

Modelado CTMC de Blancos Atómicos y Moleculares Relevantes en Física de Colisiones por Impacto de Iones



Lic. Nelson Daniel Cariato
Departamento de Física
Universidad Nacional del Sur

Tesis presentada para obtener el grado de


Doctor en Física

2015

Prefacio

Esta Tesis se presenta como parte de los requisitos para optar al grado Académico de Doctor en Física, de la Universidad Nacional del Sur y no ha sido presentada previamente para la obtención de otro título en esta Universidad u otra. La misma contiene los resultados obtenidos en investigaciones llevadas a cabo en el Departamento de Física e IfiSur durante el período comprendido entre Abril de 2011 y Octubre de 2015, bajo la dirección de Profesor Adjunto Dr. Sebastián Otranto del Dpto. de Física de la Universidad Nacional del Sur e Investigador Independiente del CONICET.

Nelson Daniel Cariato

	<p>UNIVERSIDAD NACIONAL DEL SUR Secretaría General de Posgrado y Educación Continua</p>
<p>La presente tesis ha sido aprobada el/...../....., mereciendo la calificación de(.....)</p>	

A Cecilia, mi Familia y Amigos, por hacer que todo sea más fácil.

Agradecimientos

Quisiera agradecer a la Universidad Nacional del Sur, al Departamento de Física y al IFISUR por brindarme un lugar donde poder realizar la tarea de investigación, necesaria para continuar mi formación académica.

Al CONICET, por haberme proporcionado los medios económicos para la realización de este trabajo.

Al Profesor Dr. Sebastián Otranto por su dirección y paciencia en la realización de esta tesis, por sus consejos diarios tanto en el ámbito académico como en elecciones de vida.

Resumen

En esta tesis, se han desarrollado diversos estudios de captura electrónica por iones colisionando sobre átomos y moléculas bajo el método de trayectorias clásicas Monte Carlo (CTMC). El objetivo central del trabajo consistió en mejorar la descripción del blanco, ya que se ha demostrado en la literatura que una correcta descripción del blanco es importante a la hora de obtener secciones eficaces precisas.

El estudio se ha enfocado en procesos de captura electrónica selectiva para el rango de energías bajas e intermedias de colisión. Se calcularon las secciones eficaces totales, las secciones eficaces de captura electrónica selectiva y las secciones eficaces de líneas de emisión fotónica que provienen del decaimiento radiativo que le siguen a los procesos de captura electrónica a estados excitados del proyectil.

Las investigaciones realizadas son relevantes desde el punto de vista de lograr un mejor entendimiento de los mecanismos físicos que median en los procesos de colisiones, principalmente en el canal de captura electrónica. Asimismo, las secciones eficaces calculadas son una herramienta necesaria en diversas áreas de la física aplicada. Las secciones eficaces calculadas en esta tesis tienen especial relevancia en el diagnóstico de plasma en los reactores de energía por fusión y en astrofísica, puntualmente en colisiones entre los iones del viento solar y los gases en la coma de cometas o en atmósferas planetarias.

Se presentan secciones eficaces totales de intercambio de carga y secciones eficaces de captura a estados selectivos y se comparan con las obtenidas por diferentes métodos teóricos, así como con datos experimentales presentados por de diferentes laboratorios del mundo.

Abstract

In this thesis, electron capture processes in ion collisions with atoms and molecules have been studied by means of the classical trajectory Monte Carlo (CTMC) method. The main objective of this work was to improve the description of target, provided that a correct description of the target has shown to be essential in order to obtain accurate cross sections.

The study has been focused on state-selective electron-capture processes for low to intermediate impact energies. Present calculations involve total cross sections, state-selective cross sections and photon-emission-lines cross sections which originate in the radiative decay that follow electron capture to excited states of the projectile.

The investigations carried out are relevant in order to identify the physical mechanisms which mediate collisions processes leading to electron capture channel. Besides, theoretical cross sections are a necessary tool for applied physics. The cross sections calculated in this thesis are relevant to plasma diagnostics in fusion power reactors and in astrophysics, specifically in collisions between solar wind ions and cometary particles and planetary atmospheres.

Total and state-selective charge-exchange cross sections are presented and compared to those obtained by other different theoretical methods as well as to experimental data from different laboratories worldwide.

Índice

Índice	xii
1. Introducción	1
2. Método de Trayectorias Clásicas Monte Carlo	7
2.1. 3 – Cuerpos CTMC	8
2.1.1. El modelo Clásico de Colisiones	8
2.1.2. Método de integración Runge-Kutta	13
2.1.3. Sección Eficaz Clásica	18
2.1.4. Captura a Estados Selectivos	19
2.1.5. Ionización Electrónica	21
2.1.6. Ionización versus Captura	21
2.2. El problema de múltiples cuerpos	24
2.2.1. Tratamiento del Mecanismo de Captura Electrónica Múltiple	26
2.3. Región de Validez del CTMC	28
2.4. Aplicabilidad del método CTMC	29
2.5. Espectro en Líneas de Emisión	32
2.5.1. La aproximación dipolar	32
2.6. Secciones Eficaces de Líneas de Emisión	34
3. Captura electrónica selectiva del ion He^+ sobre H_2 a energías intermedias	36
3.1. Introducción	36
3.2. El dispositivo COLTRIMS–Bariloche	40
3.3. Proceso Experimental	42

3.4. Principio de Franck–Condon	44
3.5. Modelado Teórico	48
3.6. Resultados y Discusiones	54
3.6.1. Momento longitudinal – Captura electrónica a estados se- lectivos	55
3.6.2. Componentes del Momento Transversal	62
3.7. Conclusiones	69
4. Desarrollo de un modelo CTMC multicéntrico de varios electro- nes para colisiones de iones altamente cargados con CO	71
4.1. Introducción	71
4.2. Modelados Teóricos	73
4.2.1. Modelo multicéntrico–multielectrónico (mmCTMC)	73
4.2.2. Modelo monocéntrico (scCTMC)	74
4.2.3. Modelo de átomos independientes (iaCTMC)	75
4.2.4. Comparación de modelos	75
4.2.5. Modelo de Energías Secuenciales	78
4.3. Resultados y discusión	79
4.3.1. Secciones eficaces totales para intercambio de carga para <i>IP-orbitales</i>	79
4.3.2. Secciones eficaces totales para intercambio de carga para <i>IP-secuenciales</i>	83
4.3.3. Secciones eficaces de Captura selectiva y líneas de emisión para <i>IP-orbitales</i>	86
4.3.4. Secciones eficaces de Captura selectiva y líneas de emisión para <i>IP-secuenciales</i>	88
4.4. Conclusiones	90
5. Emisión de rayos–X por intercambio de carga en colisiones entre iones altamente cargados y argón	93
5.1. Introducción	93
5.2. Trampas iónicas EBIT	96
5.2.1. El dispositivo EBIT	97

5.2.2. Trampa EBIT en modo magnético	101
5.2.3. Trampa EBIT en modo de extracción	102
5.2.4. Discrepancia entre los modos EBITs	103
5.3. CTMC de 8 electrones activos	105
5.3.1. Mecanismo postcolisional	107
5.4. Resultados y discusión	110
5.5. Conclusiones	119
6. Descripción clásica de H(1s) y H*(n = 2) para cálculos de seccio-	
nes eficaces de intercambio de carga relevantes en diagnóstico de	
plasmas	121
6.1. Introducción	121
6.2. Método Teórico	124
6.3. Resultados y discusión	129
6.3.1. C ⁶⁺ , N ⁷⁺ , O ⁸⁺ sobre H(1s)	129
6.3.2. C ⁶⁺ , N ⁷⁺ , O ⁸⁺ sobre H*(n = 2)	135
6.3.3. Líneas de emisión para C ⁶⁺ , N ⁷⁺ , O ⁸⁺ sobre H(1s) y H*(n = 2)	140
6.4. Conclusiones	144
7. Conclusiones Generales	146
Lista de figuras	149
Bibliografía	158
Publicaciones Realizadas	182

Abreviaturas

GSD Ground-State Dissociation

AOCC Atomic Orbits Close Coupling

AutoMC Autoionizing Aultiple Electron Capture

CCD charge-coupled device

COB Classical Over-the Barrier

COLTRIMS Cold Target Recoil-Ion Momentum Spectroscopy

CTMC Classical Trajectory Monte Carlo

dCTMC dynamic classical-trajectory Monte Carlo

EBIT Electron Beam Ion Trap

EBM Electron Beam Mode

ECC Electron Continuous Capture

FWHM Full Width at Half Maximum

HCIs Highly Charged Ions

iaCTMC independent-atoms classical-trajectory Monte Carlo

IP Ionization Potential

JPL Jet Propulsion Laboratory

LZMC Landau-Zener multichannel

MEC Multiple Electron Capture

mmCTMC many-electron-multicenter classical-trajectory Monte Carlo

MOCC Molecular Orbits Close Coupling

MOT Magneto Optically Trapped

MOTRIMS Magneto Optical Trap

MTM magnetic trapping mode

NIST National Institute of Standards and Technology

ORNL Oak Ridge National Laboratory

Rad.Dec. Radiative Decay

SC Single Capture

scCTMC single-center classical-trajectory Monte Carlo

SEC True Single Capture

TC – BGM two-center-basis generator model

TE Transfer Excitation

TI Transfer Ionization

Capítulo 1

Introducción

Las primeras reflexiones en los que se plantea la naturaleza de la materia fueron hechas por filósofos Griegos. En particular siguiendo las ideas de Anaxágoras (500–428 AC), Empédocles (484–424 AC), Leucipo (cerca del 450 AC) y su pupilo Demócrito (460–370 AC) argumentando que el universo consiste de espacio vacío y partículas indivisibles, *los átomos* (del griego “atom” que significa indivisible), con diferentes formas, posiciones y arreglos. La hipótesis atómica fue rechazada por Aristóteles (384–322 AC), quien tenía una concepción de la materia como si esta fuera un continuo.

No fue hasta los tiempos modernos que la civilización occidental volvió a indagar en el tema a partir del descubrimiento experimental de la ley de los gases desarrollada por R. Boyle en 1662 y posteriormente la interpretación de esta ley en términos del modelo cinético de D. Bernoulli en 1738. La teoría cinética de los gases desarrollada a través del siglo XIX por R. Clausius, J. C. Maxwell y L. Boltzmann, fue capaz de explicar las propiedades de los gases asumiendo que un gas consiste en un gran número de partículas llamadas *moléculas* en colisión elástica entre sí.

La primer evidencia experimental que la carga eléctrica no es infinitamente indivisible, y se encuentra discretizada, fue obtenida por M. Faraday. Él descubrió la ley de electrólisis en 1833 y denominó a los átomos cargados (o grupos de átomos cargados) como *iones*. La primer medición directa de la carga electrónica fue iniciada por J. J. Thomson llevada a cabo por su estudiante J. S. Townsend 1897, y el valor exacto fue encontrado por R. M. Millikan en 1909.

1. INTRODUCCIÓN

A partir de ese momento, surge la pregunta de cómo la masa y la carga se distribuyen dentro del átomo. La respuesta fue provista por una serie de experimentos llevados a cabo por H. Geiger, E. Marsden y E. Rutherford entre 1906 y 1913, en los cuales se estudió la dispersión de partículas α sobre hojas metálicas de varios espesores. Este experimento llevó a un modelo atómico en el cual cierto número de electrones orbitan alrededor de un núcleo masivo.

Desde el punto de vista teórico, la primer sección eficaz clásica para una colisión atómica fue obtenida por Thomson en el año 1912^[1], para un proceso de ionización por electrones de Radium.

En 1926, E. Schrödinger y W. Heisenberg desarrollan el formalismo de la mecánica cuántica, siguiendo las ideas de L. de Broglie, quien en 1924 postulaba la hipótesis de dualidad onda-partícula. A partir de ese entonces, sabiendo que los procesos de colisiones atómicas son puramente cuánticos, se desestimó el uso de aproximaciones y métodos clásicos para realizar cálculos de secciones eficaces. Sin embargo, en 1959 Gryzinski^[2] demostró que los métodos clásicos podrían usarse para calcular aproximaciones analíticas de secciones eficaces útiles para una amplia variedad de procesos con buenos resultados respaldados por datos experimentales.

Hasta los años 1950s se medían principalmente secciones eficaces totales ya que las técnicas de vacío existentes no permitían obtener otro tipo de secciones eficaces en forma precisa. El desarrollo de mejores técnicas de vacío en los años 1960s, permitió obtener en los años 1970s las primeras secciones eficaces diferenciales, que identificaban la distribución del electrón ionizado en su espacio de momentos^[3]. A mediados de los 1990s, se logró otro paso conceptual importante al lograrse los primeros experimentos denominados *cinemáticamente completos*. Estos experimentos fueron realizados mediante la técnica COLTRIMS que posteriormente se describirá^[4]. De esta forma, en la actualidad, es posible obtener en forma completa la dinámica de los fragmentos involucrados para distintos tipos de procesos.

El método de trayectoria clásica Monte Carlo (CTMC) se originó con Hirschfelder en 1936, quien estudió la reacción de intercambio de carga entre H y D_2 usando una calculadora mecánica^[5]. Con el surgimiento de las computadoras, el método CTMC se aplicó activamente a un gran número de sistemas químicos

1. INTRODUCCIÓN

para determinar las velocidades de reacción y los estados finales de población y vibración^[6]. En problemas de física atómica, un paso importante fue introducido por Abrines y Percival en 1966^[7] quienes emplearon las leyes de Kepler y el modelo de Bohr-Sommerfeld para investigar captura electrónica e ionización para las colisiones a velocidades intermedias de $H^+ + H$.

En la actualidad, el método CTMC tiene una amplia gama de aplicabilidad a sistemas fuertemente acoplados, tales como colisiones que involucran iones altamente cargados. En tales sistemas, los métodos de perturbación fallan y los métodos cuánticos de expansiones en funciones de orbitales atómicos o moleculares como el AOCC y el MOCC encuentran limitaciones y dificultades para representar los estados de iones altamente cargados en sus bases finitas^[8].

Desde el punto de vista experimental, las colisiones atómicas, ionización y otros procesos inelásticos proporcionan un campo de pruebas adecuado para describir el problema de la evolución de un sistema de múltiples partículas en función del tiempo. Además, la comprensión de estos procesos es importante para diversos campos, ya sea en física pura y física aplicada a la investigación, como la astrofísica^[9], la física del plasma y fusión termonuclear^[10] y el estudio de superficies y materiales^[11].

Desde el trabajo de Abrines y Percival en 1966^[7], el método CTMC ha sido muy utilizado y adaptado a distintos procesos de colisión ion-átomo, especialmente en el rango de energías de impacto bajas e intermedias. Los precursores en calcular secciones eficaces de intercambio de carga bajo esta metodología fueron Olson y Salop en sus trabajos de 1976^[12,13]. En 1981, Olson publica un modelo CTMC para calcular las secciones eficaces de captura selectiva para iones colisionando sobre H^[14].

Luego de estos trabajos destacados en el método CTMC numerosos trabajos han sido publicados adaptando y mejorando esta metodología a distintos procesos de colisiones relevantes. Hardie y Olson en 1983 presentaron una mejora en la descripción del blanco de H, logrando una representación más exacta de la distribución radial electrónica del estado H(1s) respecto a la distribución microcanónica clásica^[15]. Esto condujo a un mejor acuerdo con los datos experimentales para captura electrónica como para ionización electrónica. En este trabajo se destaca la importancia de una buena descripción del blanco para el cálculo de secciones

1. INTRODUCCIÓN

eficaces más precisas. Otro trabajo que destaca este punto es el de Montemayor y Schiwietz de 1989, quienes presentan un modelo dinámico de dos electrones activos sobre el blanco atómico de He. Presentan resultados en buen acuerdo con datos experimentales para los canales de ionización y captura electrónica (simple y doble), intercambio de carga más ionización y excitación^[16].

En comparación a las colisiones de ion-átomo, el estudio de las colisiones de ion-molécula plantea un desafío adicional ya que la naturaleza molecular del blanco debe ser tomado en consideración. Los procesos electrónicos que intervienen en las colisiones lentas entre iones altamente cargados y moléculas y la dinámica de la fragmentación molecular poscolisional son los principales desafíos. Desde el punto de vista teórico, una correcta descripción del blanco es fundamental para una correcta interpretación física de los procesos.

En contraste con los diversos cálculos teóricos en colisiones de ion-átomo, los modelos teóricos rigurosos en las colisiones de ion-molécula son muy raros, sobre todo en la región de energías bajas e intermedias. Algunos pueden argumentar que los modelos teóricos desarrollados para las colisiones de ion-átomo, como los modelos de expansión en bases de funciones, se pueden generalizar para estudiar las colisiones de ion-molécula. Sin embargo, en la realidad esto no se ha hecho a excepción de los cálculos preliminares de Kimura^[17,18] utilizando expansiones en bases de orbitales moleculares para H^+ y Ar^+ colisionando con H_2 . La complejidad computacional es la razón principal detrás de la falta de cálculos. Por un lado, hay que tratar con funciones de onda moleculares del blanco de dos o más centros, lo que aumenta el tamaño de las bases de funciones necesarias para el cálculo. Por otro lado, los efectos de diferentes orientaciones moleculares en las secciones eficaces de captura electrónica deben tenerse en cuenta. Los cálculos de las secciones eficaces de captura electrónica para las colisiones de ion-molécula en diversas aproximaciones se han llevado a cabo por unos pocos autores. En la región de la energía keV/amu, los modelos de Sural *et al.* y Sidis *et al.*^[19,20] que han empleado métodos de expansiones en bases. Sin embargo, estos resultados tienen pobre acuerdo con los datos experimentales.

Los estudios para procesos de colisión en ion-molécula referentes al método CTMC realizados poseen una descripción del blanco molecular muy pobre. Una descripción se basa en un blanco molecular considerado como un único centro

1. INTRODUCCIÓN

nuclear, metodología utilizada por Otranto y Olson quienes calcularon secciones eficaces de líneas de emisión entre diversos iones colisionando sobre H_2O ^[21] y Simcic *et al.* que calcularon secciones eficaces de intercambio de carga múltiple entre iones de Fe y moléculas de CO y CO_2 ^[22]. Un modelo CTMC de tres centros para la describir la molécula de H_2O fue desarrollado en 2011 por Illescas *et al.*. Este modelo de un solo electrón activo interactúa con los núcleos de la molécula a través de un potencial de tres centros utilizado para calcular secciones eficaces de fragmentación molecular por impacto de iones^[23].

En esta tesis, se han desarrollado diversos estudios de captura electrónica por iones sobre átomos y moléculas (fase gaseosa) por medio del método de trayectorias clásicas Monte Carlo (CTMC). El objetivo central del trabajo consistió en mejorar la descripción del blanco, ya que la mayor parte de los modelados en la literatura se basan en aproximaciones hidrogenoides de un sólo electrón activo.

En el Capítulo 2 se presenta el método de trayectorias clásicas Monte Carlo utilizado a lo largo de todo el trabajo. Se realiza el desarrollo teórico para un modelo de colisión de tres cuerpos y se presenta el cálculo de las secciones eficaces de la metodología. Se discute las limitaciones del método y se compara un proceso de ionización con uno de captura electrónica. En particular para un proceso de captura, se describe la metodología para cuantificar los estados (n, l, m) . Por último se describe el mecanismo de captura electrónica múltiple y las transiciones Auger con sus consecuentes líneas espectrales de emisión fotónica.

Los primeros estudios fueron enfocados a blancos moleculares diatómicos. En el Capítulo 3 se estudia la captura simple selectiva de He^+ sobre H_2 , se realiza un estudio teórico-experimental en el que se utiliza la técnica espectroscópica de momento de iones en retroceso en blanco frío (COLTRIMS) del acelerador Cockroft-Walton del Centro Atómico Bariloche. En este trabajo se obtuvo un buen acuerdo teórico-experimental en las distribuciones de momentos del blanco en retroceso, a partir de las cuales se convolucionaron las secciones eficaces de captura selectiva.

Siguiendo en la línea del estudio de moléculas diatómicas. En el Capítulo 4 se modela la molécula de monóxido de carbono (CO). Se desarrolla un modelo de la molécula asimétrica con 8 (ocho) electrones activos en el que se estudió captura electrónica de iones en el rango carga de +3 a +10. Se obtuvo buen acuerdo

1. INTRODUCCIÓN

con los datos experimentales del Jet Propulsion Laboratory (JPL–NASA) tanto a nivel de secciones eficaces totales como secciones eficaces de captura selectiva.

En el Capítulo 5, se estudia la relevancia de procesos de captura múltiple, por iones cargados desde el blanco neutro de Argón, en la emisión fotónica de rayos X. Dicha emisión particularmente relevante en el contexto astrofísico. Puntualmente, en la emisión fotónica desde cometas y atmósferas planetarias como consecuencia de intercambio de carga con partículas del viento solar.

Por último, en el Capítulo 6 se realiza una descripción clásica de hidrógeno atómico para $n = 1, 2$. Se propone un ensamble microcanónico que reproduce en forma exacta tanto las distribuciones de momento como las distribuciones radiales para el blanco estudiado. Se observa la emisión fotónica de rayos-X y del espectro visible posterior al proceso de captura a estados excitados de iones desnudos de C, N y O. Este proceso tiene relevancia en el área de reactores de potencia por fusión, ya que las secciones eficaces calculadas son necesarias para el diagnóstico de plasma del reactor (Tokamak).

Capítulo 2

Método de Trayectorias Clásicas Monte Carlo

El método de Monte Carlo fue desarrollado por científicos que trabajaban en la bomba atómica en la década del 40 y lo nombraron así en referencia a la ciudad de Mónaco, famosa por sus casinos y juegos de azar. La idea básica es usar parámetros o variables aleatorias para evaluar numéricamente el comportamiento de un sistema o proceso complejo. Simulaciones de Monte Carlo demostraron ser sorprendentemente eficientes en la búsqueda de soluciones a numerosos tipos de problemas. Desde ese momento, los métodos de Monte Carlo se han aplicado a una gama muy variada de problemas en el contexto de la ciencia, ingeniería y finanzas.

Numerosas teorías clásicas para procesos de colisiones fueron propuestas^[24-27], las cuales se basan en dos aproximaciones básicas:

- Las partículas obedecen las leyes de Newton en todo el proceso.
- La interacción de cada electrón con un núcleo (proyectoril o blanco) compuesto de varias partículas se aproxima a dos cuerpos puntuales.

Los primeros reportes de secciones eficaces obtenidas mediante el método de trayectorias clásicas Monte Carlo (CTMC), se registran en los trabajos de Abrines y Percival del 1964 y 1966^[7,28-30], donde se presentaron secciones eficaces de ionización y captura para protones colisionando sobre hidrógeno atómico en su estado

fundamental. En esta sección, se desarrollará la metodología del CTMC para tres cuerpos sujetos a interacciones Coulombianas, para comprender los fundamentos y el modelo teórico. En los capítulos siguientes, se desarrollarán modelos CTMC particularmente adaptados a blancos atómicos más complejos y también para casos de blancos moleculares.

2.1. 3 – Cuerpos CTMC

2.1.1. El modelo Clásico de Colisiones

El proceso de colisión más simple a describir es el de un ion desnudo colisionando con hidrógeno atómico. La Figura 2.1 muestra un esquema del sistema de colisión clásica de tres partículas. El experimento de dispersión (scattering en inglés) consiste en tres etapas: *inicialización del sistema*, *proceso de colisión* y *análisis final*. Al ser el CTMC un modelo estadístico, una gran colección de colisiones es necesaria para calcular una sección eficaz para un determinado proceso. Por esta razón, se debe aumentar considerablemente la estadística si se desea obtener una sección eficaz diferencial en relación a una sección eficaz total.

Se consideran partículas puntuales en todo el proceso de colisión elástico en el sistema de *unidades atómicas* (a.u.). Para describir el modelo CTMC, se toma el sistema de colisión de 3-cuerpos más simple en el que un protón (H^+) colisiona con el átomo de hidrógeno en su estado fundamental ($H(1s)$). Entonces, el electrón del átomo de hidrógeno es representado por masa de 1 a.u. con una energía de ligadura de 0.5 a.u., tanto el núcleo atómico y el proyectil se representan por un protón de masa 1836 a.u., la carga eléctrica de ± 1 a.u. para el protón y el electrón respectivamente. El estado inicial del átomo de hidrógeno es representado por el electrón orbitando alrededor del núcleo ubicado en el centro de nuestro sistema de coordenadas como se observa en la Figura 2.1.

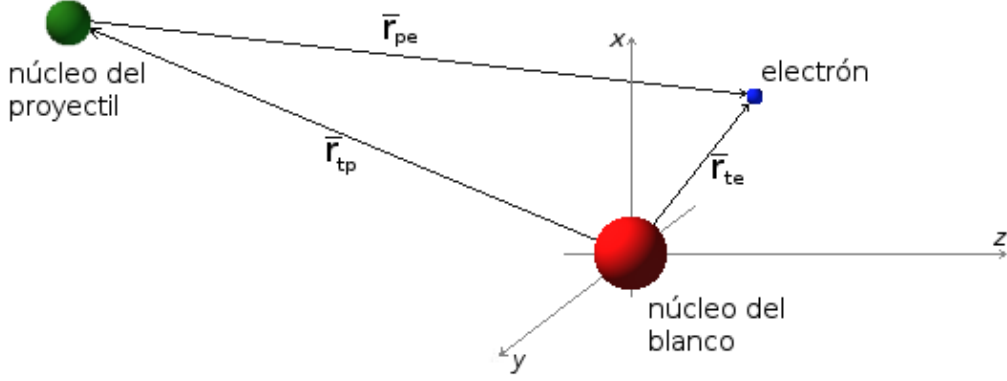


Figura 2.1: Representación esquemática para una colisión de 3 (tres) cuerpos.

El Hamiltoniano clásico del sistema de 3-cuerpos se escribe,

$$H = \frac{p_a^2}{2m_a} + \frac{p_b^2}{2m_b} + \frac{p_c^2}{2m_c} + \frac{Z_a Z_b}{r_{ab}} + \frac{Z_a Z_c}{r_{ac}} + \frac{Z_b Z_c}{r_{bc}}, \quad (2.1)$$

donde p_i es el momento de la partícula i y $Z_i Z_f / r_{if}$ los potenciales Coulombianos entre las partículas individuales i, f . La ecuación 2.1 describe la dinámica de las tres partículas en términos de ecuaciones diferenciales de primer orden, donde se denota al núcleo del proyectil (a) de masa m_a , el núcleo del blanco (b) de masa m_b y el electrón (c) de masa m_c activo inicialmente en el núcleo del blanco. La dinámica de cada cuerpo se determina al obtener la posición y el momento en cada instante de tiempo, $\mathbf{r}(t)$ y $\mathbf{p}(t)$ respectivamente. A través de las ecuaciones de Hamilton se obtiene un conjunto de 18 ecuaciones acopladas a resolver:

$$\frac{dq_i}{dt} = \frac{\partial H}{\partial p_i} \quad (2.2a)$$

$$\frac{dp_i}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial q_i}, \quad (2.2b)$$

donde 2.2a corresponde a la evolución temporal de las posiciones y 2.2b sus co-

2.1. CTMC

respondientes momentos.

Las condiciones iniciales para resolver éste conjunto de ecuaciones diferenciales se definen como *inicialización del sistema*:

Se define la coordenada z como la dirección de colisión, inicialmente, el proyectil es ubicado en una posición \mathbf{r}_0 lejana del origen del sistema de referencia de tal forma que no perturba el blanco, se ubica el proyectil varias centenas sobre $-z$, a una distancia b y con un ángulo azimutal ϕ alrededor de este eje. Entonces, b se define como el *parámetro de impacto* de la colisión, su valor es sorteado en el rango donde un determinado proceso tiene probabilidad de ocurrir. Para cada simulación del proceso se mantiene la distancia $-z$ al blanco y se redefinen los valores b y ϕ de tal forma de obtener una distribución estadísticamente homogénea.

El momento lineal inicial del proyectil es definido sólo en la dirección de colisión, paralelo al eje z , esto implica $p_x = p_y = 0$ y

$$p_z = 0.2 m_a \sqrt{E_a}, \quad (2.3)$$

donde E_a es la energía del proyectil por unidad de masa atómica: keV/amu , la constante 0.2 aparece al hacer el cambio de variable teniendo en cuenta que: 1 a.u. de energía = 27.2116 eV y 1 amu = 1822.8 m_e (masa del electrón).

Bajo estas consideraciones, quedan definidas las condiciones iniciales \mathbf{r}_0 y \mathbf{p}_0 del proyectil, en el que se asume un flujo incidente monoenergético.

La inicialización del electrón orbitando alrededor del núcleo es obtenida acorde a su distribución microcanónica. Una *distribución microcanónica* es un conjunto estadístico que representa los posibles estados físicos (posición y velocidad) para un sistema mecánico de energía constante. En nuestro modelo de 3-cuerpos, la distribución electrónica en el espacio de fases es:

$$\rho(\mathbf{r}, \mathbf{p}) = k \delta(E_c - p^2/2\mu - V(r)), \quad (2.4)$$

donde k es la constante de normalización, E_c es la energía de enlace o *potencial de ionización* del electrón activo y μ la masa reducida núcleo-electrón. Es posible obtener la distribución radial $\rho(r, E_c)$ y la distribución de momento $\rho(p, E_c)$

2.1. CTMC

integrando la ecuación 2.4, respectivamente:

$$\rho(r, E_c) = (16/\pi R_0^3) r^2 (R_0/r - 1)^{1/2}, \quad (2.5)$$

y

$$\rho(p, E_c) = (32/\pi P_0^3) p^2 (p^2/P_0^2 + 1)^{-4}, \quad (2.6)$$

donde $R_0 = Ze^2/E_c$ y $P_0^2 = 2mE_c$. En la Figura 2.2 ambas distribuciones clásicas se comparan con sus respectivas distribuciones cuánticas.

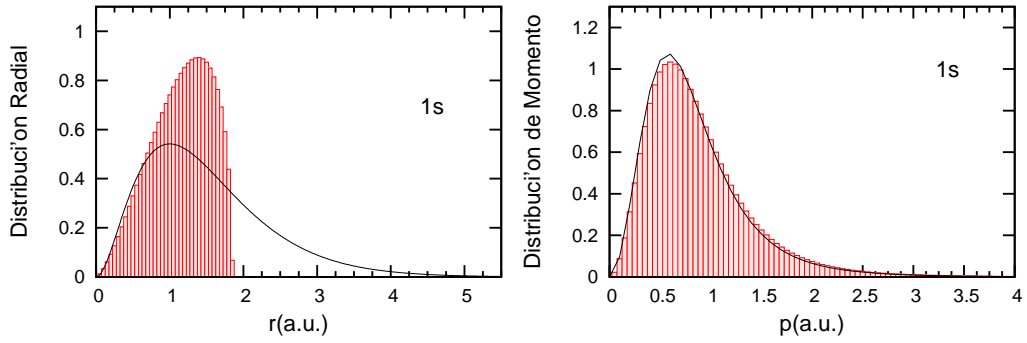


Figura 2.2: Distribución radial (izq.) y Distribución de momento (der.) para un electrón orbitando en el estado fundamental del átomo de hidrógeno. Se comparan las distribuciones microcanónicas clásicas (columnas rojas) con sus respectivas distribuciones cuánticas (línea negra).

Se observa, que la distribución clásica de momento recupera la distribución cuántica de forma exacta.

Se define *punto de retorno clásico* como el valor de r máximo, respecto al núcleo, que limita el movimiento de la partícula orbitando, se deduce fácilmente desde la ecuación de conservación de energía para $\dot{r} = 0$ (coordenadas esféricas). Se observa que la distribución microcanónica tiene su punto de retorno clásico en $r_{ret} \sim 2$ a.u., mientras que la distribución radial cuántica para H(1s) cae exponencialmente extendiéndose más allá de 4 a.u. Esta discrepancia hace que el modelo clásico del blanco no describa correctamente su extensión espacial,

2.1. CTMC

obteniendo blancos geoméricamente más pequeños a los reales. Notar que la distribución microcanónica clásica tiene su máximo alrededor de $r = 1.4$ a.u. en contraste a su par cuántica que se hace máxima para $r = 1$ a.u. Para r pequeño, ambas distribuciones son semejantes.

La distribución radial y la distribución de momento no son independientes, esto significa que la posición y el momento del electrón orbitando están vinculados por la ecuación de conservación de energía. Entonces, las coordenadas electrónicas son confinadas al intervalo:

$$p^2/2\mu = E_c - Z/r > 0, \quad (2.7)$$

Las coordenadas iniciales del electrón orbitando se hallan sorteando el valor de r o p aleatoriamente sobre sus respectivas distribuciones y por medio de la ecuación 2.7 queda definido el espacio de fases del electrón. Además, cuatro números aleatorios adicionales son necesarios para fijar \mathbf{r}_c y \mathbf{p}_c iniciales. Con el fin de obtener una distribución esférica homogénea se debe hacer un cambio de variable, la transformación $(\mathbf{r}, \mathbf{p}) \rightarrow (r, p, \nu_r, \nu_p, \phi_r, \phi_p)$. Las coordenadas electrónicas iniciales quedan definidas como^[31]:

$$\begin{aligned} r_x &= r(1 - \nu_r^2)^{1/2} \cos(\phi_r), \\ r_y &= r(1 - \nu_r^2)^{1/2} \sen(\phi_r), \\ r_z &= r\nu_r, \\ p_x &= p(1 - \nu_p^2)^{1/2} \cos(\phi_p), \\ p_y &= p(1 - \nu_p^2)^{1/2} \sen(\phi_p), \\ p_z &= p\nu_p. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Las condiciones iniciales del núcleo del blanco son fácilmente calculadas a partir de la ecuación 2.8. Las coordenadas del blanco se definen ubicando en el centro de masa del blanco el origen del sistema de coordenadas con momento nulo.

El sistema de ecuaciones 2.2a, 2.2b con las condiciones iniciales para cada partícula involucrada determinan la física del proceso. La dinámica de *la colisión* es resuelta por el método de integración Runge-Kutta de cuarto orden. Este

2.1. CTMC

método es adecuado debido a su fácil interpretación y su capacidad de variar el tamaño del paso temporal a lo largo de la simulación. Este último requisito es esencial para optimizar el tiempo de cálculo computacional, ya que no es raro que el paso temporal pueda variar tres órdenes de magnitud durante una simulación completa.

2.1.2. Método de integración Runge-Kutta

Numerosos problemas en física e ingeniería son descritos en forma de ecuaciones diferenciales. Por ejemplo, el movimiento de partículas clásicas son descritos por la ecuación de Newton, representada por una ecuación diferencial de segundo orden en el tiempo; el movimiento de una partícula cuántica descrito por la ecuación de Schrödinger involucra una ecuación diferencial a derivadas parciales de primer orden en el tiempo y de segundo orden en sus coordenadas. La dinámica y estática de materiales como líquidos y sólidos son igualmente descritos por medio de ecuaciones diferenciales. Las ecuaciones de Maxwell son un conjunto de ecuaciones diferenciales a derivadas parciales acopladas que describen el electromagnetismo.

Un algoritmo numérico (o algoritmo computacional) se define como un conjunto completo de pasos lógicos para resolver un problema. Como se dijo anteriormente, el comportamiento de un sistema dinámico puede ser descrito por un conjunto de ecuaciones diferenciales de primer orden. La forma general de una ecuación diferencial a resolver es:

$$\frac{dq}{dt}(t) = f(q, t). \quad (2.9)$$

Matemáticamente, esta ecuación puede resolverse mediante una aproximación numérica a primer orden como,

$$\frac{dq}{dt} \simeq \frac{q_{i+1} - q_i}{t_{i+1} - t_i} \simeq f(q_i, t_i), \quad (2.10)$$

2.1. CTMC

o escrita en forma de integral como,

$$q_{i+1} = q_i + \int_{t_i}^{t_{i+1}} f(q, t) dt, \quad (2.11)$$

siempre es posible obtener la solución de esta ecuación si la condición inicial $q(t_i) = q_i$ es conocida. Notar que los índices i e $i + 1$ denotan el paso temporal. Con un intervalo de tiempo fijo es posible definir $\tau = t_{i+1} - t_i$. Reescribiendo [2.10](#),

$$q_{i+1} = q_i + \tau f(q_i, t_i) + O(\tau^2). \quad (2.12)$$

Este método se conoce como algoritmo de *Euler* y permite hallar el valor de la función $q(t_{i+1}) = q_{i+1}$ partiendo del valor conocido en t_i . El término $O(\tau^2)$ está asociado al error numérico. Hay dos fuentes principales de error asociado a un esquema numérico de integración para ecuaciones diferenciales ordinarias, llamados: *error de truncamiento* y *error de redondeo*. El error de truncamiento surge a partir de la aproximación lineal entre dos puntos (t_i y t_{i+1}) de la curva $q(t)$ que no es generalmente una línea recta, como se supuso anteriormente. El error de truncamiento asociado es fácilmente evaluado por una expansión en Taylor de $q(t)$ alrededor $t = t_i$:

$$q(t_{i+1}) = q(t_i + \tau) = q(t_i) + \tau f'(q_i, t_i) + \frac{\tau^2}{2} f''(q_i, t_i) + \dots \quad (2.13)$$

Por otra parte, el error de redondeo surge al tener un número finito de decimales y depende de la capacidad de cálculo computacional. Es fácil inferir que en grandes longitudes de paso temporal el error está dominado por error de truncamiento, mientras que el error de redondeo domina en longitudes pequeñas de paso temporal. Para la aproximación en la ecuación [2.10](#), el error total se expresa como:

$$\varepsilon \sim \frac{\eta}{\tau} + \tau, \quad (2.14)$$

donde η expresa el error de redondeo y τ el error de truncamiento. Existen algoritmos más complejos y estables en los cuales es posible disminuir el error total.

El método Runge-Kutta para integrar ecuaciones diferenciales ordinarias fue

2.1. CTMC

desarrollado por los matemáticos alemanes C.D.T. Runge y M.W. Kutta en la segunda mitad del siglo XIX^[32]. El formalismo general del método Runge-Kutta, deriva de dos expansiones en Taylor; en sus variables dinámicas y sobre sus derivadas. La aproximación aparece mediante la ampliación de $f(q, t)$ sobre el punto medio del intervalo de integración:

$$f(q, t) \simeq f(q_{i+1/2}, t_i + \tau/2) + (t - t_i + \tau/2) \frac{df}{dt} \Big|_{t_i + \tau/2} + O(\tau^2). \quad (2.15)$$

Cuando esta expresión se sustituye en la ecuación 2.11, la integral en t desaparece en el intervalo $\tau = (t_{i+1} - t_i)$. En términos matemáticos,

$$\int_{t_i}^{t_{i+1}} f(q_{i+1/2}, t_i + \tau/2) + (t - t_i + \tau/2) \frac{df}{dt} \Big|_{t_i + \tau/2} dt \simeq \tau f(q_{i+1/2}, t_i + \tau/2). \quad (2.16)$$

Por lo tanto, rescribiendo para q_{i+1} se obtiene:

$$q_{i+1} \simeq q_i + \tau f(q_{i+1/2}, t_i + \tau/2), \quad (2.17)$$

donde

$$q_{i+1/2} \simeq q_i + \frac{\tau}{2} f(q_i, t_i). \quad (2.18)$$

Desarrollando,

$$q_{i+1} \simeq q_i + \tau f \left[q_i + \frac{\tau}{2} f(q_i, t_i), t_i + \tau/2 \right] + O(\tau^3). \quad (2.19)$$

A este algoritmo se lo conoce como *Runge-Kutta de segundo orden* y es un algoritmo de orden superior al de Euler, a pesar de que utiliza el mismo número de términos. Además, es la herramienta para entender el método Runge-Kutta de cuarto orden. El mérito del método es que provee de un excelente balance en la conservación de energía del sistema, precisión y simplicidad de programación. Es posible definir cuatro k_i condiciones para proporcionar una aproximación $f(q, t)$

2.1. CTMC

alrededor del punto medio, definidos:

$$\begin{aligned}
 k_1 &= \tau f(q_i, t_i), \\
 k_2 &= \tau f(q_i + k_1/2, t_i + \tau/2), \\
 k_3 &= \tau f(q_i + k_2/2, t_i + \tau/2), \\
 k_4 &= \tau f(q_i + k_3, t_i + \tau), \\
 q_{i+1} &= q_i + \frac{k_1}{6} + \frac{k_2}{3} + \frac{k_3}{3} + \frac{k_4}{6} + O(\tau^5).
 \end{aligned} \tag{2.20}$$

Esta metodología se conoce como *Runge-Kutta de cuarto orden* de paso τ fijo. Es lógico que el error de truncamiento disminuya a medida que τ se hace más pequeño, pero existe un compromiso entre el tamaño del paso y el tiempo computacional. Sin embargo, es posible introducir un paso temporal variable para adaptar el error deseado en cada problema a resolver.

En este trabajo, asumimos que el error de redondeo es despreciable, ya que se ha utilizado una precisión de 10^{-16} . Las ecuaciones se integran en el tiempo como variable independiente y se adapta la longitud del paso temporal en función del error de truncamiento deseado. El error relativo, para el un cuerpo orbitando alrededor de un núcleo fijo está dado por la relación $|\Delta \mathbf{r}|/|\mathbf{r}|$, donde $\Delta \mathbf{r}$ es el vector de cambio posicional luego de un paso. Debido a que el potencial es una potencia inversa de la distancia, ésta es también una medida del error relativo en la energía. Se expresa como:

$$|\Delta \mathbf{r}| \simeq \epsilon |\mathbf{r}|, \tag{2.21}$$

donde el parámetro ϵ es el error menor a la unidad. Esta definición es invariante a la componente angular θ y el intervalo temporal se encuentra en la componente velocidad v . A partir de las ecuaciones cinemáticas en dos puntos \mathbf{r}_0 y \mathbf{r}_1 (un paso) se deduce:

$$\Delta \mathbf{r} = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0 = \mathbf{v}_0 \Delta t + \frac{1}{2} \dot{\mathbf{v}} \Delta t^2, \tag{2.22}$$

donde se toma la aceleración $\dot{\mathbf{v}}$ constante para un paso corto. Multiplicando esta ecuación por $\Delta \mathbf{r}/r^2 \Delta t^2$ el error relativo máximo que se obtiene es:

$$\frac{\epsilon^2}{\Delta t^2} = \frac{v^2}{r^2} + \frac{\epsilon}{2} \frac{|\dot{\mathbf{v}}|}{r}. \tag{2.23}$$

2.1. CTMC

El valor de ϵ es definido en base al error de cálculo deseado, es fijo para cada paso de cada trayectoria y es el mismo para todas las trayectorias.

Para órbitas elípticas en las que r varía de 0.14 a 1.0, el intervalo Δt varía un factor 40 aproximadamente. Se encontró, mediante integración por repetición con diferentes valores de ϵ , que el error aumenta a medida que el parámetro del momento angular β se hace más pequeño^[29], este parámetro se define como

$$\beta = l^2 / l_{max}^2, \quad (2.24)$$

donde $l^2 = (\mathbf{r} \times \mathbf{p})^2$ es el cuadrado del momento angular clásico y $l_{max}^2 = 2\mu Z^2 / (p_0^2 + 2\mu|E_0|)$, el cuadrado del valor máximo del momento angular (correspondiente a una órbita circular), con energía $|E_0|$, momento p_0 y masa reducida μ . El parámetro β toma valores en el rango $0 \leq \beta \leq 1$ y representa la excentricidad de la órbita. Valores de $\beta^I \rightarrow 0$ y valores $l^I \leq 0.1 l_{max}^I$ representan orbitales hidrogenoides iniciales de alta excentricidad (el superíndice I indica estado inicial). Para evitar que el error aumente y quitarle la dependencia en β se multiplica ϵ por un factor $(\beta^I)^{1/4}$.

En la Figura 2.3 se muestra, a modo de ejemplo, la variación temporal Δt a lo largo de una colisión particular en la que H^+ colisiona sobre $H(1s)$ con una energía de 6.25 keV. Se observa que el tamaño del paso oscila periódicamente, esta oscilación se corresponde con la excentricidad del electrón orbitando. La colisión corresponde a un proceso de excitación en la que el proyectil disminuye la excentricidad de la órbita. La importancia del paso adaptativo se observa en la figura, donde para esta trayectoria particular Δt varía en dos órdenes de magnitud.

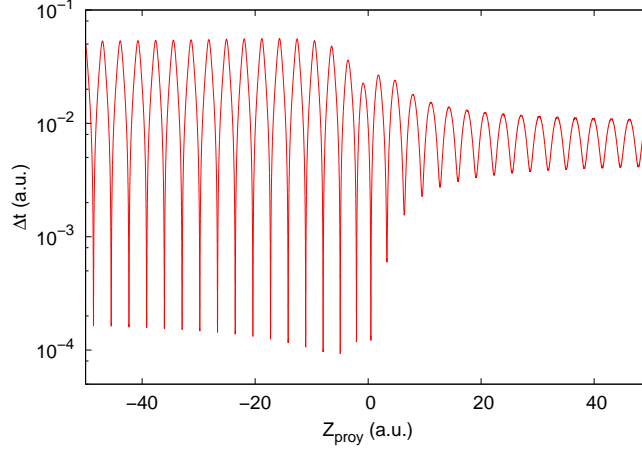


Figura 2.3: Diagrama del paso temporal en función de la coordenada z del proyectil, para un proceso de excitación del blanco.

El proceso de colisión es resuelto en el tiempo, partiendo de las condiciones iniciales hasta lograr un comportamiento asintótico de los cuerpos involucrados luego de la colisión. Entonces, la evolución temporal es interrumpida cuando se considera que ha convergido el producto de la colisión.

Dependiendo del blanco y el proyectil involucrado en el experimento, varios procesos pueden tener lugar. Para nuestro modelo de tres cuerpos, H^+ impactando sobre H neutro, es posible obtener: ionización electrónica, captura o excitación. Ellos son determinados y estudiados en el *análisis final*.

