figura 1b) se muestra un mecanismo de dos electrones activos, el cual, para la descripción, es un proceso de cuatro cuerpos, el proyectil A^+ , el blanco B, un electrón capturado, y otro ionizado transversalmente. En este caso el "primer" electrón se defleca 45° , y el proyectil 0.55 mrad. En el estado final, un electrón es emitido a 0° con la velocidad del proyectil, y otro, con la misma velocidad, a 90° . Existió por mucho tiempo una gran controversia en la explicación de este fenómeno, consistente en saber si es debido a la colisión entre electrones (correlación electrónica), o a la interacción consecutiva del proyectil con dos electrones (independientes, no correlacionados), que se produce la captura y emisión simultáneamente de un electrón transversal. La respuesta experimental llegó recientemente. Mergel et al, utilizando la espectroscopía de alta resolución del ión residual⁽¹⁴⁾, investigaron este fenómeno para la colisión $H^+ + He$ a energías de impacto de 500 keV, 800 keV y 1.2 MeV.⁽¹⁸⁾ Encontraron que el mecanismo principal es el correlacionado para impacto de H^+ de 1.2 MeV, pero no a 500 keV. La energía de 800 keV mostró una situación intermedia. Aparte de la importancia de observar directamente el proceso de correlación, se ve en este ejemplo que la cinemática, así como las estructuras atómicas, es también importante.

En lo que sigue describiremos un dispositivo experimental construido en el Centro Atómico Bariloche-Instituto Balseiro, para el estudio de la ionización múltiple en blancos multielectrónicos. La Figura 2 muestra un esquema del instrumento.

El haz de proyectiles colisiona con un blanco gaseoso provisto por una aguja hipodérmica (gas inlet en la figura). La colisión se produce en el espacio entre dos placas paralelas. Las placas tienen orificios centrales cubiertos con mallas de alta transmisión a través de las cuales se extraen,

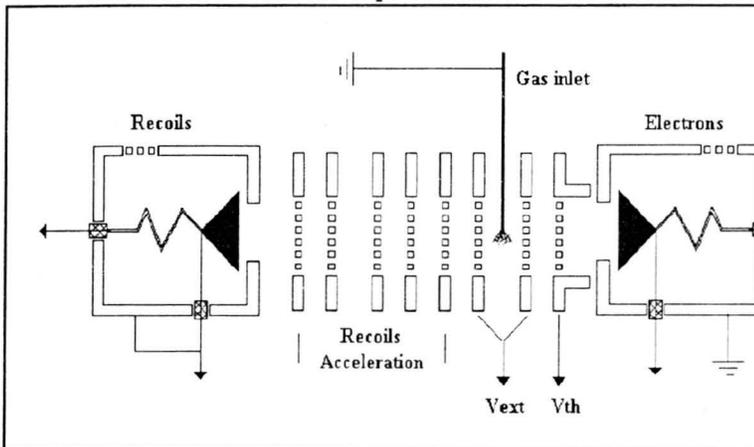


Figura 2: Esquema del espectrómetro de tiempo de vuelo para detectar distintos estados de carga de iones residuales del blanco. A la derecha se esquematiza también el detector de electrones, que actúa como integrador y da el tiempo cero de la medición temporal. El haz incide perpendicularmente al plano de la figura. V_{ext} y V_{th} son los potenciales de extracción y de análisis de electrones (barrera), respectivamente.

en direcciones opuestas, los iones y electrones originados en la colisión (diferencia de potencial $\pm V_{ext}$). El eje de simetría del instrumento mostrado en la Figura 2 es perpendicular al haz de proyectiles. Los detectores utilizados, esquematizados por los triángulos sombreados, son de tipo multiplicadores channeltron, que sirven como contadores rápidos.

Los iones residuales del blanco son acelerados por medio de una serie de placas con tensiones crecientes hasta alcanzar 3.5 kV en el detector. Los iones residuales del blanco adquieren una energía muy baja en la colisión, del orden de algunos meV, entonces una tensión de extracción de 5V basta para detectar los iones producidos en todas direcciones. Dada la relación de tamaños, la trayectoria de los iones y electrones se simula bien configurando un problema de partículas cargadas en un campo uniforme, a través del programa SIMION.