2.1.3. Sección Eficaz Clásica

El método de trayectorias clásicas Monte Carlo, describe \mathbf{r} y \mathbf{p} de cada partícula involucrada en la colisión para todo instante t del proceso, por lo tanto, es posible hallar fácilmente la energía del electrón respecto al núcleo (blanco o proyectil) en cualquier instante de la colisión. La energía del electrón se expresa como:

$$E_{ic} = \frac{p_{ic}^2}{2\mu_{ic}} + V(r_{ic}), \quad (2.25)$$

2.1. CTMC

donde el subíndice i hace referencia al núcleo, c al electrón. El término μ_{ic} es la masa relativa, el término p_{ic} hace referencia a la energía cinética del electrón respecto al núcleo y el término $V(r_{ic})$ se corresponde a la interacción electrón-núcleo. Se define un electrón ligado al núcleo, cuando su energía respecto al mismo es negativa.

Existen dos condiciones para finalizar una colisión, la primera es que el proyectil se aleje del blanco una distancia en la que su interacción sea despreciable luego de la colisión, y la segunda es que el electrón no se encuentre ligado a ambos núcleos. Si una de estas condiciones no se cumple, se agregan pasos temporales hasta que sea posible clasificar el proceso.

Se identifica una reacción particular con la energía del electrón respecto a ambos núcleos como:

$$\begin{aligned} E_{ac} > 0 \quad \text{y} \quad E_{bc} < 0 & \quad \text{excitación,} \\ E_{ac} > 0 \quad \text{y} \quad E_{bc} > 0 & \quad \text{ionización,} \\ E_{ac} < 0 \quad \text{y} \quad E_{bc} > 0 & \quad \text{captura.} \end{aligned}$$

La *sección eficaz total*, σ_R , de una reacción particular se define como,

$$\sigma_R = \frac{N_R}{N_{tot}} \pi b_{\text{máx}}^2, \quad (2.26)$$

donde N_R es el número de eventos de la reacción particular y N_{tot} el número total de partículas incidentes contenidas en la sección de radio $b_{\text{máx}}$, correspondiente al parámetro de impacto máximo. El error de desviación estándar puede ser estimado por un método estadístico usual sabiendo que la distribución estadística es binomial

$$\Delta\sigma_R = \sigma_R \left(\frac{N_{tot} - N_R}{N_{tot} N_R} \right)^{1/2}. \quad (2.27)$$

2.1.4. Captura a Estados Selectivos

Una ventaja del modelo CTMC es su aplicabilidad a altos estados de captura y excitación electrónica, que no son fáciles de resolver en métodos cuánticos basados en expansiones en bases de funciones. Al ser el CTMC un método clásico, los estados ligados no son discretos, y por este motivo es necesario relacionar el

2.1. CTMC

estado clásico con el estado cuántico (n, l, m) .

En orden de identificar el estado cuántico (n, l, m) final de captura correspondiente a una dada trayectoria clásica, el espacio de fases del electrón en su órbita clásica debe ser particionado en “cajones”, donde cada uno de ellos puede estar asociado con un conjunto de estados (n, l, m) definidos. Para ello se hace uso del principio de pesos proporcionales (clásicos y cuánticos) propuestos por Becker y MacKellar en 1984^[33].

Brevemente, se define el número clásico n_c a partir de la energía de enlace E del electrón activo, ya sea relativa al proyectil (captura de electrones) o al núcleo blanco (excitación). En primer lugar se utiliza la relación hidrogenoide:

$$E = -\frac{Z^2}{2n_c^2}, \quad (2.28)$$

en esta ecuación n_c se relaciona con el número cuántico principal n , según la relación derivada por Becker y MacKellar^[33]:

$$[(n-1)(n-1/2)n]^{1/3} \leq n_c < [n(n+1/2)(n+1)]^{1/3}. \quad (2.29)$$

Para n grandes este intervalo es aproximadamente $(n-1/2) \leq n_c \leq (n+1/2)$, pero para $n=1$ se tiene $0 \leq n_c \leq 3^{1/3}$.

El momento angular clásico es normalizado para evitar estados angulares no permitidos de la forma $l_c = (n/n_c)(\mathbf{r} \times \mathbf{k})$, donde \mathbf{r} y \mathbf{k} son la posición y el momento relativos al proyectil, se relaciona el momento angular clásico l_c con el momento angular cuántico l del estado capturado por

$$l \leq l_c < l + 1. \quad (2.30)$$

El estado m es determinado como,

$$\frac{2m-1}{2l-1} \leq \frac{l_z}{l_c} < \frac{2m+1}{2l+1}, \quad (2.31)$$

donde l_z es la proyección del momento angular sobre la coordenada z .^[34]

A partir de los estados discretizados de captura (o excitación), la sección eficaz

2.1. CTMC

del estado (n, l, m) es dada por

$$\sigma_{nlm} = \frac{N(n, l, m)}{N_{tot}} \pi b_{m\acute{a}x}^2, \quad (2.32)$$

donde $N(n, l, m)$ es el numero de eventos de electrones capturados al nivel (n, l, m) . En esta expresion, N_{tot} y $b_{m\acute{a}x}$ siguen siendo el numero total de trayectorias integradas y el parametro de impacto maximo, respectivamente.

La captura electronica y la excitacion del blanco quedan completamente descriptas con el presente tratamiento.

2.1.5. Ionizacion Electronica

La ionizacion electronica es cuantificada a partir de los electrones libres luego del proceso de colision. Como el metodo CTMC nos brinda las coordenadas del espacio de fase en todo instante, es trivial conocer la posicion y velocidad de cada electron libre al finalizar cada colision.

La seccion eficaz total de ionizacion se calcula de la misma forma que en la ecuacion 2.26, en este caso N_R sera el numero total de partıculas ionizadas.

La seccion eficaz diferencial se halla filtrando los electrones de una determinada energıa E , o los electrones emitidos en direccion de un diferencial de angulo solido $d\Omega$ determinado. De este modo, el numero N_R de la ecuacion 2.26 se corresponde con el numero de electrones filtrados para el proceso deseado.

2.1.6. Ionizacion versus Captura

En esta seccion, se pone a prueba el sistema de 3-cuerpos CTMC descrito en el presente capıtulo, donde H^+ colisiona con $H(1s)$. Por lo tanto, en la Figura 2.4 se muestra la captura electronica y la ionizacion en funcion de la energıa de colision del proyectil.

A priori, se observa en la figura buen acuerdo del modelo CTMC con los datos experimentales publicados en todo el rango mostrado. Una inspeccion mas detallada evidencia que la ionizacion electronica es subestimada en todo el rango estudiado, mientras que la captura electronica el CTMC subestima los datos experimentales a bajas energıas de impacto y los sobreestima a altas energıas. Se

2.1. CTMC

debe tener en cuenta que este modelo CTMC con distribuciones microcanónicas (Figura 2.2) es el modelo atómico más simple que describe el proceso de colisión. En los siguientes capítulos se describirán modelos más elaborados que se han desarrollado a lo largo del presente trabajo.

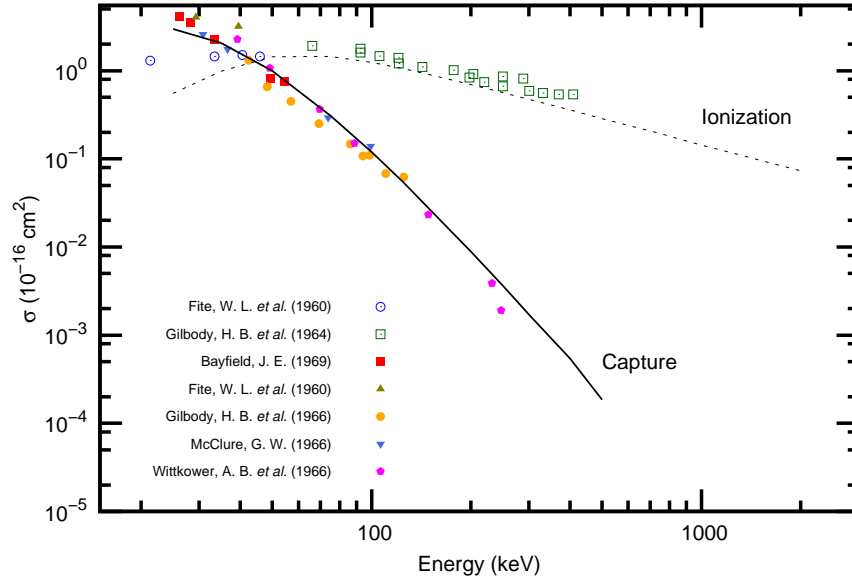


Figura 2.4: Sección eficaz de captura e ionización electrónica para H^+ colionando sobre $\text{H}(1s)$ en función de la energía de impacto. Resultados teóricos del modelo CTMC son contrastados con datos experimentales. Ionización: Fite *et al.* (1960) (círculo abierto azul)^[35], Gilbody *et al.* (1964) (cuadrado abierto verde)^[36], CTMC (línea discontinua negra). Capture: Bayfield (1969) (cuadrado cerrado rojo)^[37], Fite *et al.* (1960) (triángulo verde hacia arriba)^[35], Gilbody *et al.* (1966) (círculo cerrado amarillo)^[38], McClure (1966) (triángulo celeste invertido)^[39], Wittkower *et al.* (1966) (pentágono magenta)^[40], CTMC (línea continua negra).

A fin de que el lector pueda visualizar una trayectoria clásica Monte Carlo, en las Figuras 2.5 y 2.6 se muestran un proceso de captura y un proceso de ionización electrónica para el problema de tres cuerpos. Ambos procesos corresponden a H^+ colisionando a 100 keV sobre H.

2.1. CTMC

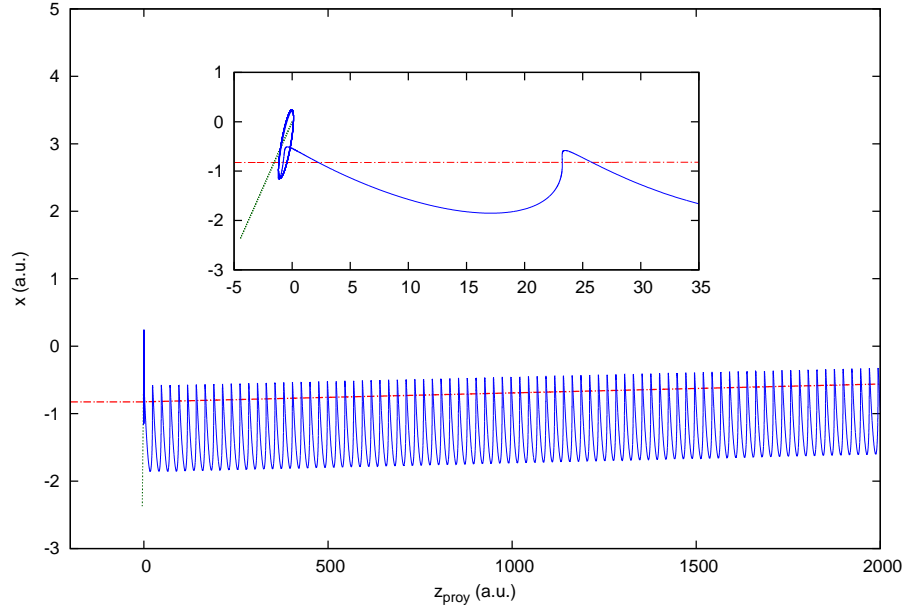


Figura 2.5: Esquema de un proceso de captura para H^+ colisionando a 100 keV sobre H. Se grafican las posiciones x y z de cada partícula en función de la coordenada z del proyectil. El proyectil es representado por la línea trazos-puntos roja, el electrón por la línea continua azul y el blanco por por la línea punteada verde.

En ambas Figuras 2.5 y 2.6 se muestra el plano $x-z$ para toda la colisión. Para ello se grafican las coordenadas x y z de cada partícula en función de la coordenada z del proyectil. Entonces, el proyectil es representado por la línea roja, el electrón por la línea azul y el núcleo blanco por por la línea verde.

En Figura 2.5 se observa el proceso de captura. Al no ser un gráfico temporal se observa la foto de la colisión completa pero se debe tener en cuenta que hasta que el proyectil no se encuentra lo suficientemente cerca para interactuar con el blanco, el electrón presenta una órbita estacionaria alrededor de su núcleo. Luego del intercambio de carga, el núcleo del blanco adquiere un momento de retroceso por conservación de la energía del sistema, éste mecanismo es el que se observa en la figura.

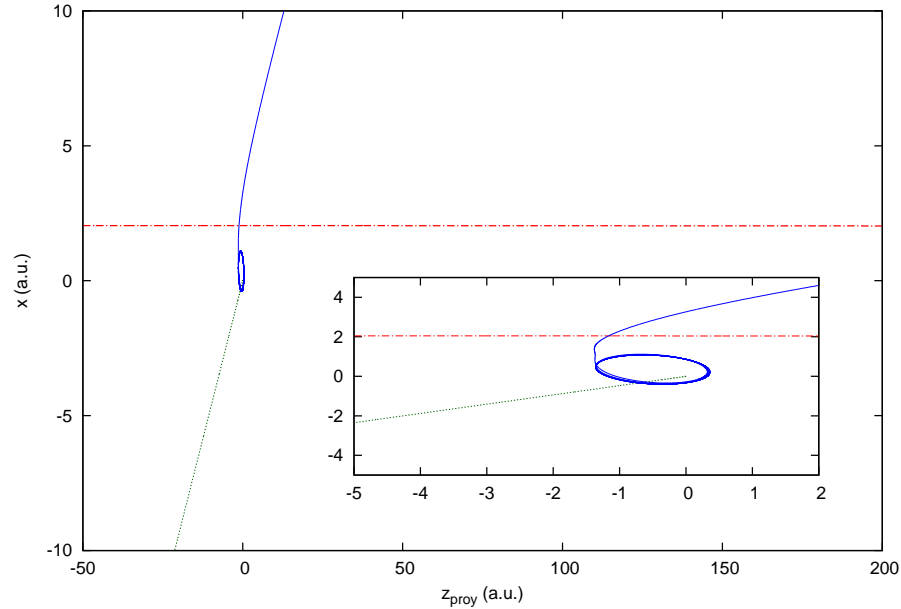


Figura 2.6: Esquema de un proceso de ionización para H^+ colisionando a 100 keV sobre H. Se grafican las posiciones x y z de cada partícula en función de la coordenada z del proyectil. El proyectil es representado por la línea trazos-puntos roja, el electrón por la línea continua azul y el blanco por por la línea punteada verde.

En Figura 2.6 se presenta un esquema similar para un proceso de ionización para H^+ colisionando a 100 keV sobre H, las partículas se representan de igual forma que en la Figura 2.5.

2.2. El problema de múltiples cuerpos

Hasta aquí se ha descrito la metodología CTMC para un sistema más simple de tres cuerpos, el de un ion colisionando sobre un átomo de hidrógeno en su estado fundamental. Se ha puesto a prueba el modelo comparando nuestras secciones eficaces de ionización y captura con datos experimentales de distintos laboratorios de alrededor del mundo obteniendo buen acuerdo. Por lo tanto, establecidas las bases de la metodología es posible extender la misma a un sistema

2.2. CTMC

de N partículas.

Desde la descripción de la mecánica clásica, en unidades atómicas ($m_e = \hbar = e = 1$) el Hamiltoniano clásico para un sistema de N cuerpos viene dado por

$$H = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{m_i} + \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^N V_{ij}(r_{ij}), \quad (2.33)$$

donde los índices i y j corren sobre los N cuerpos. p_i es el momento y m_i es la masa de cada partícula i . V_{ij} es el potencial de interacción entre la partícula i y j que se encuentran a la distancia r_{ij} . El término de interacción V_{ij} corresponde a la energía potencial entre ambas partículas.

La interacción entre dos partículas es modelada dependiendo del proceso a describir. En este trabajo se utilizaron diferentes potenciales de interacción entre partículas. El más simple es el potencial de Coulomb de la forma,

$$V_{ij}(r_{ij}) = \frac{Z_i Z_j}{r_{ij}}, \quad (2.34)$$

aquí Z_i y Z_j representan las cargas de las partículas involucradas. Este tipo de potencial se utiliza para representar interacciones electrón–electrón, electrón–protón, o cualquier tipo de potencial Coulombiano como el generado por iones desnudos.

Para representar sistemas más complejos, como electrón-ion, en que la interacción se puede representar mediante un potencial Coulombiano modificado por uno de corto alcance, se utiliza el potencial creado por Garvey *et al.* en 1975^[41], dado por

$$V_{ij}(r_{ij}) = \frac{Z_i [Z_j - (N - 1)(1 - \Omega_j(r_{ij}))]}{r_{ij}}, \quad (2.35)$$

donde,

$$\Omega_j(r_{ij}) = \frac{1}{(\eta_j/\xi_j)(e^{\xi_j r_{ij}} - 1) + 1}. \quad (2.36)$$

En esta ecuación, los parámetros del electrón se indican con el subíndice i y los del ion con j . Este tipo de potencial es tal que para $r_{ij} \rightarrow 0$, es decir para distancias cortas, el electrón experimenta la carga nuclear, pero para r_{ij} grandes el

electrón experimenta la carga asintótica del ion. En este potencial los parámetros η y ξ son los calculados en el trabajo de Garvey *et al.*^[41]. Otros potenciales similares se han publicado en la literatura para blancos de He por ejemplo^[42].

Estos dos potenciales son los utilizados para describir interacciones de electrones e iones en general, pero se han utilizado o desarrollado diversos potenciales para modelar interacciones con distintas moléculas estudiadas como H₂, CO y H₂O que serán detalladas para cada caso particular a medida que se las requieran en los siguientes capítulos.

2.2.1. Tratamiento del Mecanismo de Captura Electrónica Múltiple

Los procesos en los que se involucran blancos multielectrónicos permiten que el proyectil vea una densidad electrónica correcta en la colisión. Esto hace que los procesos físicos de captura múltiple están implícitos en el proceso sin necesidad de utilizar modelos probabilísticos basados en modelados de 1-electrón activo para obtener secciones eficaces de captura múltiple.

Al ser el modelo CTMC un método clásico, las interacciones interelectrónicas a través de potenciales Coulombianos producen inestabilidad que conducen a la autoionización no-física; ya sea en el estado inicial del blanco como en procesos de captura múltiples sobre el proyectil luego de la colisión. Por lo tanto, las interacciones interelectrónicas no son descritas en el Hamiltoniano. En consecuencia, es posible que la captura electrónica sea sobreestimada, especialmente en proyectiles altamente cargados.

La captura múltiple técnicamente puede contener todos los electrones involucrados. En estos casos, un tratamiento dinámico de desintegración Auger en base a las interacciones individuales no es factible. Por lo que la captura múltiple es tratada de acuerdo a una generalización del esquema de desintegración desarrollado por Ali *et al.* en 1994^[43]. En síntesis, el tratamiento es el siguiente:

- (i) Captura múltiple a estados excitados es estabilizada a través de múltiples procesos Auger.
- (ii) Se consideran sólo dos electrones intervinientes en cada proceso Auger.

2.3. CTMC

- (iii) Las transiciones que involucran electrones en el mismo estado n proceden primero. Si varios electrones se encuentran en un mismo estado n , el proceso Auger involucra los dos electrones que son energéticamente más próximos.
- (iv) Si más de dos electrones se encuentran en distintos estados n (por ejemplo, en tres n distintos entre sí), el par energéticamente más cercano procede primero.
- (v) En una transición Auger un electrón alcanza el límite continuo ($E \geq 0$), con probabilidad total, mientras que su par cae al nivel n establecido de acuerdo a la ley de conservación de energía.
- (vi) Si la nueva configuración todavía provee de múltiples estados excitados que involucran más de dos electrones, estas reglas se vuelven a aplicar hasta obtener sólo dos electrones ligados al proyectil.
- (vii) Estados finales de dos electrones para el cual $n_2 < n_1$ se procede:
 - I. Estados finales con $n_2 - n_1 \geq 2$ se caracteriza como decaimiento radiativo (Rad. Dec.).
 - II. Estados finales con $n_2 - n_1 < 2$ se caracteriza por captura múltiple autoionizante (AutoMC).

En adición a este conjunto de reglas, el momento angular de los electrones que decaen se determina durante el proceso Auger al exigir la preservación de sus respectivas excentricidades orbitales. El hecho de que este modelo conserve la información del momento angular (l) de los electrones durante el proceso Auger hace que se vuelva innecesario el uso *ad-hoc* de distribuciones planas (donde cada subcapa l es uniformemente poblada) o distribuciones estadísticas (donde se toma en cuenta la multiplicidad m).

Se espera naturalmente que este tratamiento sea más preciso a medida que la carga del proyectil aumente.

2.3. Región de Validez del CTMC

Se ha demostrado que el método CTMC tiene una región de aplicabilidad para colisiones ion-átomo en el régimen de velocidades intermedias, en particular para núcleos altamente cargados en sistema de colisión dinámica con electrones. El método puede ser considerado un método semiclásico en el sentido que las condiciones iniciales para las órbitas de los electrones alrededor del núcleo son determinadas a través de potenciales cuánticos. Siendo el método más aplicable a sistemas acoplados fuertemente, se ha aplicado con éxito a una variedad de energías intermedias para colisiones de iones altamente cargados. En la Figura 2.7 se describe gráficamente las regiones de validez de distintos modelos teóricos^[8]. El método close coupling de orbitales moleculares (MOCC) (por sus siglas en inglés Molecular Orbits Close Coupling) y método orbital atómico (AOCC) (por sus siglas en inglés Atomic Orbits Close Coupling) son métodos que involucran expansiones en bases de funciones que funcionan bien hasta que la ionización comienza a mediar la colisión, ya que la descripción teórica de ionización no está bien fundada y se basa en pseudoestados para abarcar la energía y ángulos de los electrones expulsados. Estos métodos están limitados a la relación de carga, Z_P/Z_T , de $\simeq 10$, ya que por encima de este valor el número de términos en el conjunto de base se vuelve prohibitivamente grande.

El método CTMC no incluye efectos moleculares, por lo tanto está restringido para bajas velocidades, excepto en el caso de proyectiles altamente cargados donde los electrones son capturados en altos estados Rydberg (un átomo Rydberg es un átomo excitado con uno o más electrones que tienen un número cuántico principal n muy alto.), que están bien descriptos clásicamente.

2.4. CTMC

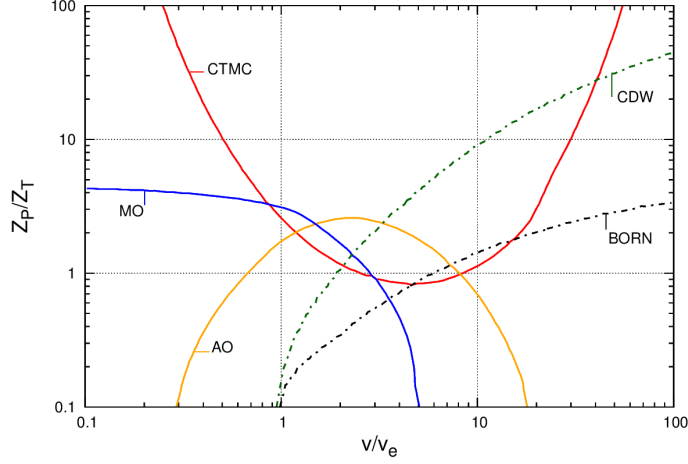


Figura 2.7: Regiones de validez aproximadas de varios métodos teóricos. Z_P/Z_T es la razón entre la carga del proyectil y la carga del blanco, v/v_e es la razón entre la velocidad de colisión y la velocidad del electrón activo. Métodos teóricos: Orbitales moleculares (MO), orbitales atómicos (AO), trayectoria clásica de Monte Carlo (CTMC), ondas distorsionadas al continuo (CDW) y teoría de perturbación a primer orden (BORN). Las regiones de validez son las zonas marcadas por las leyendas, señaladas con líneas.

Asimismo, a altas velocidades el método no es aplicable en el régimen de perturbación donde el efecto túnel cuántico es importante, y por lo tanto se limita a sistemas fuertemente acoplados. El método continuo de onda distorsionada (CDW) se extiende en gran medida a la región de aplicabilidad de los métodos de perturbación de primer orden y ha demostrado su validez en ionización por colisiones de altos estados de carga.

2.4. Aplicabilidad del método CTMC

Una aplicación ideal del método CTMC es para colisiones que implican blancos excitados. Estos procesos están bien descritos clásicamente y los métodos básicos de expansión muestran aplicabilidad limitada debido al tamaño de bases involucradas para describir los estados excitados. Los primeros trabajos en con-

2.4. CTMC

siderar colisiones atómicas Rydberg, que incluyen captura electrónica a estados selectivos, ionización y campos eléctricos fueron realizados por Olson^[44–46]. Posteriormente y en la actualidad, hay un resurgimiento en trabajos sobre colisiones atómicas Rydberg debido a la nueva técnica experimental de campos cruzados que permiten la producción de átomos con orientaciones y excentricidades espaciales específicas^[47].

Para los procesos de colisión de iones con iones hidrogenoides, se debe tener cuidado al aplicar el método CTMC sólo para cargas de proyectiles $Z_P \geq Z_T$ porque luego de la inicialización de la órbita de un electrón activo a una dada energía, no hay ninguna restricción clásica en la energía orbital del electrón capturado. Para un ion de bajo estado de carga colisionando con un ion altamente cargado en su estado fundamental, se obtendrá un resultado no físico porque un electrón capturado tenderá a conservar su energía de enlace inicial. Por lo tanto, se calculará por exceso la probabilidad, poco realista, de electrones en estados profundamente ligados al proyectil.

El estudio de colisiones con proyectiles de antimateria, como positrones y antiprotones, es un campo de rápido crecimiento que está siendo impulsado por los avances experimentales recientes. Tales procesos de dispersión son de interés básico y contribuyen a una mejor comprensión de las colisiones de la materia con átomos. Estudios antimateria-átomos resaltan las diferencias subyacentes en la dinámica de la colisión, así como en la dispersión total. En la aproximación de Born, las secciones eficaces de ionización tienen una dependencia cuadrática con la carga del proyectil y son independientes de su masa. Por lo tanto, la comparación de las secciones eficaces de dispersión de electrones, positrones, protones y antiprotones por un blanco específico da una indicación directa de correcciones de orden superior a las teorías de dispersión.

Los primeros trabajos basados en el método CTMC se concentraron en los espectros de electrones ionizados para proyectiles de antimateria realizados por Olson y Gay en 1988^[48]. Trabajos posteriores se centraron en la dispersión angular de los proyectiles durante colisiones de aniquilación electrónica, así como la formación de positrones, en proporciones de las secciones eficaces de aniquilación de electrones. Una revisión que compara varios resultados teóricos y experimentales disponibles fue realizada por Schultz *et al.*^[49].

2.4. CTMC

Un atributo importante del método CTMC es que incluye inherentemente el movimiento de las partículas pesadas después de la colisión. Una trayectoria en línea recta por el proyectil no es físicamente real, ni es el blanco obligado a permanecer fijo. El método CTMC permite computar fácilmente las secciones eficaces diferenciales para la dispersión del proyectil o los momentos en retroceso del blanco. Secciones eficaces para blancos en retroceso y la dispersión de proyectil fueron estudiados por Olson *et al.*^[50] y Cocke *et al.*^[51].

El campo de la espectroscopía de momento de iones en retroceso se está expandiendo rápidamente y el método teórico CTMC ha sabido interpretar y comprender los resultados experimentales debido a que el método proporciona inherentemente una descripción cinemática completa de los productos de colisión. Para los sistemas estudiados experimentalmente, principalmente blancos de He, es necesario que el método teórico sea capaz de describir todos los electrones removidos y las partículas pesadas después de la colisión. Por ejemplo, ha sido posible observar el retroceso del núcleo del blanco en las reacciones de captura electrónica, que es debido a la conservación del momento cuando el electrón activo se transfiere desde el blanco al proyectil^[52]. Métodos teóricos se están probando con el reciente desarrollo de las trampas magneto-ópticas (MOT) para blancos atómicos congelados de metales alcalinos que proporcionan información para realizar estudios de iones en retroceso^[53].

El método CTMC permite medir el momento de todos los productos involucrados en la colisión. En este sentido, las observaciones experimentales proporcionan una prueba severa a los métodos teóricos, ya que todas las interacciones deben ser incluidas en los cálculos. El método CTMC incluye todas las interacciones con el núcleo de proyectil, el blanco y los electrones. Así, es posible calcular secciones eficaces totalmente diferenciales. Es interesante que los cálculos de las secciones eficaces triplemente diferenciales utilizando el método CTMC comparan muy favorablemente con el sofisticado método de onda distorsionada al continuo^[54].

La técnica CTMC permite incorporar electrones tanto al proyectil como a los centros nucleares. Se incluyen todas las interacciones entre los centros. La única interacción que necesita ser aproximada son las interacciones electrón-electrón en un centro dado. En este caso, parámetros de apantallamiento derivados de cálculos Hartree-Fock se emplean para eliminar la autoionización no-física. Dentro de los

modelos de muchos electrones, se toman todas las interacciones electrón–núcleos sobre la dinámica de las colisiones^[55,56]. Además, es posible realizar estudios de ionización desde el proyectil^[57].

2.5. Espectro en Líneas de Emisión

2.5.1. La aproximación dipolar

En un proceso de captura electrónica por impacto de iones, un método de análisis que es ampliamente utilizado para describir el proceso de captura en las colisiones lentas es el modelo COB (Classical Over–the Barrier). El número cuántico principal del estado de captura dominante, n_c , predicho por el modelo está dado por

$$n_c = \frac{q^{3/4}}{\sqrt{I_p/13.6}}, \quad (2.37)$$

donde q es el estado de carga del proyectil e I_p es la energía potencial de ionización en eV del blanco^[58]. Por lo tanto, el nivel más probable de captura electrónica es proporcional a la carga del proyectil a la $3/4$. En consecuencia, a medida que se aumenta el estado de carga del proyectil la captura se producirá a un estado excitado. Por lo tanto, el electrón caerá al estado de mínima energía a través de una serie de transiciones radiativas.

Las transiciones radiativas son estudiadas experimentalmente a través de espectroscopía fotónica, a partir de estos estudios es posible inferir indirectamente el estado de captura electrónica. A lo largo de este trabajo se han estudiados procesos de captura electrónica y las consecuentes líneas de emisión fotónica. El estudio de las transiciones radiativas se realizó a través de lo que se denomina *la aproximación dipolar*.

Desde las reglas de selección cuánticas se conoce que una transición electromagnética radiativa del estado ligado (n, l, m) al estado (n', l', m') debe cumplir con las condiciones:

$$\begin{aligned} \Delta l &= \pm 1, \\ \Delta m &= 0, \pm 1, \end{aligned} \quad (2.38)$$

referidas al momento angular orbital y al número cuántico magnético, respec-

2.5. CTMC

tivamente. La componente del número cuántico magnético m , se relaciona con con la dirección de polarización del fotón emitido, $\Delta m = 0$ se corresponde con polarización paralela al campo y $\Delta m = \pm 1$ con polarización perpendicular.

La energía $E_n = -Z^2/2n^2$ de estados ligados n para un átomo hidrogenoide se ha verificado mediante mediciones de espectrometría con alto grado de exactitud. La línea espectral del fotón emitido en una transición del electrón del estado cuántico n al estado cuántico n' con frecuencia $\nu_{nn'}$ es

$$\nu_{nn'} = \frac{1}{2\pi}(E_n - E_{n'}) = \frac{Z^2}{4\pi} \left(\frac{1}{n'^2} - \frac{1}{n^2} \right), \quad n' < n, \quad (2.39)$$

en unidades atómicas,

$$Z^2 \left(\frac{1}{n'^2} - \frac{1}{n^2} \right) Ry, \quad (2.40)$$

donde Z es la carga del proyectil y Ry es la constante de Rydberg igual a 13.605 eV .

Las transiciones permitidas entre los niveles más bajos del átomo de hidrógeno se ilustran en la la Figura 2.8. Además, se muestran las longitudes de onda para algunas líneas, teniendo en cuenta la ecuación de Planck-Einstein $\lambda = hc/E$, con h la constante de Planck y c la velocidad de la luz.

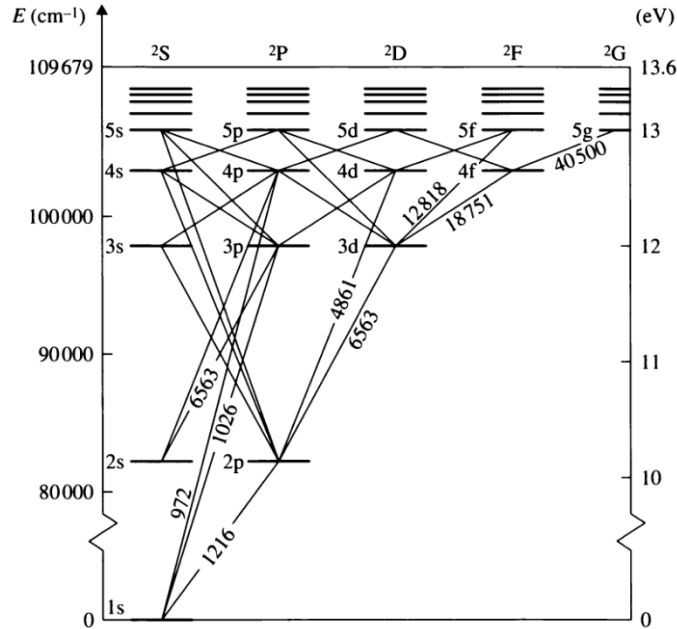


Figura 2.8: Las transiciones permitidas entre los niveles más bajos de hidrógeno atómico. La ordenada muestra la energía por encima del estado fundamental $1s$ en cm^{-1} a la izquierda y en eV a la derecha, ($8065 \text{ cm}^{-1} = 1 \text{ eV}$). Los números contra las líneas indican la longitud de onda en \AA ngström ($1 \text{ \AA} = 10^{-8} \text{ cm}$). Para mayor claridad las longitudes de onda se muestran sólo para una selección de líneas. [59]

2.6. Secciones Eficaces de Líneas de Emisión

En la presente sección se detalla el desarrollo del cálculo de las secciones eficaces de líneas de emisión basándose en la aproximación dipolar para transiciones radiativas hidrogenoides.

En orden de obtener secciones eficaces de emisión fotónica $\sigma_{n,l,m \rightarrow n',l',m'}^{(em)}$, se suman las contribuciones que provienen de la emisión de estados excitados $n'' > n$ y son multiplicadas por la probabilidad de transición radiativa $b_{l \rightarrow l'}$ calculada por Bethe y Salpeter [60] y por las intensidades de líneas relativas $S_{l,m_l \rightarrow l',m'_l}$ [34].

2.6. CTMC

Entonces, se definen las secciones eficaces de líneas de emisión como

$$\sigma_{n,l,m \rightarrow n',l',m'}^{(em)} = b_{l \rightarrow l'} S_{l,m_l \rightarrow l',m'_l} \left(\sigma_{n,l,m_l}^{(capt)} + \sum_{\substack{n'' > n \\ l'',m''_l}} \sigma_{n'',l'',m''_l \rightarrow n,l,m_l}^{(em)} \right), \quad (2.41)$$

con

$$S_{l,m_l \rightarrow l',m'_l} = (2l+1) \begin{pmatrix} l' & 1 & l \\ -m'_l & (m'_l - m_l) & m_l \end{pmatrix}^2. \quad (2.42)$$

La intensidad de líneas relativas es normalizada tal que

$$\sum_{m'_l=m_l-1}^{m_l+1} S_{l,m_l \rightarrow l',m'_l} = 1. \quad (2.43)$$

Las series espectrales del hidrógeno se caracterizan según su estado final n ; la serie Lyman se corresponde con las transiciones del hidrógeno de un electrón de un estado inicial $np'' \geq 2$ a un estado final ($1s$), sus longitudes de ondas corresponden al ultravioleta. Para otros iones hidrogenoides de mayor carga (C^{6+} , N^{7+} y O^{8+}) dichas transiciones se corresponden con rayos-X. A modo de ejemplo, la línea Ly- α para el H correspondiente a la transición $2p \rightarrow 1s$ tiene una energía de 10.2044 eV, mientras que para He^{2+} y C^{6+} la energía de la línea Ly- α es 40.8174 eV y 367.357 eV respectivamente. Los cuales pertenecen al rango de los rayos-X.

Capítulo 3

Captura electrónica selectiva del ion He^+ sobre H_2 a energías intermedias

3.1. Introducción

A pesar de los grandes avances logrados en las últimas décadas en dispositivos y técnicas experimentales, así como en el desarrollo y mejora de modelos teóricos existentes, el estudio de iones colisionando con blancos moleculares aún representa un área que sigue estando, en gran medida, sin explorar. El interés particular en estos sistemas de colisión radica en su rol potencial en diversas áreas, tales como la radiobiología y la astrofísica. En el primer caso, se observa que se necesitan secciones eficaces para proveer a los diferentes métodos estadísticos que hacen un seguimiento de la deposición de energía^[61]. En el caso astrofísico, se puede citar el reciente descubrimiento de la emisión de rayos X desde cometas y que se origina por los procesos de intercambio de carga entre los iones del viento solar y los gases cometarios en la coma del cometa^[62,63]. Más tarde se encontró que el mismo mecanismo se aplica a las atmósferas planetarias^[64].

Además, desde 1970, el programa de fusión de plasma en tokamaks ha llevado a la necesidad de determinación teórica y experimental de secciones eficaces de intercambio de carga. La emisión fotónica que le sigue a la captura electrónica a

3.1. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

estados excitados en blancos de hidrógeno se ha utilizado en tokamaks como una herramienta de diagnóstico para determinar concentraciones de iones de impurezas, temperatura y rotación del plasma^[65]. Un rol adicional para las reacciones de intercambio de carga se prevé en el programa ITER en Cadarache (Francia)^[66]. Se espera que el intercambio de carga por iones altamente cargados seguido por emisión fotónica elimine el riesgo de localización de calor en los divertores y sobre las paredes del reactor.

La necesidad de secciones eficaces diferenciales para procesos de intercambio de cargas y de ionización por iones altamente cargados en diferentes campos, impulsó el desarrollo de técnicas experimentales innovadoras. Entre ellas, se destaca la metodología de Espectroscopía de Iones en Retroceso para Blanco Congelado (COLTRIMS por sus siglas en inglés), desarrollada por los grupos de Frankfurt y Heidelberg a mediados de la década de 1990^[67]. Estos experimentos, cinemáticamente completos, proveen (a través de la incorporación de flujos de proyectiles supersónicos, blancos congelados y mediciones sincronizadas entre el proyectil y los fragmentos de reacción) una nueva perspectiva para el estudio de procesos de colisión de iones, electrones o fotones sobre átomos y moléculas^[68,69]. Varios trabajos que fueron considerados prohibitivos hasta entonces, como la determinación de secciones eficaces de intercambio de carga a estados selectivos en colisiones ion-átomo o estudios de procesos de colisión en función del parámetro de impacto, se convirtieron en técnicamente posibles^[70,71]. Una ventaja adicional de la configuración antes mencionada es su ductilidad, ya que además de procesos de intercambio de carga, procesos de ionización (simples y múltiples) por partículas cargadas o fotones se han estudiado a nivel completamente diferencial a lo largo de los años (^[72-74] y referencias en ellos).

Más recientemente, se han implementado blancos congelados por medio de enfriamiento láser y confinados a través de trampas magnéticas. Este método ha sido denominado MOTRIMS (por Espectroscopía de Iones en Retroceso para Blanco Congelado a través de Trampa Magneto-Óptica), para distinguirlo de la configuración COLTRIMS clásica^[53,75,76]. En un avance experimental reciente, el grupo del KVI, que recientemente fue trasladado a la Universidad de Groningen (Holanda), presentó datos experimentales para intercambio de carga a estados selectivos de diversos iones como N^{5+} , O^{6+} , Ne^{8+} y Xe^{18+} colisionando sobre $\text{Na}(3s)$

3.1. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

y $\text{Na}^*(3p)$, medido por el método MOTRIMS^[77-81]. Estos trabajos proporcionan buenas estimaciones de las secciones eficaces de intercambio de carga para el blanco $\text{H}^*(n=2)$, de particular importancia para el programa de fusión en tokamak, debido a que sus energías de ionización son cercanas ($V_{ion}^{H^*(n=2)} = 3.4 \text{ eV}$, $V_{ion}^{Na(3s)} = 5.14 \text{ eV}$ y $V_{ion}^{Na^*(3p)} = 3.04 \text{ eV}$). Como resultado de ello, y en vista de las capacidades potenciales de la técnica COLTRIMS, durante la última década, varios laboratorios de todo el mundo comenzaron a trabajar en sus propios dispositivos.

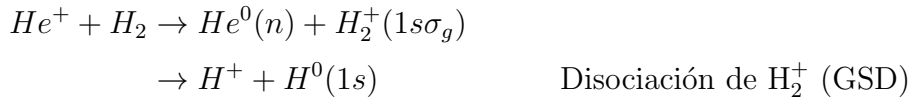
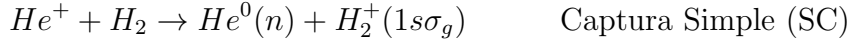
El estudio de intercambio de carga por colisiones, además de su interés en las aplicaciones arriba mencionadas, también es pertinente para la comprensión intrínseca de la colisión en el reordenamiento de varios cuerpos en la reacción. En este sentido, el trabajo experimental proporciona valiosa información que puede ser útil para validar los modelos teóricos referenciales. En este contexto, es de gran interés el estudio de sistemas relativamente simples, que constan de proyectiles livianos colisionando sobre blancos simples. Siendo H_2 la molécula neutra más simple, ha recibido mucha atención desde el punto de vista experimental. Los primeros trabajos experimentales se centraron en la determinación de secciones eficaces totales absolutas y se basaron en los mismos métodos espectroscópicos utilizados para estudiar procesos de ionización y fragmentación^[82-86]. En las primeras mediciones, algunos laboratorios fueron capaces de separar las contribuciones de captura electrónica simple de los diferentes canales de ionización electrónica^[87]. Un gran número de mediciones se han realizado en blancos moleculares y atómicos con proyectiles de iones desnudos como He^{2+} ^[88-96] entre otras referencias. En algunos de estos trabajos se utilizaron técnicas tradicionales para obtener secciones eficaces totales, en otros se utilizaron la espectroscopía de emisión fotónica que permite el estudio de canales de captura a estados excitados y la espectroscopía de intercambio de energía que permite la detección de todos los canales de captura.

Este trabajo teórico-experimental fue realizado en conjunto con el grupo experimental del Dr. Pedro Focke utilizando la configuración COLTRIMS operada por la División de Colisiones Atómicas del Centro Atómico Bariloche (Argentina) para explorar reacciones de intercambio de carga simple en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2$. Este sistema simple, que consiste en un proyectil semi-desnudo y la molécula

3.1. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

diatómica más simple, representa un campo desafiante para el modelado teórico por el hecho de que el proyectil y el blanco tienen cargas del mismo orden. Los primeros trabajos teórico–experimentales en colisiones de intercambio de carga simple de este sistema fueron realizados por Pollack y Hahn^[97] para el régimen de energías intermedias donde la velocidad relativa de colisión es menor a la velocidad orbital de los electrones. El citado trabajo experimental se realizó en el marco de espectroscopía de líneas de emisión y de intercambio energético.

Los experimentos COLTRIMS se concentraron más intensamente en el estudio de los procesos de colisión que implican proyectiles iónicos altamente cargados y desnudos. Estudios de estados selectivos relacionados con el sistema actual se realizaron con proyectiles hidrogenoides y proyectiles de tipo helioides^[98,99]. Para el presente sistema de colisión, hay cuatro posibles canales que conducen a la captura de un electrón por el proyectil,



A partir del dispositivo COLTRIMS–Bariloche, las mediciones experimentales se limitan a la captura electrónica selectiva a los distintos estado n del proyectil mientras el blanco iónico permanece en el estado $1s\sigma_g$ SC. Experimentalmente se miden las distribuciones del vector momento en retroceso \mathbf{p} del ion H_2^+ , en base a estas distribuciones es posible obtener:

- (a) las secciones eficaces selectiva de captura simple al estado n , a través de la componente paralela de \mathbf{p} con respecto a la dirección del haz incidente, es decir, p_{\parallel} .

- (b) la distribución de momento transversal p_t , la cual proporciona información sobre la dispersión angular sufrida por el proyectil durante todo el proceso.

La resolución del espectrómetro del grupo COLTRIMS–Bariloche utilizado permite separar las contribuciones correspondientes a los estados (1,1) de (2,1) + (3,1). El estado (1,1) corresponde a captura al estado fundamental, el estado (2,1) contiene las contribuciones de los estados: 2^3S , 2^1S , 2^3P y 2^1P , mientras que el estado (3,1), proviene de las contribuciones de los estados: 3^3S , 3^1S , 3^1P , 3^3P , 3^3D y 3^1D , de los estados del He.

Este capítulo está organizado de la siguiente manera: En las Secciones 3.2 y 3.3 se resume brevemente la configuración experimental. En la Sección 3.4 se desarrolla el principio de aproximación de Franck Condon, herramienta utilizada para describir la dinámica molecular. En la Sección 3.5 se ofrece una breve descripción del modelo CTMC empleada para analizar teóricamente los datos experimentales. En la Sección 3.6 se presentan, contrastan y discuten los resultados obtenidos. Por último, en la Sección 3.7, se describen nuestras conclusiones.

3.2. El dispositivo COLTRIMS–Bariloche

El dispositivo COLTRIMS–Bariloche se encuentra instalado en el acelerador Cockroft–Walton de 300 kV, ubicado en la División de Colisiones Atómicas del Centro Atómico Bariloche. Este dispositivo permite estudiar diversos procesos de colisiones a partir de la cinemática de los iones resultantes de las mismas. En la Figura 3.1 se observa el esquema para un haz de proyectiles cargados proveniente de un acelerador, que incide en la dirección x . El mismo es colimado y dirigido, por medio de campos eléctricos, hacia una zona de colisión ubicada en la región central de un espectrómetro electrostático, aquí el haz incidente impacta con un blanco gaseoso o jet enfriado (inyectado en la dirección y). Los iones resultantes de la colisión son acelerados por medio de un campo eléctrico uniforme (dirección z) (campo de extracción), hacia la superficie de un detector posicional bidimensional, constituido por *Micro–Channelplates* MCPs y un ánodo por línea de retraso. El haz de proyectiles emergente de la colisión es detectado por medio de un sistema de channeltrons (CEM *Channel Electron Multipliers*). Con

3.2. He⁺ + H₂

esta estructura experimental, utilizando una configuración de electrónica ultrarápida, se realizan mediciones en coincidencia entre proyectil-ion emergente. Esto permite obtener las tres componentes de momento de los iones resultantes de la colisión. Para ello, a partir de la medición de las coordenadas de impacto sobre el MCP, se obtiene la componente de momento longitudinal p_x , en dirección del proyectil y una de las componentes transversales, en la dirección del jet p_y . Adicionalmente con la medición del tiempo de vuelo del ion, se determina la otra componente transversal p_z , dada por la dirección del campo de extracción.