Los electrones extraídos, deben atravesar una región con un campo eléctrico de frenamiento que los selecciona en energía. Sólo los electrones con una energía mayor que la asociada con el potencial aplicado de barrera (e. V_{th}), logran superar esta región e ingresan en una zona libre de campo antes de ser detectados.

La aceptación angular de los electrones está dada prácticamente por el ángulo geométrico subtendido por el detector (0,15 srad) alrededor de 90° y es poco dependiente de la tensión de extracción. Las mediciones se hicieron con un campo de 10 a 20 V/cm, para el que no existen variaciones entre los diferentes espectros obtenidos. Para minimizar este problema se colocó una bobina que redujo estos campos a un valor inferior a 10 mGauss.

La detección de un electrón da la señal de “comenzar” en una rampa temporal de coincidencias, esto es, se dispara una ventana de ancho temporal fijo (por ejemplo 5 microsegundos), durante el cual son registrados todos los iones del blanco detectados en ese intervalo. La rampa asigna a cada tiempo dentro del intervalo un voltaje de señal en la electrónica asociada al experimento, y este voltaje se traduce en un número de canal secuencial en donde se acumulan las cuentas.

La Figura 3 muestra un espectro de coincidencias obtenido en la forma descrita más arriba, en el caso particular de la colisión $210 \text{ keV } H^0 + Kr$. En nuestro experimento estudiamos colisiones de proyectiles simples, H^+ y H^0 sobre blancos multielectrónicos, y obtuvimos ionización de hasta grado 5 y 6 con probabilidad apreciable. Esto sugiere, más allá de cualquier modelo a posteriori, la presencia de un mecanismo fuerte de correlación, ya que el proyectil es monocargado y rápido (tiempo corto de interacción), lo que disminuye la interacción múltiple que pudiera tener el proyectil con varios electrones.

Diversos trabajos trataron de determinar el papel que juega la correlación en los procesos de ionización múltiple.⁽¹⁹⁾ Se ha demostrado que, fenómenos con dos electrones activos (como la doble ionización y la ionización

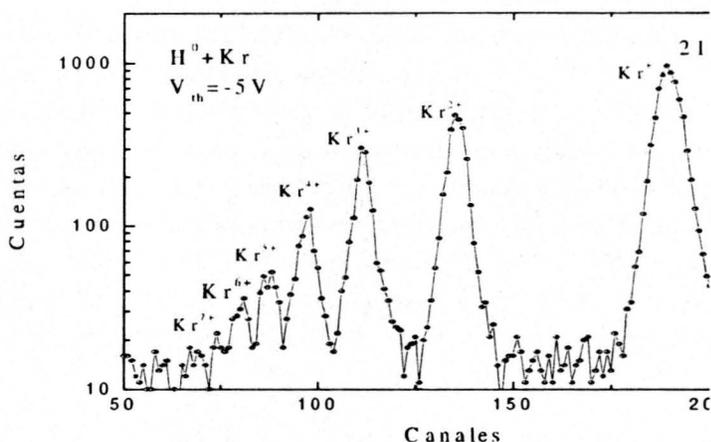


Figura 3: Espectro de tiempo de vuelo obtenido por coincidencias entre electrones e iones residuales del blanco, provenientes de la colisión 210 keV $H^0 + Kr$. El potencial de barrera para los electrones es 5V. Como se explica más arriba, las cuentas se asignan a canales que tienen relación directa con el tiempo de vuelo (diferencia de vuelo entre iones y electrones). Nótese los distintos máximos correspondientes a la ionización múltiple de Kr.

con transferencia simultánea de carga), no pueden ser bien descritos por medio de una aproximación de electrones independientes⁽²⁰⁾ y los modelos deben incluir la correlación electrónica en los estados inicial y final de la colisión. Estos estudios teóricos, utilizan métodos cuánticos y diversas aproximaciones para tratar las integraciones matemáticas necesarias (peaking approximations). Para más de dos electrones activos no existen en la actualidad tratamientos cuánticos, sólo, como ya se mencionó, cálculos por el método numérico de CTMC.⁽⁵⁻⁷⁾