En el caso del COLTRIMS-Bariloche, para el rango de energías intermedias de interés en este trabajo, los momentos transferidos que se requieren medir son del orden o menores a 1 a.u., con tiempos de vuelo de los fragmentos del orden de 1 μ seg y tiempos de vuelo de los proyectiles del orden de 0.1 μ seg.

Si bien en 2013 el grupo del Dr. Focke implementó un sistema de enfriamiento externo del blanco, al momento de realizar este estudio el equipo no contaba con enfriamiento externo. Es decir que el blanco consiste de un jet supersónico gaseoso enfriado por medio de la propia expansión adiabática del gas. Se trabaja con blancos de densidades del orden de $10^{11} - 10^{12}$ part./cm³ y con temperaturas inferiores o del orden de los 10 K, dependiendo del gas blanco utilizado.

Todo el equipamiento trabaja bajo configuraciones de alto vacío, con presiones de base de la cámara central de colisiones del orden de $10^{-7} - 10^{-8}$ Torr, también dependiendo del blanco.

El equipo tal como está dispuesto en la actualidad, es apto para trabajar en el acelerador Kevatron, con haces de proyectiles livianos, en un rango de energías comprendidas entre 20 – 300 kV, de un haz continuo. El haz de proyectiles debe estar suficientemente colimado, del orden de 1 mm² de sección. Los mismos registran corrientes de unos pocos nA, dependiendo del tipo de proyectil, de la colimación del mismo y del trayecto del experimento donde se mide la corriente. La línea de medición contempla la utilización de proyectiles neutros por medio de la incorporación de una cámara de intercambio de carga.

Más detalles de la configuración experimental y los métodos utilizados para procesar los datos medidos se describen en las Referencias^[100,101].

3.3. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

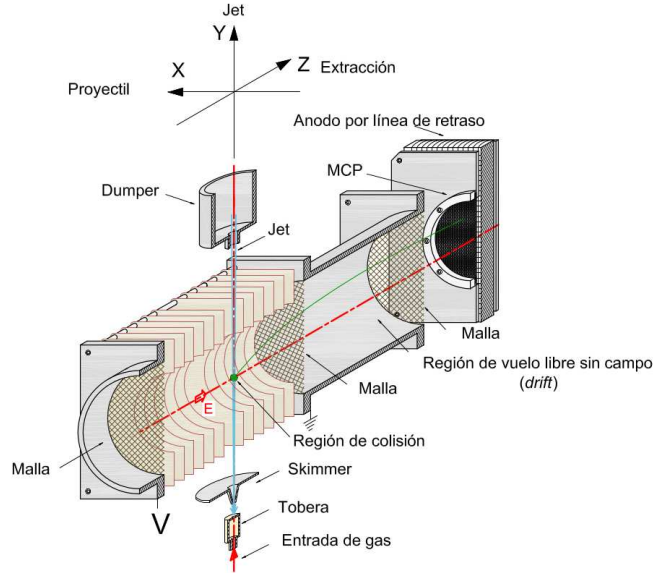


Figura 3.1: Esquema de instalación del dispositivo espectroscópico. El diagrama muestra un corte por el plano de simetría yz . Se muestran los ejes de coordenadas utilizados: el haz de iones para los proyectiles a lo largo de la dirección x , el gas del blanco es inyectado a lo largo del eje y , y el campo de extracción eléctrica a lo largo del eje z .

3.3. Proceso Experimental

El experimento fue realizado por el grupo del Dr. Focke en el dispositivo COLTRIMS–Bariloche. El mismo consiste en un flujo incidente de iones de $^4\text{He}^+$ con energías entre 25 keV y 200 keV que colisiona con el blanco molecular de H_2 . Con la ayuda de campos electromagnéticos débiles se extraen los iones remanentes hacia el detector donde se miden conjuntamente los tiempos de vuelo y las posiciones en coincidencia con los proyectiles neutros emergentes. Finalmente, a través de las ecuaciones de cinemática, se calculan los momentos de los fragmentos iónicos emergentes.

El dispositivo se representa en la Figura 3.1 junto con el sistema de coordenadas utilizado en las presentes mediciones. El haz de iones se propaga a lo largo de la dirección x , el blanco gaseoso es inyectado en la dirección y y la espectrometría

3.3. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

se encuentra a lo largo de la dirección z .

El haz continuo de $^4\text{He}^+$, seleccionado magnéticamente, es emitido por el acelerador y es guiado a la cámara de colisión. Antes de entrar en la cámara de colisión, el haz de proyectiles debe ser colimado. Esto permite determinar la trayectoria y las dimensiones de la sección transversal del mismo. Como mecanismos de colimación se utilizan dos sistemas mecánicos de cuchillas, ubicados en la línea de transporte del haz. Los mismos consisten de cuatro cuchillas de acero inoxidable enfrentadas en forma de cruz, cuya posición es regulada en forma vertical y horizontal por cuatro tornillos micrométricos, que permiten producir un haz de aproximadamente $0.4 \times 0.6 \text{ mm}^2$ en la posición del blanco.

En general, en las líneas experimentales COLTRIMS se utilizan como blancos haces supersónicos. Los mismos son generados a partir de una fuente que consiste de una tobera (es decir, un depósito de gas con una apertura), junto con una región de escape del mismo hacia una zona de muy baja presión y un colimador del jet. En estos sistemas el flujo y la calidad del jet obtenido, está determinado por el tipo de gas, las condiciones de presión y temperatura del depósito y la forma de la tobera. En el presente trabajo, el blanco de impacto es generado a partir de la expansión adiabática del gas H_2 el cual es inyectado a alta presión, del orden de 2 bar en la tobera de $30 \mu\text{m}$ de diámetro. En general, una tobera es un dispositivo que convierte energía interna (térmica y presión) de un gas en expansión en energía cinética. Por conservación de la energía, el aumento de velocidad que sufre el gas en su recorrido a lo largo de la misma es acompañado por una disminución de su temperatura y presión. Luego, el jet atraviesa un colimador de 0.3 mm de diámetro hacia la precámara que se encuentra a una presión mucho menor, del orden de $2 \times 10^{-7} \text{ Torr}$. En consecuencia, se logra una densidad estimada del blanco en la región de colisión de $5 \times 10^{11} \text{ moléculas/cm}^3$ y una sección transversal estimada de 1.2 mm de diámetro.

Una vez producida la reacción, un campo electrostático homogéneo, a lo largo del eje z , extrae los iones remanentes, los cuales son proyectados sobre un detector. Para ello es necesario contar con un sistema de deflexión de haces a la salida del espectrómetro que permitan separar al proyectil en sus distintos estados de carga. Los campos eléctricos utilizados para las extracciones en las presentes mediciones se encuentran en el rango de 2 a 10 V/cm dependiendo de la energía de colisión.

3.4. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

El equipo de detección de los iones resultantes de la colisión cuenta con un ánodo por línea de retraso sensible a la posición de impacto de partículas cargadas y además permite medir los tiempos de vuelo de las partículas cargadas. Los proyectiles seleccionados golpean el detector que proporciona la señal de temporización utilizada para medir el tiempo de vuelo de los iones de retroceso y proporciona la condición de coincidencia ion–proyectil para el proceso de colisión a ser estudiado. A partir de mediciones de la posición y tiempo de vuelo de los iones en el detector, las tres componentes del momento inicial de las partículas son calculadas por medio de las ecuaciones de cinemática de los iones en el interior del espectrómetro tal como se describe en trabajos anteriores del grupo del Dr. Focke^[100].

Un punto importante que debe considerarse en espectroscopía de iones en retroceso es el momento inicial del blanco molecular. Para el presente blanco molecular H_2 se estima que, luego de la expansión adiabática, tiene una componente de momento a lo largo del eje y de $p_y = 5.0$ a.u. que resulta de la velocidad final del gas expandido. Además, un momento aleatorio en las moléculas se origina al abandonar el depósito sobre la temperatura inicial antes de la expansión. Usando modelos de conducción térmica S para H_2 propuestos por Miller^[102], se puede realizar una estimación aproximada de la temperatura del haz molecular que alcanza los 4 K. Este efecto añade una extensión de momento promedio de $\Delta p_y = \pm 0.24$ a.u. A lo largo de los ejes x y z , la propagación en el momento es descrito por la geometría del jet de gas. En la dirección del haz de proyectiles, se estima un margen de $p_x = \pm 0.06$ a.u., mientras que en la dirección perpendicular, se estima un margen de $p_z = \pm 0.03$ a.u.

3.4. Principio de Franck–Condon

En general, considerando los diferentes mecanismos de colisiones mencionados durante un proceso de captura en la introducción de este capítulo, se observa que el estado final del blanco se relaciona con las transiciones electrónicas ocurridas durante el proceso de colisión, las cuales pueden terminar en diferentes estados que van desde el ion H_2^+ , hasta la fragmentación de la molécula del blanco original. Considerando que los tiempos de colisión son del orden de 10^{-16} seg, y los tiem-

3.4. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

pos vibracionales de la molécula son del orden de 10^{-14} seg, se puede asumir que las transiciones electrónicas entre dos estados durante el proceso de colisión, son lo suficientemente rápidas como para despreciar el movimiento oscilatorio de los núcleos, por lo tanto la transición electrónica puede considerarse prácticamente instantánea y en una línea recta vertical, es decir a una distancia internuclear R constante. En estas transiciones la separación nuclear y la velocidad del movimiento nuclear relativo se alteran en una cantidad despreciable, es decir que la transición se efectúa tan rápidamente que el núcleo no tiene tiempo de moverse una distancia apreciable. Esta aproximación es lo que se conoce como el principio de Franck–Condon^[103], que conduce a una gran cantidad de posibles consecuencias sobre las transiciones electrónicas, que dependen de la forma de las curvas de energía potencial de los estados electrónicos finales e iniciales.

En 1926 Franck^[104], formula el principio para mecanismos de disociación de moléculas por absorción de luz en el marco de una teoría semiclásica y posteriormente Condon entre 1926 y 1928 la extendió dentro del marco cuántico no solo para procesos de foto-absorción, sino que formuló una teoría de intensidad de las transiciones en sistemas de bandas^[105,106]. En general, para una colisión ion–blanco, en el límite de altas velocidades, se puede considerar la aproximación dipolar^[59]. En ese caso, el campo eléctrico del ion incidente sobre el blanco, en promedio, puede considerarse que se comportaría como el campo eléctrico de un fotón, el cual es perpendicular a su trayectoria.

En nuestro caso, a pesar de no estar en el límite de altas velocidades, se utiliza el principio de Franck–Condon de manera cuantitativa para explicar las transiciones en colisiones ion–molécula.

En la Figura 3.2 se muestran las curvas de energía potencial para la molécula de H_2 , y los iones de H_2^+ y H_2^{2+} ^[107]. La molécula de H_2 en su estado inicial se describe por una función de onda vibracional inicial en el estado fundamental y en el estado electrónico $(1s\sigma_g)^2$. En el proceso de colisión, el proyectil colisiona con la molécula intercambiando energía, se aproxima el estado molecular postcolisional como una transición energética vertical dentro una región de separación internuclear aproximadamente constante dentro de la región denominada de Franck–Condon (FC). Se considera que la transición desde el estado fundamental ocurre a partir de dos puntos extremos en la energía potencial que desde

3.4. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

el punto de vista clásico, corresponden a los puntos extremos de un movimiento oscilatorio, donde la velocidad de los núcleos es cero. De este modo, se considera que la transición es prácticamente instantánea comparada con la escala de tiempo vibracional.

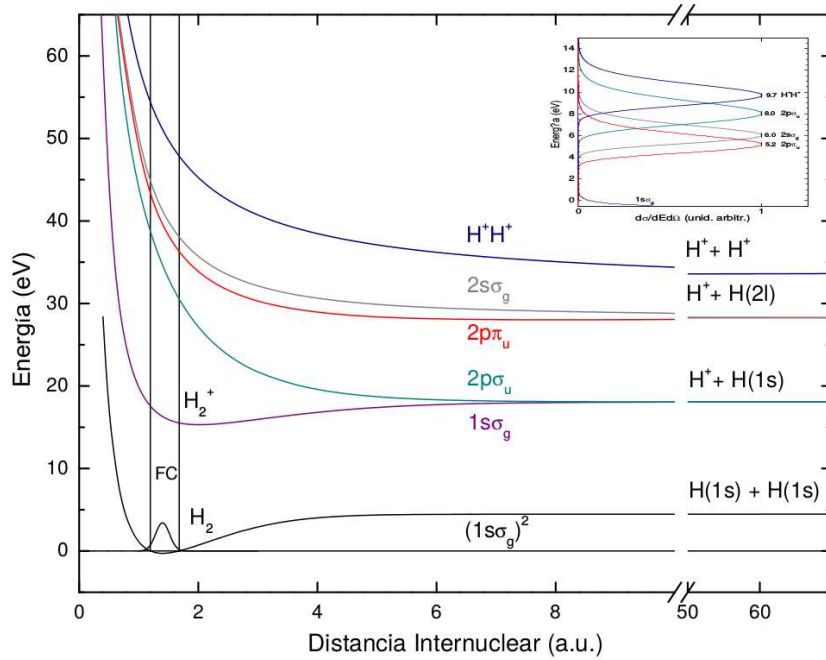


Figura 3.2: Curvas de energía potencial en función de la distancia internuclear, del estado fundamental $(1s\sigma_g)^2$ de la molécula H_2 , el estado fundamental $1s\sigma_g$ del ion H_2^+ y tres estados excitados $2p\sigma_\mu$, $2p\pi_\mu$ y $2s\sigma_g$. Puede apreciarse también el estado H^+H^+ del H_2^{2+} tras la pérdida de ambos electrones^[107]. Arriba se observa un detalle de la distribución de energías de protones de los estados mencionados.

Para procesos en que el proyectil excita un electrón de la molécula, H_2^* , dependiendo del proceso de colisión, la transición puede ocurrir a un estado por debajo del límite de fragmentación molecular, denominado estado vibracional discreto (H_2^*), o a un estado final de energía potencial que se encuentra por encima del límite asintótico y que corresponde a un estado disociativo ($\text{H}^* + \text{H}(1s)$ para $r \rightarrow \infty$), denominado estado vibracional del continuo.

En procesos en el que el proyectil excita ambos electrones de la molécula, H_2^{**} , las transiciones también pueden llevar a disociación molecular. Esta disociación

3.4. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

puede conducir a dos átomos neutros excitados ($\text{H}^* + \text{H}^*$) (disociación neutra), o a la ionización con un protón y un átomo neutro ($\text{H}^+ + \text{H}^* + e$). En caso de no producirse la disociación ocurre ionización de un electrón seguida de un decaimiento a estados excitados ($\text{H}_2^+ + e$). En este caso, la distribución de energía de los fragmentos depende de la distancia internuclear, la cual es creciente a partir de la excitación inicial y está determinada por el tiempo de decaimiento de los estados del H_2^{**} al estado H_2^+ .

Considerando los niveles vibracionales del ion de H_2^+ [108,109], como se grafican en la Figura 3.3, se observa que para el proceso de captura simple desde la molécula H_2 en su estado fundamental en el nivel vibracional $\nu = 0$, el estado final del ion de H_2^+ puede variar de acuerdo al nivel del estado vibracional final discretizado en todo el rango de niveles vibracionales comprendidos entre 15.43 y 18.08 eV del estado vibracional electrónico $1s\sigma_g$ del ion de H_2^+ .

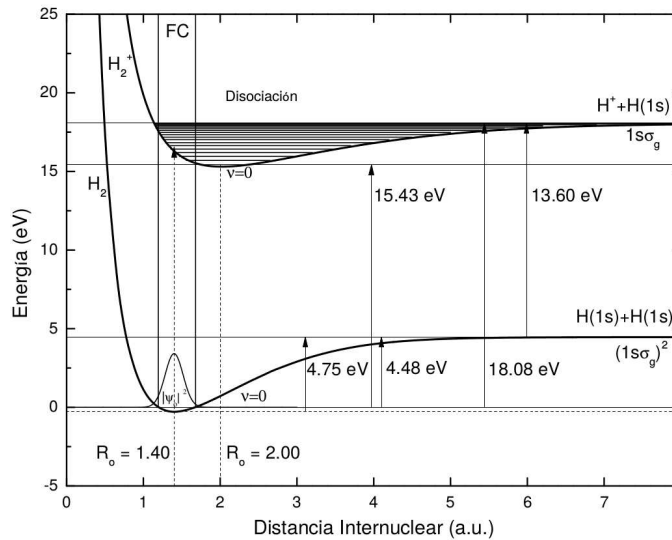


Figura 3.3: Curva de energía potencial de H_2 y H_2^+ junto con niveles vibracionales del ion H_2^+ [107-109].

La molécula de H_2 en una etapa previa a que el proyectil llegue a la región de colisión, se considera en el estado fundamental ($\nu = 0$), ya que a temperaturas del orden de los 10 K es el nivel dominante bajo un modelo poblacional de un oscilador armónico. A fines prácticos, en las simulaciones CTMC se considera el

mismo estado vibracional para todo el proceso de colisión.

Teniendo en cuenta que este trabajo experimentalmente se encuentra limitado a estudiar captura simple (SC), se considera el remanente proveniente del blanco molecular que es el ion de H_2^+ en el estado $1s\sigma_g$. A pesar de esto, en el modelo CTMC se tienen en cuenta los canales posibles para el presente sistema de colisión (SC, GSD, TI y TE), el criterio adoptado para discretizar los distintos canales se desarrolla en la siguiente sección.

3.5. Modelado Teórico

En este trabajo en colaboración, los datos experimentales se contrastan con nuestros resultados teóricos obtenidos por medio del método CTMC. El método de medición ha sido ampliamente descrito en la Sección 3.3 del presente capítulo y en publicaciones para colisiones ion-átomo^[16,29,31,110]. Trabajos relativos al método CTMC para blancos moleculares son más escasos^[21,96,111] debido a la mayor complejidad en la descripción del blanco inicial.

Se utiliza una extensión del método de CTMC presentado por Wood y Olson para estudiar ionización de dos electrones en colisiones con iones altamente cargados sobre H_2 ^[112], que ha sido adaptado para estudiar la captura electrónica simple. La metodología general utilizada es la desarrollada en el Capítulo 2, por lo tanto las ecuaciones de Hamilton se resuelven numéricamente por medio del método de integración Runge-Kutta de cuarto orden con un tamaño de paso adaptativo. Las interacciones entre las partículas (proyectil-blanco y electrón-blanco) están representados por las interacciones Coulombianas,

$$V(r_{ij}) = \frac{Z_i Z_j}{r_{ij}}. \quad (3.1)$$

A continuación se describe el esquema de inicialización. El estado inicial del blanco molecular se describe por dos átomos de hidrógeno independientes unidos por un potencial de Morse,

$$V_m(R) = D_e(1 - e^{-\beta_e(R-r_e)})^2, \quad (3.2)$$

donde D_e es la energía de disociación, R es la distancia de separación de los

3.5. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

centros atómicos, r_e es la distancia definida tal que $V_m(r_e)$ es mínimo, por último β_e es el parámetro de curvatura del potencial. Los valores para estos parámetros en V_m son determinados a partir de mediciones espectroscópicas^[113] que para H_2 , se tiene $D_e = 4.75$ eV, $r_e = 1.4$ a.u. y $\beta_e = 0.73$ a.u.

Cada electrón interactúa sólo con su núcleo atómico y la interacción electrón–electrón no es tenida en cuenta en la primera etapa de la colisión para evitar la inestabilidad clásica mencionada en la Sección 2.2.1. La posición y el momento inicial de cada electrón, referidos a su núcleo correspondiente, son determinados de acuerdo a una distribución microcanónica hidrogénica (Figura 2.2).

Inicialmente se asume que la molécula se encuentra en el estado vibracional fundamental ($\nu = 0$), la distancia de separación entre los núcleos es sorteada aleatoriamente sobre la distribución Gaussiana centrada alrededor del mínimo de potencial de Morse en $r_e = 1.4$ a.u. En nuestro tratamiento, el centro de masa del blanco se considera inmóvil. Por lo tanto, el impulso de cada núcleo es tal que el momento total de la molécula es nulo,

$$p_H = \pm \frac{P_{cm}}{2}, \quad (3.3)$$

Aquí, P_{cm} es el momento del centro de masa del sistema, dado por:

$$P_{cm} = \sqrt{2\mu[E_\nu - V_m(R)]}, \quad (3.4)$$

donde μ es la masa reducida de los dos átomos y E_ν es la energía del estado fundamental de vibración. El ángulo que define el eje intermolecular está orientado al azar, lo que conduce a una distribución isotrópica del blanco para el proceso de colisión.

En nuestro modelo dinámico, si un electrón alcanza el continuo con respecto a su correspondiente núcleo, las interacciones electrón–electrón y electrón–núcleo son encendidas paulatinamente en el Hamiltoniano. Se utilizó una función de conmutación definida por $1 - e^{-\gamma(t-t_0)}$, donde γ es una constante fija igual a 0.1 a.u. y t_0 es el tiempo en el que el electrón alcanza el continuo con respecto a su respectivo núcleo. Otros valores γ proporcionan secciones eficaces que difieren en un pequeño porcentaje de las obtenidos con el valor elegido. Además, cuando

3.5. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

uno de los electrones se emite desde su respectivo núcleo, las interacciones de Coulomb restantes también son paulatinamente encendidas y las cinco partículas interactúan unas con otras.

Un problema adicional surge en el presente caso que se corresponde con la naturaleza del proyectil parcialmente desnudo. Para representar la interacción electrón–proyectil en estos casos, se ha utilizado el modelo de potencial central desarrollado por Green *et al.*^[114] a partir de cálculos Hartree–Fock y, más tarde, generalizados por Garvey *et al.*^[41].

Entonces, para el cálculo de las secciones eficaces de captura selectiva al estado n , se ha utilizado el modelo desarrollado por Schultz *et al.*^[115], que introduce la carga efectiva $q(\epsilon)$, que representa la carga vista por el electrón capturado en función de su energía de enlace. Esta se muestra para el caso particular del He^+ en la siguiente Figura 3.4,

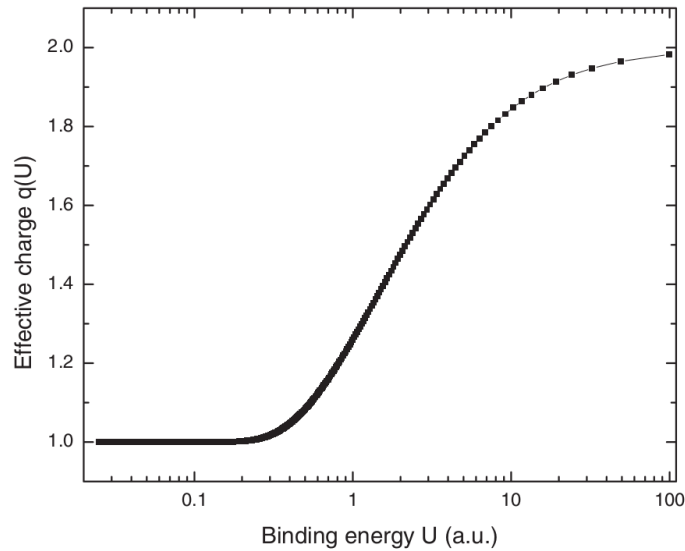


Figura 3.4: Gráfica de carga efectiva en función de la energía de ligadura (*binding energy*) ϵ , resultante del modelo de órbitas de Bohr, utilizada en el presente modelo teórico de CTMC, para emular la carga vista por el electrón capturado.

3.5. He⁺ + H₂

El valor de n clásico es inferido desde la ecuación de Bohr 2.28 reordenada,

$$n_c = \frac{q(\epsilon)}{(|2\epsilon|)^{1/2}}, \quad (3.5)$$

donde la relación, entre la carga efectiva y la energía de ligadura ϵ se obtiene de la condición de órbita de Bohr:

$$\epsilon(r) = -\frac{V_G(r)}{2}. \quad (3.6)$$

En la Figura 3.4, se muestra la carga efectiva en función de la energía de ligadura para el ion de He⁺. Dicha curva determina la forma en que el modelo del potencial de Garvey se ajustará a las energías de ionización experimentales. Este es un procedimiento imperfecto, pero es un método mejorado para establecer una correspondencia entre los estados finales clásicos y los estados cuánticos más apropiados. Los valores de n_c clásicos, están relacionados con niveles específicos n de acuerdo a la relación obtenida por McKellar y Becker^[33], ecuación 2.29.

Finalmente, debe destacarse, que el número de eventos capturados al estado $n = 1$ (el ion He⁺ tiene el electrón activo en el estado 1s) deben ser multiplicados por un factor de bloqueo (*blocking factor*^[115]) igual a 1/2. Este factor se define como $[1 - (\text{N}^\circ \text{ electrones presentes en la capa}) / (\text{N}^\circ \text{ electrones posibles en la capa})]$ y de manera aproximada compensa la sobre-estimación de captura electrónica a una capa parcialmente completa que es inherente a un tratamiento basado en un electrón activo.

Antes de proceder con los resultados y la comparación con los datos experimentales del grupo del Dr. Focke, se verificó que nuestro modelo CTMC a nivel de la sección eficaz total de captura simple, que conduce a He⁰, sea correcto. En la Figura 3.5, se contrastan nuestros resultados teóricos para la captura electrónica simple con los valores obtenidos por diversos laboratorios alrededor del mundo^[83,86,116,117].

3.5. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

Energía (keV)	Sección Eficaz Total CTMC
25	2.435
40	2.496
50	2.640
100	2.782
200	2.782

Tabla 3.1: Sección eficaz total de CTMC para el proceso de intercambio de carga en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2$ en coincidencia con proyectiles emergentes de He^0 para las energías de colisión exploradas en este trabajo: 25, 40, 50, 100 y 200 keV (en unidades de 10^{-16} cm^2).

En adición, en la Tabla 3.1, se enumeran las secciones eficaces totales resultantes para nuestro modelo teórico.

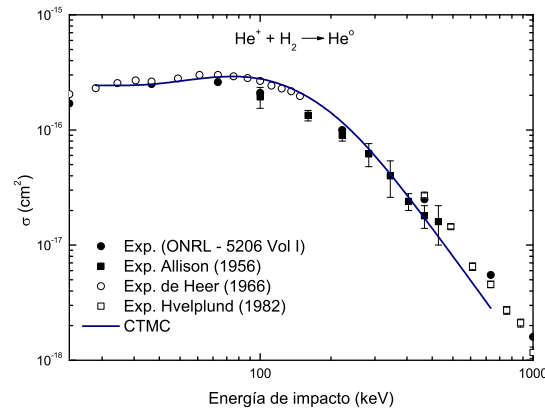


Figura 3.5: Sección eficaz total para el proceso de intercambio de carga en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2$ en coincidencia con proyectiles emergentes de He^0 . Datos experimentales: datos tabulados del Oak Ridge National Laboratory (ORNL)^[116] (círculos llenos); Allison *et al.*^[83] (cuadrados rellenos); de Heer *et al.*^[117] (círculos abiertos); Hvelplund y Andersen^[86] (cuadrados abiertos). Teoría: presentes cálculos CTMC (línea continua).

3.5. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

Debe tenerse en cuenta que estas secciones incluyen contribuciones de los distintos canales de SC, GSD, TE, y TI. Se observa que las secciones eficaces totales de CTMC resultan en muy buen acuerdo con los datos experimentales, en particular, en el rango de energía de 25 a 200 keV de nuestro interés.

El criterio utilizado para discretizar los distintos canales que conducen a captura electrónica de un electrón por el proyectil en el modelo CTMC se basa en considerar transiciones verticales dentro de la región de Franck-Condon de la Figura 3.2.

Brevemente, a partir de la captura de un electrón desde el blanco H_2 por el proyectil, se enciende la interacción del electrón remanente con ambos núcleos del blanco, este sistema conforma el nuevo esquema molecular. Adicionalmente, en el instante en que un electrón es capturado, se calcula la energía del electrón remanente respecto a su núcleo donde se distinguen dos situaciones. La primera, en la que el proyectil no excita al electrón remanente, quedando este en el estado $\text{H}(1s)$ respecto a su núcleo. La segunda, en la que el electrón es excitado por el proyectil y éste alcanza el estado $\text{H}^*(n \geq 2)$ respecto a su núcleo. Estas dos situaciones se utilizan como criterio para identificar en nuestro modelo clásico si la transición vertical se corresponde con una energía potencial disociativa o no.

La primera situación se identifica con una transición vertical al estado H_2^+ . En este caso los parámetros de Morse se modifican suavemente en el tiempo para ajustarse a la nueva posición de equilibrio $R = 2$ a.u. La segunda situación se corresponde con un estado disociativo. La configuración molecular comienza a disociarse a un estado $\text{H}^+ + \text{H}$ neutro, esto se logra atenuando el potencial Morse por medio de una función de intercambio del tipo $1 - e^{-\alpha(t-t_0)}$, mientras que al mismo tiempo se enciende el potencial Coulombiano repulsivo entre ambos centros. Un detalle a tener en cuenta es que si durante el proceso de disociación la energía molecular (debido a la dinámica molecular) se corresponde con la del estado H_2^+ la configuración invierte este proceso y los núcleos del blanco vuelven a unirse a través del potencial Morse pesada por la función de intercambio del tipo $e^{-\alpha(t-t'_0)}$.

Por último, para identificar si el proceso de captura simple corresponde a SC o a cualquiera de los estados GSD, TE o TI se evalúa la distancia internuclear. Si ésta es mayor a 8 a.u. el proceso se considera disociativo y en función de la

energía se identifica entre GSD y TE. Si la distancia internuclear es menor a 8 a.u. el proceso se registra como SC.

3.6. Resultados y Discusiones

En una colisión inelástica de pequeños ángulos de dispersión y leve cambio en la energía del proyectil, como es el caso de intercambio de carga, se puede demostrar a partir de la conservación de la energía y la conservación del momento que el momento longitudinal p_l (que puede ser también denominado p_x en vista del sistema de coordenadas mostrado en la Figura 3.1) y el momento transversal p_t (con respecto a la dirección del haz de proyectil incidente) adquiridos por el ion en retroceso, son independientes. En una reacción de captura, y a partir de las ecuaciones de conservación del momento y la energía, p_l y p_t se dan, en unidades atómicas, como:

$$p_l = -\frac{Q}{v_p} - n_e \frac{v_p}{2}, \quad (3.7)$$

$$p_t = -P_p \Theta_p. \quad (3.8)$$

Aquí, v_p , P_p , y Θ_p son la velocidad del proyectil, su momento y su ángulo de dispersión, respectivamente. n_e es el número de electrones transferidos desde el blanco al proyectil, en el presente caso $n_e = 1$. Q representa el cambio en la energía electrónica de la reacción que se obtiene de la diferencia entre las energías de enlace en el blanco y en el proyectil. Experimentalmente, éste es un observable que permite identificar los procesos de captura, excitación e ionización.

La ecuación 3.8, proporciona una ruta alternativa para obtener información sobre la distribución angular del proyectil, a partir de la espectroscopía del ion en retroceso y con la ayuda de la conservación de la energía y del momento en una colisión inelástica.

La componente transversal del momento p_t para el ion de retroceso también puede expresarse como:

$$p_t = \sqrt{p_y^2 + p_z^2}. \quad (3.9)$$

3.6.1. Momento longitudinal – Captura electrónica a estados selectivos

A nivel experimental, los eventos de fondo, debido a las interacciones con el gas distribuido de manera uniforme en la cámara de colisión y de coincidencias aleatorias, se restan siguiendo el procedimiento descrito en la referencia^[100]. En la la Figura 3.6 se muestra una típica distribución de iones H_2^+ medida en el plano del detector para datos obtenidos correspondientes a SC, todas las distribuciones muestran una estructura similar de dos pico que se asocian al estado selectivo de captura electrónica a diferentes estados finales del proyectil. El pico más intenso corresponde a un proceso de intercambio de carga única en la cual el proyectil captura el electrón al estado fundamental. El pico de menor intensidad, por otro lado, se identifica con las contribuciones de captura electrónica a estados excitados de He. En energías de menor impacto, como 6.2, 10, 12.5 y 25 keV/amu (25, 40, 50 y 100 keV), se observa que ambos picos (al estado estado fundamental y excitados) se encuentran suficientemente separados como para identificar ambos procesos individualmente. En la energía de impacto más grande, 50 keV/amu (200 keV), estas estructuras se superponen y la separación de las secciones eficaces de SC para cada estado selectivo n se vuelve más complicado.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

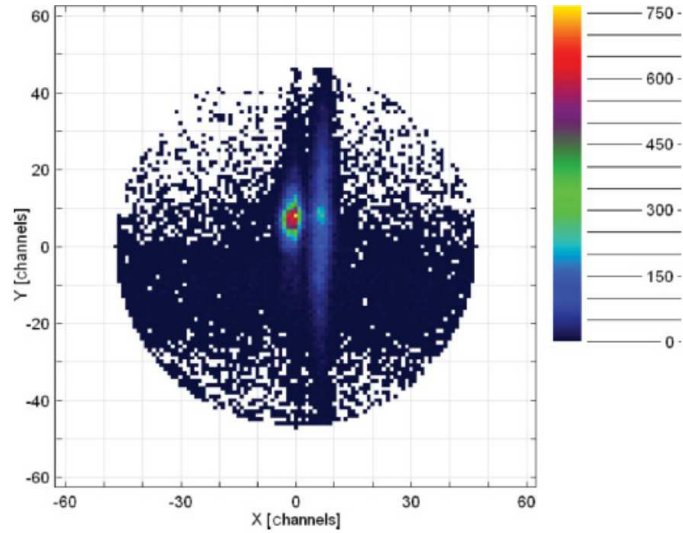


Figura 3.6: Imagen del detector sensible a la posición en el plano xy para los iones H_2^+ en retroceso en coincidencia con los proyectiles He^0 emergentes, correspondientes a procesos de captura simple. Colisión de 25 keV $^4\text{He}^+$ incidiendo sobre H_2 , con un campo eléctrico de extracción de 10 V/cm. Los iones creados en la colisión son las manchas bien localizadas. Las trazas horizontales ancha y de baja intensidad (a lo largo de la dirección x) resultan en un fondo a partir del gas residual en la cámara de colisión.

En las Figuras 3.7(a – e) se muestran las distribuciones de p_x para los iones H_2^+ que corresponden a SC para las energías de impacto de 6.25, 10, 12.5, 25 y 50 keV/amu.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

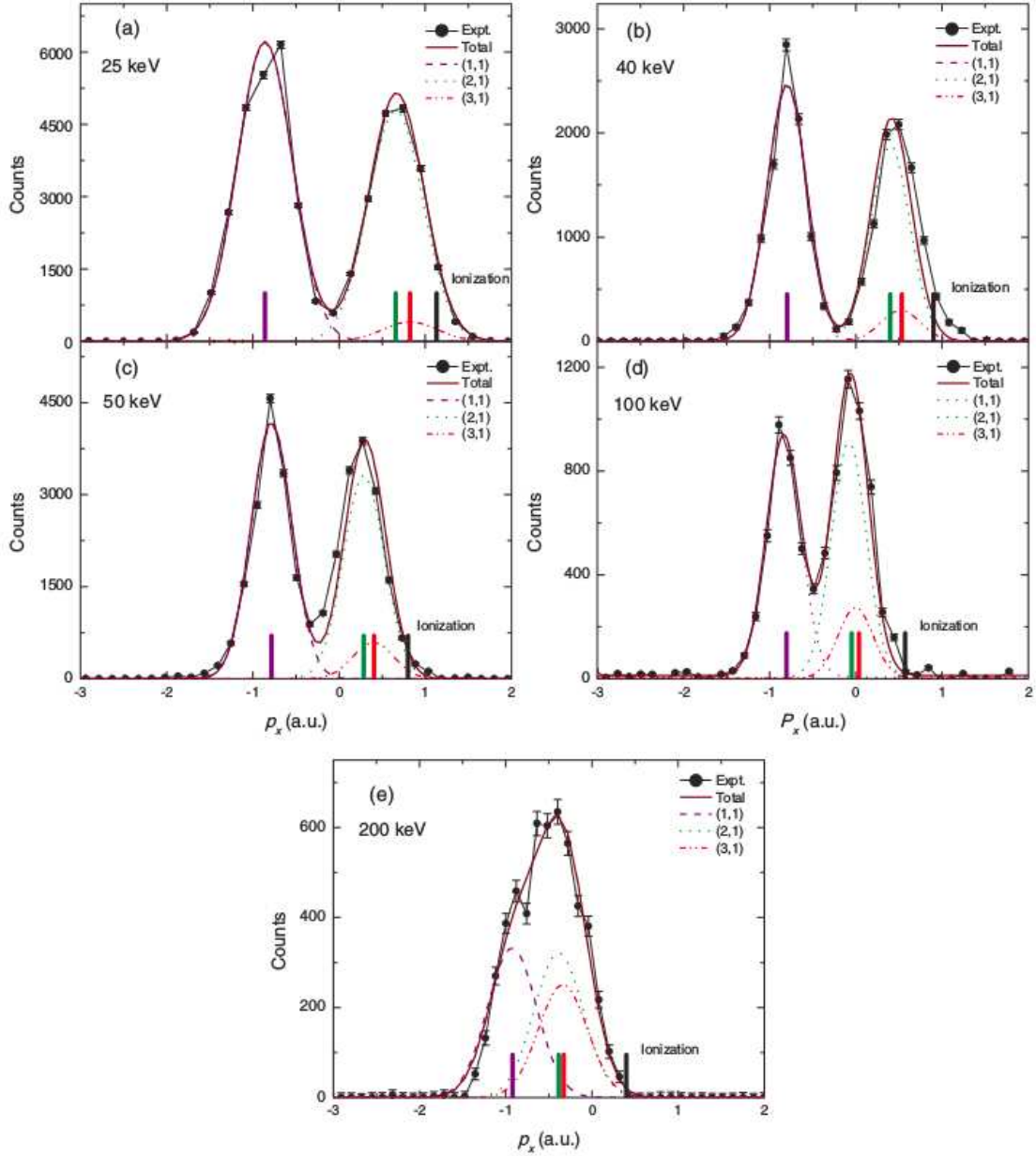


Figura 3.7: Distribuciones experimentales de momento longitudinal para iones en retroceso H_2^+ integrados sobre las componentes p_y y p_z para proyectiles de He^+ incidiendo a 25, 40, 50, 100 y 200 keV (6.2, 10, 12.5, 25 y 50 keV/amu). Además, se muestran ajustes de los datos experimentales por medio de tres funciones Gaussianas. Las barras indican la posición teórica para cada estado de captura. También se muestran barras de posiciones donde se esperaría la mayor contribución de procesos de ionización.

3.6. He⁺ + H₂

Las distribuciones experimentales de momento longitudinal p_x han sido ajustadas utilizando funciones Gaussianas, que también se muestran en la Figura 3.7. Las distribuciones experimentales han sido normalizadas a los resultados teóricos de CTMC para las secciones eficaces totales del canal de SC. A partir de estos ajustes, se obtienen las secciones eficaces a estados selectivos que se enumeran en la Tabla 3.2.

El ajuste del pico de captura asociado al estado fundamental de He no presenta ningún problema, ya que proviene de un único estado. Pero, el segundo pico, que se atribuye a los estados excitados se encuentran muy próximos y no pueden ser resueltos con el espectrómetro utilizado. La ubicación de los estados medios correspondientes a $n = 1, 2$ y 3 experimentales se muestran como barras en la Figura 3.7. Además, una barra indica la ubicación en la que ionización al continuo puede presentar un máximo^[118]. No se esperan que eventos de ionización sean observados, ya que están excluidos por la condición de coincidencia temporal en la medición.

Estado Final	Energías (keV/amu)				
	6.25	10	12.5	25	50
(1,1)	-0.86	-0.80	-0.79	-0.81	-0.92
(2,1)	0.66	0.40	0.29	-0.05	-0.39
(3,1)	0.82	0.53	0.41	0.04	-0.33
Ionización	1.13	0.90	0.80	0.57	0.40

Tabla 3.2: Impulso longitudinal p_l teórico para captura electrónica a estados selectivos (1,1), (2,1) y (3,1). También se indican los valores correspondientes a la máxima de ionización (donde se emiten electrones de baja energía).

La tendencia general que se puede inferir de la Figura 3.7 y la Tabla 3.3 es la de una mayor probabilidad de captura al estado (1, 1) para energías de impacto menor en comparación con la probabilidad de captura a los estados combinados (2, 1) y (3, 1), una situación que se invierte a medida que se aumenta la energía de impacto. A 25 keV/amu, los estados combinados (2, 1) y (3, 1) dominan claramente sobre (1, 1). Es conocido, a partir de reacciones de intercambio de carga

3.6. He⁺ + H₂

sobre blancos atómicos en energías de impacto intermedias, que las distribuciones de los estados n tienden a aumentar su ancho e incluso cambian las posiciones de sus máximos hacia valores mayores de n a medida que la energía de impacto se incrementa^[14,119]. Los presentes resultados sugieren una tendencia similar para el caso molecular explorado.

Estado	Energías (keV/amu)				
	6.25	10	12.5	25	50
(1,1)	0.99 ± 0.10 (54.4)	1.01 ± 0.15 (53.1)	1.05 ± 0.16 (51.4)	0.92 ± 0.19 (44.0)	0.27 ± 0.05 (37.7)
(2,1)	0.77 ± 0.08 (42.1)	0.77 ± 0.12 (40.5)	0.84 ± 0.13 (41.2)	0.90 ± 0.18 (43.0)	0.27 ± 0.12 (37.7)
(3,1)	0.06 ± 0.03 (3.5)	0.12 ± 0.06 (6.4)	0.15 ± 0.08 (7.4)	0.27 ± 0.14 (13.0)	0.18 ± 0.09 (24.6)

Tabla 3.3: Secciones eficaces de estados selectivos experimentales para la captura de un electrón en colisiones de He⁺ + H₂ → He⁰ + H₂⁺, resultados expresados en unidades de 10⁻¹⁶ cm². Entre paréntesis se muestran los valores porcentuales.

En la Figura 3.8, se contrastan distribuciones de impulso longitudinales experimentales con nuestras distribuciones teóricas para energías de 25 y 50 keV/amu (100 y 200 keV). Se han convolucionado las secciones eficaces para SC a estados selectivos n del CTMC utilizando funciones Gaussianas que imitan la resolución del espectrómetro utilizado. Puede verse que los datos teóricos están en estrecho acuerdo con los datos medidos.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

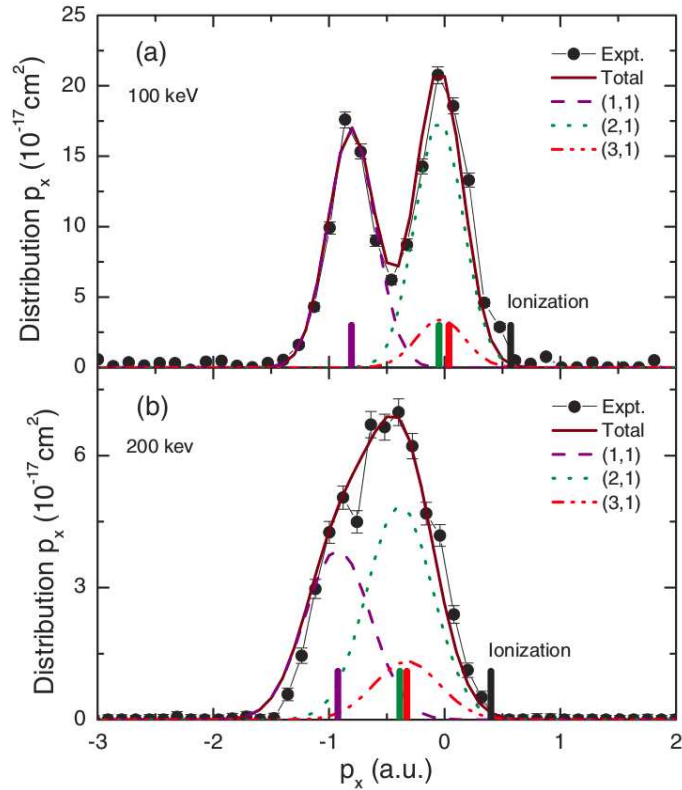


Figura 3.8: Distribución experimental del impulso longitudinal para las energías de impacto de He^+ de (a) 100 keV (25 keV/amu) y (b) 200 keV (50 keV/amu). En líneas se muestran los resultados obtenidos a partir de la teoría CTMC.

A fin de proporcionar un análisis más exhaustivo, en la Figura 3.9, se comparan los resultados de las secciones eficaces a estados selectivos n experimentales del grupo del Dr. Focke con nuestros resultados teóricos. Se obtiene un buen acuerdo global, especialmente a 25 keV/amu (100 keV) aproximadamente en la descripción de la inversión de los canales dominantes en la reacción. Sin embargo, se observa que bajas energías de impacto, los resultados del modelo CTMC tienden a subestimar la contribución derivada del canal (2, 1). Esto podría estar relacionado, probablemente, con nuestro modelo de un electrón activo en el proyectil incidente. Sería factible que el factor de apantallamiento introducido para describir el orbital parcialmente cargado no logre compensar la falta de una adecuada descripción de la interacción electrón–electrón.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

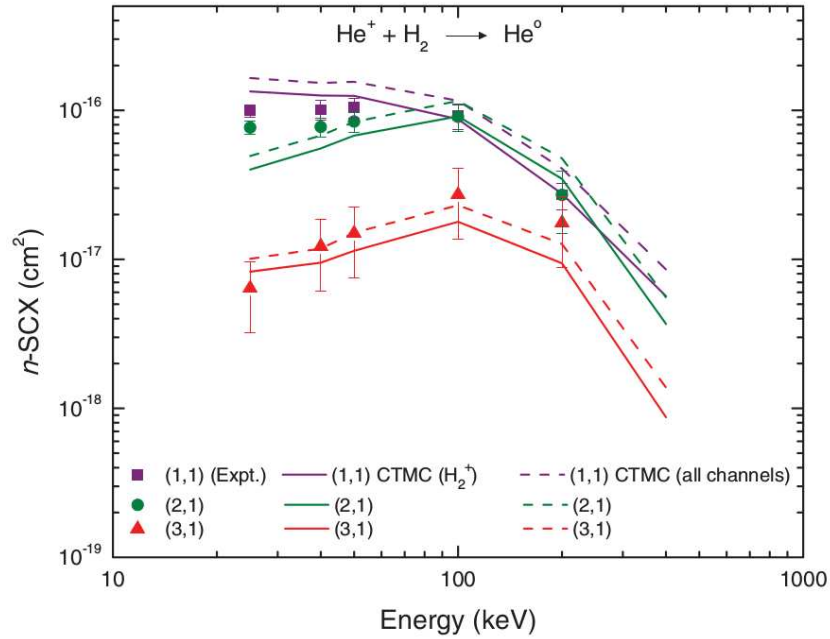


Figura 3.9: Secciones eficaces a estados selectivos para captura electrónica simple en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{He}^0 + \text{H}_2^+$. Símbolos rellenos, corresponden a resultados experimentales de este trabajo; líneas continuas, presentes cálculos CTMC correspondiente al proceso de SC; líneas punteadas, resultados CTMC incluidos todos los procesos de intercambio de carga (SC, GSD, TE, y TI).

En la Figura 3.9, se observan nuestros resultados teóricos para las secciones eficaces de captura electrónica simple a estados selectivos (SC) en líneas continuas, además están incluidos los cuatro canales posibles (SC + GSD + TE + TI) en líneas discontinua, los cuatro canales muestran una dependencia energética que acompaña el comportamiento y la forma descrita por el canal SC. Esto sugiere que al acceder experimentalmente al canal SC, proveniente de la medición espectroscópica de momento del ion H_2^+ , sería posible estimar la población relativa experimental de los diferentes niveles para el proceso de captura de un electrón por el proyectil.

3.6.2. Componentes del Momento Transversal

En la Figura 3.10, se muestran las distribuciones de las componentes del momento transversal a lo largo de los ejes y y z .

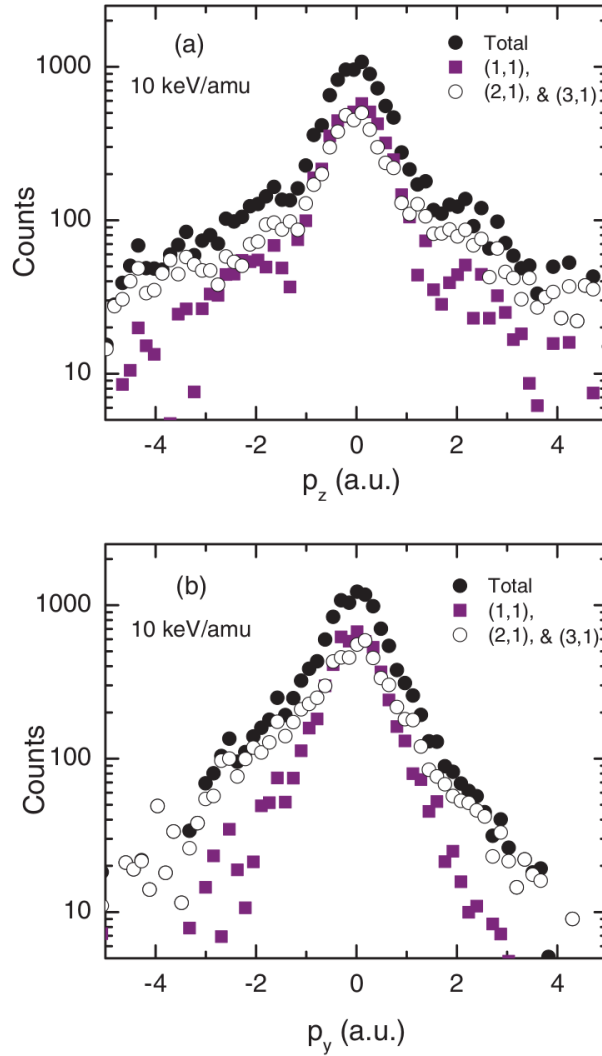


Figura 3.10: Proyecciones de distribuciones del impulso transversal sobre el eje z (a) y sobre el eje y (b) para proyectiles de He^+ incidiendo a 10 keV/amu. La figura muestra distribución total para SC y sus componentes correspondientes a SC al estado fundamental y estados excitados del He.

3.6. He⁺ + H₂

La figura muestra distribuciones totales y distribuciones a estados selectivos para He⁺ impactando a una energía de 10 keV/amu. El fondo de escala se ha restado siguiendo el mismo procedimiento utilizado para distribuciones p_x .

Debido a la simetría cilíndrica del proceso de colisión, era de esperar que ambas distribuciones p_y y p_z muestren formas equivalentes en sus dos componentes perpendiculares. Sin embargo, en este caso, se observa una marcada diferencia ya que las distribuciones de p_y son más asimétricas que las distribuciones de p_z . Esta diferencia sólo puede atribuirse al momento térmico aleatorio adicional presente en los átomos del blanco. A lo largo de la dirección y , el jet de gas tiene una temperatura residual luego de la expansión adiabática. A esta diferencia se le añade la resolución espacial del detector y el tamaño del blanco. Por el contrario, a lo largo de la dirección z , debido al enfriamiento geométrico de las moléculas del blanco, el jet de gas tiene una componente inicial de momento aleatorio significativamente más pequeña.

Además, a partir de la geometría del espectrómetro y su tiempo de enfoque, la distribución de p_z no debe ser afectada por el tamaño del blanco. Por lo tanto, se toma que las distribuciones de p_z reflejan principalmente el momento transferido en las colisiones.

En la Figura 3.11, se muestran los resultados experimentales para distribuciones de p_z , estos resultados son contrastados y normalizados al máximo de los resultados obtenidos con el modelo clásico Monte Carlo.

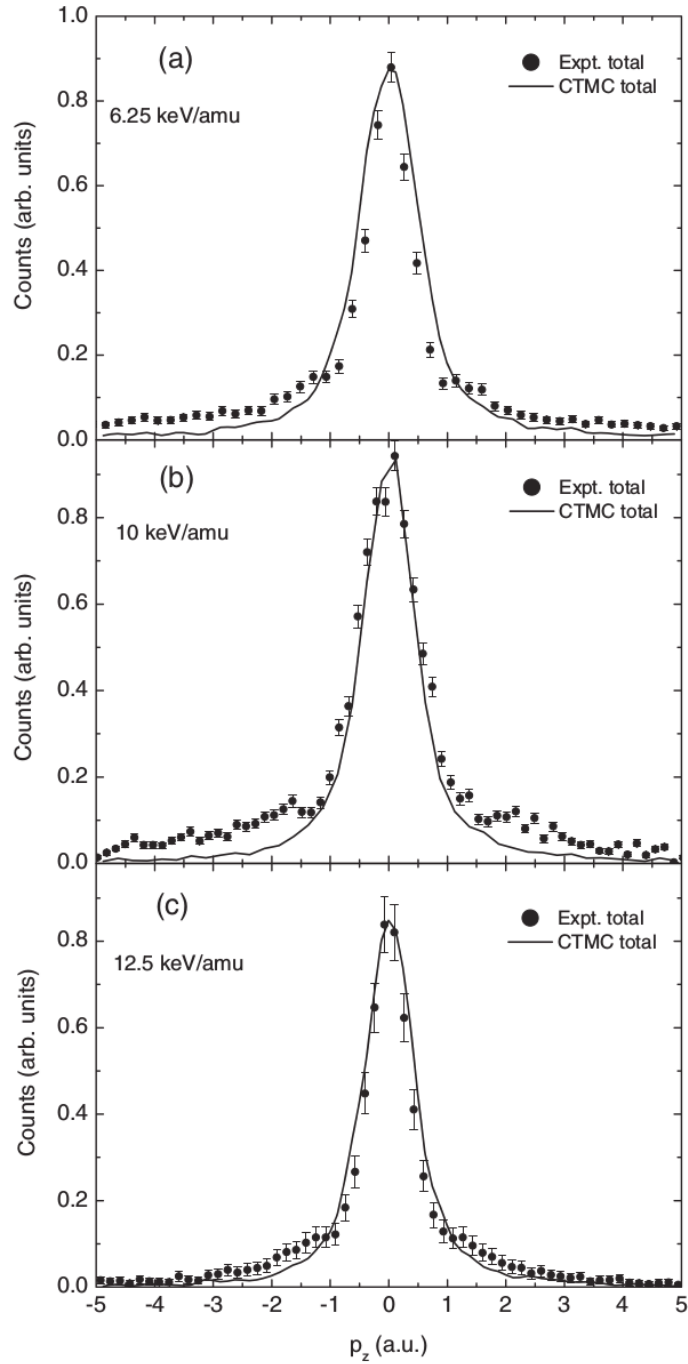


Figura 3.11: Proyección de eventos totales de momentos a lo largo del eje z experimentales normalizados a CTMC para proyectiles de He^+ incidiendo (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu.

3.6. He⁺ + H₂

Se observa que el modelo teórico tiene buen acuerdo en las partes centrales de las distribuciones, pero son notorias las diferencias en las colas de las distribuciones. Los datos experimentales en la Figura 3.11 muestran que los eventos correspondientes a ángulos de dispersión más grandes (p_z grandes) proporcionan una contribución importante al proceso de captura. Los datos experimentales muestran incluso una dispersión de $\Delta p_y = \pm 0.24$ a.u. (comunicación interna). En el eje z , por otro lado, se espera que los efectos térmicos adicionales sean pequeños (sólo una pequeña extensión que resulta de la geometría del haz y el jet, que puede estimarse con una contribución de un $\Delta p_z = \pm 0.03$ a.u., un valor mucho menor que la propagación térmica). Bajo estas condiciones, es posible extraer la distribución de momento transversal a partir de nuestras distribuciones medidas en p_z .

Con el objeto de hallar las distribuciones \mathbf{p}_t a partir de las mediciones de distribuciones experimentales p_z , el grupo experimental utiliza una transformada de Abel para la cual su transformada inversa es conocida^[120]. Se ha verificado el cálculo numérico luego de obtener las distribuciones transversales, volviendo a proyectar las distribuciones sobre en el eje z se obtuvo excelente acuerdo con la proyección de la medición inicial.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

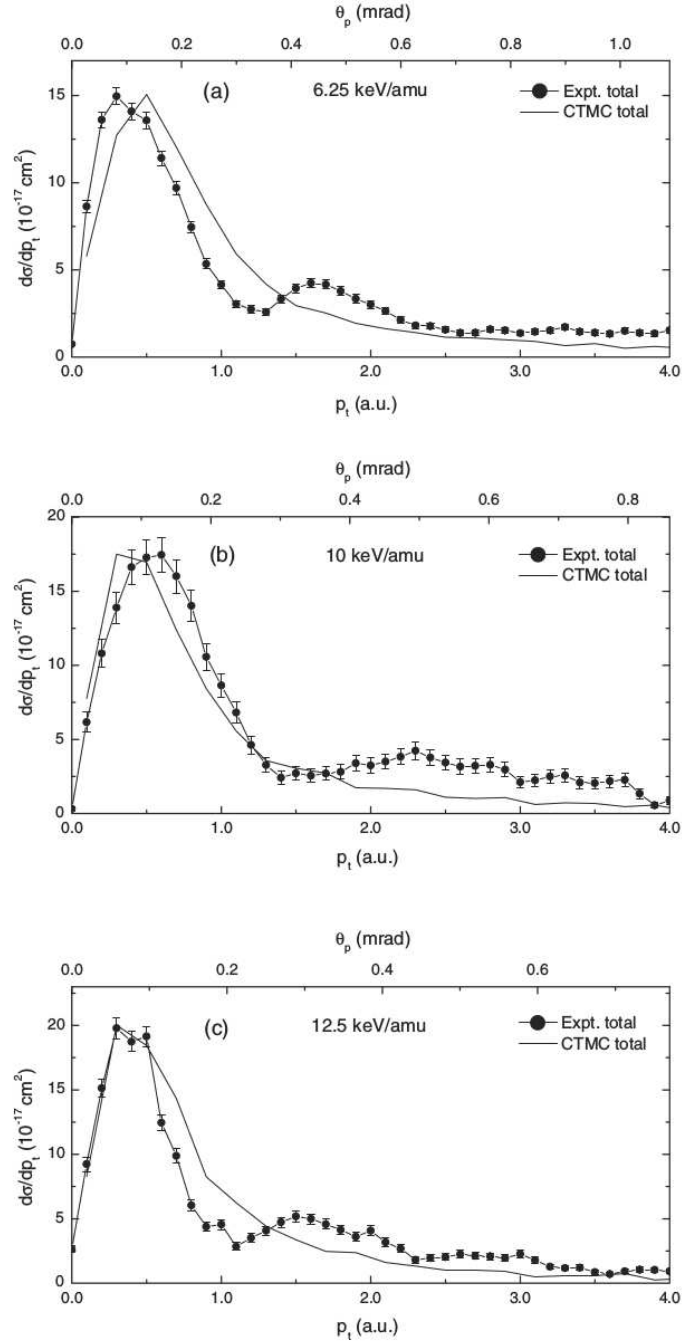


Figura 3.12: Distribuciones de momentos transversales en función del momento transversal del proyectil p_t (ejes inferiores) y el ángulo de deflexión del proyectil θ_p (ejes superiores). Se involucran todos los estados de captura simple para los datos experimentales y teóricas obtenidos. (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu. Los datos experimentales fueron normalizados en el máximo a los resultados de CTMC.

3.6. He⁺ + H₂

Por lo tanto, se tiene certeza que no se introducen deformaciones artificiales en las distribuciones por el procedimiento numérico utilizado.

En las Figuras 3.12(a – c), se muestran las secciones eficaces diferenciales para los momentos transversales en las energías de impacto de 6.25, 10 y 12.5 keV/amu.

Se muestran las distribuciones en función del ángulo de dispersión a través de la ecuación 3.8. Claramente se observa, desde los presentes datos experimentales y resultados del modelo CTMC, que la mayor parte de la contribución corresponde a pequeños ángulos de dispersión con un máximo presente entre de 0.1 a 0.2 mrad. Además, se observa que los presentes datos experimentales muestran, en todos los casos, una estructura oscilatoria que no se reproducen en nuestros resultados teóricos CTMC. La estructura oscilatoria observada también está presente en las distribuciones proyectadas, como puede verse en las Figuras 3.10 y 3.11.

En la Figura 3.13, se muestran las contribuciones de las distribuciones de momentos transversales experimentales para los canales (1,1) y (2,1) + (3,1) en forma separada. Se observa que la estructura oscilatoria es mucho más pronunciada para el canal (1,1). Un comportamiento oscilatorio similar ha sido reportado por el grupo de Frankfurt, pioneros en la metodología COLTRIMS, para captura electrónica en colisiones de iones sobre átomos. En sus trabajos se sugiere que el comportamiento oscilatorio pueda provenir de resonancias de capas K–K^[70,121,122]. A diferencia de estos sistemas, en nuestro caso, el presente sistema de colisión ion–molécula, es no–resonante^[123] y el origen de dichas estructuras a energías de colisión intermedias no lo podemos explicar en este trabajo, y se requiere un estudio más detallado de las mismas.

3.6. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

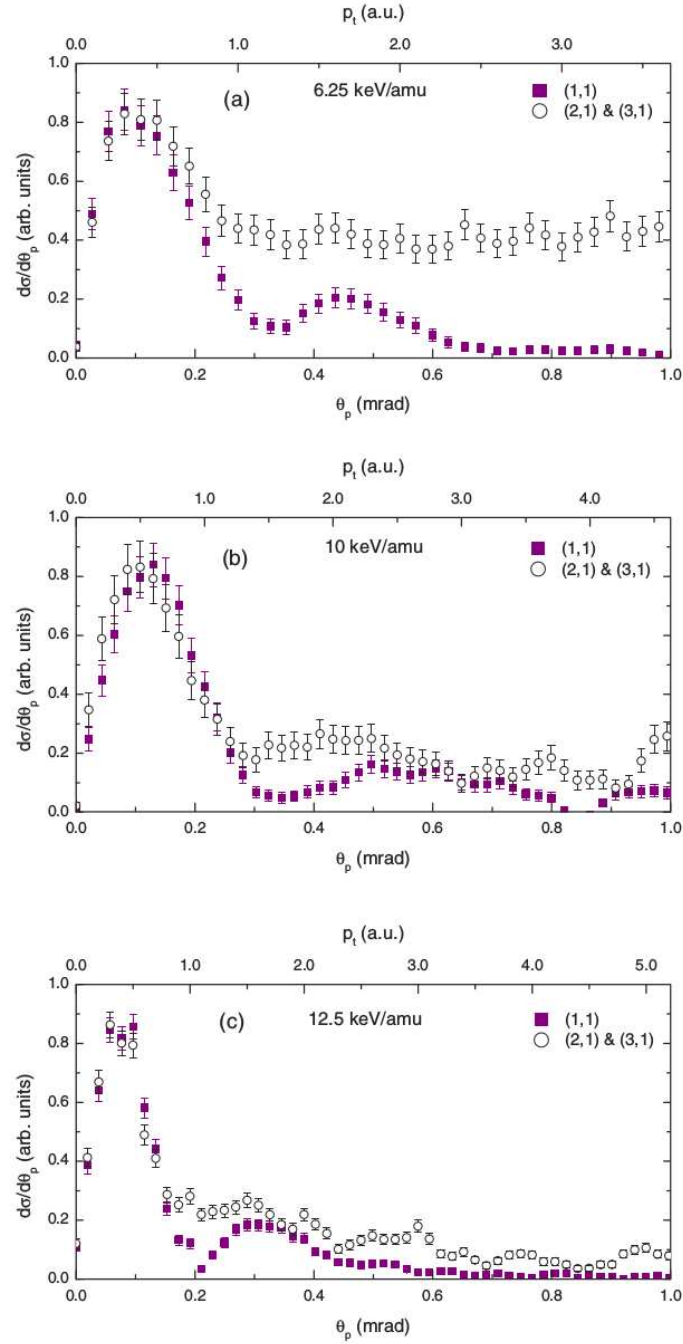


Figura 3.13: Distribuciones experimentales del ángulo de deflección del proyectil para el estado fundamental y estados excitados en SCs. Los casos presentados son: (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu de energía incidente del proyectil He^+ . Los resultados expuestos están normalizados arbitrariamente al máximo de una de las distribuciones, para cada valor de energía.

Algunos trabajos a bajas energías, como el de Gao en 1990^[124] en varios sistemas de colisión ion–molécula y entre ellos $\text{He}^+ + \text{H}_2$, muestran claramente la presencia de estructuras oscilatorias a pequeños ángulos de deflexión del proyectil, menores a 0.1 grados. Dichas estructuras son interpretadas por Gao a partir de transiciones entre estados iniciales y finales en función de modelos de Landau–Zener^[125,126] y Demkov^[127]. Estos modelos en general son presentados para modelar un tipo de estructura oscilatoria, que en principio, se supone que pueden resultar de la interferencia de las amplitudes de dispersión, a partir de un proceso de acercamiento y alejamiento de los componentes de la colisión.

Por otro lado, otro tipo de estructuras oscilatorias también a bajas energías, han sido estudiadas, las cuales provienen de efectos cuánticos o clásicos involucrando la parte atractiva y repulsiva del potencial relevante para la colisión, tales como difracción o dispersión arcoiris (rainbow scattering). Este tipo de estructuras es claramente mostrado en un trabajo de Cabrera–Trujillo^[128,129] sobre un blanco de N_2 a bajas energías. En el mismo, se detectan estructuras oscilatorias similares a las observadas en nuestros espectros, en las distribuciones angulares a muy bajos ángulos de dispersión.

3.7. Conclusiones

En este capítulo fueron estudiados estados selectivos de captura en colisiones de He^+ sobre H_2 . Este trabajo se realizó en colaboración con el grupo experimental del Dr. Focke quienes utilizaron la técnica COLTRIMS. El rango de energías estudiado fue de 6.25 a 50 keV/amu. Las secciones eficaces de estados selectivos de captura fueron obtenidas experimentalmente a partir de las distribuciones de momentos longitudinales. Dichas distribuciones fueron normalizadas a resultados de secciones eficaces totales obtenidas por CTMC, previamente comparadas con resultados experimentales obtenidos por diversos laboratorios, los cuales mostraron excelente acuerdo.

En el presente sistema de colisión y a diferencia de las líneas discretas de captura que se esperan obtener en los casos de colisión ion–átomo, los procesos de captura están determinados por franjas, que a su vez están compuestas por valores discretos que corresponden a los estados excitados del He y al estado final

3.7. $\text{He}^+ + \text{H}_2$

del ion molecular. El estado final del blanco molecular dado por el ion H_2^+ , en principio se corresponde al estado ($1s\sigma_g$) en un estado vibracional superior a $\nu = 0$, cercano al estado $\nu = 3$. La resolución experimental no permite determinar estos estados con precisión, ya que la resolución del orden de 0.7 a.u. en el momento longitudinal, no permite distinguir los estados vibracionales. De las distribuciones de momentos longitudinales se observa que para los valores de energías más bajos explorados de 25, 40 y 50 keV, el canal dominante es la captura electrónica al estado fundamental y alrededor de 100 keV, se observa una inversión del canal dominante que corresponde al predominio de captura a los estados excitados.

Las secciones eficaces de captura selectiva teóricas muestran en general un muy buen acuerdo fundamentalmente a energías superiores a los 100 keV (25 keV/amu). A partir de estas secciones eficaces teóricas se obtuvieron las distribuciones de momentos longitudinales correspondientes.

En las distribuciones experimentales de captura electrónica al estado fundamental fueron identificadas estructuras oscilatorias para ángulos menores a 0.4 mrad, dependiendo de la energía de impacto. Este tipo de estructura en sistemas ion-molécula también fueron observadas por otros laboratorios, para distintos sistemas de colisiones y rangos de energías en los que su naturaleza fue asociada a diferentes mecanismos. Para el presente caso de proyectiles de He^+ a energías de colisión intermedias, se requiere un estudio más exhaustivo a fin de determinar el origen de las mismas.

Capítulo 4

Desarrollo de un modelo CTMC multicéntrico de varios electrones para colisiones de iones altamente cargados con CO

4.1. Introducción

En los últimos años, la necesidad de datos de intercambio de carga y secciones eficaces de líneas de emisión en contextos astrofísicos y biológicos han impulsado a los modelos teóricos existentes (ya sea que estén basados en métodos clásicos, semiclásicos o cuánticos) a nuevos desarrollos. ^[21,22,62,63,130–135]. Se requieren bases de datos precisas de intercambio de carga y de ionización para lograr una buena interpretación de espectros fotónicos en entorno astrofísicos y para inferir correctamente la deposición de energía en los procesos de radioterapia que involucran haces iónicos.

En este sentido, las moléculas representan blancos más complejos de caracterizar que los blancos atómicos. Además de las interacciones interelectrónicas, el carácter multicéntrico del blanco representa un desafío adicional, especialmente a bajas energías de impacto en el que los electrones son compartidos por dos o más centros nucleares (incluyendo el proyectil, en caso de que resulte ser un ión).

Además, los orbitales moleculares de la molécula de CO se superponen espacial y energéticamente con potenciales de ionización similares centrados en núcleos separados proporcionando rutas energéticas alternativas para que un dado proceso tenga lugar.

Los procesos de intercambio de carga a estados selectivos entre iones cargados y diferentes blancos atómicos o moleculares con sus eventuales desintegraciones radiactivas posteriores, se han explorado sistemáticamente en el JPL, KVI, LLNL-EBIT, NIST-EBIT, la Universidad de Reno y Berlín-EBIT durante la última década^[22,131,133,136-143]. Aunque estos esfuerzos combinados todavía se encuentran lejos de proporcionar una descripción completa de la física subyacente, proporcionan pruebas concretas que permiten evaluar el desempeño de los modelos teóricos actuales.

En este sentido, los trabajos teóricos en mecánica cuántica se han centrado principalmente en blancos de hidrógeno^[144,145] desarrollados mediante el uso de expansiones en términos de orbitales atómicos o moleculares (AOCC y MOCC). El gran aumento del tamaño de las bases requeridas para describir los estados del proyectil a medida que su carga se incrementa representa el obstáculo principal. Consecuentemente la obtención de resultados se encuentra condicionada por los tiempos y recursos computacionales. Por otro lado, modelos más simples tales como el método de Landau-Zener multicanal^[13], el método clásico over-barrier (COB)^[58] y el CTMC^[7,110] proporcionan un acceso más rápido a datos de intercambio de carga a estados selectivos y en consecuencia han sido ampliamente utilizados en el campo durante las últimas dos décadas. Sin embargo, en la mayoría de los casos, las secciones eficaces obtenidas con estos modelos han sido generadas mediante la aproximación de estados hidrogenoides (es decir, un átomo de hidrógeno en el cual se varían las energías de ionización). Más recientemente, Illescas *et al.* introdujeron un modelo multicéntrico de un electrón activo para la molécula de H_2O ^[23]. Los autores probaron este modelo para obtener secciones eficaces totales de los canales de intercambio de carga e ionización. Más allá de este trabajo y algunos códigos CTMC multicéntrico de de dos electrones activos para H_2 ^[112,146], no existen modelos multicéntrico de varios electrones activos disponibles en la literatura.

Con el objetivo de explorar una representación más realista del proceso de colli-

sión, en este trabajo se desarrolla un enfoque CTMC multielectrónico-multicéntrico (desde aquí denominado mmCTMC). En particular, nuestro modelo se pondrá a prueba en el marco de procesos que involucran intercambio de carga entre iones con cargas de 3 a 10 y la molécula de monóxido de carbono (CO) para la que se ha considerado 8 electrones en forma explícita. Este tratamiento de varios electrones permite hacer una estimación directa de la contribución del proceso de intercambio de carga múltiple autoionizante a la sección eficaz de captura simple. Por el contrario, los tratamientos de un electrón activo predicen indirectamente las secciones eficaces de captura múltiple a través del uso de distribuciones binomiales^[23,147,148].

Los resultados obtenidos en el presente modelo se contrastan con los resultados obtenidos por nuestro modelo monocéntrico de ocho electrones bajo el método CTMC y con resultados obtenidos por medio de la aproximación de átomos independientes también bajo la metodología CTMC. Datos experimentales recientes obtenidos en el Jet Propulsion Laboratory (JPL) de la NASA (secciones eficaces totales y secciones eficaces para intercambio de carga a estados selectivos) se utilizarán para evaluar la validez de estos modelos teóricos.

4.2. Modelados Teóricos

En la presente sección se presentan los distintos modelos CTMC que se utilizan en el presente trabajo.

4.2.1. Modelo multicéntrico–multielectrónico (mmCTMC)

Este modelo se denomina, *mmCTMC* por sus siglas en inglés *many–electron–multicenter classical-trajectory Monte Carlo*. En este modelo los dos centros iónicos se fijan en el espacio a la distancia de equilibrio del monóxido de carbono (CO) de $R = 2.13$ a.u. El eje molecular se orienta al azar y los ocho electrones activos interactúan con ambos centros a través del pseudopotencial desarrollado

por Gabas *et al.*^[149]:

$$\begin{aligned}
 V(r_{ec}, r_{eo}) &= V_c(r_{ec}) + V_o(r_{eo}), & \text{donde} \\
 V_c(r_{ec}) &= -\frac{6 - N_c}{r_{ec}} - \frac{N_c}{r_{ec}}(1 + \alpha_c r_{ec})e^{-2\alpha_c r_{ec}}, \\
 V_o(r_{eo}) &= -\frac{8 - N_o}{r_{eo}} - \frac{N_o}{r_{eo}}(1 + \alpha_o r_{eo})e^{-2\alpha_o r_{eo}}.
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Los coeficientes correspondientes son $N_c = 5.391$, $N_o = 7.609$, $\alpha_c = 0.85$ y $\alpha_o = 1.501$. Las variables r_{ec} y r_{eo} son referidas a la distancia de cada electrón con el núcleo de carbono y de oxígeno, respectivamente. Los ocho electrones son inicializados en forma aleatoria en la región energéticamente permitida alrededor de ambos núcleos moleculares. Dos electrones son sorteados con un potencial de ionización (IP) de 14.01 eV (3σ orbital), cuatro electrones son sorteados con un IP de 17.4 eV (1π orbital) y dos electrones son sorteados con un IP de 19.88 eV (2σ orbital).

Como se detalló en el Capítulo 2, por razones de autoionización no física, las interacciones interelectrónicas no son tenidas en cuenta en el Hamiltoniano.

4.2.2. Modelo monocéntrico (scCTMC)

Este modelo se denomina *scCTMC* por sus siglas en inglés *single-center classical-trajectory Monte Carlo* y ha sido usado por Simcic *et al.*^[22] que considera una aproximación de la molécula CO al elemento atómico dominante (oxígeno) con ocho electrones activos que no interactúan entre sí. Los electrones interactúan con sus núcleos a través del potencial central de Garvey *et al.* en 1975^[41], dado por

$$V(r) = -\frac{Z - (N - 1)(1 - \Omega_j(r))}{r}, \tag{4.2}$$

donde,

$$\Omega(r) = \frac{1}{(\eta/\xi)(e^{\xi r} - 1) + 1}. \tag{4.3}$$

Para el núcleo O^+ , los parámetros involucrados son $Z = 8$, $N = 8$, $\xi = 1.36$ y $\eta = 2.41$. Para este modelo los electrones se inicializan a través de una distribución microcanónica para el ion O^+ : dos electrones son sorteados con un IP de 14.01 eV, cuatro electrones son sorteados con un IP de 17.4 eV y dos electrones son

sorteados con un IP de 19.88 eV.

4.2.3. Modelo de átomos independientes (iaCTMC)

Este modelo se denomina *iaCTMC* por sus siglas en inglés *independent-atoms classical-trajectory Monte Carlo*. En este modelo, los dos centros iónicos se mantienen fijos en el espacio a la distancia de equilibrio $R = 2.13$. Los electrones son inicializados en los centros de C^+ y O^+ por separado, basado en el esquema de población electrónica desarrollado por Mulliken^[150]. En este sentido, cada electrón es forzado a ver un único núcleo iónico del blanco (ya sea C^+ u O^+) a lo largo de toda la colisión. Al igual que en el modelo monocéntrico los electrones son inicializados a través de distribuciones microcanónicas. Entonces, tres electrones son inicializados sobre C^+ con potenciales de ionización de 14.01 eV (dos electrones) y 17.4 eV (un electrón). Los cinco electrones restantes se inicializan sobre el ion O^+ con potenciales de ionización de 17.4 eV (tres electrones) y 19.88 eV (dos electrones). ocho electrones activos que no interactúan entre sí e interactúan con los centros iónicos C^+ y O^+ a través de los potenciales de Garvey^[41]. Los parámetros en el ion O^+ son los mismos que en el modelo monocéntrico, mientras que para C^+ los parámetros correspondientes son $Z = 6$, $N = 6$, $\xi = 1.065$ y $\eta = 2.13$.

4.2.4. Comparación de modelos

A lo largo de los años diferentes estrategias han sido desarrolladas dentro del CTMC con el objetivo de incluir la interacción interelectrónica para sistemas de dos o más electrones. Es posible citar la técnica de núcleo de Heisenberg introducida por Kirchbaum y Wilets^[151], el modelo de apantallamiento dinámico (dCTMC) de Montemayor y Schiwietz^[16] y el modelo de átomo de Bohr introducido por Olson^[152], entre otros. Tratamientos más eficientes podrían considerar apantallamientos dinámicos para explicar, en parte, las interacciones interelectrónicas en los presentes modelos y más allá del alcance del presente trabajo. Sin embargo, en todos los modelos, las interacciones interelectrónicas no se incluyen en la dinámica de la colisión para evitar la autoionización clásica del blanco molecular.

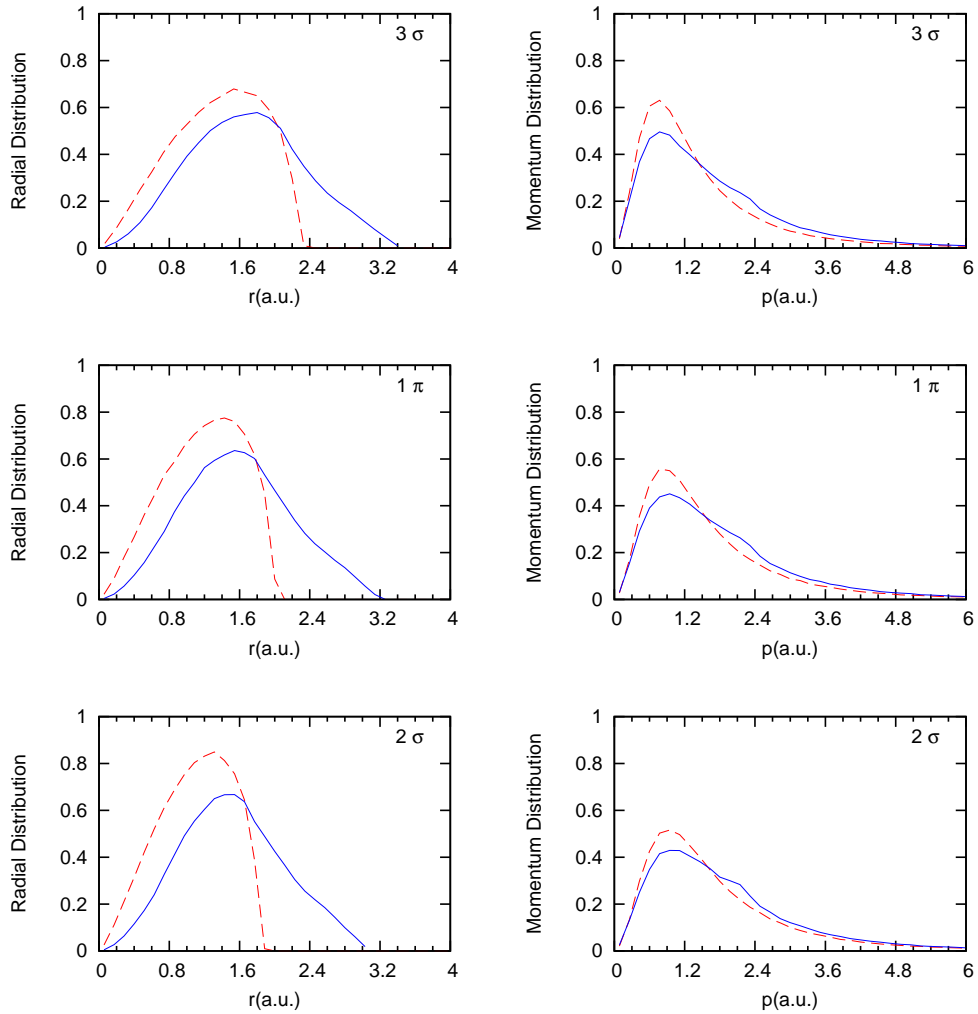


Figura 4.1: Distribuciones radiales (columnas izquierda) y distribuciones de momento (columna derecha) para los tres orbitales moleculares estudiados correspondientes al modelo scCTMC (línea roja discontinua) y el modelo mmCTMC (línea azul continua). Ambas distribuciones para el modelo mmCTMC son referidas al centro de masa de la molécula, por otro lado para el modelo scCTMC son referidas al núcleo.

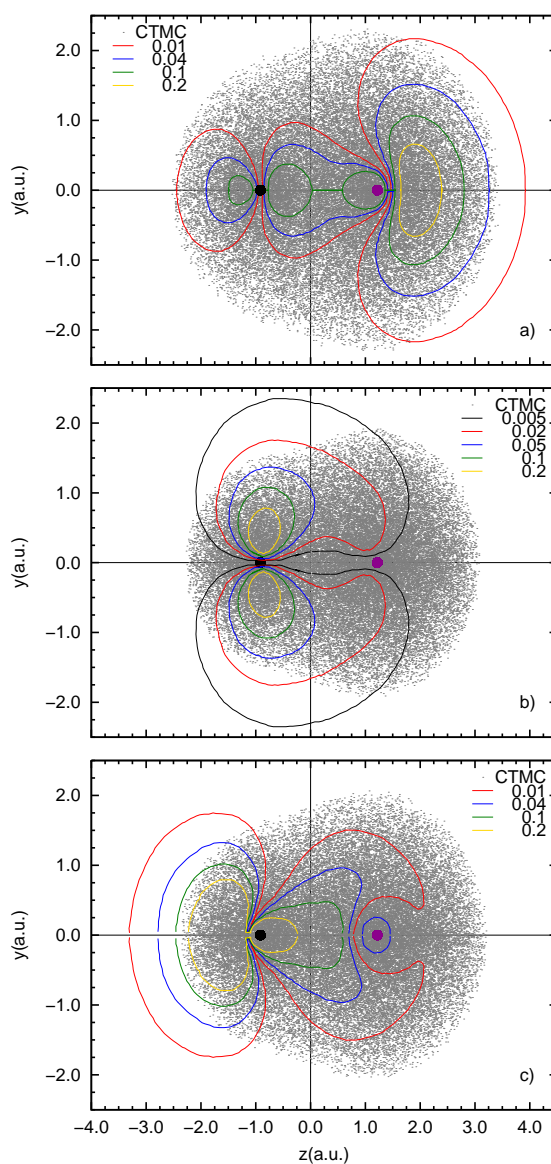


Figura 4.2: Densidad de dispersión electrónica del modelo mmCTMC para los tres principales orbitales moleculares de la molécula de CO: (a) 3σ , (b) 1π , (c) 2σ . El eje z representa el eje molecular, O (punto negro) y C (punto violeta) indican los centros iónicos. En todos los casos, se incluyen las curvas de densidades de probabilidades obtenidos por Huo^[153] basado en funciones de ondas obtenidas con el método de campo auto-consistente auto-determinado.

En la Figura 4.1, se muestran y comparan las distribuciones radiales y de momento de los electrones, en función del orbital molecular obtenidas para los modelos mmCTMC y scCTMC luego de sortear 3×10^5 trayectorias (el modelo iaCTMC no se muestra debido a la naturaleza propia de su configuración). La orientación de la molécula (su eje molecular) es sorteada aleatoriamente para cada trayectoria considerada con el fin de lograr una distribución esférica uniforme.

A pesar que las distribuciones de momento son similares para los diferentes orbitales considerados, se observan claras diferencias entre sus respectivas distribuciones radiales. Las distribuciones del modelo scCTMC muestran una abrupta caída en el punto de retorno clásico, típico de la distribución microcanónica. Por otro lado, las distribuciones del modelo mmCTMC preservan el ancho en la distribución (o la extensión radial) relacionada con la distancia entre núcleos. Para aclarar este punto, en la Figura 4.2 se muestra un gráfico de dispersión aleatoria de la posición en el plano yz (donde z es el eje molecular) para los electrones activos. Este gráfico de densidad electrónica proporcionan una visión clara de las regiones de energías permitida para cada orbital estudiado. Las curvas de nivel con las cuales se contrasta fueron obtenidas por Huo^[153] en 1965 mediante el método de campo auto-consistente.

El tratamiento del mecanismo de captura electrónica múltiple a estados selectivos utilizado es desarrollado en las secciones 2.1.4 y 2.2.1 de esta tesis.

4.2.5. Modelo de Energías Secuenciales

Los tres modelos CTMC presentados en la presente Sección corresponden a cálculos realizados bajo modelos de *potenciales de ionización orbitales* (IP-orbitales), esto significa que los electrones se encuentran orbitando con la energía respectiva a cada estado molecular.

Es posible inicializar los electrones en el blanco mediante los *potenciales de ionización secuenciales* (IP-secuenciales). En contraste con los modelos analizados en las secciones anteriores, este modelo describe correctamente la deposición de energía que debe realizar el proyectil en un evento de ionización o captura múltiple. Se utilizan los IP secuenciales de CO calculados por Kumar *et al.*^[154], estos valores para los ocho electrones de la molécula son: 14.17, 27.20, 40.53, 53.56,

69.55, 85.11, 89.70 y 93.60 eV.

En la próxima Sección se presentan y se comparan con datos experimentales los modelos mmCTMC y scCTMC, tanto para IP-orbitales como para IP-secuenciales.

4.3. Resultados y discusión

4.3.1. Secciones eficaces totales para intercambio de carga para *IP-orbitales*

En la Figura 4.3 se muestran las probabilidades de captura electrónica simple desde orbitales 3σ , 1π , y 2π en función del parámetro de impacto b . Se consideran proyectiles de cargas $q = 6$ y $q = 10$ a energía de colisión de $7q$ keV. Se observa que para parámetros de impacto grandes, los tres modelos se encuentran en muy buen acuerdo. Sin embargo, para parámetros de impacto chicos los modelos iaCTMC y scCTMC predicen distribuciones muy similares, mientras que el modelo mmCTMC se aparta y conduce a probabilidades ligeramente menores. Se relaciona este comportamiento a la influencia simultánea de ambos centros iónicos sobre el electrón capturado, que se espera más intenso en el rango de parámetros de impactos b bajos, en contraste con los modelos scCTMC y iaCTMC el electrón evoluciona sujeto a un solo núcleo del blanco iónico.

4.3. $A^{+q} + \text{CO}$

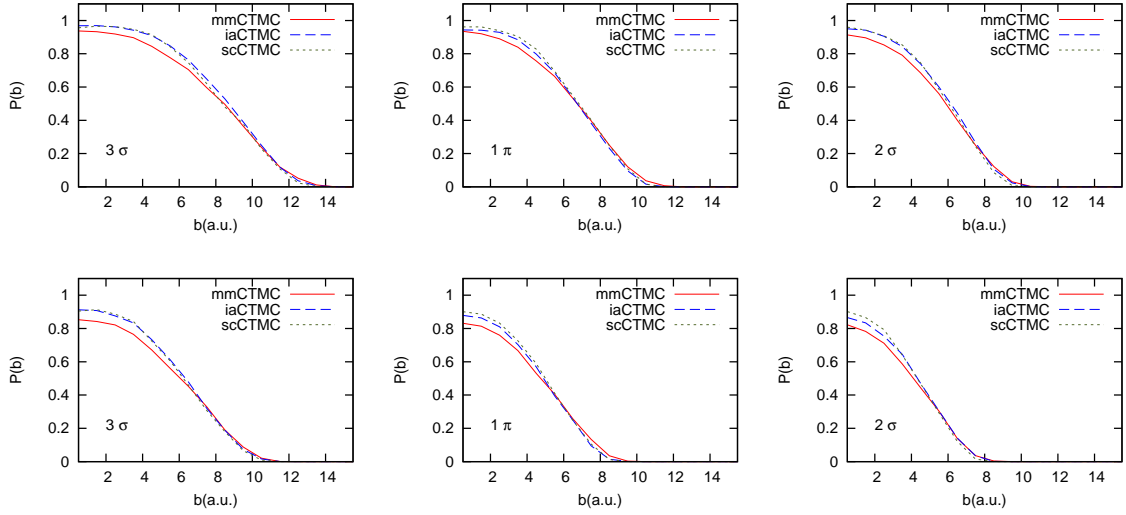


Figura 4.3: Probabilidades de captura electrónica simple en función del parámetro de impacto b para un proyectil de carga $q = 10$ (fila superior) y $q = 6$ (fila inferior) impactando sobre la molécula de CO originalmente en el orbital 3σ , orbital 1π y el orbital 2σ (de izquierda a derecha). Resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea roja continua), el modelo scCTMC (línea verde punteada) y el modelo iaCTMC (línea azul discontinua).

En la Figura 4.4, se muestra secciones eficaces totales para captura electrónica simple $\sigma_{q,q-1}$ como función de la carga del proyectil para los modelos mmCTMC, scCTMC, y iaCTMC. Sólo se consideran proyectiles completamente desnudos contrastados con datos experimentales de Mawhorter *et al.*^[155]. Se observa que los resultados obtenidos por los tres modelos teóricos se encuentran en buen acuerdo con los datos experimentales. Además, los modelos iaCTMC y scCTMC tienen resultados muy similares, mientras que los correspondientes al modelo mmCTMC son sistemáticamente más bajos en el rango de carga de proyectiles considerado.

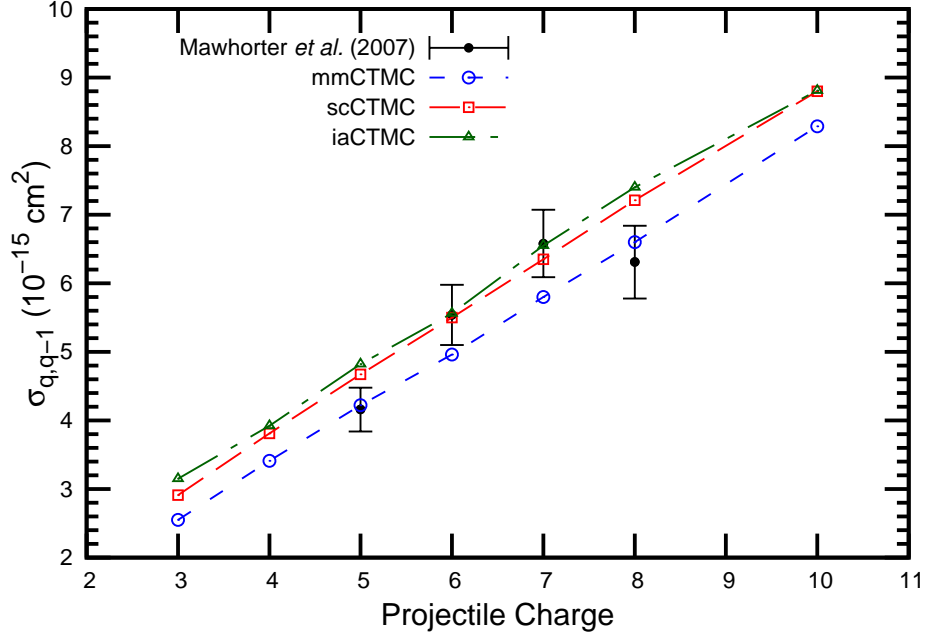


Figura 4.4: Secciones eficaces totales de captura electr3nica simple ($\sigma_{q,q-1}$) para proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (l3nea azul con c3rculos abiertos), scCTMC (l3nea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (l3nea verde con tri3ngulos cerrados) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter *et al.* [155].