En otro experimento de tiempo de vuelo, en donde los iones del blanco se miden en coincidencia con el proyectil, se obtuvieron las probabilidades en función del ángulo de deflexión para ionización múltiple de Ne y Ar por impacto de H^+ , obteniéndose que, empíricamente, una distribución binomial explica los resultados experimentales.⁽²¹⁾

Volviendo a la Figura 3. Es interesante estudiar el cociente entre los estados de carga 1+ y 2+ del blanco. El simplemente cargado corresponde a ionización pura, ya que en el dispositivo experimental de la Figura 2 un electrón capturado escapa a la observación del detector. Por otro lado, el doblemente cargado (por ejemplo Kr^{2+}), contiene información superpuesta sobre dos fenómenos, la ionización pura doble, y la ionización simple acompañada de captura. En un artículo reciente mostramos algunas propiedades cinemáticas del cociente entre las áreas B^{2+}/B^{1+} .⁽²²⁾ Veamos ahora la dependencia de este cociente con la carga del proyectil incidente.

En la figura 4 se grafican los cocientes entre los estados de carga 2+ y 1+ para blancos de Ne, Ar y Kr en colisiones con protones (cuadrados llenos), y átomos de hidrógeno (círculos vacíos), ambos proyectiles incidiendo con una energía de 50 keV. Para el proyectil cargado, se observa una estructura para todos los blancos, centrada en el mismo valor del potencial de barrera para los electrones, con intensidad creciente con el número atómico del blanco. La posición del máximo de la estructura es muy cercana a la energía de un electrón que tiene una velocidad v_p , correspondiente a la velocidad del proyectil. Como en nuestro experimento no se mide el momento del ión, no existe el suficiente detalle para interpretar completamente este resultado. De todos modos, como se explicó más arriba (Figura 1b), la transferencia con ionización simultánea, en correlación, produce un ión del blanco con carga 2+ y un electrón emitido a 90° con la velocidad del proyectil. Es necesario realizar nuevos experimentos para asegurar esta posibilidad en este caso, de energía de impacto baja.

Otro resultado muy interesante es el que se obtuvo para el proyectil neutro: la dependencia de los cocientes con el potencial de barrera es, dentro de la banda de error, constante. Se obtiene un comportamiento muy distinto con el mismo proyectil, en un caso cargado y en el otro neutro. Desde el punto de vista de la interacción, H^+ tiene un campo coulombiano de rango infinito, y H^0 no. Además, H^+ tiene la posibilidad de capturar un electrón con probabilidad (a 50keV) casi tan grande como de ionizar. No ocurre lo

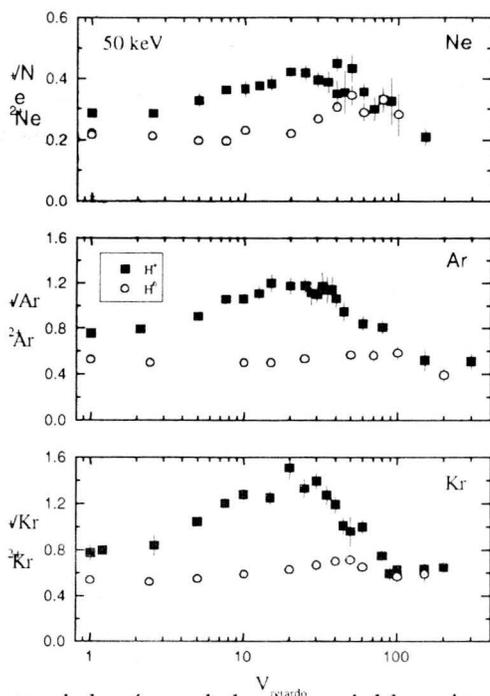


Figura 4: Cocientes de las áreas de los iones doble y simplemente cargados como función de la tensión de barrera, para diferentes blancos: a)Ne, b)Ar, c)Kr. Puntos llenos: H^+ . Puntos vacíos: H^0 .

mismo con H^0 , la captura para formar H es posible (se ha medido) pero la probabilidad de ocurrencia de esta captura es muy baja con respecto a la ionización. Por otro lado, la ionización doble, que también produce un ión blanco 2+, es mayor para impacto de H^0 que para H^+ , entonces, si este fuera el mecanismo responsable de la estructura, esta aparecería también para impacto del proyectil neutro, lo que no ocurre en el experimento. Esta comparación sugiere también que la estructura asociada a H^+ es consecuencia secuencia de la captura electrónica con ionización simultánea.