Aunque es de esperar este comportamiento basado en las probabilidades de captura mostradas en la Figura 4.3, para esclarecer este punto, en la Figura 4.5 se compara el potencial radial promedio del blanco visto por los electrones. Para el potencial multic3ntrico, este potencial promedio, referido al centro de masa molecular, es proporcionado por

$$V_{CO^+}(r) = \frac{1}{4\pi} \int V_{CO^+}(r, \theta, \phi) d\Omega. \quad (4.4)$$

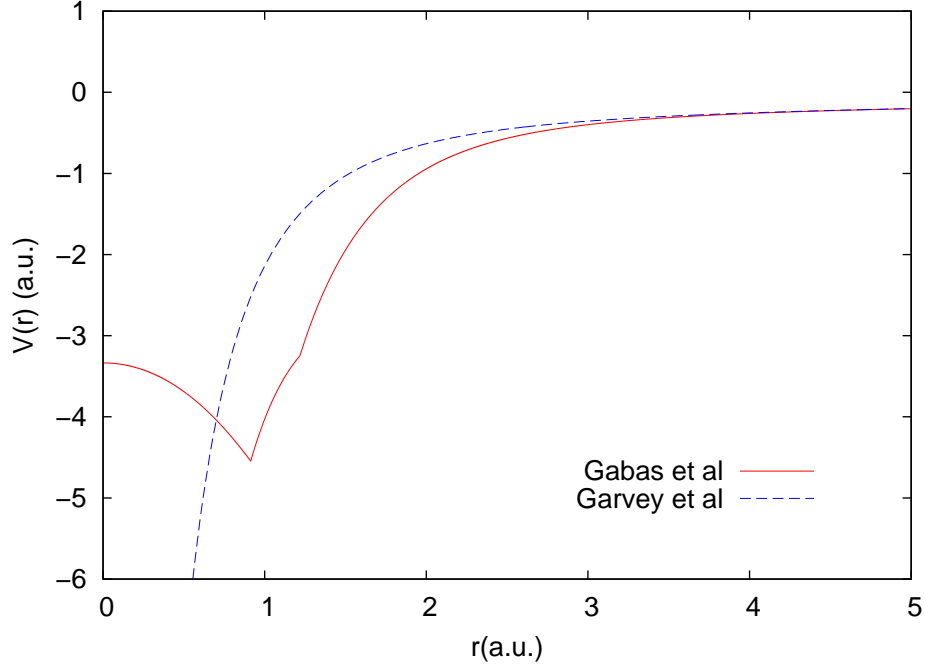


Figura 4.5: Promedio del potencial radial del blanco visto por los electrones en el modelo mmCTMC (línea roja continua) y el modelo scCTMC (línea azul discontinua).

Entonces, el origen de este diagrama coincide con el centro de masa de la molécula. Para el modelo mmCTMC, V_{CO^+} está dada por el pseudopotencial de Gabas *et al.*, ecuación 4.1. Para el modelo scCTMC se utiliza el potencial Garvey para el ion O^+ , ecuación 4.2. Como se puede observar, para valores mayores a $r \sim 0.7$ a.u. el modelo molecular mmCTMC (con respecto al centro de la masa molecular) muestra una carga efectiva más grande para el electrón capturado que el modelo scCTMC. En consecuencia, se espera mayor probabilidad de intercambio de carga para el modelo scCTMC comparado con el modelo mmCTMC. Un argumento similar se aplica para el modelo iaCTMC en el que cada electrón interactúa a lo sumo con una carga nuclear 6 o 8 dependiendo del orbital.

En la Figura 4.6, se muestra secciones eficaces totales para captura electrónica doble $\sigma_{q,q-2}$ como función de la carga del proyectil para los modelos mmCTMC, scCTMC, y iaCTMC. Estas secciones eficaces se originan a partir de procesos

de captura múltiple que conducen a estados doblemente excitados y altamente asimétricos. Como puede observarse, los datos experimentales de Mawhorter *et al.* [155] son subestimados por los actuales modelos teóricos. Sin embargo, se observa que los resultados del modelo mmCTMC se encuentran levemente en mejor acuerdo con los datos experimentales en toda la gama de cargas exploradas.

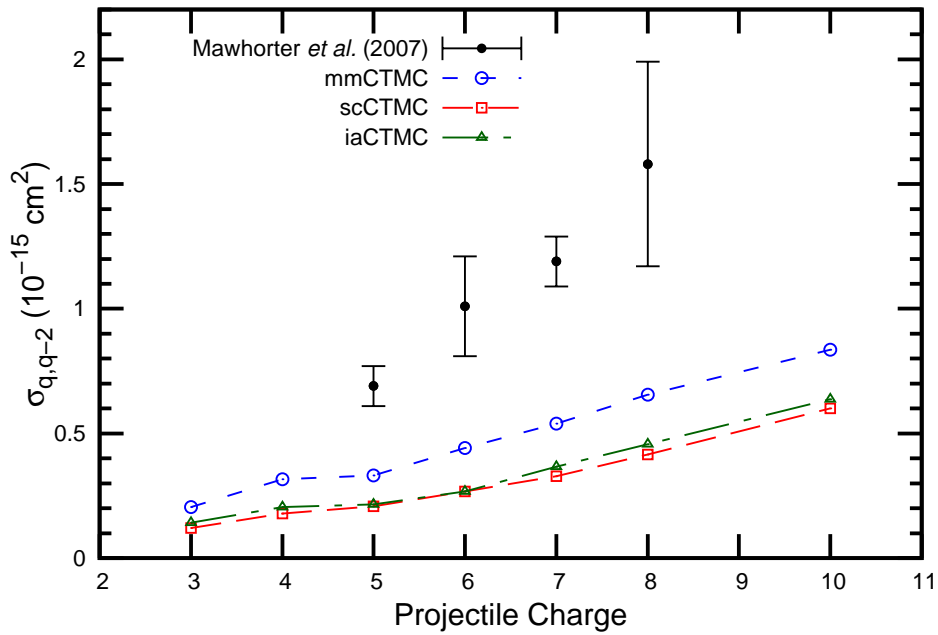


Figura 4.6: Secciones eficaces totales de captura electrónica doble ($\sigma_{q,q-2}$) para proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos), scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (línea verde con triángulos cerrados) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter *et al.* [155].

4.3.2. Secciones eficaces totales para intercambio de carga para *IP-secuenciales*

En la Figura 4.7, se muestran secciones eficaces totales para captura electrónica simple $\sigma_{q,q-1}$ como función de la carga del proyectil para los modelos mmCTMC

y iaCTMC calculados con energías secuenciales de ionización. Como en el caso precedente, sólo se consideran proyectiles completamente desnudos contrastados con datos experimentales de Mawhorter *et al.*^[155]. A diferencia del modelo IP-orbitales, este modelo CTMC subestima los datos experimentales. Esto se debe a que el proyectil sólo interactúa con un electrón de IP de 14.01 eV (energía de primera ionización) y con los electrones restantes con $IP > 27.20$ eV, mientras que en el modelo de energías de potenciales de ionización el proyectil interactúa con ocho electrones con IP entre 14.01 y 19.88 eV.

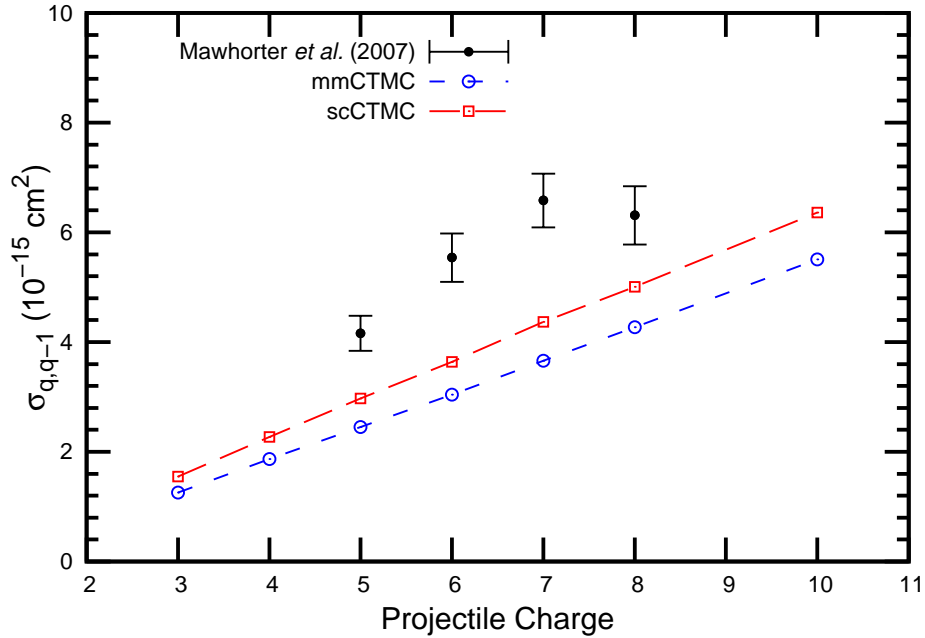


Figura 4.7: Secciones eficaces totales de captura electrónica simple ($\sigma_{q,q-1}$) para el modelo de Energías Secuenciales. Proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter *et al.*^[155].

En la Figura 4.8, se muestra secciones eficaces totales para captura electrónica doble $\sigma_{q,q-2}$ como función de la carga del proyectil para los modelos mmCTMC

4.3. $A^{+q} + \text{CO}$

y iaCTMC. Estas secciones eficaces se originan a partir de procesos de captura múltiple que conducen a estados doblemente excitados y altamente asimétricos. Como puede observarse, los datos experimentales de Mawhorter *et al.*^[155] son subestimados por los actuales modelos teóricos. Si se compara con el modelo IP-orbitales, se observa que para proyectiles de cargas bajas las secciones eficaces de ambos modelos CTMC tienen buen acuerdo entre sí, esto se debe a que la captura múltiple es baja para estos proyectiles. A medida que aumenta la carga del proyectil el modelo CTMC de energías de potenciales secuenciales es inferior al modelo de energías de potenciales de ionización. Esto se hace más evidente a medida que la carga del proyectil aumenta.

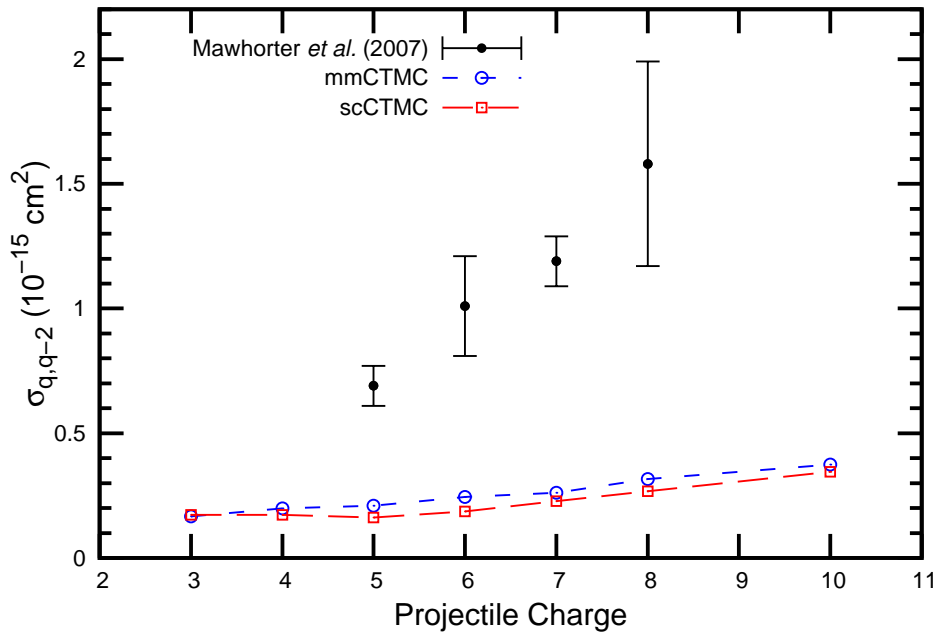


Figura 4.8: Secciones eficaces totales de captura electrónica doble ($\sigma_{q,q-2}$) para modelos de energías secuenciales. Proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter *et al.*^[155].

4.3.3. Secciones eficaces de Captura selectiva y líneas de emisión para *IP-orbitales*

En esta sección se comparan las secciones eficaces de captura selectiva y secciones eficaces de líneas de emisión para los diferentes modelos. En la Figura 4.9, se muestra la relación de *Hardness Ratio* (R) definida como la razón de secciones eficaces de líneas de emisión entre decaimiento $np \rightarrow 1s$ con $n > 2$ y líneas Lyman- α , definidas como $2p \rightarrow 1s$, en función de la carga del proyectil. Los datos experimentales pertenecen al JPL^[136,137]. Para los proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} , se infiere que los blancos moleculares como CO_2 y H_2O de interés astrofísico, que poseen valores de IP similares entre sí y con la molécula de CO estudiada en este capítulo, llevan a secciones eficaces de líneas de emisión muy similares. Entonces, se espera que estos valores de R representen una buena estimación de primer orden para el CO. En la Figura 4.9, los valores experimentales de R obtenidos por Greenwood *et al.*^[136,137] se incluyen para referenciar nuestros resultados teóricos para proyectiles de carga de 8 y 10. Estos resultados nos permiten concluir que para la energía de impacto de $7q$ keV, los espectros de emisión de rayos-X proporcionados por los tres modelos teóricos, así como los datos experimentales serán similares concentrando casi el 75 % de la emisión en la línea Ly- α .

Una prueba mucho más exigente y rigurosa para testear nuestros modelos es proporcionada por los últimos datos del JPL obtenidos por Miller *et al.*^[156] para O^{6+} a 36 keV colisionando sobre CO. En este trabajo, los autores deconvolucionan a partir de sus espectros fotónicos la población relativa de los estados selectivos $n = 3$ y 4. En la Tabla 4.3.3 se presentan estos datos experimentales junto con los presentes resultados teóricos. Como se puede ver, los resultados teóricos están en buen acuerdo con los datos experimentales si se tienen en cuenta las barras de error reportadas. La única discrepancia importante se encuentra en el nivel $3s$, en el que los tres modelos teóricos tienden a sobrestimar los valores experimentales por un factor de 3 o 4 dependiendo el caso.

4.3. $A^{+q} + \text{CO}$

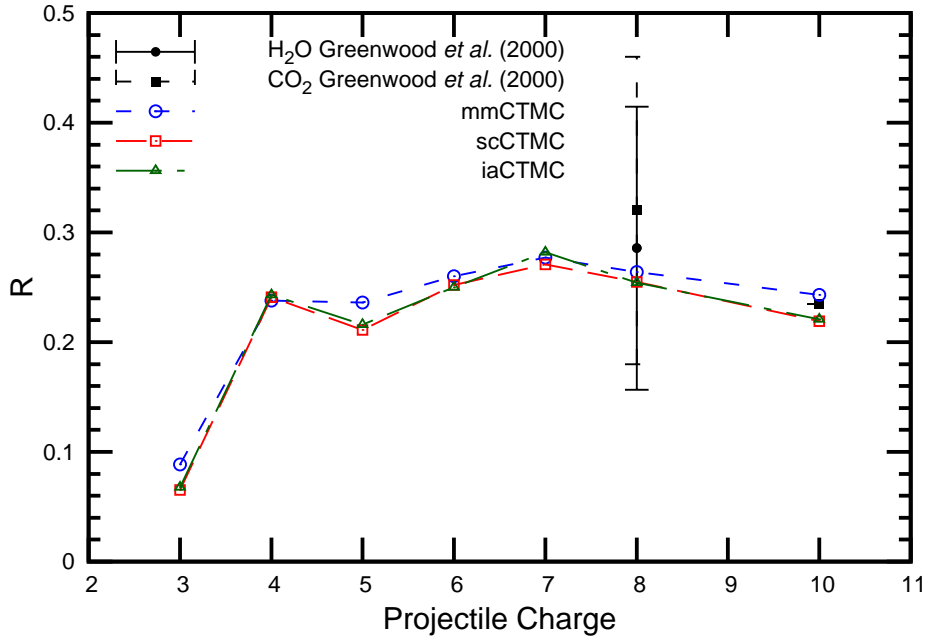


Figura 4.9: Hardness Ratio (R) obtenido con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos), scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (línea verde con triángulos cerrados). Se compara con los datos experimentales de Greenwood *et al.* (Tablas 3 y 4 de la referencia^[137]) para proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} sobre CO_2 y H_2O en energías de colisión de $7q$ keV.

	Expt.	mmCTMC	scCTMC	iaCTMC
$4p$	0.13 ± 0.03	0.144	0.155	0.151
$4d$	0.13 ± 0.03	0.089	0.096	0.096
$4s$	0.23 ± 0.05	0.234	0.243	0.239
$3p$	0.07 ± 0.02	0.117	0.102	0.105
$3d + 4f$	0.41 ± 0.09	0.263	0.261	0.271
$3s$	0.03 ± 0.01	0.154	0.144	0.138

Tabla 4.1: Poblaciones relativas de estados selectivos a $n = 3$ y $n = 4$ en 36 keV $\text{O}^{6+} + \text{CO}$ colisiones. Los datos experimentales corresponden a Miller *et al.*^[156].

Vale la pena mencionar que los datos experimentales recientes del grupo del KVI, Universidad de Groningen (Holanda)^[138] para colisiones del sistema $\text{O}^{6+} + \text{H}_2\text{O}$, en energías similares de colisión, exhiben un comportamiento notablemente diferente. En este trabajo muestran los estados $4s$ y $4p$ similarmente poblados mientras que el estado $3s$ presenta una población superior a la del estado $3p$. A pesar que nuestras las secciones eficaces de líneas de emisión son similares a las medidas en JPL para blancos moleculares con valores similares de IP, tales discrepancias a nivel de estados selectivos deben ser más exploradas en mayor detalle. En particular, se debe estudiar si esta discrepancia tiene su origen en el proceso de decaimiento electrónico. Al mismo tiempo, esta situación pone de manifiesto la necesidad de renovar los esfuerzos teóricos hacia una descripción más precisa de los blancos moleculares.

4.3.4. Secciones eficaces de Captura selectiva y líneas de emisión para *IP-secuenciales*

En la Figura 4.10, se muestra la relación de *Hardness Ratio* (R) en función de la carga del proyectil para el modelo de Energías Secuenciales. De la misma manera que para el modelo de energías de potenciales de ionización, para los proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} , se infiere que los blancos moleculares como CO_2 y H_2O de interés astrofísico, que poseen valores de IP similares entre sí y con la molécula de CO estudiada en este capítulo, llevan a secciones eficaces de líneas de emisión muy similares. Entonces, se espera que estos valores de R representen una buena estimación de primer orden para el CO. En la Figura 4.10, los valores experimentales de R obtenidos por Greenwood *et al.*^[136,137] se incluyen para referenciar nuestros resultados teóricos para proyectiles de carga de 8 y 10. Resultados para la energía de impacto de $7q$ keV, los espectros de emisión de rayos-X proporcionados por el modelo scCTMC para energías de potenciales secuenciales se encuentran en mejor acuerdo con los datos experimentales. Por otro lado, el modelo mmCTMC se sigue el comportamiento de scCTMC lo subestima, como también se subestiman los datos experimentales, a pesar de encontrarse dentro del error asociado.

En la Tabla 4.3.4 se presentan estos datos experimentales junto con los presentes resultados teóricos para el modelo de energías secuenciales. Como se puede

4.3. $A^{+q} + \text{CO}$

ver, los resultados teóricos están en buen acuerdo con los datos experimentales si se tienen en cuenta las barras de error reportadas. Este modelo, se encuentra en mejor acuerdo con los datos experimentales en el nivel $3s$. Esto se debe a que el presente modelo describe mejor los estados de captura selectivos. De cualquier manera, se debe tener en cuenta que son valores poblacionales relativos y no brindan información sobre las magnitudes de las secciones eficaces respectivas.

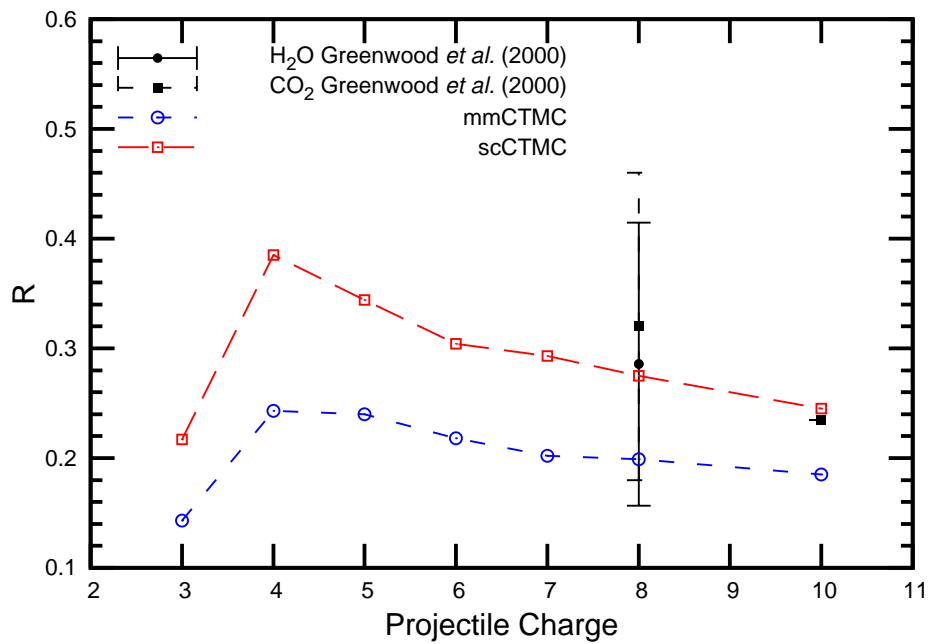


Figura 4.10: Hardness Ratio (R) obtenido con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos). Se compara con los datos experimentales de Greenwood *et al.* (Tablas 3 y 4 de la referencia^[137]) para proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} sobre CO_2 y H_2O en energías de colisión de $7q$ keV.

4.4. $A^{+q} + CO$

	Expt.	mmCTMC	scCTMC
$4p$	0.13 ± 0.03	0.174	0.186
$4d$	0.13 ± 0.03	0.125	0.135
$4s$	0.23 ± 0.05	0.179	0.186
$3p$	0.07 ± 0.02	0.091	0.061
$3d + 4f$	0.41 ± 0.09	0.343	0.369
$3s$	0.03 ± 0.01	0.087	0.065

Tabla 4.2: Poblaciones relativas de estados selectivos a $n = 3$ y $n = 4$ en 36 keV $O^{6+} + CO$ colisiones. Los datos experimentales corresponden a Miller *et al.* [156].

Vale la pena mencionar que los datos experimentales recientes del grupo del KVI, Universidad de Groningen (Holanda) [138] para colisiones del sistema $O^{6+} + H_2O$, en energías similares de colisión, exhiben un comportamiento notablemente diferente. En este trabajo muestran los estados $4s$ y $4p$ similarmente poblados mientras que el estado $3s$ presenta una población superior a la del estado $3p$. A pesar que nuestras las secciones eficaces de líneas de emisión son similares a las medidas en JPL para blancos moleculares con valores similares de IP, tales discrepancias a nivel de estados selectivos deben ser más exploradas en mayor detalle. En particular, se debe estudiar si esta discrepancia tiene su origen en el proceso de decaimiento electrónico. Al mismo tiempo, esta situación pone de manifiesto la necesidad de renovar los esfuerzos teóricos hacia una descripción más precisa de los blancos moleculares.

4.4. Conclusiones

En este capítulo se ha presentado un modelo CTMC multielectrónico-multicéntrico que se ha testado en colisiones de intercambio de carga entre proyectiles desnudo con cargas $q = 3 - 10$ sobre CO. Además, dos modelos CTMC basados en un enfoque monocéntrico y un enfoque de átomos independientes para la molécula han sido también utilizados como puntos de referencia para los resultados teóricos del presente modelo.

Estos resultados teóricos han sido comparados con datos experimentales recientes del JPL, los cuales incluyen secciones eficaces totales de intercambio de carga, hardness ratio y secciones eficaces de intercambio de carga a estados selectivos. Los tres modelos CTMC utilizados en el presente estudio comparan bien con las secciones eficaces totales de captura simple $\sigma_{q,q-1}$ dentro de las barras de error. Sobre la base de hardness ratio predichos, se concluye que las secciones eficaces para las líneas de emisión de los tres modelos utilizados están en buen acuerdo con los escasos datos disponibles.

En contraste con los modelos basados en un electrón activo, en los cuales es necesario utilizar esquemas basados en distribuciones binomiales para dar cuenta de procesos de captura múltiple, el tratamiento de varios electrones activos, atado al esquema de desintegración desarrollado por Ali, permite una estimación directa de la contribución del mecanismo de captura múltiple autoionizante al canal de captura electrónica simple. Además, el hecho de que el momento angular l del electrón capturado sea considerado explícitamente a lo largo de este procedimiento, evita la necesidad de invocar formas funcionales para obtener distribuciones en l en procesos de decaimiento radiativo. En este punto, teniendo en cuenta la relevancia de CO en ambientes astrofísicos, datos adicionales de captura electrónica a estados selectivos son necesarios con el propósito de ayudar al desarrollo de modelos teóricos y lograr descripciones más precisas de diferentes blancos moleculares.

En el presente trabajo se comparó el modelo CTMC para IP-orbitales con el modelo CTMC para IP-secuenciales. Se observa que el modelo IP-orbitales se encuentra en mejor acuerdo con los valores experimentales de las secciones eficaces, mientras que el modelo IP-secuenciales subestima las mismas. Por otro lado, el modelo IP-secuenciales se encuentra en mejor acuerdo con los valores relativos de captura electrónica a estados selectivos. Estos resultados deben ser analizados, las virtudes y defectos de ambos modelos dependen de la energía de impacto y la carga del proyectil incidente.

Para bajas energías de impacto, el modelo IP-secuenciales se cree más apropiado, ya que describe en forma más apropiada la reconfiguración atómica o molecular luego que uno o más electrones alcanza el continuo. Para altas energías de impacto el blanco no tiene tiempo a reconfigurarse por lo tanto el modelo

IP-orbitales es más acorde.

Por otro lado, la dependencia en la carga del proyectil se relaciona con la captura o ionización múltiple. Para cargas bajas del proyectil la captura electrónica no es tan relevante, pero a medida que la carga del proyectil aumenta los eventos múltiples se vuelven más relevantes. Entonces, para el caso de proyectiles altamente cargados, el modelo IP-orbitales sobreestima ampliamente el número de eventos múltiples. En contraste, el modelo IP-secuenciales logra una mejor descripción del proceso físico de eventos múltiples, como se verá en los capítulos siguientes en los que se estudia intercambio de carga múltiple por iones altamente cargados.

Capítulo 5

Emisión de rayos-X por intercambio de carga en colisiones entre iones altamente cargados y argón

5.1. Introducción

El próximo lanzamiento de la misión Astro-H, el cual está previsto para 2016, proporcionará a la comunidad astrofísica con espectros de rayos-X de alta resolución (resolución < 7 eV en la banda de 0.3 a 12 keV) de diversos objetos del cielo profundo. Se espera que estas observaciones nos ayuden a mejorar nuestro conocimiento sobre la estructura y evolución del Universo^[157]. Esta misión altamente sofisticada ha transitado desde sus inicios (especialmente en lo que concierne a diseño inicial y rendimiento esperado), el camino recorrido por observatorios anteriores como ROSAT, XMM-Newton y el observatorio de rayos-X Chandra. Observaciones del ROSAT en 1996, con una resolución espectroscópica de 300 eV, llevaron a la detección inesperada de emisión de rayos-X desde el cometa P/Hyakutake^[158]. A pesar de esto, fueron necesarios una nueva generación de observatorios espaciales – como el Chandra y el XMM-Newton, que disponen con dispositivo de carga acoplada de rayos-X (CCD por sus siglas en inglés) estos

son detectores que proporcionan una resolución del orden de 100 eV – para que el origen de la emisión de rayos-X desde cometas pudiera comprenderse plenamente. En el año 2001, Chandra proporcionó evidencia clara que el mecanismo dominante en la emisión de rayos-X desde cometas proviene de procesos de intercambio de carga seguidos de emisión fotónica, tal como fuera propuesto por Cravens en 1997^[9]. El espectro del cometa C/LINEAR 1999 S4 reveló líneas de emisión discretas cercanas a las previstas para intercambio de carga entre iones desnudos de C, N y O con blancos neutros en el coma del cometa^[159]. Desde entonces, varias sondas han analizado la emisión de rayos-X desde cometas y atmósferas planetarias^[160]. Años más tarde la comunidad astrofísica caería en cuenta que toda la información necesaria para precedir dicha emisión estaba disponible ya en 1968^[160].

En el año 2005, un espectrómetro de rayos-X basado en un microcalorímetro con alta resolución de energía (< 7 eV) fue lanzado en la misión Suzaku. Este observatorio habría proporcionado espectros de alta resolución de no haber sido que el sistema criogénico se rompió dentro de las primeras dos semanas, degradando el rendimiento del espectrómetro de rayos-X. Más de diez años habrían de pasar antes que otra misión estuviera lista para hacer frente a estos objetivos.

Desde comienzos de este siglo, diversos laboratorios en todo el mundo han estado trabajando en el estudio de colisiones en procesos de intercambio de carga con el objetivo de recrear espectros cometarios basándose en datos de laboratorio^[131,136,137,141]. Una metodología experimental utilizada es Trampa de Iones por haz electrónico (trampas EBIT) desarrollada en el Laboratorio Nacional Lawrence Livermore (LLNL). Este laboratorio cuenta con el espectrómetro calorímetro de repuesto de la misión Suzaku, calibrado en el Centro Espacial Goddard de la NASA. Este espectrómetro proporciona espectros de resolución de alrededor de 8 eV pero a energías de colisión dos órdenes de magnitud por debajo de las correspondientes al viento solar.

Por otro lado, aceleradores lineales como los utilizados en el Jet Propulsion Laboratory alcanzan velocidades del viento solar pero con la pérdida de las líneas dominantes $2^3S \rightarrow 1^1S$, al ser una transición con largo tiempo de vida media, $\sim 10^{-3}$ seg. para O^{6+} , 3.9×10^{-3} seg. para C^{5+} y 0.02 seg. para N^{4+} . Estos espectros no pueden tener lugar dentro de las dimensiones típicas de los dispositivos, a

velocidades típicas del viento solar (450–750 km/seg.) le lleva al ion de O^{6+} en el estado 2^3S aproximadamente 0.45–0.75 km. decaer a 1^1S .

Por esta razón los datos experimentales se encuentran limitados por los dispositivos. No obstante, un conjunto importante de datos han sido reunidos por varios grupos experimentales.

Desde el aspecto astrofísico, la necesidad de contar con secciones eficaces de líneas de emisión precisas se justifican en el hecho de que es posible estimar la abundancia de iones en el viento solar a través de la deconvolución de los espectros medidos. En esta técnica, la abundancia de iones del viento solar se considera como parámetro de ajuste y puede considerarse fiable sólo si las secciones eficaces de líneas de emisión utilizadas en la deconvolución son precisas^[161,162]. De esta manera, es posible realizar un mapa del viento solar para regiones distantes del espacio, no alcanzadas por los espectrómetros de carga y masa actualmente en órbita.

Los estudios teóricos pueden proporcionar, en principio, mucha asistencia a este cometido. Se han realizado estudios principalmente por el modelo clásico de over-barrier (COB)^[136], el modelo multicanal de Landau-Zener (LZMC)^[163] y el método CTMC^[21,22,63,78,135,164]. Además, las secciones eficaces de captura electrónica para blancos de hidrógeno obtenidos por medio de códigos de AOCC han sido utilizados por Bodewits y Hoekstra para simular espectros en cometas^[131] y recientes estudios de líneas de emisión también se han hecho bajo el modelo two-center-basis generator (TC-BGM)^[148]. Sin embargo, los modelos COB, LZMC y TC-BGM necesitan utilizar distribuciones en l adicionales, tales como las distribuciones estadísticas o planas, para poder identificar el estado l del electrón capturado por el proyectil. Por el contrario, el método CTMC inherentemente mantiene un seguimiento de los estados l en todo el proceso de colisión.

Espectros de cometas dominados por líneas de N, C y O se han reproducido con éxito en trabajos anteriores por el método CTMC de tres cuerpos, en los cuales se calcularon las secciones eficaces de línea de emisión correspondientes al espectrómetro de área efectiva CXO ACIS-S del observatorio Chandra teniendo en cuenta la abundancia de iones del viento solar proporcionado por el Advanced Composition Explorer^[63,135]. Sin embargo, en el método CTMC de tres cuerpos

aparece un problema significativo para los iones del viento solar altamente cargadas que chocan con blancos multielectrónicos al no poder reproducir el efecto de captura electrónica múltiple. Como la probabilidad de captura múltiple aumenta con la carga de proyectil, un punto clave en el análisis de laboratorio y los reportes de espectros astrofísicos es la determinación precisa de la fracción de rayos-X que se originan por transferencia de carga múltiple^[78].

En este trabajo, se extiende el modelo CTMC de tres cuerpos y se evalúa de forma explícita el rol de los procesos de captura electrónica múltiple en los espectros fotónicos que le siguen al intercambio de carga que involucran colisiones de iones altamente cargados y blanco de argón. Este blanco se ha explorado en LLNL^[139], EBIT-Berlín^[143] y en el National Institute of Standards and Technology (NIST)^[165], por lo tanto, proporciona un buen punto de referencia para el análisis teórico. Se espera que el éxito en la descripción adecuada de estos espectros de laboratorio proporcione información útil para futuros estudios de los blancos neutros cometarios más complejos como H_2O y CO_2 .

La descripción del modelo CTMC y el esquema utilizado para determinar los procesos de decaimiento Auger que, en última instancia, conducen a captura autoionizante de electrones múltiples y decaimiento radiativo se desarrollaron en el Capítulo 2 del presente trabajo. En la Sección 5.2 se describe el método experimental de trampas iónicas (EBIT). En la Sección 5.3 se describe brevemente el modelo CTMC de 8 electrones activos. En la Sección 5.4 se muestran nuestros principales resultados. Finalmente, las principales conclusiones y perspectivas se desarrollan en la Sección 5.5.

5.2. Trampas iónicas EBIT

La primera trampa iónica por un haz de electrones (EBIT) fue construida en el LLNL, Estados Unidos en 1986^[166]. Fue concebida como una fuente espectroscópica para el estudio de iones altamente cargados (HCI por sus siglas en inglés), prácticamente de cualquier elemento y estado de carga^[166-168].

En 1990 se logró la primera extracción de iones altamente cargados de un EBIT^[169]. Por lo tanto, además de su estatus como una fuente y trampa de iones para experimentos con HCI *in situ*, el EBIT fue establecido como una fuente iónica

de muy baja energía. La capacidad de extraer HCI abrió toda una nueva gama de posibilidades de investigación, siendo lo más significativo los experimentos de colisiones atómicas con blancos externos utilizando iones pesados en el más alto estado de carga posible.

5.2.1. El dispositivo EBIT

Un diagrama esquemático de los principales componentes de una trampa EBIT se muestra en la Figura 5.1. El componente central es el haz de electrones. El haz que atraviesa el eje del dispositivo es generado por una fuente de electrones de tipo Pierce a través de la emisión termoiónica desde el cátodo de tungsteno con bario dopado a alta temperatura en la base (conectada a tierra) del dispositivo. Los electrones son acelerados desde el cátodo por el ánodo usando una diferencia de potencial de 2 a 5 kV, dependiendo de la corriente de haz requerida. El haz es guiado por el electrodo de transición a través de un pequeño agujero en el escudo de nitrógeno líquido. Las corrientes de haz de electrones utilizados con este dispositivo son usualmente < 150 mA.

A continuación, el haz de electrones entra a la cámara principal. Éste es acelerado, por una diferencia de tensión, a su energía final de interacción a través de un conjunto de tubos de desplazamiento (*drift tube*) en la región de la trampa, que se describirá en detalle en breve. Generalmente se emplea un potencial de aceleración de hasta 30 kV. La orientación del haz, para compensar pequeños desajustes mecánicos, se consigue con cuatro bobinas magnéticas situadas fuera del sistema de vacío.

Después que el haz de electrones pasa a través de la región de la trampa se desacelera y se retira por el electrodo colector. Un electroimán que rodea el colector ayuda a divergir el haz de electrones de modo que este se deposita sobre un gran área, mientras que el calor generado se disipa por medio de un depósito de nitrógeno líquido. Para evitar que los electrones secundarios vuelvan a la zona de aceleración de la trampa, se utiliza un electrodo supresor, que se encuentra justo debajo del colector. En la parte superior del colector, se encuentra el electrodo extractor, con forma cónica y potencial negativo el cual ayuda a guiar a los iones fuera de la trampa EBIT. También evita que los electrones secundarios se escapen

por la parte superior de la trampa.

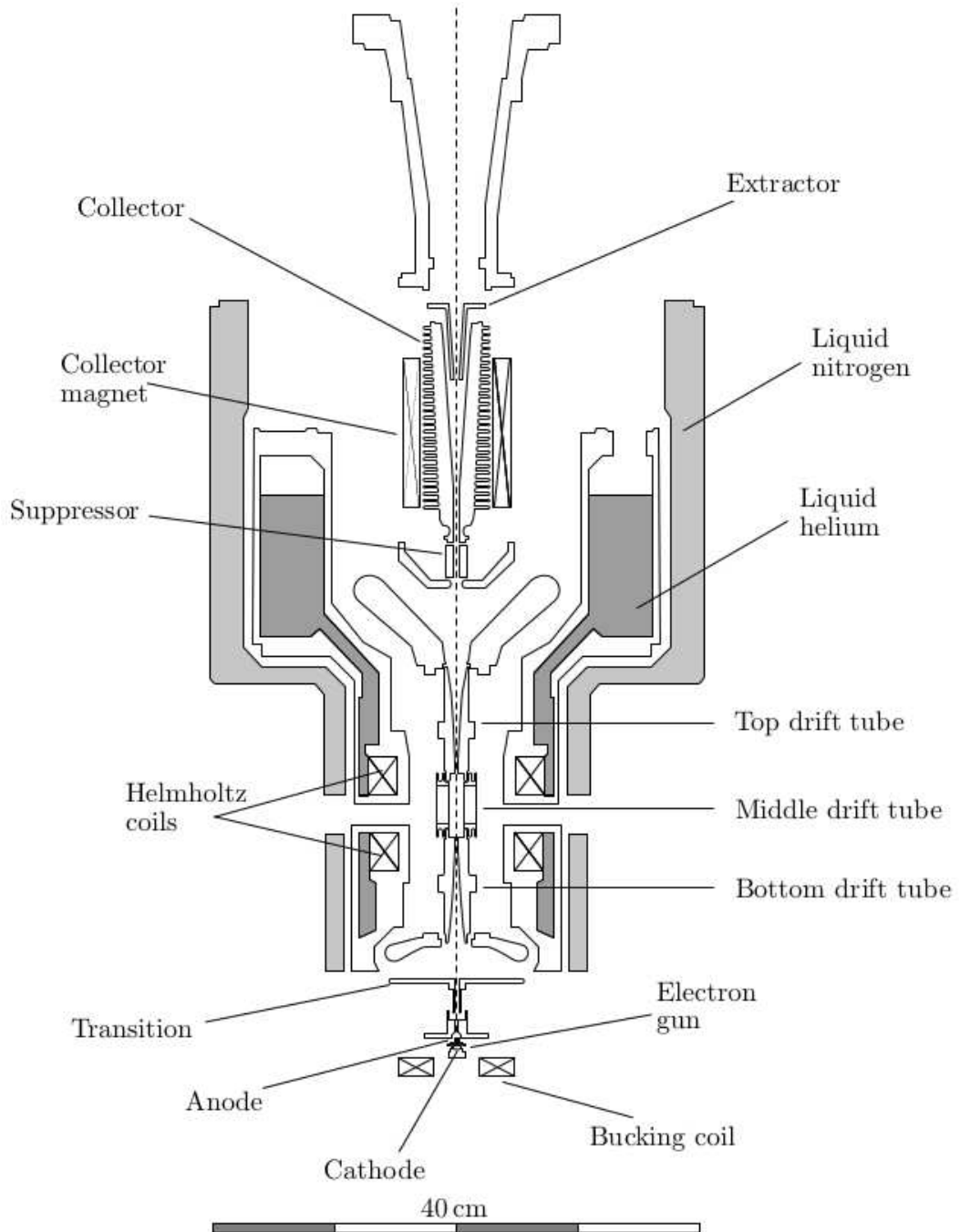


Figura 5.1: Diagrama esquemático de una Trampa EBIT^[170].

Para la producción de los HCI es necesario que haya un componente en la trampa que el haz de electrones pueda ionizar. Si el precursor de los HCI es un gas, por ejemplo argón o xenón, se introduce en dos etapas utilizando inyector de gas con bombeo diferencial. En la primer etapa se inserta en el lado de la trampa EBIT y se incorpora colimado por un par de aberturas. En esta primer cavidad se deja a una presión de 1 Pa y es bombeada a 10^{-3} Pa. En la segunda etapa, es bombeada a 10^{-7} Pa. Desde allí, el gas puede pasar a la región de la trampa para intersectar radialmente el haz de electrones. La misma configuración puede ser utilizada con un compuesto volátil o un metal con alta presión. Existen niveles de fondo de bario y tungsteno, debido a la vaporización de estos elementos desde el cátodo de la fuente del haz de electrones. Sin embargo, es baja en comparación con los HCI inyectados.

Para lograr obtener iones con estados de carga altos, estos necesitan ser confinados. De lo contrario se escaparían del haz de electrones perdiendo capacidad de ionización. De ahí el nombre “trampa”, que es la parte inherente de un EBIT. El confinamiento iónico se logra mediante una combinación de los potenciales axiales y radiales los cuales se ilustran con detalle en la Figura 5.2.

El confinamiento radial se debe principalmente al potencial generado por el propio haz de electrones, que está muy comprimido con el fin de maximizar la tasa de colisiones de ionización por impacto de electrones. La compresión se consigue por el campo magnético de 3T generado por un par de bobinas de Helmholtz que rodean el conjunto de tubos de desplazamiento. Estos se enfrían a alrededor de 4 K por un criostato de helio líquido, que a su vez está envuelto en nitrógeno líquido para minimizar la cantidad de helio líquido requerido. Como resultado, el diámetro del haz de electrones se reduce hasta $\sim 70 \mu\text{m}$ (aproximadamente el ancho de un cabello humano). Esto da una densidad de haz de electrones del orden de 10^{12} cm^{-3} .

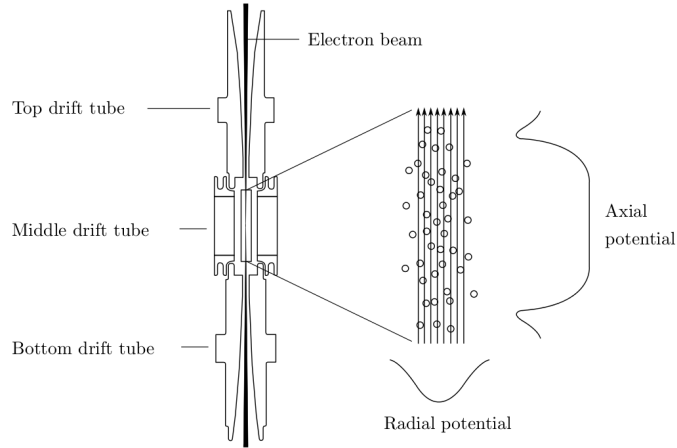


Figura 5.2: Diagrama esquemático de la región de confinamiento de una Trampa EBIT^[170].

El confinamiento axial se consigue mediante un pozo de potencial determinado por las tensiones seleccionadas por tres tubos de desplazamiento, cilíndricos de cobre, de nombres *top*, *middle* y *bottom*. Los tubos exteriores están cargados más positivamente que el central de modo que los iones se reflejan de forma continua entre la parte superior e inferior, dando una longitud de la trampa de ~ 4 cm. Típicamente, se seleccionan los potenciales para dar una profundidad del pozo aplicado a la trampa de $V = 100 - 300$ V. La tensión en el tubo superior se selecciona para que sea menor que en la parte inferior con el objeto de salvaguardar la fuente del haz de electrones de pulverización catódica por los iones. Por lo tanto, es el lado menos profundo del pozo que determina la profundidad de la trampa.

El EBIT del LLNL ha sido utilizado ampliamente para llevar a cabo estudios espectroscópicos, que han incluido mediciones de estructura atómica, determinaciones de tiempos de vida de radiación y mediciones de secciones eficaces electrón-ion, tales como la excitación por impacto electrónico, captura electrónica e ionización por impacto electrónico^[171-174].

En el cálculo de secciones eficaces de líneas de emisión fotónica o secciones eficaces a estados de captura selectiva, existen dos modos de operar en una trampa EBIT. El *modo de extracción*, donde los iones son extraídos de la trampa y dirigidos a una cámara de colisión con blancos en reposo. El *modo magnético*, en

el que se obtienen los espectros mientras los iones colisionan dentro de la trampa. A continuación se describen ambos métodos experimentales.

5.2.2. Trampa EBIT en modo magnético

Este método fue introducido por primera vez por Beiersdorfer *et al.*^[175]. Durante el tiempo en que el haz de electrones está encendido, el EBIT opera de la manera normal: se crean HCIs los cuales quedan atrapados. Esta parte del ciclo se conoce como el modo de haz de electrones (EBM). Sin embargo, una vez que el haz de electrones se apaga, el dispositivo se convierte efectivamente en una trampa Penning. Axialmente los iones todavía se encuentran atrapados por los potenciales en los tubos de desplazamiento, pero radialmente solamente están atrapados por el campo magnético de las bobinas de Helmholtz, es decir, el campo eléctrico producido por haz de electrones ya no se encuentra presente. Esta parte del ciclo, cuando el haz de electrones es apagado se denomina *modo de captura magnética* (MTM).

La presencia de HCIs en la trampa en ausencia del haz de electrones permite una gama de nuevos experimentos EBIT. Por ejemplo, la espectrometría de masas de los HCIs creados en EBM se hace posible a través la transformada de Fourier de los iones en resonancia de ciclotrón^[175]. Esta técnica implica la inserción de electrodos a través de los puertos de observación en el tubo de desplazamiento medio para excitar y detectar el movimiento ciclotrónico de los iones, lo que no es posible en presencia del haz de electrones debido a que su campo eléctrico modifica fuertemente las órbitas de los iones. Otra área de investigación es la medición de los tiempos de vida atómicas para transiciones dipolares eléctricas prohibidas^[176]. Esto se basa en el hecho de que toda la excitación cesa una vez que el haz de electrones se desconecta, lo que permite la evolución temporal de la emisión de un decaimiento particular para ser rastreado sin colisiones perturbativas.

Con el objetivo de estudiar la emisión de rayos-X posterior a la captura electrónica por HCIs atrapado desde componentes neutros, el MTM es el método elegido debido a que en la ausencia del haz de electrones, el intercambio de carga se convierte en el mecanismo exclusivo de producción de rayos-X. Este método no es accesible durante el EBM, donde la radiación emitida como resultado de

intercambio de carga está superpuesta con la emitida debido a la excitación por impacto de electrones. Debido al hecho de que la profundidad de la trampa limita la energía cinética de los iones, los experimentos *in situ* implican HCI en un régimen de muy baja energía (~ 20 eV/amu).

En la Figura 5.3 se muestra la sección transversal de una trampa EBIT. El gas es inyectado en forma continua en la trampa mediante el inyector de gas, el cual es el componente a ionizar durante EBM y como blanco para la captura electrónica durante MTM.

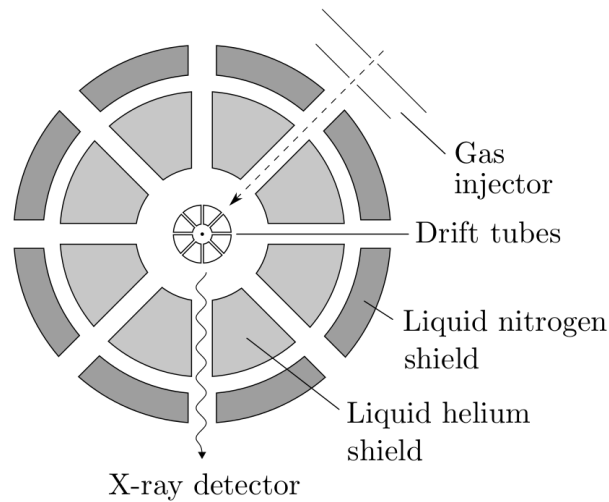


Figura 5.3: Sección transversal de una trampa EBIT^[170].

Los rayos-X emitidos como resultado de las interacciones en la trampa se miden mediante un detector de estado sólido, que implementa un P-I-N fotodiodo de germanio enfriado con nitrógeno líquido.

5.2.3. Trampa EBIT en modo de extracción

Una línea de extracción de iones de un EBIT consiste en una serie de elementos para dirigir, enfocar y colimar el haz de iones, un dispositivo para separar y seleccionar estados de carga, y, finalmente, la instalación de la investigación concreta prevista. En la Figura 5.4 se muestra un diagrama esquemático del modo de extracción de una trampa EBIT.

5.2. $A^{+q} + Ar$

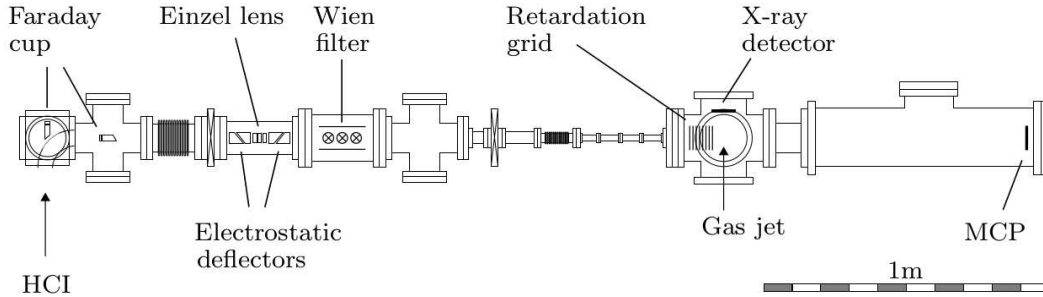


Figura 5.4: Diagrama esquemático del modo de extracción de una trampa EBIT^[170].

Para un haz de iones eficiente es necesario un rendimiento máximo en la extracción. La optimización comienza en la trampa misma, el haz de electrones ayuda a enfocar y orientar a los iones al extractor. Las bobinas de dirección son muy importantes aquí e incluso pequeños ajustes a la bobina estabilizadoras del haz de electrones pueden tener grandes efectos. En la Figura 5.4 puede verse que hay varios elementos sobre la línea de haz de extracción que se utilizan para controlar el haz de iones. Generalmente, uno de los primeros de estos elementos es una rotación electrostática de 90° , que consta de dos placas curvas opuestas. Esto se utiliza para desviar el haz de iones fuera del eje EBIT, que a menudo es vertical, en el plano horizontal de la línea de haz.

Luego de la desviación se mide la corriente iónica por medio de una copa de Faraday (*Faraday cup*), el haz es focalizado por un conjunto de lentes (*Einzel lens*) y colimado. Luego, el haz de iones se transporta a través de la línea de emisión donde se utiliza un filtro de Wien (*Wien filter*) para seleccionar un estado de carga de iones específicos, los iones extraídos de la trampa se separan según su relación carga–masa. Por último, antes de llegar a la zona de colisión, se selecciona la energía de los iones con un campo uniforme (*Retardation grid*). Logrando energías de colisión del orden de $\sim 5q$ keV

5.2.4. Discrepancia entre los modos EBITs

Durante la conferencia HCI 2006 (Highly Charged Ions Conference) en Belfast, diversos laboratorios postularon sus resultados para ambas metodologías operacio-

nales de las trampas EBIT. Se encontraron que las líneas espectrales de rayos-X medidas en el modo de extracción y el modo magnético eran inconsistentes entre sí.

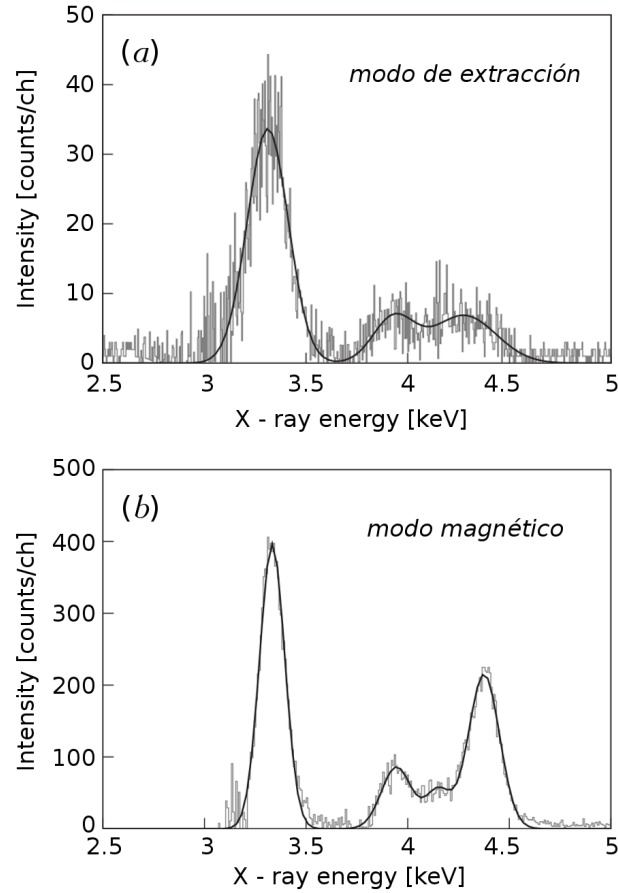


Figura 5.5: Resultados experimentales de los espectros de emisión de rayos-X para colisiones de $Ar^{+18} + Ar$ a 18 eV/amu. Los datos experimentales publicados por Allen *et al.*^[143] que opera el EBIT en Berlín en (a) el modo de extracción y (b) el modo magnético.

En la Figura 5.5 se muestran los espectros de rayos-X para colisiones de $Ar^{+18} + Ar$ a 18 eV/amu. Los datos experimentales fueron publicados por Allen *et al.* en 2008^[143], en (a) el modo de extracción y en (b) el modo magnético. Para ambos espectros, el pico de la izquierda corresponde al Ly- α (transiciones $np = 2 \rightarrow 1$),

mientras que el conjunto de picos de la derecha corresponden a las líneas Lyman superiores (transiciones $np \geq 3 \rightarrow 1$).

Si se compara ambos modos en la Figura 5.5 se observa que en el modo de extracción las intensidades de los Lyman superiores relativos al Ly- α son menores que en el modo magnético. Físicamente, esto hace referencia o se traduce a diferentes estados l de captura electrónica entre ambos modos, dado que las transiciones permiten $\Delta l = \pm 1$.

Hasta el presente, no se ha resuelto este problema, ya que no se ha encontrado la causa de esta discrepancia. Los grupos experimentales sugieren una diferencia en las condiciones del entorno de la trampa EBIT si se compara con las del blanco gaseoso externo, que conduce a una diferencia en el mecanismo de población y/o en los procesos postcolisionales de decaimiento Auger de los estados de Rydberg.

5.3. CTMC de 8 electrones activos

Se ha afirmado durante años que el éxito del modelo CTMC para blancos livianos puede estar asociado con el hecho de que la distribución microcanónica conduce a la distribución de momento exacta de la mecánica cuántica para el blanco de H. Por otra parte, para el blanco de He la distribución de momento de la mecánica cuántica es casi idéntica a la obtenida a través de un ensamble microcanónico cuando se emplean los potenciales de modelo adecuado para este último blanco^[31,177,178]. En contraste, para blancos moleculares, tales como H₂O la aproximación hidrogenoide conduce a distribuciones de momentos y radiales que están en desacuerdo con sus homólogos de la mecánica cuántica. Dado que los procesos de cambio de carga dependen en gran medida del solapamiento de los espacios de fases entre blanco-proyectil, nos lleva a concluir que una mejora con respecto a la aproximación hidrogenoide es claramente necesaria^[21]. Además, se ha demostrado que sorteando los eventos sobre las distribuciones de momento incluso las distribuciones radiales son mejoradas, evitando las deficiencias típicas de las distribuciones microcanónicas^[78].

En este trabajo se ha utilizado el modelo CTMC introducido en el trabajo previo^[78] en el que los eventos están sorteados sobre la distribución de momento de la mecánica cuántica correspondiente al blanco atómico de Ar. Las distribuciones

5.3. $A^{+q} + Ar$

de momentos para cada uno de los ocho electrones que componen el átomo de Ar fueron calculadas tomando expansiones radiales en términos de funciones de Slater propuestas por Clementi y Roetti^[179].

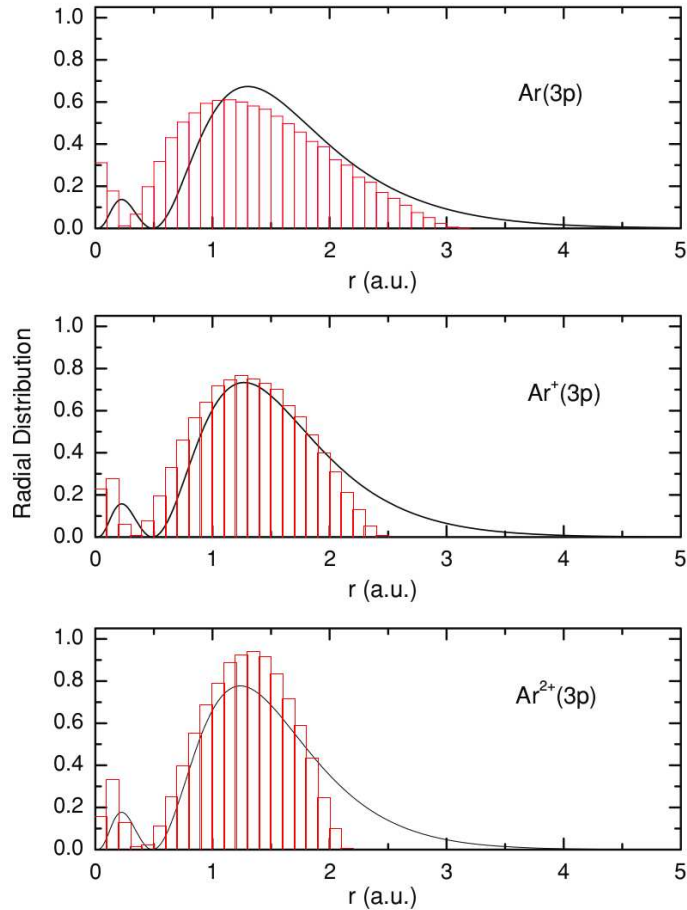


Figura 5.6: Distribuciones radiales para los tres orbitales más externos del Ar ($Ar(3p)$, $Ar^+(3p)$ y $Ar^{2+}(3p)$). En línea sólida se muestra la distribución radial exacta de la mecánica cuántica, mientras que las barras indican las distribuciones radiales obtenidas en el presente modelo CTMC a partir de sortear los eventos sobre las distribuciones de momentos de la mecánica cuántica^[21].

En la Figura 5.6 se muestran las distribuciones radiales para los tres orbitales más externos del Ar ($Ar(3p)$, $Ar^+(3p)$ y $Ar^{2+}(3p)$). Se debe tener en cuenta que las distribuciones de la Figura 5.6 se corresponden con la inicialización de los

5.3. $A^{+q} + Ar$

electrones a tiempo $t = 0$. A medida que el tiempo (o la colisión) evoluciona estas distribuciones se distorsionan levemente haciendo desaparecer la estructura nodal. Se realizó un estudio de la dispersión de las distribuciones en el tiempo y se observó que para los tiempos de colisión los resultados no son afectados.

Los electrones inicialmente son sorteados bajo el diagrama de energías secuenciales de ionización, en la Tabla 5.1 se tabulan las mismas para cada uno de los ocho orbitales. Cada electrón evoluciona interactuando con el núcleo del blanco a través de un potencial hidrogenoide con carga efectiva que se establece con el objeto de proporcionar el mejor acuerdo posible con la distribución radial de la mecánica cuántica.

Orbital	Energía (eV)
Ar ⁺	15.759
Ar ²⁺	27.629
Ar ³⁺	40.7
Ar ⁴⁺	59.81
Ar ⁵⁺	75.02
Ar ⁶⁺	91.007
Ar ⁷⁺	124.319
Ar ⁸⁺	143.456

Tabla 5.1: Energías secuenciales de ionización para cada orbital del Argón^[179].

5.3.1. Mecanismo postcolisional

Con el objeto de dilucidar la discrepancia entre los modos de las trampas EBITs, un punto importante a tener en cuenta es el mecanismo poblacional y de decaimiento Auger implementado. Por esta razón, se ha utilizado un modelo CTMC de decaimiento Auger que describe este mecanismo.

Un método de análisis que es ampliamente utilizado para describir el proceso de captura en las colisiones lentas es el modelo COB. El número cuántico principal

5.3. $A^{+q} + \text{Ar}$

del estado de captura dominante, n_c , predicha por el modelo está dado por

$$n_c = \frac{q^{3/4}}{\sqrt{I_p/13.6}}, \quad (5.1)$$

donde q es el estado de carga del HCI e I_p es la energía potencial de ionización en eV del blanco^[58]. Esta simple relación obtenida por Olson en 1981 a partir del CTMC^[46] nos brinda una herramienta muy útil, pero a pesar de ello, no posee información del estado l de captura electrónica.

El mecanismo de decaimiento de Ali implementado, introducido en el Capítulo 2, describe el mecanismo de decaimiento en forma completa proporcionando información del estado electrónico del blanco durante el proceso. Los momentos angulares de los electrones que decaen a través del proceso Auger son determinados con el requerimiento de preservar sus respectivas excentricidades orbitales^[180]. En beneficio de la simplicidad, se utilizan los niveles de energía hidrogenoides para determinar la población del proyectil luego del intercambio de carga múltiple. Se espera naturalmente que este tratamiento sea más preciso a medida que se incrementa la carga.

Existen modelos cuánticos que describen la evolución poblacional y los espectros de emisión resultantes tras la captura de dos electrones por parte del proyectil. Este método, sin embargo, se convierte en impracticable para un mayor número de electrones transferidos ≥ 3 . Un proyectil altamente cargado captura múltiples electrones a estados cuánticos principales altos y en consecuencia, el número total de combinaciones posibles de los momentos es muy grande y por lo tanto el tamaño de la matriz de transiciones posibles se incrementa dramáticamente^[181].

Para ejemplificar este mecanismo en las Figuras 5.7 y 5.8 se esquematizan dos eventos de captura múltiple (captura séptuple específicamente) para $\text{Ar}^{+18} + \text{Ar}$ colisionando a 4 keV/amu. La Figura 5.7 corresponde a un evento de captura múltiple que deriva en AutoMC.

La línea horizontal roja hace referencia a la energía del estado continuo respecto al proyectil, mientras que las líneas horizontales negras muestran los estados n enumerados a izquierda y derecha. De izquierda a derecha, se esquematiza el mecanismo de decaimiento desde estado inicial de captura al estado final. Donde las flechas verdes hacia abajo indican el estado n al que decae el electrón, las

5.3. $A^{+q} + Ar$

flechas violetas a 45 grados indican el electrón emitido al continuo y las flechas onduladas señalan la emisión fotónica.

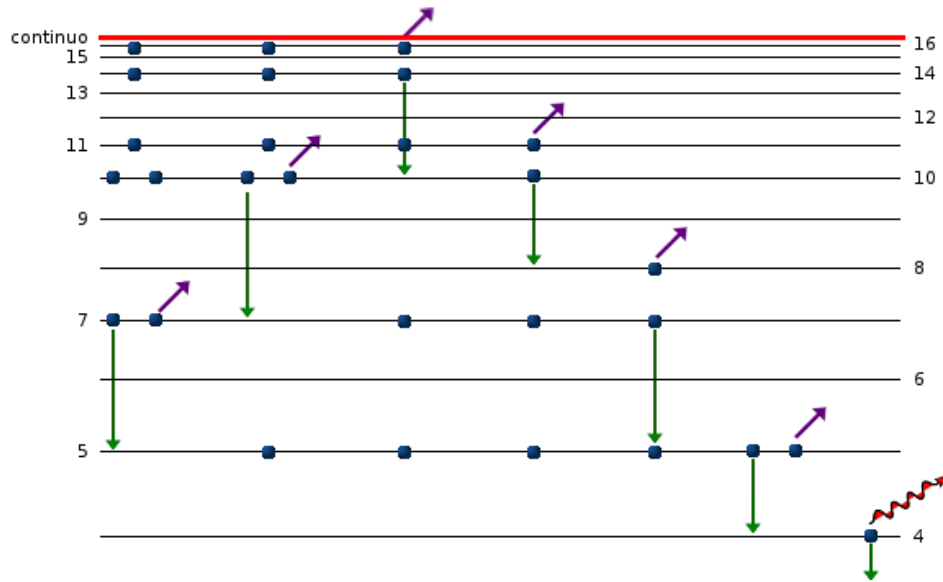


Figura 5.7: Diagrama esquemático del mecanismo de decaimiento Auger. Para una trayectoria particular, en un evento de captura múltiple para el ion Ar^{+18} a energía de 4 keV/amu colisionando sobre Ar. Este evento de captura múltiple corresponde a AutoMC

La Figura 5.8 corresponde a un evento de captura múltiple que deriva en Rad. Dec.

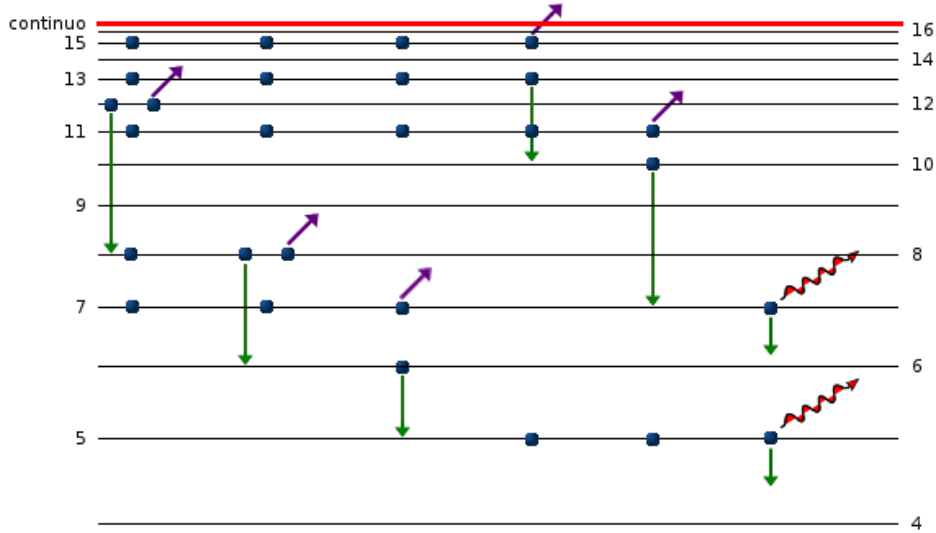


Figura 5.8: Diagrama esquemático del mecanismo de decaimiento Auger. Para una trayectoria particular, en un evento de captura múltiple para el ion Ar^{+18} a energía de 4 keV/amu colisionando sobre Ar. Este evento de captura múltiple corresponde a Rad. Dec.

Notar que en cada proceso Auger un electrón alcanza al continuo, mientras que su par decae al correspondiente estado n respetando la ley de conservación de energía. En cada proceso los dos electrones con menor diferencia energética entre ellos son los involucrados en el proceso.

5.4. Resultados y discusión

En la Figura 5.9 se muestran secciones eficaces de líneas de emisión para intercambio de carga en colisiones de $Ne^{10+} + Ar$ en energía de impacto de 4 keV/amu. Esta energía de impacto es muy similar a la correspondiente al viento solar rápido (700 km/s).

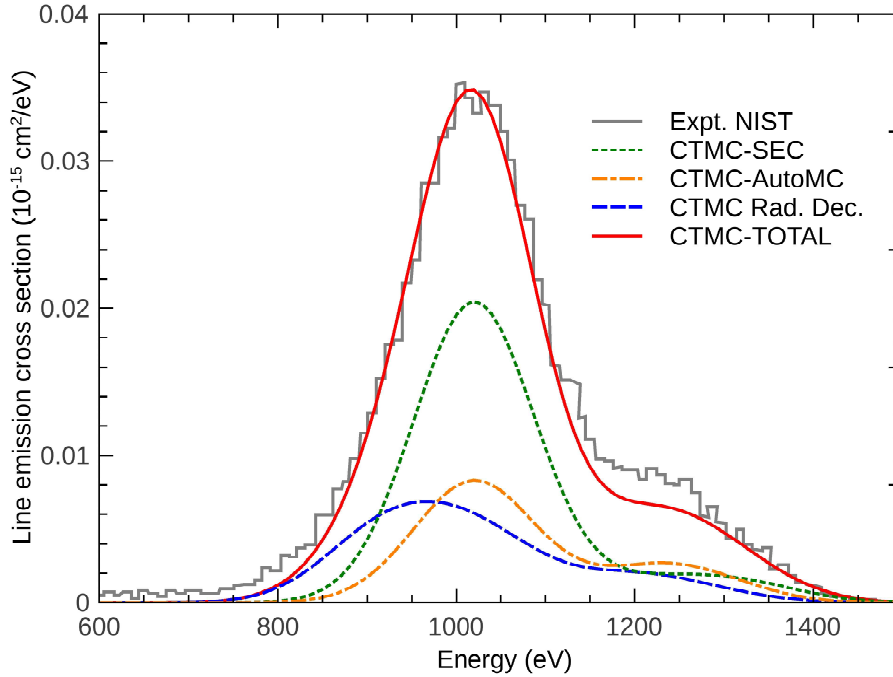


Figura 5.9: Secciones eficaces de línea de emisión de CTMC en colisiones a 4 keV/amu de Ne^{10+} sobre Ar. Los presentes resultados se comparan con datos experimentales de Tawara *et al.* del laboratorio de NIST^[165]. Se muestran explícitamente las contribuciones parciales absolutas de captura simple SEC, captura múltiple autoionizante AutoMC y el canal de decaimiento radiativo Rad. Dec.

Los presentes resultados teóricos se comparan con los datos experimentales de Tawara *et al.*^[165], los cuales fueron normalizados a nuestros valores teóricos absolutos en el pico de la emisión fotónica Ly- α . Los datos experimentales se obtuvieron en el NIST mediante el uso de una trampa EBIT en *modo de extracción*. En este caso la trampa se utiliza como fuente de iones y los proyectiles se aceleran hacia una cámara separada de colisión. La resolución de energía del detector reportada es de aproximadamente 130 eV para Titanium, el cual posee un Ly- α en el espectro de rayos-X con una energía de 4.5 keV. Por esta razón se convolucionan nuestras secciones eficaces de líneas de emisión por medio de funciones Gaussianas con un ancho medio altura mitad de 160 eV (FWHM del inglés Full Width at Half

Maximum). Las diferentes líneas muestran las contribuciones en forma separadas que surgen del mecanismo de captura simple absoluta (SEC), la cual deja al blanco iónico residual con carga uno, la captura múltiple autoionizante (AutoMC) que proviene de captura múltiple y el decaimiento radiativo (Rad. Dec.) se refiere al canal de captura múltiple que finaliza en captura electrónica doble a través del tratamiento de decaimiento de Ali.

Para el proceso $Ne^{10+} + Ar$ colisionando a 4 keV/amu la fracción teórica de rayos-X procedentes de captura electrónica múltiple asciende al 49.8%. Este resultado es consistente con el valor experimental de 54.1% reportado por Ali *et al.*^[182] para el mismo sistema de colisión y similar energía de impacto de 4.54 keV/amu, obtenido por el método de espectroscopía COLTRIMS en el dispositivo que se encuentra en la UNReno.

En la Figura 5.10 se muestran las secciones eficaces de líneas de emisión para intercambio de carga en colisiones de $Ar^{+18} + Ar$ con una energía de impacto de 4 keV/amu. En este caso, se observa un hombro a bajas energía del pico Ly- α . Esta estructura, mucho más evidente que para el caso de proyectiles de neón desnudo, es resultado de captura electrónica múltiple en iones totalmente desnudos y es proporcionada por el canal de desintegración radiativa. Los estados doblemente excitados formados en este caso tienden a estabilizarse a través de dos transiciones radiativas, por lo que emiten dos fotones sucesivos con energías ligeramente diferentes que se corresponden con rayos-X. Cualitativamente se tiene una transición $2pnl \rightarrow 1snl$ seguida por una transición al fundamental $1snl \rightarrow 1s^2$. Esta segunda transición es energéticamente menor dado que el electrón ve un núcleo Ar^{+17} , mientras que la primera ve un núcleo Ar^{+18} .

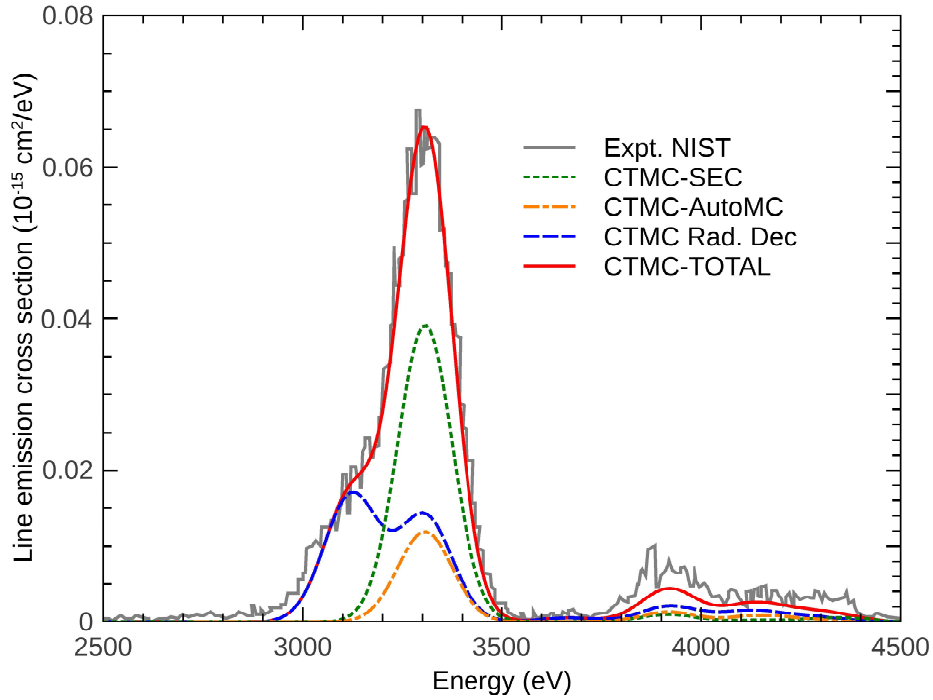


Figura 5.10: Idem Figura 5.9 pero para colisiones de $\text{Ar}^{18+} + \text{Ar}$.

En la Figura 5.11 se muestran las secciones eficaces de líneas de emisión para intercambio de carga para el sistema $\text{Kr}^{36+} + \text{Ar}$ con energía de colisión de 4 keV/amu. En este caso, lo que aparecía como un hombro de baja energía en el pico Ly- α para el caso de Ne y Ar se desdobra como un segundo pico bien separado. En este sistema, se convolucionaron nuestros resultados teóricos por medio de funciones Gaussianas con ancho medio de altura mitad de 180 eV para que coincida con los anchos experimentales. Se debe tener en cuenta que el análisis de los datos utilizados en las mediciones de EBIT podrían no mostrar el pico de menor energía Ly- α ya que habría sido sustraído de datos provenientes de SEC para colisiones de Kr^{35+} .

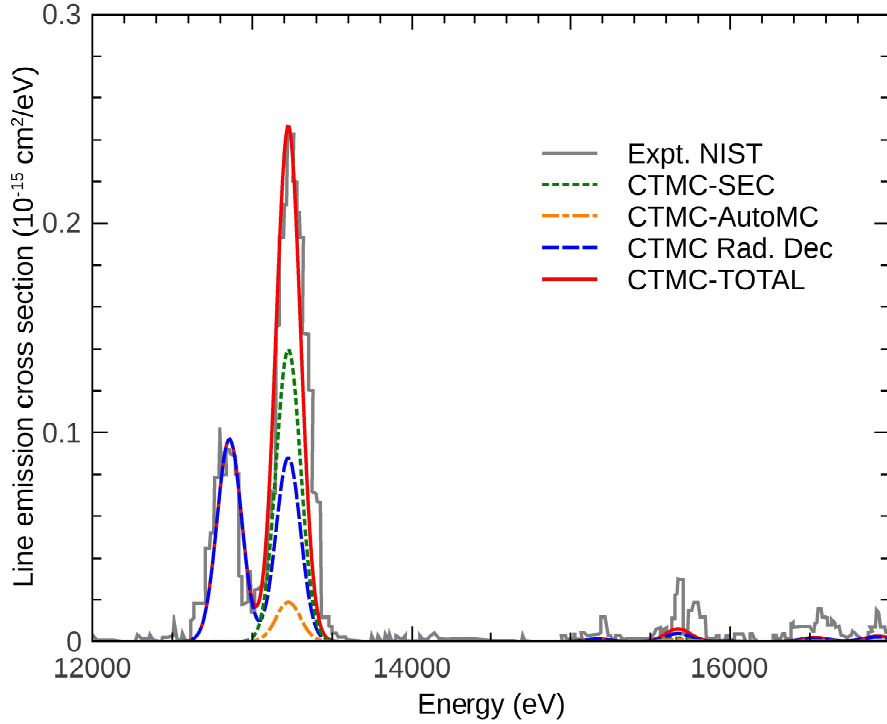


Figura 5.11: Idem Figura 5.9 pero para colisiones de $\text{Kr}^{36+} + \text{Ar}$.

En la Tabla 5.4 se resumen nuestras estimaciones de CTMC para las contribuciones relativas de espectros de rayos-X para canales de SEC, AutoMC y Rad. Dec. mostrados en las Figuras 5.9 5.10 y 5.11. Cabe señalar que la captura múltiple de electrones, MEC, aumenta con la carga del proyectil y es responsable de una importante fracción que varía de 50 % a 60 %. Además, a medida que aumenta la carga del proyectil, el canal de decaimiento radiativo gana relevancia en colisiones desde 25.2 % para Ne^{10+} hasta el 54.5 % para Kr^{36+} del espectro de rayos-X. Estos resultados proporcionan un claro indicio sobre las limitaciones de los modelos de tres cuerpos puros para describir procesos de colisión que implican iones altamente cargados.

5.4. $A^{+q} + \text{Ar}$

Proyectil	SEC	AutoMC	Rad. Dec.	MEC (AutoMC+Rad.Dec.)
Ne^{10+}	0.502	0.246	0.252	0.498
Ar^{18+}	0.450	0.157	0.393	0.550
Kr^{36+}	0.399	0.056	0.545	0.601

Tabla 5.2: Contribuciones relativas de espectros de rayos-X para los canales SEC y MEC mostrados en las Figuras 5.9 5.10 y 5.11 provenientes del intercambio de carga con átomos de argón a 4 keV/amu de energía de impacto.

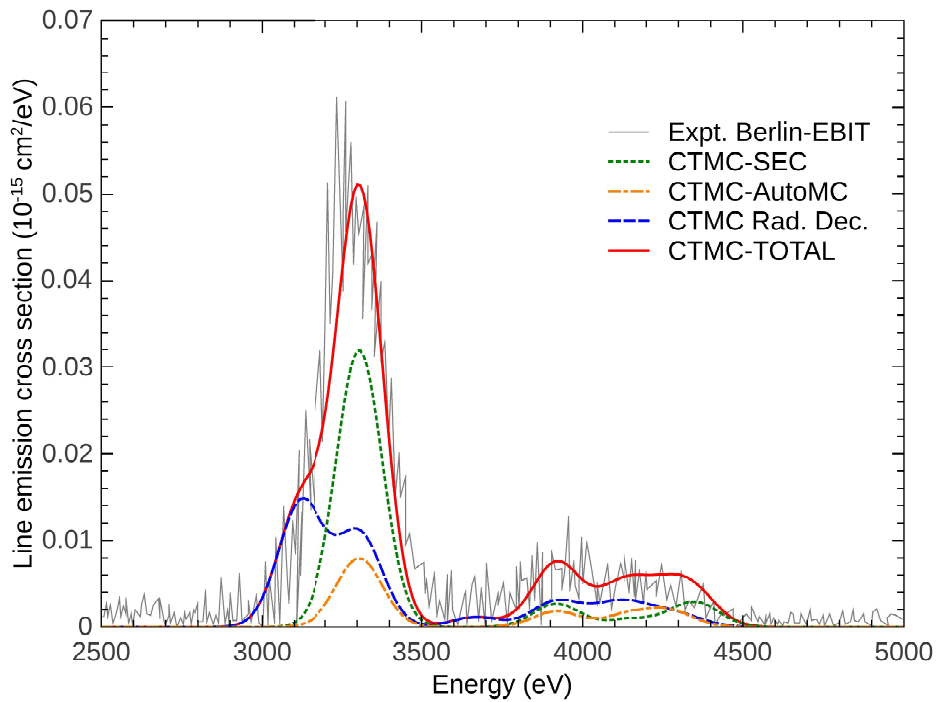


Figura 5.12: Secciones eficaces de líneas de emisión de CTMC para Ar^{+18} a 218 eV/amu colisionando sobre argón. Los datos experimentales corresponden a la trampa EBIT-Berlín obtenidos por Allen *et al.*^[143]. Se muestran explícitamente los aportes parciales de los canales SEC, AutoMC y Rad. Dec.

Estudios a bajas energías de impacto se muestran en la Figura 5.12 donde

los resultados teóricos se comparan con los datos experimentales de la trampa EBIT–Berlín obtenidos por Allen *et al.*^[143] para Ar^{+18} a una energía de impacto de 218 eV/amu colisionando sobre argón. Los datos experimentales, en este caso, también se recogieron utilizando el modo de extracción. La fracción de rayos–X procedentes de captura múltiple de electrones asciende al 51.7%. Mientras que el decaimiento radiativo MEC en CTMC proporciona el 73.2% de la fracción de rayos–X.

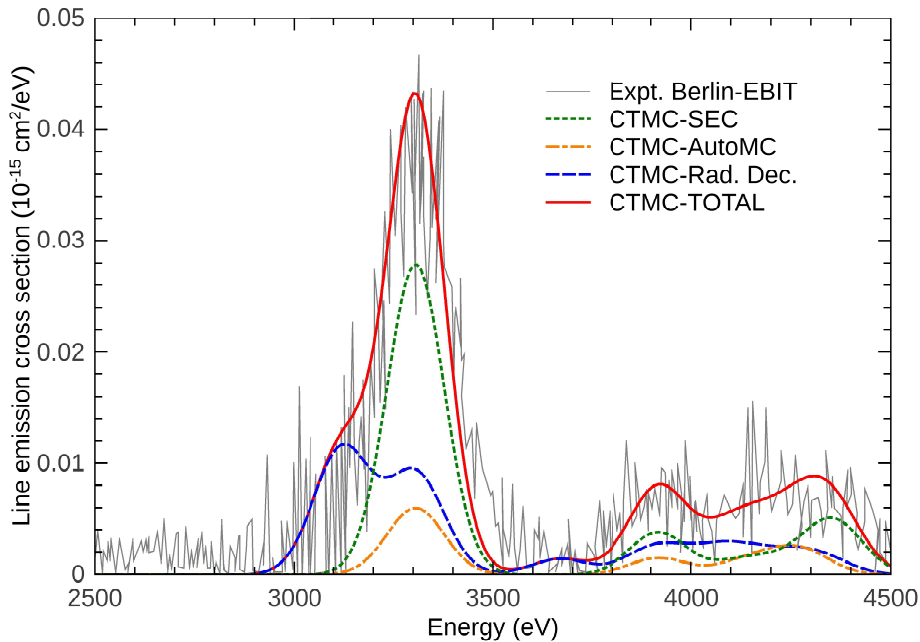


Figura 5.13: Lo mismo que para la Figura 5.12 pero para colisiones de Ar^{18+} a 18 eV/amu colisionando sobre argón.

La Figura 5.13 muestra la energía más baja considerada por Allen *et al.* operando en modo de extracción a 18 eV/amu. La fracción CTMC de rayos–X procedentes de MEC asciende hasta el 55.3%. De los cuales, el decaimiento radiativo proporciona 72.6% de la fracción MEC. Para esta energía, los espectros típicos de rayos–X también se pueden recoger en modo magnético de la trampa EBIT (sin necesidad de extracción) a partir de los iones girando dentro de la trampa. Co-

mo informaron en su artículo^[143], estos autores encontraron fuertes discrepancias entre los espectros obtenidos mediante el uso de estas dos técnicas operacionales.

Las diferencias en los espectros son apreciables especialmente en líneas Lyman altas. Como se mostró en la Figura 5.5, los espectros obtenidos en modo magnético de la trampa son mucho más prominentes que los obtenidos en el modo de extracción. La Figura 5.14 nos ayuda a dilucidar esta situación a través del parámetro *Hardness Ratio*, R , dado por la relación de rayos-X correspondientes a las transiciones entre $n \geq 3 \rightarrow 1$ y $n = 2 \rightarrow 1$.

Los datos de la trampa EBIT-Berlín para mediciones a energías típicas en modo magnético (~ 20 eV/amu) están en acuerdo con los resultados del modo magnético de la trampa EBIT-LLNL. Mientras que en el modo de extracción para estas energías los valores de R son inferiores en un factor mayor a 2.

Por otro lado, a energías típicas del viento solar se encontró que los resultados del modo de extracción de la Berlin-EBIT están en buen acuerdo con los obtenidos en el NIST.

Los Hardness Ratios calculados mediante CTMC se encuentran en acuerdo con los resultados de EBIT-Berlín en modo de extracción del haz. Sin embargo, se observa que para grandes energías de impacto nuestras predicciones teóricas tienden más rápido al límite estadístico que los datos experimentales. También se observa que el canal SEC subestima los valores de Hardness Ratio en todo el rango de energía considerado y la inclusión de captura múltiple de electrones (MEC) mejora y obtiene muy buen acuerdo con los datos experimentales del modo de extracción. Una cosa a recordar es que los resultados de la SEC no deben estar asociados a *resultados de tres cuerpos puros*. De hecho, la contribución que proviene de parámetros de impacto bajos en el modelo de tres cuerpos se asocia con SEC. Por otro lado, en el modelo de varios electrones los eventos que proviene de parámetros de impacto bajos son los responsables de alimentar los canales de MEC.

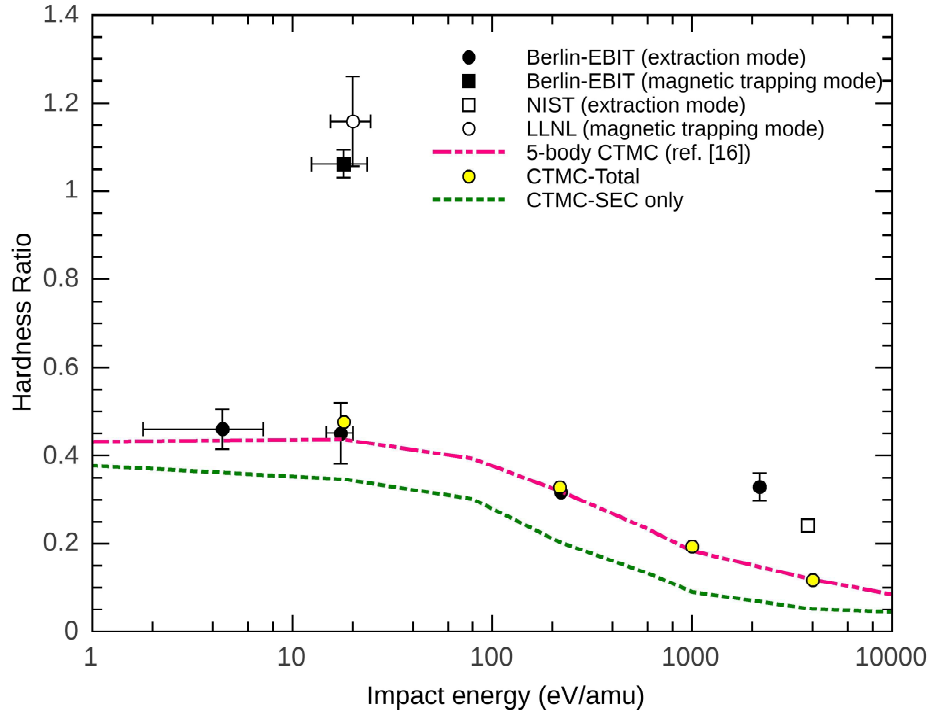


Figura 5.14: Hardness Ratio en función de la energía de impacto para colisiones $\text{Ar}^{+18} + \text{Ar}$. Se incluyen resultados previos obtenidos con un código CTMC de tres electrones^[78] para la comparación.

Por último, se aborda el sistema de colisión $\text{Ar}^{17+} + \text{Ar}$ a energía de impacto de 7 keV/amu. Para este sistema se han realizado estudios recientes por Trassinelli *et al.* en GANIL^[183]. Sus intensidades relativas reportadas para las transiciones $1snp \rightarrow 1s^2$ se han normalizado a nuestros resultados CTMC sobre la línea $1s3p \rightarrow 1s^2$, de acuerdo a la metodología descrita en la referencia^[63]. En la Figura 5.15 es posible observar claramente que la contribución del canal SEC únicamente no es suficiente para describir las intensidades relativas y la inclusión de la contribución de AutoMC mejora drásticamente el acuerdo con los datos reportados. El decaimiento radiativo en este caso no contribuye a las presentes intensidades dado que las líneas asociadas a un proyectil de estado de carga final del tipo Li (para el caso de Ar^{15+}) se encuentran separadas hacia energías menores a las del presente estudio.

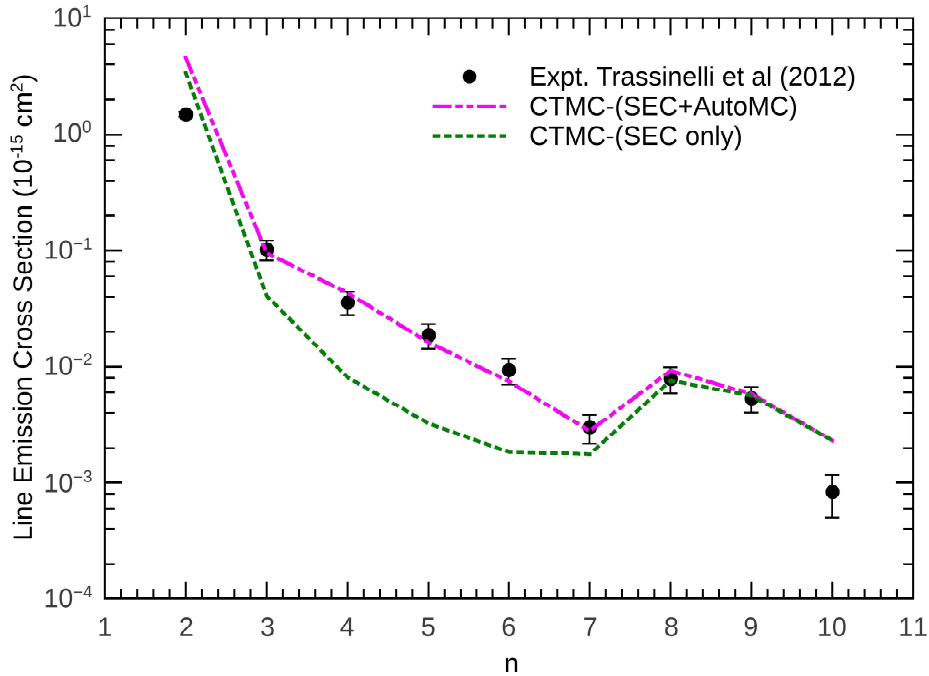


Figura 5.15: Secciones eficaces de líneas de emisión en CTMC para las transiciones $1snp \rightarrow 1s^2$ producidas por intercambio de carga en colisiones de $Ar^{+17} + Ar$ a 7 keV/amu. Los datos experimentales pertenecen a Trassinelli *et al.* [183] .