En conclusión, el tema de colisiones ión-átomo presenta al presente muchas preguntas sin respuestas. Esto es debido a la complejidad del problema de varias partículas en interacción mutua. A pesar de que los potenciales de interacción son bien conocidos, los estudios teóricos actuales chocan

con una dificultad práctica, en estos sistemas de muchos cuerpos, varias interacciones son de la misma importancia, y no pueden ser eliminadas *a priori*. Un ejemplo es el descrito aquí, en donde la interacción electrón-electrón puede ser más importante que el choque del proyectil con uno de los electrones. El otro ejemplo es la ionización múltiple por impacto de una partícula monocargada, como H^+ , que hasta el presente no ha podido ser resuelto teóricamente y que, evidentemente, motiva una revisión del método físico utilizado, más que del tratamiento matemático o numérico. Por una limitación de espacio, no mostramos en este artículo resultados de colisiones con proyectil y blanco multielectrónico, en las cuales los procesos involucran frecuentemente decenas de partículas.^(5,6) Existen una gran variedad de estos datos que no han podido ser explicados, salvo utilizando tratamientos numéricos basados en ecuaciones clásicas, que en muchos casos no se ajustan a la naturaleza cuántica del problema.

Referencias

1. A.D. González, J. Giese and H. Horsdal-Pedersen, Phys. Rev. A **48**, 3663(1993)
2. R. Shakeshaft and L. Spruch, Rev. Mod. Phys. **51**, 369 (1979)
3. A. D. González, J.E. Miraglia and C.R. Garibotti, Phys. Rev. A **34**, 2834 (1986).
4. B. H. Bransden and C. J. Joachain, "Physics of Atoms and Molecules", (Longman Scientific New York, 1983).
5. H. Schmidt-Böcking et al, "Multiple Ionization in Ion-Atom Collisions", (Springer-Verlag, Berlin 1991)
6. C. L. Cocke, Phys. Rep. **205**, 153 (1991)
7. R. E. Olson, in "Electronic and Atomic Collisions", edited. by H. Gilbody et al, (Elsevier, Amsterdam, 1988)
8. C. L. Cocke, Phys. Rev A **20**, 749 (1979)
9. A. D. González, S. Hagmann, T.B.Quinteros, B.Krässig, R.Koch, A. Skutlartz and H.Schmidt-Böcking, J. Phys. B **23**, L303 (1990)
10. T. Kambara, J.Z. Tang, Y. Awaya et al, J. Phys. **28**, 4593 (1995)
11. R.D. Dubois and A. Köver, Phys. Rev. A **40**, 3605 (1989).
12. R. Dörner, J. Ullrich, H. Schmidt-Böcking and R.E. Olson, Phys. Rev.

- Lett. **63**, 147, (1989)
13. K. Lotzkin, B. Fastrup, A.D. González, E. Horsdal-Pedersen and V. Rodríguez, J. Phys. B, (1998) en prensa
 14. R. Dörner, V. Mergel, L. Spielberger et al, Nucl. Inst. Meth. B **124**, 225 (1997)
 15. a.u., atomic units, definidas de tal modo que, $e=1$, $m=1$, $\hbar=2\pi$, y como consecuencia el radio de Bohr =1, la velocidad de Bohr=1, y la velocidad de la luz=137
 16. L.H. Thomas, Proc. Roy. Soc. London **11**, 5161 (1927).
 17. E. Horsdal-Pedersen, C.L. Cocke and M. Stockli, Phys. Rev. Lett. **50**, 1910 (1983).
 18. V. Mergel, R. Dörner, M. Achler et al, Phys. Rev. Lett. **79**, 387 (1997).
 19. J. F. Reading, T. Bronk and A.L. Ford, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **29**, 6075 (1996).
 20. R. K. Janev, E.A. Solovev and D Jakimovski, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28**, L615 (1995).
 21. A. D. González and H. Horsdal-Pedersen, Phys. Rev. A **48**, 3689(1993)
 22. A. D. González, D. Fregenal, S. Suárez, W. Wolff and H. Wolf, J. Phys. B **31**, L257 (1998)