5.5. Conclusiones

En este trabajo se ha estudiado teóricamente el papel del canal de captura electrónica múltiple en los espectros de rayos-X luego del intercambio de carga en colisiones entre iones altamente cargados y argón neutro como blanco del sistema. El modelo CTMC basado en ocho electrones, que no interactúan entre sí, son sorteados con energías de enlace secuenciales. El modelo se encuentra sujeto a un esquema de desintegración radiativa que permite la separación explícita de los eventos de captura electrónica múltiple, en captura simple (SEC), captura múltiple autoionizante (AutoMC) y decaimiento radiativo (Rad. Dec.). Se presentaron resultados de $Ar^{+18} + Ar$ en energías de impacto cercanas a las condiciones del

viento solar rápido, estos resultados teóricos se encuentran en muy buen acuerdo con los espectros de rayos-X de Tawara *et al.* obtenido en NIST^[165]. Nuestros cálculos reproducen muy bien el hombro de baja energía en la estructura Ly- α , que para proyectiles de cargas de mayor tamaño se convierte en un pico bien separado. Esto se debe al decaimiento radiativo asociado a la captura electrónica doble. A energías de menor impacto (218 y 18 eV/amu) nuestros resultados están en acuerdo con datos reportados en modo de extracción obtenidos por Allen *et al.* en las trampas EBIT-Berlín y los obtenidos por Tawara *et al.* en NIST.

Para los sistemas de colisión estudiados en este trabajo, la captura electrónica múltiple es responsable del 50 %-60 % de los espectros de rayos-X resultantes. Si se tiene en cuenta que los códigos astrofísicos utilizan secciones eficaces de intercambio de carga (o líneas de emisión) como datos de entrada para estimar indirectamente la abundancia de iones del viento solar en lugares remotos del Universo, los estudios actuales sugieren que el papel de captura electrónica múltiple para blancos astrofísicos gaseosos debe ser revisada y/o considerada.

Después de casi una década, la discrepancia entre los espectros de líneas de emisión que se obtuvo utilizando trampas EBIT que se ejecutan en el modo de trampa magnética y el modo de extracción para energías de colisión del orden de ~ 20 eV/amu permanece sin explicación. Se necesitan más esfuerzos experimentales y teóricos en conjunto en esta dirección para ayudar a resolver este problema duradero y crítico.

Capítulo 6

Descripción clásica de $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$ para cálculos de secciones eficaces de intercambio de carga relevantes en diagnóstico de plasmas

6.1. Introducción

Durante casi cinco décadas desde su desarrollo^[7], el método CTMC ha sido ampliamente utilizado a fin de proporcionar una visión teórica de muchos procesos de colisión atómica y molecular involucrando iones y electrones. Siendo el blanco más simple a estudiar, a finales de la década de 1970, se utilizó hidrógeno atómico para probar la metodología. Los procesos de intercambio de carga y de ionización en colisiones de iones altamente cargados colisionando sobre $H(1s)$ fueron examinados a nivel de secciones eficaces totales por Olson y Salop en 1977^[10]. Poco después, secciones eficaces a estados selectivos a niveles (n, l) fueron calculadas por Olson en 1981^[14]. Desde entonces, numerosos trabajos han sido publicados en CTMC estudiando procesos de intercambio y de ionización en colisiones que involucran proyectiles desnudos o parcialmente desnudos a diferentes energías de

impacto con $H(1s)$ (ver Capítulo 2 para una revisión en la actualidad).

El éxito del método CTMC puede considerarse relevante, ya que el método se basa exclusivamente en las leyes físicas de Newton para describir procesos físicos que tienen lugar en el dominio de la mecánica cuántica. En particular, el éxito de la metodología se evidencia en estudios de intercambio de carga desde blanco de $H(1s)$. En cierta medida, este logro se ha atribuido al hecho de que la distribución de momento clásica y la distribución cuántica para el electrón del blanco son idénticas. Sin embargo, este no es el caso para la distribución radial proporcionada por la distribución del espacio de fases microcanónica utilizada para inicializar el sistema del blanco. La distribución radial clásica tiene un alcance finito menor al cuántico. Esto conduce a una subestimación de las contribuciones en los procesos de ionización, intercambio de carga y excitación para grandes parámetros de impacto del proyectil.

Con el fin de evitar este problema, Eichenauer *et al.* (1981) propusieron una función distribución de Wigner para el espacio de fase, que mejoró la distribución radial a expensas de la pérdida de la distribución de momento exacta^[184]. Poco después, y en línea con los argumentos de Eichenauer, Hardie y Olson (1983)^[15] propusieron una suma discreta de distribuciones microcanónicas correspondientes a diferentes potenciales de ionización para el electrón en el blanco (este método se denomina a partir de este punto CTMC-E-hidrogenoide). En este método, la suma discreta se determina al requerir la reproducción del estado $H(1s)$ de distribución radial cuántica exacta. Esto se logra mediante la consideración de que cada componente de energía se pesa con un coeficiente, determinado mediante un procedimiento de ajuste de cuadrados mínimos. La distribución radial cuántica correcta se recupera estadísticamente a expensas de considerar un conjunto finito de potenciales de ionización dentro del rango de 0.125 a 2.0 a.u. En consecuencia, como los potenciales de ionización aumentan, el parámetro de impacto máximo b_{max} que contribuye al proceso de intercambio de carga disminuye. Por lo tanto, mediante el uso de una base discreta, es posible ganar considerable tiempo computacional ajustando la gama de parámetros de impacto para cada conjunto de energías. Por otra parte, este procedimiento igualmente proporciona una correcta aproximación a la distribución de momentos. Los estudios de Eichenauer también fueron seguidos por Cohen, quien más tarde publicó otra función

distribución clásica de espacio de fase que conduce a la distribución radial cuántica exacta y proporciona una buena aproximación a la distribución de momento cuántica^[185].

A lo largo de los años, el interés también se trasladó a blancos multi-electrónicos y estudios CTMC también abordaron procesos de electrones múltiples como la captura múltiple, ionización y ambos procesos en conjunto. Hoy en día, los métodos CTMC representan de manera explícita átomos multi-electrónicos^[16,50,151,152,186,187] y también han sido desarrollados sistemas moleculares que proporcionan descripciones físicas que se extienden más allá de aproximaciones de eventos para electrones independientes^[111,112,164,188].

Los programas de reactores de energía de fusión (JET^[189] y ITER^[66]), mantienen activo el interés por sistemas simples tales como hidrógeno atómico hasta el presente. La mayor parte de las necesidades reales en este punto están dirigidas hacia el uso de espectroscopía de intercambio de carga (CXS) como una herramienta potencial para el diagnóstico de plasma^[65,190]. Con este propósito, son necesarias secciones eficaces de intercambio de carga fiables para modelar en forma efectiva los coeficientes de emisión para temperaturas de plasma, que se encuentran entre 10 keV/amu hasta 50 keV/amu durante el calentamiento del gas neutro^[190,191].

Un punto importante a señalar es que CXS se basa en la emisión fotónica del rango visible (1.771 a 3.1 eV). Esta limitación surge del uso de fibra óptica para extraer los espectros del reactor nuclear. Siendo que las secciones eficaces de intercambio de carga de $H^*(n=2)$ son más grandes que las de $H(1s)$ por algunos órdenes de magnitud, incluso una pequeña fracción de $H^*(n=2)$ presente en el plasma ($< 1\%$) domina la emisión fotónica del visible para energías de impacto de hasta unas pocas decenas de keV/amu^[192]. Por lo tanto, datos de captura electrónica de blancos $H^*(n=2)$ también son necesarios para obtener coeficientes de emisión precisos.

Además del método CTMC, métodos cuánticos tales como el de expansiones en orbitales atómicos^[193] y orbitales atómicos acoplados AOCC^[194–196] han prestado asistencia en diagnóstico de plasma. Estos métodos dependientes del tiempo necesitan de bases de funciones de gran tamaño para describir adecuadamente la colisión. En este sentido, al considerar proyectiles altamente cargados y blancos

con bajos potenciales de ionización, se tienden a poblar estados altos (n grandes) del proyectil, lo que todavía representa un desafío computacional notable para estos métodos.

En este trabajo, se presenta un modelo alternativo para CTMC $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$ (desde este punto lo se llamará, CTMC-Z-hidrogenoide), el cual proporciona una representación más exacta del sistema del blanco que el ensamble microcanónico. A pesar de seguir el espíritu de CTMC-E-hidrogenoide, el modelo CTMC-Z-hidrogenoide reproduce las distribuciones de momentos exactas y las colas exponenciales correctas de las distribuciones radiales. Esto se logra considerando un conjunto de cargas nucleares (Z) diferentes mientras se conserva el potencial de ionización correcto (V_{ion}) para el blanco en cuestión. Los proyectiles considerados en este trabajo para poner a prueba el modelo son C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} , los cuales son de gran interés para la comunidad de fusión de plasma.

En la Sección 6.2 se presenta la descripción del modelado para las distribuciones radiales y de momentos obtenidas con este método. En la Sección 6.3.1, se presentan los resultados para $H(1s)$ y se contrastan con los modelos CTMC-E-hidrogenoide y microcanónico, como así también con los resultados reportados recientemente AOCC^[194,195]. En la Sección 6.3.2 se considera explícitamente el caso $H^*(n = 2)$. Secciones eficaces de líneas de emisión se presentan y analizan en la Sección 6.3.3. Por último, en la Sección 6.4 se presentan las conclusiones.

6.2. Método Teórico

La metodología utilizada se describe en el Capítulo 2, tanto la dinámica de la colisión, como el análisis poscolisional de las secciones eficaces a estados selectivos y líneas de emisión.

En una distribución microcanónica estándar los puntos de retorno clásicos para $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$ son $r \sim 2.0$ a.u. y $r \sim 8.0$ a.u. respectivamente. Los detalles sobre los procedimientos de inicialización para los métodos de CTMC microcanónico estándar y el CTMC-E-hidrogenoide se pueden encontrar en las referencias^[15,31,110] como en varios trabajos posteriores. En la presente sección se brindan detalles de la inicialización del sistema de colisión para el método CTMC-Z-hidrogenoide.

En el presente método, CTMC-Z-hidrogenoide, cada evento de colisión es inicializado tal que el electrón evoluciona en el blanco bajo el campo Coulombiano producido por el protón. La magnitud de la velocidad inicial del electrón es determinada aleatoriamente sobre la distribución de momento cuántica para $H(1s)$, $H^*(2s)$ o $H^*(2p)$. Se encuentra el valor de la coordenada radial asociada a los momentos iniciales a través de la ecuación de conservación de la energía. Un punto importante, es que esta ecuación incluye un término de energía potencial que es proporcional a la carga nuclear Z del blanco. Entonces, al mantener el potencial de ionización como un parámetro fijo, se aproxima la distribución radial cuántica como una suma de distribuciones radiales clásicas $\rho(r)$ de la forma:

$$\rho(r) = \sum_i \alpha_i \rho_i(r, Z_i). \quad (6.1)$$

En esta ecuación, α_i son los factores de peso para las diferentes distribuciones asociadas a los distintos valores de Z considerados. Estos factores se calculan por medio de un ajuste de cuadrados mínimos.

En la Tabla 6.1, se presentan los valores Z_i y α_i utilizados en este trabajo para los orbitales $1s$, $2s$ y $2p$ del hidrógeno. Notar que los factores de peso se encuentran normalizados a la unidad.

Tabla 6.1: Factores de peso (α_i) del CTMC–Z–hidrogenoide para los orbitales $1s$, $2s$ y $2p$.

Z_i	α_i		
	$1s$	$2s$	$2p$
0.500	0.07240	0.06396	
0.625	0.07658	0.14280	
0.690			0.25648
0.750	0.09665	0.20270	
0.875	0.09230	0.18586	0.06318
1.000	0.16204	0.16171	0.34504
1.125		0.12056	
1.250	0.17971	0.08384	
1.375		0.05037	0.31296
1.500	0.13019	0.04327	0.00017
1.750	0.08071	0.02856	0.02818
2.000	0.06475		0.02769
2.500	0.04493		

Las correspondientes distribuciones de momento y radiales obtenidas para estos orbitales se muestran explícitamente en la Figura 6.1. Se ha visto en trabajos anteriores para blanco de argón^[78,197], inicializados aleatoriamente sobre la distribución de momento cuántica que las estructuras nodales de la distribuciones radiales pueden ser reproducidos clásicamente. Esto también se nota en el presente método CTMC–Z–hidrogenoide. En particular, la estructura nodal para la distribución radial del estado $2s$ se reproduce cualitativamente con los factores de peso tabulados, que están limitados a tomar valores positivos únicamente. Se debe tener en cuenta que las distribuciones $2s$ de la Figura 6.1, como sucede en las distribuciones radiales de Argón presentadas en el Capítulo 5, se corresponden con la inicialización de los electrones a tiempo $t = 0$. A medida que el tiempo evoluciona en éstas distribuciones la estructura nodal levemente desaparece. Se debe aclarar que en los cálculos, la carga nuclear del blanco se mantiene igual

6.2. $A^{+q} + H$

+1 para la interacción nuclear entre proyectil–blanco para evitar una interacción repulsiva no–física.

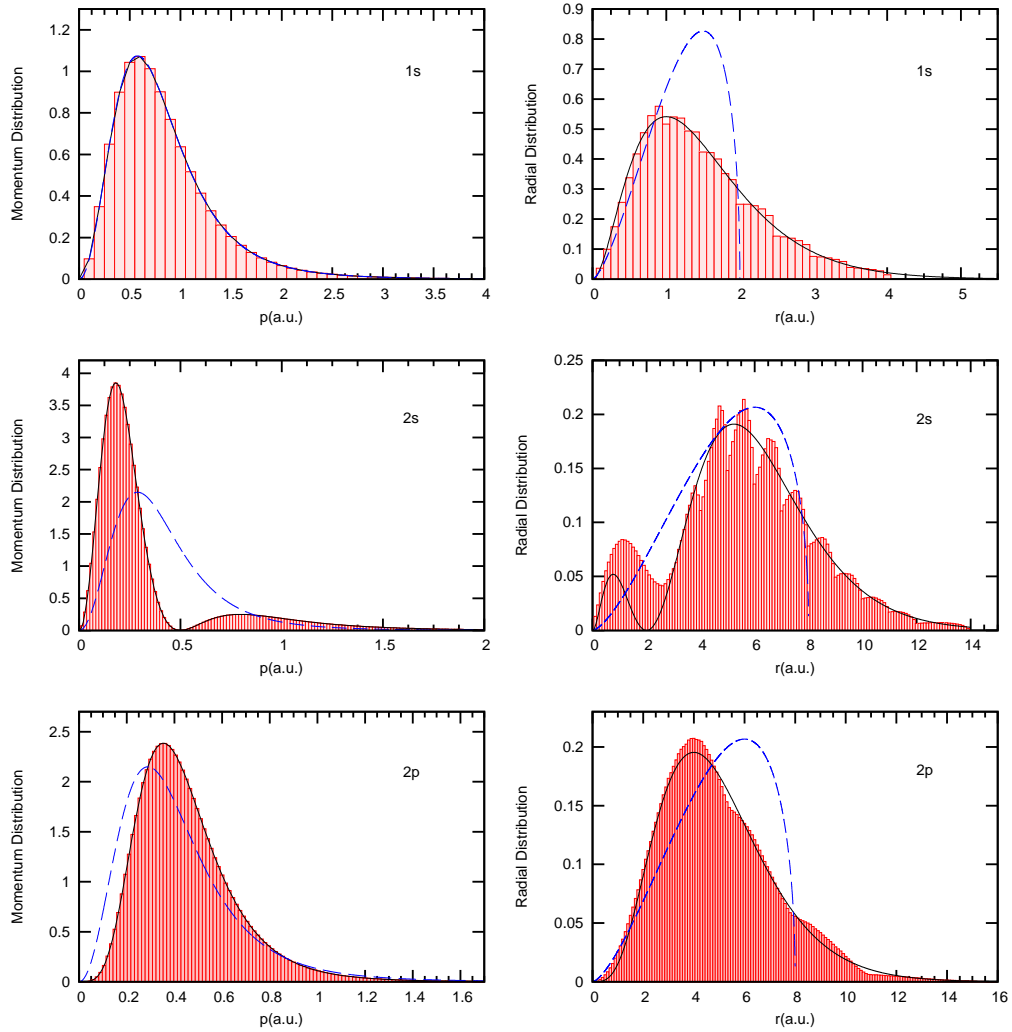


Figura 6.1: Distribuciones de momentos (izq.) y distribuciones radiales (der.) para los orbitales $1s$, $2s$ y $2p$. La línea negra continua muestra las distribuciones cuánticas exactas, la línea azul discontinua muestra las distribución microcanónicas y las columnas rojas presentan las distribuciones CTMC–Z–hidrogenoide.

La sección eficaz total para un dado proceso τ (que representa ya sea captura, ionización o excitación) se define por

$$\sigma^\tau = \sum_i \alpha_i \sigma_i^\tau, \quad (6.2)$$

donde las secciones eficaces σ_i^τ están dadas por

$$\sigma_i^\tau = \frac{N(\tau)}{N_{tot}} \pi b_{max}^2. \quad (6.3)$$

Aquí $N(\tau)$ es el número de eventos asociados al proceso τ estudiado, N_{tot} es el número total de trayectorias integradas y b_{max} es el valor del parámetro de impacto del cual más allá del mismo la probabilidad para recopilar eventos (τ) es despreciable.

Con el fin de obtener secciones eficaces de líneas de emisión, $\sigma_{n,l,m \rightarrow n',l',m'}^{(em)}$, se suman las contribuciones de cascada electrónica desde niveles más altos $n'' > n$ y se multiplican las poblaciones n, l, m_l por la probabilidad de transición de desintegración hidrogenoides y por las intensidades de líneas relativas^[34].

Una de las ventajas de la presente metodología en comparación con el CTMC–E–hidrogenoide es que CTMC–Z–hidrogenoide no depende del potencial de ionización y en consecuencia el estado de captura n no se ve afectado, basándose en el hecho de que el estado n de captura más poblado del proyectil en procesos de intercambio de carga está dado por la ley de escala $\sqrt{13.6/V_{ion}} q^{3/4}$ (donde q es la carga del proyectil y V_{ion} el potencial de ionización que se expresa en eV)^[14]. Se espera que una metodología basada en un conjunto de distribuciones microcanónicas que involucran diferentes valores de V_{ion} den lugar a distribuciones n más anchas. En contraste, se espera que el CTMC–Z–hidrogenoide logre una distribución en n más precisa, ya que considera el mismo valor V_{ion} correcto en todos los términos del conjunto. Por otro lado, introducir diferentes valores Z en la carga nuclear del blanco podría afectar, en principio, la cantidad total de eventos de intercambio de carga, ya que para un dado valor de V_{ion} , si la carga nuclear del blanco aumenta la probabilidad de intercambio de carga disminuye. Estas conjeturas deben ser examinadas a través de una exhaustiva exploración de los procesos de intercambio de carga para diferentes energías de impacto y cargas

de proyectiles. Ese es el propósito la próxima sección.

Una ventaja adicional del presente método contra el modelo CTMC–E–hidrogenoide sería proporcionado por mediciones de espectroscopía de momento en retroceso para procesos de captura electrónica al continuo (ECC por sus siglas en inglés). Mientras el nuevo método sería consistente con experimentos que muestran un aumento brusco en la distribución de momento longitudinal de iones en retroceso para el valor mínimo posible dado por $p_{long-min} = -v_p/2 + V_{ion}/v_p$ ^[198], en el hidrogenoide-E-CTMC tal estructura se pierde. Esto resulta del hecho de que la distribución radial se construye a partir de diferentes términos de potencial, lo que conduce a diferentes valores de momentos longitudinales de iones en retroceso. Esos términos que involucran valores V_{ion} menores (mayores) que el V_{ion} del blanco correrían el valor de $p_{long-min}$ hacia valores más bajos (más grandes).

6.3. Resultados y discusión

6.3.1. C^{6+} , N^{7+} , O^{8+} sobre $H(1s)$

En primer lugar, se comparan las secciones eficaces de captura electrónica a estados selectivos provistas por el presente método teórico para colisiones de C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} sobre $H(1s)$ con los resultados obtenidos por otros métodos existentes. Estos métodos son, el método estándar microcanónico CTMC, el método CTMC–E–hidrogenoide y los resultados cuánticos AOCC de Igenbergs *et al.*^[194,195]. En la Figura 6.2 se muestran secciones eficaces de captura electrónica para los niveles $n = 3$ a 8 para C^{6+} , $n = 3$ a 9 para N^{7+} y O^{8+} . Se representan en función de la energía del impacto en el rango 10 keV/amu a 150 keV/amu.

6.3. $A^{+q} + H$

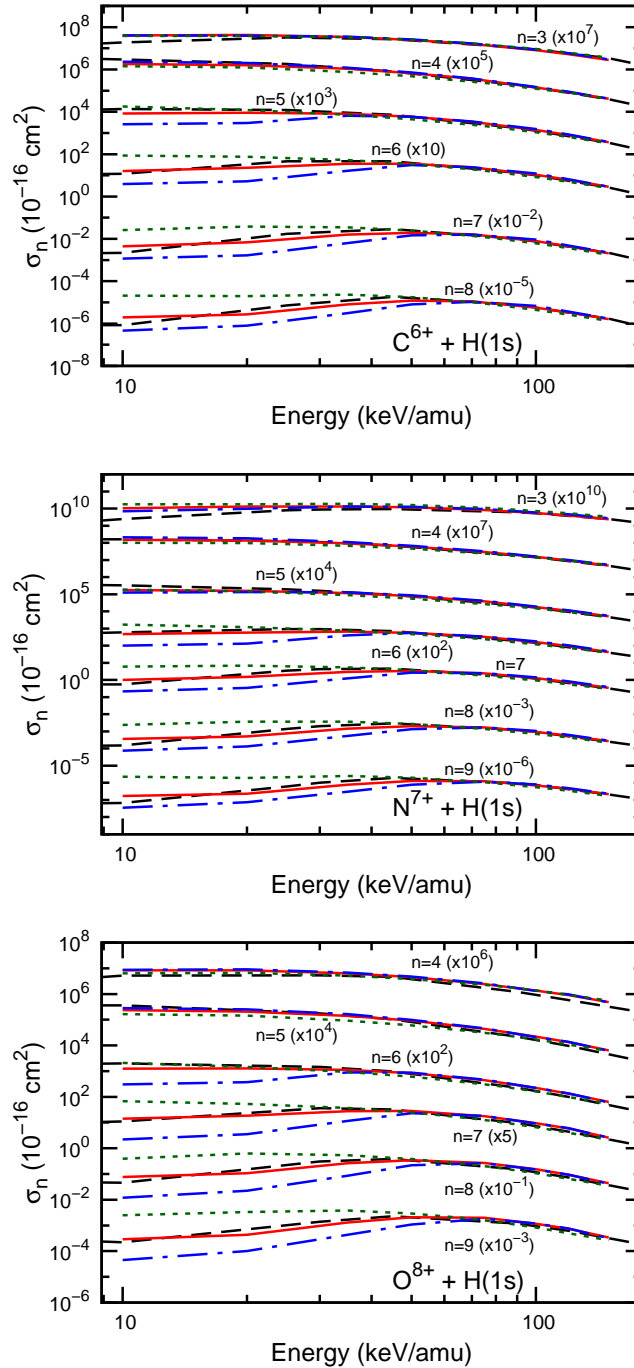


Figura 6.2: Secciones eficaces de captura electrónica al estado selectivo n en función de la energía de los siguientes proyectiles: C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(n = 2)$. La línea roja sólida corresponde a CTMC-Z-hidrogenoide, la línea verde punteada es CTMC-E-hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC-microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOCC de Igenbergs *et al.*^[194,195]. 130

Se observa que para energías de impacto mayores a 100 keV/amu aproximadamente, las predicciones de los diferentes métodos están en muy buen acuerdo entre sí. Por otro lado, para energías de impacto inferiores a 40 keV/amu aproximadamente, las predicciones de CTMC–microcanónico y CTMC–E–hidrogenoide tienden a desviarse de los resultados cuánticos del método AOCC. Estas desviaciones se hacen más evidentes para valores de n mayores a n_{max} , valor en el que la distribución n alcanza su máximo y es dado aproximadamente por la ley de escala $\sqrt{13.6/V_{ion}} q^{3/4}$ [14].

En estas bajas energías de impacto, la descripción microcanónica subestima los resultados AOCC para los niveles n grandes, comportamiento que nosotros relacionamos con la distribución radial clásica más estrecha. Por el contrario, el método CTMC–E–hidrogenoide, con una descripción mejorada de la distribución radial, conduce a una sobreestimación de la población en el proyectil para altos valores n . Este comportamiento, lo relacionamos con el uso de valores de V_{ion} inferiores a 13.6 eV utilizados para ampliar la distribución radial. Como es de esperar a partir de la ley de escala $\sqrt{13.6/V_{ion}} q^{3/4}$, el CTMC–E–hidrogenoide resulta en distribuciones n más anchas en comparación con la descripción microcanónica.

Los resultados obtenidos con el modelo hidrogenoides-Z-CTMC, por otro lado, se encuentran en mucho mejor de acuerdo con el método AOCC para los tres sistemas de colisión en todo el rango de energía explorado.

6.3. $A^{+q} + H$

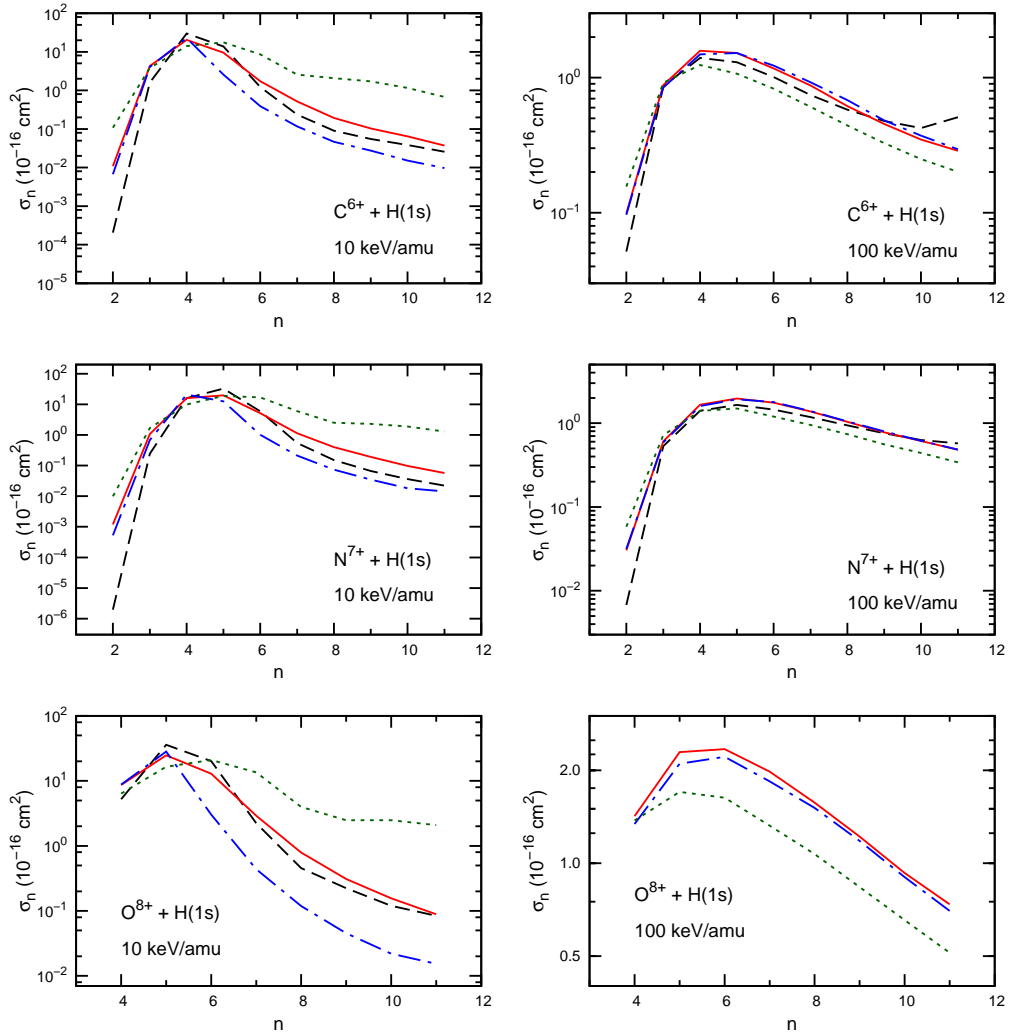


Figura 6.3: Secciones eficaces de captura electrónica a estados selectivos para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre el estado fundamental $H(1s)$ para las energías de colisión de 10 keV/amu (izquierda) y 100 keV/amu (derecha). Las líneas siguen la nomenclatura de la Figura 6.2.

Para inspeccionar aún más estas evaluaciones preliminares, en la Figura 6.3 se muestran las distribuciones en n para las energías de impacto de 10 keV/amu y 100 keV/amu. A bajas energías de impacto (~ 10 keV/amu), se puede obser-

var que las distribuciones CTMC–E–hidrogenoide son mucho más anchas que las distribuciones AOCC para los tres proyectiles explorados, mientras que la descripción microcanónica estándar subestima claramente la población para altos valores de estados n . En contraste, el método CTMC–Z–hidrogenoide proporciona una descripción general que está en mejor acuerdo con los resultados AOCC.

A medida que se aumenta la energía de impacto (~ 100 keV/amu), el canal de captura electrónica se alimenta de un rango menor de parámetros de impactos. Se observa entonces que la descripción microcanónica sobreestima los resultados AOCC (sólo disponible para C^{6+} y N^{7+}). Esto lo relacionamos a la distribución radial más estrecha que proporciona una imagen física de la nube electrónica más densa en bajos parámetros de impacto. El CTMC–E–hidrogenoide, por otro lado, subestima claramente una buena fracción de las distribuciones n . La captura electrónica a grandes energías de impacto está fuertemente condicionada por la correlación entre la velocidad orbital del electrón y la del proyectil incidente. El uso de diferentes valores de V_{ion} para obtener la extensión radial rompe en parte la correlación de velocidades del electrón y el proyectil, y en consecuencia, afecta la captura electrónica a altos niveles n .

Una vez más, se observa que el actual modelo CTMC–Z–hidrogenoide se encuentra en mejor acuerdo con los resultados AOCC a lo largo de todo el rango de energía. Por otra parte, los resultados AOCC para $n > 10$ se deben tomar con cautela. Debido a que el tamaño de la base empleada es finito, el tamaño de base empleado es de 286 estados centrados en el ion $1 \leq n \leq 11$. Por ejemplo, para N^{7+} 73 estados en el hidrógeno fueron empleados. Esta base está formada por 10 estados del hidrógeno ($1 \leq n \leq 3$) y 63 estados presentados para el continuo. Por esta razón, el AOCC oculta una fracción de la probabilidad de ionización como captura electrónica a n -grandes. Esto se ve claramente en las colas de las distribuciones AOCC para C^{6+} y N^{7+} en la Figura 6.3.

En la tabla 6.2, se presentan secciones eficaces de captura electrónica a estados selectivos de nuestro modelo CTMC–Z–hidrogenoide para niveles de $n = 2$ a 15. Se consideran los tres proyectiles estudiados a energías de impacto de 10 keV/amu, 50 keV/amu y 100 keV/amu.

Tabla 6.2: Secciones eficaces a estados selectivos n del modelo CTMC-Z-hidrogenoide (en unidades de 10^{-16} cm^{-2}) para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$ a energía de impacto de 10, 50 y 100 keV/amu.

n	C^{6+}			N^{7+}			O^{8+}		
	10.0	50.0	100.0	10.0	50.0	100.0	10.0	50.0	100.0
2	0.0109	0.0790	0.0988	0.00119	0.0196	0.0303	0.000396	0.00317	0.00911
3	4.31	2.50	0.881	1.07	1.26	0.607	0.197	0.495	0.352
4	20.3	7.32	1.58	15.9	6.56	1.66	8.64	4.66	1.42
5	8.37	6.33	1.52	19.7	8.58	1.97	24.7	9.50	2.29
6	1.58	3.90	1.17	5.19	6.19	1.76	12.9	8.70	2.34
7	0.519	2.22	0.875	1.14	3.77	1.38	2.91	5.86	1.98
8	0.194	1.32	0.616	0.399	2.23	1.04	0.790	3.53	1.57
9	0.103	0.849	0.454	0.192	1.39	0.778	0.310	2.17	1.22
10	0.0643	0.574	0.348	0.0980	0.934	0.612	0.156	1.40	0.929
11	0.0374	0.407	0.287	0.0572	0.617	0.481	0.0887	0.918	0.735
12	0.0275	0.307	0.215	0.0426	0.454	0.366	0.0495	0.658	0.578
13	0.0170	0.228	0.170	0.0289	0.333	0.304	0.0362	0.479	0.491
14	0.0137	0.174	0.130	0.0170	0.262	0.244	0.0241	0.370	0.379
15	0.00891	0.143	0.120	0.0148	0.201	0.199	0.0166	0.275	0.301

6.3.2. C^{6+} , N^{7+} , O^{8+} sobre $H^*(n = 2)$

Como se ha dicho en la introducción, los datos de captura electrónica para el blanco $H^*(n = 2)$ son de particular relevancia en diagnóstico de intercambio de carga. En esta sección, se comparan los resultados predichos a nivel de estados selectivos para CTMC–microcanónico, CTMC–Z–hidrogenoide y AOCC. En base a los resultados que se muestran en la sección anterior, no se incluyen en esta parte los resultados de CTMC–E–hidrogenoide.

Dado que un electrón ligado en el orbital $H^*(n = 2)$, en el cual $V_{ion} = 3.4$ eV, podría encontrarse en cualquiera de los estados $2s$ o $2p$, la sección eficaz para un dado proceso τ se define como,

$$\sigma^\tau(n = 2) = \frac{1}{4}\sigma^\tau(2s) + \frac{3}{4}\sigma^\tau(2p). \quad (6.4)$$

En la Figura 6.4 se muestran las secciones eficaces de captura electrónica para los niveles $n = 3$ a 9 de C^{6+} , $n = 4$ a 10 de N^{7+} y $n = 5$ a 12 de O^{8+} . Son representados en función de la energía del impacto entre 10 keV/amu y 150 keV/amu. De acuerdo con la ley de escala $\sqrt{13.6/V_{ion}} q^{3/4}$, los máximos de las distribuciones en n se esperan en $n = 8, 9$ y 10 respectivamente.

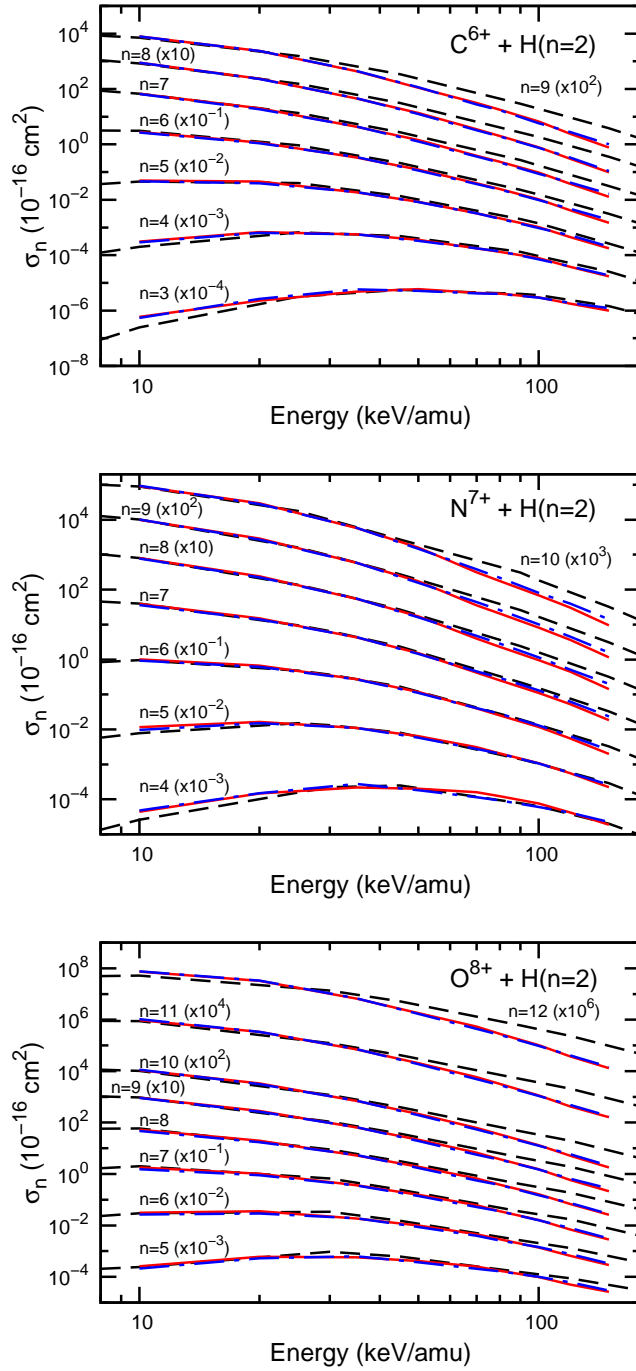


Figura 6.4: Secciones eficaces de captura electrónica al estado selectivo n en función de la energía de los siguientes proyectiles: C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$. La línea roja sólida corresponde CTMC-Z-hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC-microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOC de Igenbergs *et al.* [194,195].

En primer lugar, se observa que, en contraste con lo que se muestra en la sección 6.3.1 para $H(1s)$, el modelo CTMC–microcanónico y el CTMC–Z–hidrogenoide proporcionan resultados que se encuentran en muy buen acuerdo entre sí a lo largo del rango de energía explorado, así como con los datos cuánticos AOCC. Se ha comprobado que el acuerdo entre los dos resultados clásicos alcanza también a las contribuciones individuales de los estados $2s$ y $2p$.

Es necesario notar que los datos AOCC sobreestiman los modelos clásicos a medida que se aumenta la energía de impacto del proyectil. Esta situación es más evidente para los niveles n más altos considerados. Nuevamente, se atribuye este comportamiento al efecto del tamaño finito de bases que oculta una fracción de la probabilidad de ionización en captura electrónica para los niveles n más altos considerado por Igenbergs^[194], como ya se ha señalado en el sección anterior.

En la tabla 6.3, se presentan secciones eficaces de captura electrónica a estados selectivos de nuestro modelo CTMC–Z–hidrogenoide para niveles de $n = 2$ a 15 y se consideran los tres proyectiles estudiados a energías de impacto de 10 keV/amu, 50 keV/amu y 100 keV/amu.

Por último, en la figura 6.5 se analiza la población de los subestados l de captura electrónica para $n = 6$ a 9 en C^{6+} , $n = 6$ a 10 en N^{7+} y $n = 7$ a 12 en O^{8+} , para la energía de impacto de 10 keV/amu. No se encuentran diferencias entre los dos modelos clásicos y adicionalmente se observa buen acuerdo con el modelo cuántico. Como era de esperar, para esta energía de impacto la captura puebla los valores l altos principalmente. Por otro lado, como tendencia general, los modelos clásicos parecen subestimar la población de los subestados $l = 0$ propuesta por el AOCC a medida que el estado n aumenta.

Tabla 6.3: Secciones eficaces a estados selectivos n del modelo CTMC-Z-hidrogenoide (en unidades de 10^{-16} cm^{-2}) para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H^*(n=2)$ a energía de impacto de 10, 50 y 100 keV/amu.

n	C^{6+}			N^{7+}			O^{8+}		
	10.0	50.0	100.0	10.0	50.0	100.0	10.0	50.0	100.0
2	0.000183	0.00110	0.00202	0.000190	0.000060	0.00182	0.000115	0.0000417	0.000230
3	0.00585	0.0592	0.0297	0.00235	0.0190	0.0280	0.000205	0.00485	0.00945
4	0.3075	0.355	0.0775	0.0440	0.200	0.0765	0.00813	0.0950	0.0488
5	4.90	0.850	0.102	1.15	0.635	0.107	0.263	0.430	0.108
6	28.2	1.22	0.105	10.1	1.17	0.117	3.08	0.972	0.150
7	67.7	1.42	0.0957	39.2	1.52	0.111	17.5	1.57	0.172
8	88.2	1.35	0.0792	79.5	1.72	0.0962	52.5	2.02	0.172
9	78.5	1.30	0.0665	99.0	1.72	0.0822	93.5	2.17	0.155
10	55.7	1.10	0.0537	90.0	1.60	0.0682	110.0	2.25	0.145
11	36.5	0.945	0.0432	66.7	1.47	0.0557	96.5	2.15	0.125
12	23.2	0.802	0.0355	44.7	1.27	0.0462	73.8	2.02	0.103
13	15.5	0.682	0.0297	29.2	1.15	0.0390	50.0	1.80	0.0895
14	10.7	0.585	0.0245	19.2	1.00	0.0330	32.5	1.60	0.0785
15	7.75	0.512	0.0222	13.5	0.872	0.0282	22.0	1.40	0.0677

6.3. $A^{+q} + H$

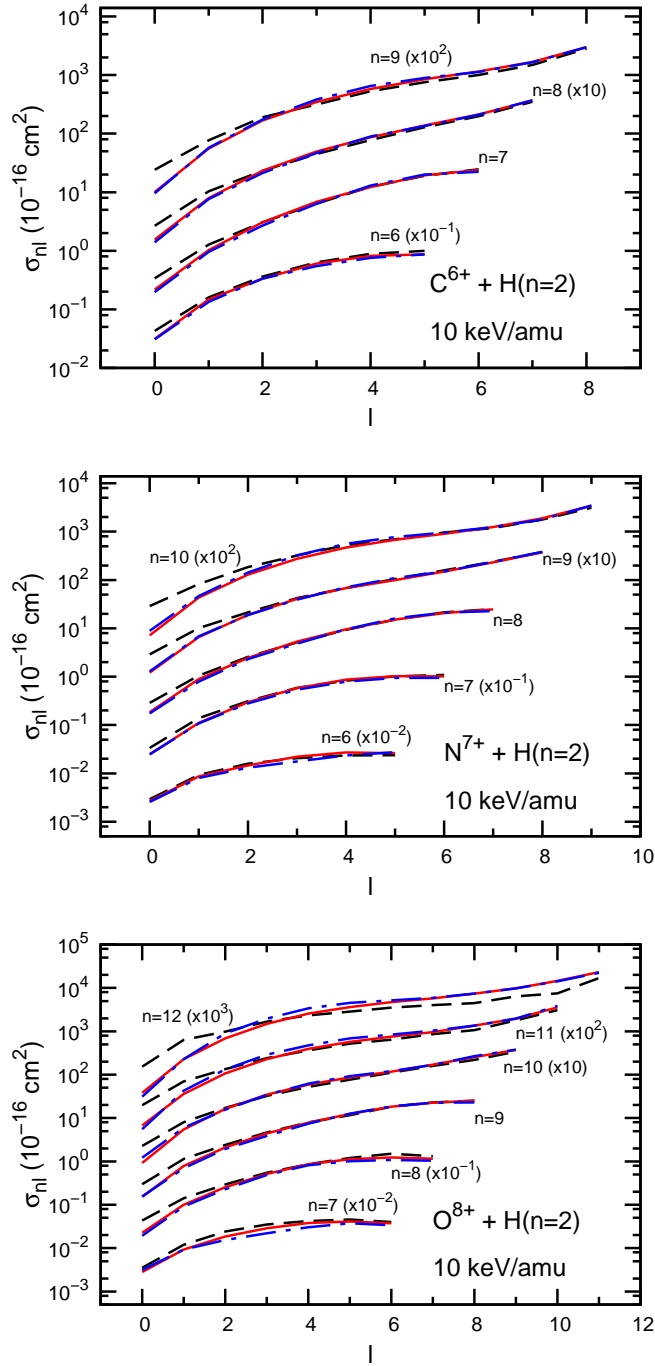


Figura 6.5: Secciones eficaces de captura electrónica para los subestados l . Para $n = 6$ a 9 en C^{6+} , $n = 6$ a 10 en N^{7+} y $n = 7$ a 12 en O^{8+} a una energía de impacto de 10 keV/amu. La línea roja sólida corresponde CTMC-Z-hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC-microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOCC de Igenbergs *et al.* [194,195].

6.3.3. Líneas de emisión para C^{6+} , N^{7+} , O^{8+} sobre $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$

En esta sección, se analizan las secciones eficaces de líneas de emisión que proporcionan información sobre la emisión fotónica que le siguen a los procesos de captura electrónica estudiados en las secciones 6.3.1 y 6.3.2 anteriores. Se muestran resultados obtenidos con el modelo CTMC-Z-hidrogenoide, ya que ha demostrado ser fiable para todos los sistemas y energías explorados. Nuestros cálculos de secciones eficaces de línea de emisión incluyen la cascada fotónica que pudiese iniciarse desde un nivel máximo de $n = 30$.

En la Figura 6.6 se muestran las líneas Ly- α , Ly- β y Ly- γ en función de la energía del impacto. Para los proyectiles en estudio, la energía de estas líneas corresponde a la región de rayos-X. Con el fin de poner en evidencia el papel relativo de los blancos $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$ en el entorno del reactor de fusión, las secciones eficaces correspondientes al blanco $H^*(n = 2)$ se multiplican por un factor 0.01. De este modo, la abundancia relativa estimada de $H^*(n = 2)$ es tomada en cuenta, ya que se encontró que esta abundancia es del orden de 1 % durante el calentamiento gas neutro y en el combustible de los reactores de fusión^[65,190–192]. Se puede observar que el Ly- α para $H(1s)$ proporciona la contribución dominante en todo el rango de energía de impacto considerado a pesar del hecho de que la emisión fotónica que surge de $H^*(n = 2)$ gana intensidad a medida que la energía de impacto disminuye. Esto es simplemente porque las secciones eficaces de Ly- α representan aproximadamente un 90 % de las secciones eficaces de captura electrónica global total para cada reacción estudiada, debido a un Hardness Ratio muy bajo en estas energías de colisión.

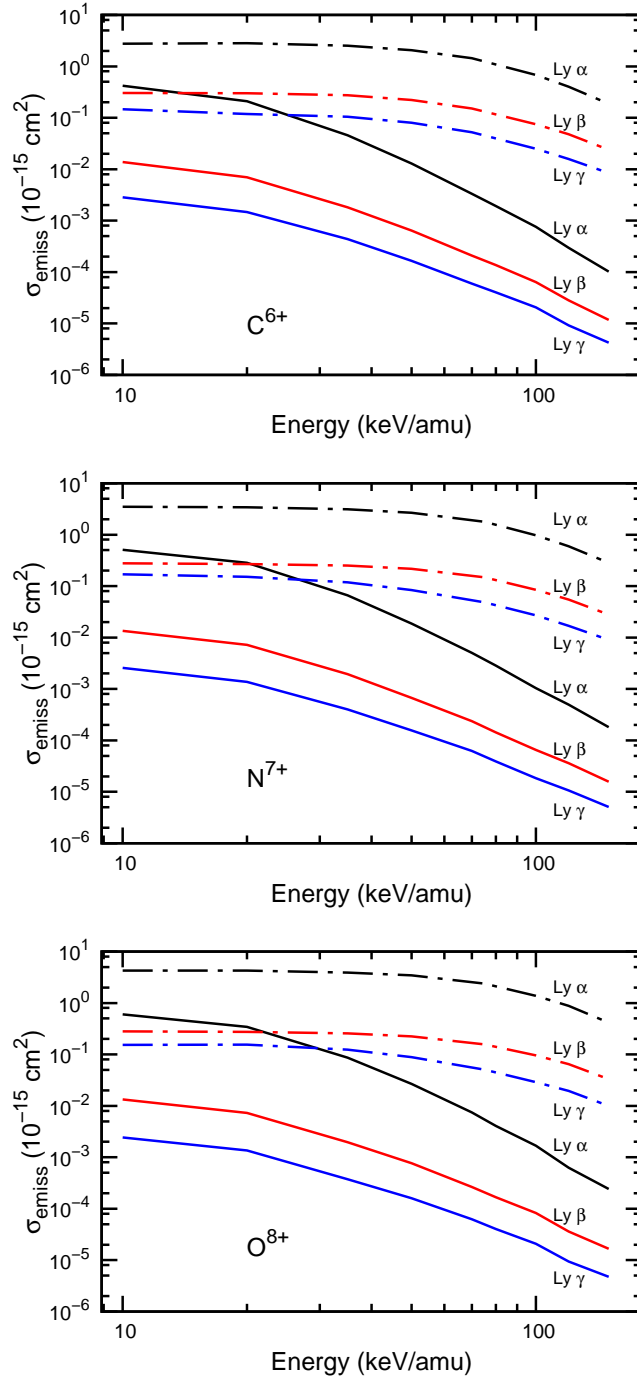


Figura 6.6: Secciones eficaces de líneas de emisión en el rango espectral de rayos-X en función de la energía de impacto para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$ (líneas discontinuas) y $H^*(n=2)$ (líneas sólidas). Las secciones eficaces de $H^*(n=2)$ se reducen al 1% de su valor total para imitar el entorno de reactor de fusión.

Se observa un comportamiento completamente diferente en el análisis de secciones eficaces que implican transiciones de fotones en el rango visible relevantes para el diagnóstico de plasma. En la Figura 6.7 se muestran las líneas más intensas para cada proyectil ($8 \rightarrow 7$, $10 \rightarrow 8$ y $11 \rightarrow 9$ para C^{6+} ; $9 \rightarrow 8$, $10 \rightarrow 9$ y $11 \rightarrow 10$ para N^{7+} y $9 \rightarrow 8$, $10 \rightarrow 9$ y $11 \rightarrow 10$ para O^{8+}). Una vez más, las secciones eficaces de líneas de emisión correspondientes al blanco $H^*(n = 2)$ se han multiplicado por el factor 0.01 para imitar el entorno de reactor de fusión. En estos casos, se observa que incluso la pequeña fracción del 1 % de $H^*(n = 2)$ proporciona la contribución fotónica dominante para energías de impacto menores a 35 keV/amu aproximadamente. Este rango de energías abarca la temperatura media del núcleo del plasma que se encuentra alrededor de 10 keV/amu y 5/6 de las componentes energéticas se encuentran alrededor de 50 keV/amu en el proceso de calentamiento de deuterio neutro.

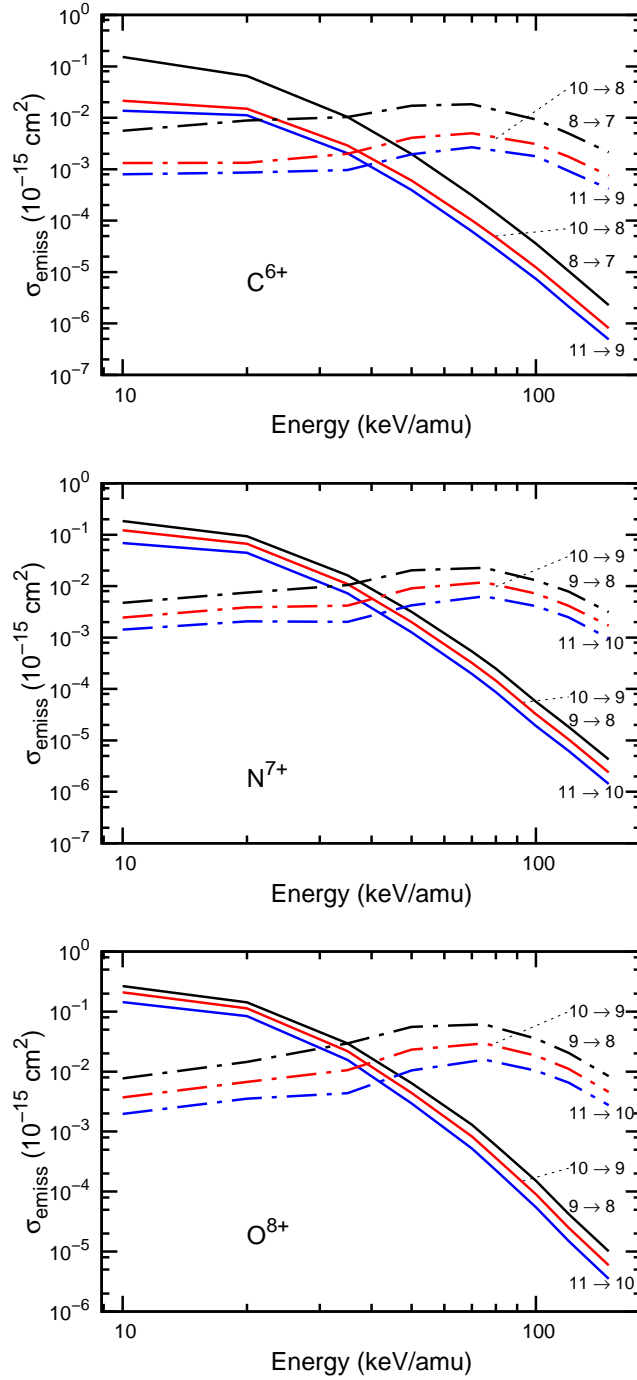


Figura 6.7: Principales secciones eficaces de líneas de emisión en el rango espectral del visible en función de la energía de impacto para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $\text{H}(1s)$ (líneas discontinuas) y $\text{H}^*(n=2)$ (líneas sólidas). Las secciones eficaces de $\text{H}^*(n=2)$ se reducen al 1% de su valor total para imitar el entorno de reactor de fusión.

Para energías superiores a 35 keV/amu, las líneas de emisión dominantes en el espectro visible se corresponden con captura electrónica desde $H(1s)$. Esto se debe a que la ionización, no la captura electrónica, determina el proceso de emisión electrónica para velocidades de colisión que exceden la velocidad nominal del electrón en el blanco. Estas energías son del orden de 6.25 keV/amu para $H^*(n = 2)$ y 25 keV/amu para $H(1s)$. Como resultado, la sección eficaz de líneas de emisión para $H^*(n = 2)$ disminuyen rápidamente a energías más altas debido a que la captura electrónica decae rápidamente. A diferencia de las líneas Lyman presentadas anteriormente, las líneas de emisión en el visible para $H(1s)$ que resultan de transiciones entre estados n altos tienen un ligero máximo alrededor de 70 keV/amu, que se corresponde con la energía a la que las secciones eficaces de captura a estados selectivos desde $H(1s)$ muestran un máximo, en acuerdo con las presentes líneas de emisión (ver Figura 6.2). Se señala que, a medida que el canal de ionización gana importancia, las secciones eficaces de captura de nivel n se ensanchan considerablemente, como se ve en las Figuras 6.3 y 6.4. Este ensanchamiento de las secciones eficaces en los estados n también hace que aumente la contribución de las cascadas, acentuando las líneas de emisión.

6.4. Conclusiones

En este trabajo se ha presentado un nuevo método hidrogenoide CTMC, concebido para proporcionar las distribuciones de momento y distribuciones radiales precisas para $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$. Este método fue desarrollado con el fin de generar estados ligados para determinar las secciones eficaces (n, l) luego de la captura electrónica. A diferencia del modelo CTMC-E-hidrogenoide, el presente modelo tiene en cuenta la correspondencia entre energías específicas de los estados del blanco y proyectil. Además, el nuevo método es consistente con las observaciones físicas proporcionadas por mediciones espectroscópicas de momentos de iones en retroceso que muestran una fuerte discontinuidad en las distribuciones de momentos longitudinales debido a la captura electrónica al continuo^[198].

Reacciones de captura electrónica para proyectiles de C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} a energías de impacto en el rango entre 10 keV/amu y 150 keV/amu han sido estudiadas con el fin de evaluar el presente modelo y comprobar su rendimiento

frente al método CTMC–microcanónico, el método de CTMC–E–hidrogenoide y el modelo cuántico AOCC. Para $H(1s)$, los datos de captura electrónica a estados selectivos previstos por el presente modelo se encuentran en mucho mejor acuerdo con AOCC que los obtenidos mediante el modelo CTMC–microcanónico estándar y el modelo CTMC–E–hidrogenoide. Estas ventajas parecen estar conectados con la distribución radial precisa, que en contraste con CTMC–E–hidrogenoide, se genera teniendo en cuenta el valor correcto de V_{ion} en todos los términos de la expansión.

Los resultados para hidrógeno excitado son menos sensibles a el procedimiento de inicialización. El modelo estándar CTMC–microcanónico ofrece resultados de calidad similar a los proporcionados por el momento más elaborado, con la ventaja que el modelo CTMC–Z–hidrogenoide exige mayor tiempo computacional. Para este blanco, los resultados clásicos están en muy buen acuerdo con los resultados cuánticos de AOCC, excepto en captura electrónica a grandes estados n y hacia grandes energías de impacto. En este caso, el efecto del tamaño finito de las bases del método cuántico parece conducir a una sobreestimación de captura electrónica para altos niveles n .

Por último, se ha presentado secciones eficaces para líneas de emisión correspondientes a transiciones Ly- α , Ly- β y Ly- γ , que para los proyectiles estudiados pueblan el rango espectral de rayos-X y secciones eficaces para líneas de emisión correspondientes a transiciones que contribuyen al espectro visible. Los presentes resultados muestran que para el diagnóstico por intercambio de carga, el cual se basa en la observación de las transiciones del espectro visible, el papel de una pequeña fracción de $H^*(n = 2)$ es dominante y crucial a energías de bajo impacto (alrededor de 10 keV/amu).

Programas de colaboración que incluyan diferentes metodologías, como la recientemente impulsada y publicada por Igenbergs *et al.*^[194], son alentadoras. Sin duda que seguramente esto ayudará a mejorar las bases de datos actuales de secciones eficaces a estados selectivos para intercambio de carga con blancos de $H(1s)$ y $H^*(n = 2)$ de potencial relevancia para los físicos de plasma y los astrofísicos.

Capítulo 7

Conclusiones Generales

En esta tesis se han realizado una serie de estudios bajo el método CTMC para diversos sistemas de colisiones por impacto de iones, en particular se han modelado blancos atómicos y moleculares.

Trabajos anteriores bajo el método CTMC han demostrado que una correcta descripción del blanco es fundamental a la hora de obtener correctos valores en las secciones eficaces^[15,16,21]. Desde el advenimiento de la mecánica cuántica diversos avances en el entendimiento de los procesos de colisiones atómicas se han producido gracias a los distintos métodos, ya sean clásicos o cuánticos. Estos avances han sido gracias a un trabajo en conjunto entre los grupos teóricos y experimentales.

El método CTMC describe con buen acuerdo los procesos de colisiones a energías de impacto bajas e intermedias^[8]. A pesar de ser un método clásico, una buena descripción del blanco contribuye a comprender el mecanismo de los procesos, especialmente en los que se involucran captura electrónica selectiva desde proyectiles iónicos altamente cargados. Este método complementa de manera efectiva a los métodos cuánticos basados en expansiones en funciones de bases que implican un alto costo computacional a medida que se aumentan los estados de carga.

A pesar de que la física de colisiones se encuentra catalogada como estudios de física básica, las secciones eficaces de distintos procesos son una herramienta necesaria en diversas áreas. Como se detalló a lo largo de esta tesis, las secciones eficaces de líneas de emisión luego de la captura electrónica a estados excitados

7.0. CONCLUSIONES

desde blancos de hidrógeno son una herramienta importante de diagnóstico para determinar concentraciones de iones de impurezas, temperatura y rotación del plasma dentro de los reactores de energía por fusión^[65].

Las secciones eficaces de líneas de emisión desde cometas son una herramienta para inferir la composición del viento solar. Además, estudios del viento solar son importante en la prevención de problemas en el área de la comunicación y la protección de los instrumentos satelitales^[199].

Las interacciones de iones con medios biológicos son de particular interés desde un aspecto biofísico en el tratamiento de tumores. En este sentido, secciones eficaces de procesos de colisiones secundarias y secciones eficaces de fragmentación molecular son necesarias para el planeamiento de dichos tratamientos y el nivel de detalle requerido en dicha información en función de los distintos tratamientos está aún por ser determinado.

Aunque los procesos de fragmentación molecular se han estudiado durante años, los últimos avances en las técnicas experimentales han arrojado nueva luz sobre el tema. Históricamente, las investigaciones experimentales de fragmentación molecular se llevaron a cabo a través de colisiones de una variedad de proyectiles, en los que se incluyen electrones, iones cargados y fotones, con distintos blancos moleculares. Las mediciones de las secciones eficaces y las distribuciones de energía hecho a través de estos experimentos revelaron la estructura molecular, cómo la energía se transfiere desde el proyectil incidente a la molécula, y cómo esa energía se distribuye entre distintos estados moleculares^[200,201]. El uso de la técnica COLTRIMS ha ayudado en el cumplimiento de los recientes avances en la investigación de colisiones ion–molécula.

Este es el punto de estudio que se abordará a partir de esta tesis. Los estudios con vista a futuro serán orientados en esta dirección, se estudiarán mecanismos de fragmentación de H₂O por iones luego de captura electrónica múltiple. Modelos moleculares son limitados en la literatura^[23], debido a la naturaleza anisotrópica del blanco. En este sentido una descripción multicéntrica del blanco es necesaria.

Lista de figuras

2.1.	Representación esquemática para una colisión de 3 (tres) cuerpos.	9
2.2.	Distribución radial (izq.) y Distribución de momento (der.) para un electrón orbitando en el estado fundamental del átomo de hidrógeno. Se comparan las distribuciones microcanónicas clásicas (columnas rojas) con sus respectivas distribuciones cuánticas (línea negra).	11
2.3.	Diagrama del paso temporal en función de la coordenada z del proyectil, para un proceso de excitación del blanco.	18
2.4.	Sección eficaz de captura e ionización electrónica para H^+ colionando sobre $H(1s)$ en función de la energía de impacto. Resultados teóricos del modelo CTMC son contrastados con datos experimentales. Ionización: Fite <i>et al.</i> (1960) (círculo abierto azul) ^[35] , Gilbody <i>et al.</i> (1964) (cuadrado abierto verde) ^[36] , CTMC (línea discontinua negra). Capture: Bayfield (1969) (cuadrado cerrado rojo) ^[37] , Fite <i>et al.</i> (1960) (triángulo verde hacia arriba) ^[35] , Gilbody <i>et al.</i> (1966) (círculo cerrado amarillo) ^[38] , McClure (1966) (triángulo celeste invertido) ^[39] , Wittkower <i>et al.</i> (1966) (pentágono magenta) ^[40] , CTMC (línea continua negra).	22
2.5.	Esquema de un proceso de captura para H^+ colisionando a 100 keV sobre H. Se grafican las posiciones x y z de cada partícula en función de la coordenada z del proyectil. El proyectil es representado por la línea trazos-puntos roja, el electrón por la línea continua azul y el blanco por por la línea punteada verde.	23

- 2.6. Esquema de un proceso de ionización para H^+ colisionando a 100 keV sobre H. Se grafican las posiciones x y z de cada partícula en función de la coordenada z del proyectil. El proyectil es representado por la línea trazos-puntos roja, el electrón por la línea continua azul y el blanco por por la línea punteada verde. 24
- 2.7. Regiones de validez aproximadas de varios métodos teóricos. Z_P/Z_T es la razón entre la carga del proyectil y la carga del blanco, v/v_e es la razón entre la velocidad de colisión y la velocidad del electrón activo. Métodos teóricos: Orbitales moleculares (MO), orbitales atómicos (AO), trayectoria clásica de Monte Carlo (CTMC), ondas distorcionadas al continuo (CDW) y teoría de perturbación a primer orden (BORN). Las regiones de validez son las zonas marcadas por las leyendas, señaladas con líneas. 29
- 2.8. Las transiciones permitidas entre los niveles más bajos de hidrógeno atómico. La ordenada muestra la energía por encima del estado fundamental $1s$ en cm^{-1} a la izquierda y en eV a la derecha, ($8065 cm^{-1} = 1 eV$). Los números contra las líneas indican la longitud de onda en Ångström ($1 \text{ \AA} = 10^{-8} cm$). Para mayor claridad las longitudes de onda se muestran sólo para una selección de líneas.^[59] 34
- 3.1. Esquema de instalación del dispositivo espectroscópico. El diagrama muestra un corte por el plano de simetría yz . Se muestran los ejes de coordenadas utilizados: el haz de iones para los proyectiles a lo largo de la dirección x , el gas del blanco es inyectado a lo largo del eje y , y el campo de extracción eléctrica a lo largo del eje z . . . 42
- 3.2. Curvas de energía potencial en función de la distancia internuclear, del estado fundamental $(1s\sigma_g)^2$ de la molécula H_2 , el estado fundamental $1s\sigma_g$ del ion H_2^+ y tres estados excitados $2p\sigma_\mu$, $2p\pi_\mu$ y $2s\sigma_g$. Puede apreciarse también el estado H^+H^+ del H_2^{2+} tras la pérdida de ambos electrones^[107]. Arriba se observa un detalle de la distribución de energías de protones de los estados mencionados. 46
- 3.3. Curva de energía potencial de H_2 y H_2^+ junto con niveles vibracionales del ion H_2^+ ^[107-109]. 47

- 3.4. Gráfica de carga efectiva en función de la energía de ligadura (*binding energy*) ϵ , resultante del modelo de órbitas de Bohr, utilizada en el presente modelo teórico de CTMC, para emular la carga vista por el electrón capturado. 50
- 3.5. Sección eficaz total para el proceso de intercambio de carga en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2$ en coincidencia con proyectiles emergentes de He^0 . Datos experimentales: datos tabulados del Oak Ridge National Laboratory (ORNL)^[116] (círculos llenos); Allison *et al.*^[83] (cuadrados rellenos); de Heer *et al.*^[117] (círculos abiertos); Hvelplund y Andersen^[86] (cuadrados abiertos). Teoría: presentes cálculos CTMC (línea continua). 52
- 3.6. Imagen del detector sensible a la posición en el plano xy para los iones H_2^+ en retroceso en coincidencia con los proyectiles He^0 emergentes, correspondientes a procesos de captura simple. Colisión de 25 keV $^4\text{He}^+$ incidiendo sobre H_2 , con un campo eléctrico de extracción de 10 V/cm. Los iones creados en la colisión son las manchas bien localizadas. Las trazas horizontales ancha y de baja intensidad (a lo largo de la dirección x) resultan en un fondo a partir del gas residual en la cámara de colisión. 56
- 3.7. Distribuciones experimentales de momento longitudinal para iones en retroceso H_2^+ integrados sobre las componentes p_y y p_z para proyectiles de He^+ incidiendo a 25, 40, 50, 100 y 200 keV (6.2, 10, 12.5, 25 y 50 keV/amu). Además, se muestran ajustes de los datos experimentales por medio de tres funciones Gaussianas. Las barras indican la posición teórica para cada estado de captura. También se muestran barras de posiciones donde se esperaría la mayor contribución de procesos de ionización. 57
- 3.8. Distribución experimental del impulso longitudinal para las energías de impacto de He^+ de (a) 100 keV (25 keV/amu) y (b) 200 keV (50 keV/amu). En líneas se muestran los resultados obtenidos a partir de la teoría CTMC. 60

3.9. Secciones eficaces a estados selectivos para captura electrónica simple en colisiones de $\text{He}^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{He}_0 + \text{H}_2^+$. Símbolos rellenos, corresponden a resultados experimentales de este trabajo; líneas continuas, presentes cálculos CTMC correspondiente al proceso de SC; líneas punteadas, resultados CTMC incluidos todos los procesos de intercambio de carga (SC, GSD, TE, y TI).	61
3.10. Proyecciones de distribuciones del impulso transversal sobre el eje z (a) y sobre el eje y (b) para proyectiles de He^+ incidiendo a 10 keV/amu. La figura muestra distribución total para SC y sus componentes correspondientes a SC al estado fundamental y estados excitados del He.	62
3.11. Proyección de eventos totales de momentos a lo largo del eje z experimentales normalizados a CTMC para proyectiles de He^+ incidiendo (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu.	64
3.12. Distribuciones de momentos transversales en función del momento transversal del proyectil p_t (ejes inferiores) y el ángulo de deflexión del proyectil θ_p (ejes superiores). Se involucran todos los estados de captura simple para los datos experimentales y teóricas obtenidos. (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu. Los datos experimentales fueron normalizados en el máximo a los resultados de CTMC.	66
3.13. Distribuciones experimentales del ángulo de deflexión del proyectil para el estado fundamental y estados excitados en SCs. Los casos presentados son: (a) 6.25, (b) 10 y (c) 12.5 keV/amu de energía incidente del proyectil He^+ . Los resultados expuestos están normalizados arbitrariamente al máximo de una de las distribuciones, para cada valor de energía.	68

4.1.	Distribuciones radiales (columnas izquierda) y distribuciones de momento (columna derecha) para los tres orbitales moleculares estudiados correspondientes al modelo scCTMC (línea roja discontinua) y el modelo mmCTMC (línea azul continua). Ambas distribuciones para el modelo mmCTMC son referidas al centro de masa de la molécula, por otro lado para el modelo scCTMC son referidas al núcleo.	76
4.2.	Densidad de dispersión electrónica del modelo mmCTMC para los tres principales orbitales moleculares de la molécula de CO: (a) 3σ , (b) 1π , (c) 2σ . El eje z representa el eje molecular, O (punto negro) y C (punto violeta) indican los centros iónicos. En todos los casos, se incluyen las curvas de densidades de probabilidades obtenidos por Huo ^[153] basado en funciones de ondas obtenidas con el método de campo auto-consistente auto-determinado.	77
4.3.	Probabilidades de captura electrónica simple en función del parámetro de impacto b para un proyectil de carga $q = 10$ (fila superior) y $q = 6$ (fila inferior) impactando sobre la molécula de CO originalmente en el orbital 3σ , orbital 1π y el orbital 2σ (de izquierda a derecha). Resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea roja continua), el modelo scCTMC (línea verde punteada) y el modelo iaCTMC (línea azul discontinua).	80
4.4.	Secciones eficaces totales de captura electrónica simple ($\sigma_{q,q-1}$) para proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos), scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (línea verde con triángulos cerrados) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter <i>et al.</i> ^[155]	81
4.5.	Promedio del potencial radial del blanco visto por los electrones en el modelo mmCTMC (línea roja continua) y el modelo scCTMC (línea azul discontinua).	82

4.6.	Secciones eficaces totales de captura electrónica doble ($\sigma_{q,q-2}$) para proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos), scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (línea verde con triángulos cerrados) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter <i>et al.</i> ^[155]	83
4.7.	Secciones eficaces totales de captura electrónica simple ($\sigma_{q,q-1}$) para el modelo de Energías Secuenciales. Proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter <i>et al.</i> ^[155]	84
4.8.	Secciones eficaces totales de captura electrónica doble ($\sigma_{q,q-2}$) para modelos de energías secuenciales. Proyectiles completamente desnudos impactando sobre CO a $7q$ keV. Los resultados obtenidos con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) son comparados con los datos experimentales de Mawhorter <i>et al.</i> ^[155]	85
4.9.	Hardness Ratio (R) obtenido con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos), scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos) y iaCTMC (línea verde con triángulos cerrados). Se compara con los datos experimentales de Greenwood <i>et al.</i> (Tablas 3 y 4 de la referencia ^[137]) para proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} sobre CO_2 y H_2O en energías de colisión de $7q$ keV.	87
4.10.	Hardness Ratio (R) obtenido con el modelo mmCTMC (línea azul con círculos abiertos) y scCTMC (línea roja con cuadrados abiertos). Se compara con los datos experimentales de Greenwood <i>et al.</i> (Tablas 3 y 4 de la referencia ^[137]) para proyectiles O^{8+} y Ne^{10+} sobre CO_2 y H_2O en energías de colisión de $7q$ keV.	89
5.1.	Diagrama esquemático de una Trampa EBIT ^[170]	98
5.2.	Diagrama esquemático de la región de confinamiento de una Trampa EBIT ^[170]	100

5.3. Sección transversal de una trampa EBIT ^[170]	102
5.4. Diagrama esquemático del modo de extracción de una trampa EBIT ^[170]	103
5.5. Resultados experimentales de los espectros de emisión de rayos-X para colisiones de $\text{Ar}^{+18} + \text{Ar}$ a 18 eV/amu. Los datos experimentales publicados por Allen <i>et al.</i> ^[143] que opera el EBIT en Berlín en (a) el modo de extracción y (b) el modo magnético.	104
5.6. Distribuciones radiales para los tres orbitales más externos del Ar ($\text{Ar}(3p)$, $\text{Ar}^+(3p)$ y $\text{Ar}^{2+}(3p)$). En línea sólida se muestra la distribución radial exacta de la mecánica cuántica, mientras que las barras indican las distribuciones radiales obtenidas en el presente modelo CTMC a partir de sortear los eventos sobre las distribuciones de momentos de la mecánica cuántica ^[21]	106
5.7. Diagrama esquemático del mecanismo de decaimiento Auger. Para una trayectoria particular, en un evento de captura múltiple para el ion Ar^{+18} a energía de 4 keV/amu colisionando sobre Ar. Este evento de captura múltiple corresponde a AutoMC	109
5.8. Diagrama esquemático del mecanismo de decaimiento Auger. Para una trayectoria particular, en un evento de captura múltiple para el ion Ar^{+18} a energía de 4 keV/amu colisionando sobre Ar. Este evento de captura múltiple corresponde a Rad. Dec.	110
5.9. Secciones eficaces de línea de emisión de CTMC en colisiones a 4 keV/amu de Ne^{10+} sobre Ar. Los presentes resultados se comparan con datos experimentales de Tawara <i>et al.</i> del laboratorio de NIST ^[165] . Se muestran explícitamente las contribuciones parciales absolutas de captura simple SEC, captura múltiple autoionizante AutoMC y el canal de decaimiento radiativo Rad. Dec.	111
5.10. Idem Figura 5.9 pero para colisiones de $\text{Ar}^{18+} + \text{Ar}$	113
5.11. Idem Figura 5.9 pero para colisiones de $\text{Kr}^{36+} + \text{Ar}$	114

5.12. Secciones eficaces de líneas de emisión de CTMC para Ar^{+18} a 218 eV/amu colisionando sobre argón. Los datos experimentales corresponden a la trampa EBIT–Berlín obtenidos por Allen <i>et al.</i> ^[143] . Se muestran explícitamente los aportes parciales de los canales SEC, AutoMC y Rad. Dec.	115
5.13. Lo mismo que para la Figura 5.12 pero para colisiones de Ar^{18+} a 18 eV/amu colisionando sobre argón.	116
5.14. Hardness Ratio en función de la energía de impacto para colisiones $\text{Ar}^{+18} + \text{Ar}$. Se incluyen resultados previos obtenidos con un código CTMC de tres electrones ^[78] para la comparación.	118
5.15. Secciones eficaces de líneas de emisión en CTMC para las transiciones $1snp \rightarrow 1s^2$ producidas por intercambio de carga en colisiones de $\text{Ar}^{+17} + \text{Ar}$ a 7 keV/amu. Los datos experimentales pertenecen a Trassinelli <i>et al.</i> ^[183]	119
6.1. Distribuciones de momentos (izq.) y distribuciones radiales (der.) para los orbitales $1s$, $2s$ y $2p$. La línea negra continua muestra las distribuciones cuánticas exactas, la línea azul discontinua muestra las distribución microcanónicas y las columnas rojas presentan las distribuciones CTMC–Z–hidrogenoide.	127
6.2. Secciones eficaces de captura electrónica al estado selectivo n en función de la energía de los siguientes proyectiles: C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $\text{H}(n = 2)$. La línea roja sólida corresponde a CTMC–Z–hidrogenoide, la línea verde punteada es CTMC–E–hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC–microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOCC de Igenbergs <i>et al.</i> ^[194,195]	130
6.3. Secciones eficaces de captura electrónica a estados selectivos para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre el estado fundamental $\text{H}(1s)$ para las energías de colisión de 10 keV/amu (izquierda) y 100 keV/amu (derecha). Las líneas siguen la nomenclatura de la Figura 6.2.	132

- 6.4. Secciones eficaces de captura electrónica al estado selectivo n en función de la energía de los siguientes proyectiles: C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$. La línea roja sólida corresponde CTMC-Z-hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC-microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOCC de Igenbergs *et al.*^[194,195]. 136
- 6.5. Secciones eficaces de captura electrónica para los subestados l . Para $n = 6$ a 9 en C^{6+} , $n = 6$ a 10 en N^{7+} y $n = 7$ a 12 en O^{8+} a una energía de impacto de 10 keV/amu . La línea roja sólida corresponde CTMC-Z-hidrogenoide, la línea azul discontinua con puntos es CTMC-microcanónico y la línea negra discontinua corresponde a cálculos de AOCC de Igenbergs *et al.*^[194,195]. 139
- 6.6. Secciones eficaces de líneas de emisión en el rango espectral de rayos-X en función de la energía de impacto para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$ (líneas discontinuas) y $H^*(n = 2)$ (líneas sólidas). Las secciones eficaces de $H^*(n = 2)$ se reducen al 1% de su valor total para imitar el entorno de reactor de fusión. 141
- 6.7. Principales secciones eficaces de líneas de emisión en el rango espectral del visible en función de la energía de impacto para C^{6+} , N^{7+} y O^{8+} colisionando sobre $H(1s)$ (líneas discontinuas) y $H^*(n = 2)$ (líneas sólidas). Las secciones eficaces de $H^*(n = 2)$ se reducen al 1% de su valor total para imitar el entorno de reactor de fusión. 143

Bibliografía

- [1] J. J. Thomson. *Ionization by moving electrified particles*. Philos. Mag. J. Sci., vol. 23(136):449–457 (1912). [2](#)
- [2] M. Gryziński. *Classical Theory of Electronic and Ionic Inelastic Collisions*. Phys. Rev., vol. 115(2):374–383 (1959). [2](#)
- [3] C. E. Kuyatt & T. Jorgensen. *Energy and Angular Dependence of the Differential Cross Section for Production of Electrons by 50-100 keV Protons in Hydrogen Gas*. Phys. Rev., vol. 130(4):1444–1455 (1963). [2](#)
- [4] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, & L. Spielberger. *Recoil-ion momentum spectroscopy*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 30(13):2917–2974 (1997). [2](#)
- [5] J. Hirschfelder, H. Eyring, & B. Topley. *Reactions Involving Hydrogen Molecules and Atoms*. J. Chem. Phys., vol. 4(3):170 (1936). [2](#)
- [6] M. Karplus, R. N. Porter, & R. D. Sharma. *Exchange Reactions with Activation Energy. I. Simple Barrier Potential for (H,H₂)*. J. Chem. Phys., vol. 43(9):3259 (1965). [3](#)
- [7] R. Abrines & I. C. Percival. *A generalized correspondence principle and proton-hydrogen collisions*. Proc. Phys. Soc., vol. 88(4):873–883 (1966). [3](#), [7](#), [72](#), [121](#)
- [8] R. E. Olson. *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*. Springer New York, Chap. 58. (2006). [3](#), [28](#), [146](#)

- [9] T. E. Cravens. *Comet Hyakutake x-ray source: Charge transfer of solar wind heavy ions*. Geophys. Res. Lett., vol. 24(1):105–108 (1997). [3](#), [94](#)
- [10] R. K. Janev & J. Burgdörfer. *Review of Fundamental Processes and Applications of Atoms and Ions*. World Scientific (1993). [3](#)
- [11] E. T. Jensen & H. Bichsel. *Atomic, Molecular, and Optical Physics Handbook Gordon W. F. Drake: Libros en idiomas extranjeros*. New York (1996). [3](#)
- [12] R. E. Olson & A. Salop. *Electron transfer between multicharged ions and neutral species*. Phys. Rev. A, vol. 14(2):579–585 (1976). [3](#)
- [13] A. Salop & R. E. Olson. *Charge exchange between $H(1s)$ and fully stripped heavy ions at low-keV impact energies*. Phys. Rev. A, vol. 13(4):1312–1320 (1976). [3](#), [72](#)
- [14] R. E. Olson. *n, l distributions in $A^q + H$ electron-capture collisions*. Phys. Rev. A, vol. 24(4):1726–1733 (1981). [3](#), [59](#), [121](#), [128](#), [131](#)
- [15] D. J. W. Hardie & R. E. Olson. *Charge transfer and ionisation processes involving multiply charged ions in collision with atomic hydrogen*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 16(11):1983–1996 (1983). [3](#), [122](#), [124](#), [146](#)
- [16] V. J. Montemayor & G. Schiwietz. *Dynamic target screening for two-active-electron classical-trajectory Monte Carlo calculations for $H^+ + He$ collisions*. Phys. Rev. A, vol. 40(11):6223–6230 (1989). [4](#), [48](#), [75](#), [123](#), [146](#)
- [17] M. Kimura. *Charge transfer in ion-molecule collisions at keV energy regime: Study of $H^+ + H_2$ collisions by the electron-translation-factor - modified molecular-orbital - expansion method*. Phys. Rev. A, vol. 32(2):802–809 (1985). [4](#)
- [18] M. Kimura, S. Chapman, & N. F. Lane. *Electron capture in $Ar^+ + H_2$ collisions in the keV energy regime*. Phys. Rev. A, vol. 33(3):1619–1625 (1986). [4](#)

- [19] D. P. Sural & N. C. Sil. *Electron Capture by Protons Passing through Molecular Hydrogen*. J. Chem. Phys., vol. 42(2):729 (1965). [4](#)
- [20] V. Sidis & D. De Bruijn. *Theory of near-resonant charge exchange in atom-molecule collisions. Dissociative NRCE in the $H^{2+} + Mg$ collision*. Chem. Phys., vol. 85(2):201–214 (1984). [4](#)
- [21] S. Otranto & R. E. Olson. *Charge exchange and x-ray emission cross sections for multiply charged ions colliding with H_2O* . Phys. Rev. A, vol. 77(2):022709 (2008). [5](#), [48](#), [71](#), [95](#), [105](#), [106](#), [146](#), [155](#)
- [22] J. Simcic, D. R. Schultz, R. J. Mawhorter, I. Čadež, J. B. Greenwood, A. Chutjian, C. M. Lisse, & S. J. Smith. *Measurement and calculation of absolute single- and multiple-charge-exchange cross sections for Fe^{q+} ions impacting CO and CO_2* . Phys. Rev. A, vol. 81(6):062715 (2010). [5](#), [71](#), [72](#), [74](#), [95](#)
- [23] C. Illescas, L. F. Errea, L. Méndez, B. Pons, I. Rabadán, & A. Riera. *Classical treatment of ion- H_2O collisions with a three-center model potential*. Phys. Rev. A, vol. 83(5):052704 (2011). [5](#), [72](#), [73](#), [147](#)
- [24] D. L. Bunker. *Monte Carlo Calculation of Triatomic Dissociation Rates. I. N_2O and O_3* . J. Chem. Phys., vol. 37(2):393 (1962). [7](#)
- [25] V. I. Ochkur & A. M. Petrun'kin. *The Classical Calculation of the Probabilities of Excitation and Ionization of Atoms by Electron Impact*. Opt. Spectrosc., vol. 14:245 (1963).
- [26] R. C. Stabler. *Classical Impulse Approximation for Inelastic Electron-Atom Collisions*. Phys. Rev., vol. 133(5A):A1268–A1273 (1964).
- [27] M. Gryziński. *Classical Theory of Atomic Collisions. I. Theory of Inelastic Collisions*. Phys. Rev., vol. 138(2A):A336–A358 (1965). [7](#)
- [28] R. Abrines & I. C. Percival. *Classical proton-hydrogen scattering cross-sections*. Phys. Lett., vol. 13(3):216–217 (1964). [7](#)

- [29] R. Abrines & I. C. Percival. *Classical theory of charge transfer and ionization of hydrogen atoms by protons*. Proc. Phys. Soc., vol. 88(4):861–872 (1966). [17](#), [48](#)
- [30] I. C. Percival & D. Richards. *The Theory of Collisions Between Charged Particles and Highly Excited Atoms*. Adv. At. Mol. Opt. Phys. (1975). [7](#)
- [31] C. O. Reinhold & C. A. Falcón. *Classical ionization and charge-transfer cross sections for $H^+ + He$ and $H^+ + Li^+$ collisions with consideration of model interactions*. Phys. Rev. A, vol. 33(6):3859–3866 (1986). [12](#), [48](#), [105](#), [124](#)
- [32] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery, & M. Metcalf. *Numerical Recipes in Fortran 90: The Art of Parallel Scientific Computing*. Cambridge University Press, Cambridge UK, 2nd editio ed. (1996). [15](#)
- [33] R. L. Becker & A. D. MacKellar. *Theoretical initial l dependence of ion-Rydberg-atom collision cross sections*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 17(19):3923–3942 (1984). [20](#), [51](#)
- [34] S. Schippers, P. Boduch, J. van Buchem, F. W. Blik, R. Hoekstra, R. Morgenstern, & R. E. Olson. *Polarized light emission in keV $He^{2+} + Na(3s)$ collisions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 28:3271 (1995). [20](#), [34](#), [128](#)
- [35] W. L. Fite, R. F. Stebbings, D. G. Hummer, & R. T. Brackmann. *Ionization and Charge Transfer in Proton-Hydrogen Atom Collisions*. Phys. Rev., vol. 119(2):663–668 (1960). [22](#), [149](#)
- [36] H. B. Gilbody & J. V. Ireland. *Ionization of Atomic Hydrogen by Protons in the Energy Range 60 to 400 keV*. Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci., vol. 277(1368):137–141 (1964). [22](#), [149](#)
- [37] J. E. Bayfield. *Measurement of the Total Cross Section for Charge Transfer into the Metastable State $H(2s)$ for Proton Collisions with Atomic Hydrogen*. Phys. Rev., vol. 185(1):105–112 (1969). [22](#), [149](#)

- [38] H. B. Gilbody & G. Ryding. *An Experimental Study of Charge Transfer in Proton-Atomic Hydrogen Collisions at Impact Energies Above 40 keV*. Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci., vol. 291(1426):438–443 (1966). [22](#), [149](#)
- [39] G. W. McClure. *Electron Transfer in Proton-Hydrogen-Atom Collisions: 2-117 keV*. Phys. Rev., vol. 148(1):47–54 (1966). [22](#), [149](#)
- [40] A. B. Wittkower, G. Ryding, & H. B. Gilbody. *An experimental study of charge transfer in proton-atomic-hydrogen collisions using a furnace target method*. Proc. Phys. Soc., vol. 89(3):541–546 (1966). [22](#), [149](#)
- [41] R. H. Garvey, C. H. Jackman, & A. E. S. Green. *Independent-particle-model potentials for atoms and ions with $36 < Z \leq 54$ and a modified Thomas-Fermi atomic energy formula*. Phys. Rev. A, vol. 12(4):1144–1152 (1975). [25](#), [26](#), [50](#), [74](#), [75](#)
- [42] F. Herman & S. Skillman. *Atomic Structure Calculations*. 1st editio ed. (1963). [26](#)
- [43] R. Ali, C. L. Cocke, M. L. A. Raphaelian, & M. Stockli. *Multielectron processes in 10-keV/u Ar^{q+} ($5 \leq q \leq 17$) on Ar collisions*. Phys. Rev. A, vol. 49(5):3586–3596 (1994). [26](#)
- [44] R. E. Olson. *Ionization Cross Sections for Rydberg-Atom-Rydberg-Atom Collisions*. Phys. Rev. Lett., vol. 43(2):126–129 (1979). [30](#)
- [45] R. E. Olson. *Ion-Rydberg atom collision cross sections*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 13(3):483–492 (1980).
- [46] R. E. Olson & A. D. MacKellar. *Ion Collisions with Rydberg Atoms in Strong Electric Fields*. Phys. Rev. Lett., vol. 46(22):1451–1454 (1981). [30](#), [108](#)
- [47] D. Delande & J. C. Gay. *A New Method for Producing Circular Rydberg States*. Europhys. Lett., vol. 5(4):303–308 (1988). [30](#)
- [48] R. E. Olson & T. J. Gay. *Dynamics of Antimatter-Atom Collisions*. Phys. Rev. Lett., vol. 61(3):302–305 (1988). [30](#)

- [49] D. R. Schultz, R. E. Olson, & C. O. Reinhold. *Recent advances in the comparison of matter- and antimatter-atom collisions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 24(3):521–558 (1991). [30](#)
- [50] R. E. Olson, J. Ullrich, & H. Schmidt-Böcking. *Multiple-ionization collision dynamics*. Phys. Rev. A, vol. 39(11):5572–5583 (1989). [31](#), [123](#)
- [51] C. L. Cocke & R. E. Olson. *Recoil ions*. Phys. Rep., vol. 205(4):153–219 (1991). [31](#)
- [52] V. Frohne, S. Cheng, R. Ali, M. L. A. Raphaelian, C. L. Cocke, & R. E. Olson. *Measurements of recoil ion longitudinal momentum transfer in multiply ionizing collisions of fast heavy ions with multielectron targets*. Phys. Rev. Lett., vol. 71(5):696–699 (1993). [31](#)
- [53] J. W. Turkstra, R. Hoekstra, S. Knoop, D. Meyer, R. Morgenstern, & R. E. Olson. *Recoil Momentum Spectroscopy of Highly Charged Ion Collisions on Magneto-Optically Trapped Na*. Phys. Rev. Lett., vol. 87(12):123202 (2001). [31](#), [37](#)
- [54] J. Fiol & R. E. Olson. *Three-body dynamics in hydrogen ionization by fast highly charged particles*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 35(7):1759–1773 (2002). [31](#)
- [55] H. Kollmus, R. Moshhammer, R. E. Olson, S. Hagmann, M. Schulz, & J. Ullrich. *Simultaneous Projectile-Target Ionization: A Novel Approach to ($e, 2e$) Experiments on Ions*. Phys. Rev. Lett., vol. 88(10):103202 (2002). [32](#)
- [56] J. Fiol, R. E. Olson, A. C. F. Santos, G. M. Sigaud, & E. C. Montenegro. *Simultaneous projectile and target ionization in $He^+ + Ne$ collisions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 34(16):L503–L509 (2001). [32](#)
- [57] R. E. Olson, R. L. Watson, V. Horvat, & K. E. Zaharakis. *Projectile and target ionization in $MeV u^{-1}$ collisions of Xe ions with N_2* . J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 35(8):1893–1907 (2002). [32](#)

- [58] A. Niehaus. *A classical model for multiple-electron capture in slow collisions of highly charged ions with atoms*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 19(18):2925–2937 (1986). [32](#), [72](#), [108](#)
- [59] B. H. Bransden & C. J. Joachain. *Physics of Atoms and Molecules*. Prentice Hall (2003). [34](#), [45](#), [150](#)
- [60] H. A. Bethe & E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. New York, a plenum/r ed. (1957). [34](#)
- [61] B. Gervais, M. Beuve, G. H. Olivera, & M. E. Galassi. *Numerical simulation of multiple ionization and high LET effects in liquid water radiolysis*. Radiat. Phys. Chem., vol. 75(4):493–513 (2006). [36](#)
- [62] T. E. Cravens. *X-ray emission from comets*. Science, vol. 296(5570):1042–5 (2002). [36](#), [71](#)
- [63] S. Otranto, R. E. Olson, & P. Beiersdorfer. *Cometary x-rays: line emission cross sections for multiply charged solar wind ion charge exchange*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 40(10):1755–1766 (2007). [36](#), [71](#), [95](#), [118](#)
- [64] K. Poppenhaeger, J. H. M. M. Schmitt, & S. J. Wolk. *TRANSIT OBSERVATIONS OF THE HOT JUPITER HD 189733b AT X-RAY WAVELENGTHS*. Astrophys. J., vol. 773(1):62 (2013). [36](#)
- [65] R. C. Isler. *An overview of charge-exchange spectroscopy as a plasma diagnostic*. Plasma Phys. Control. Fusion, vol. 36(2):171–208 (1994). [37](#), [123](#), [140](#), [147](#)
- [66] *www.iter.org*. [37](#), [123](#)
- [67] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, & H. Schmidt-Böcking. *A 4π recoil-ion electron momentum analyzer: a high-resolution “microscope” for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions*. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms, vol. 108(4):425–445 (1996). [37](#)

- [68] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, & H. Schmidt-Böcking. *Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy: a ‘momentum microscope’ to view atomic collision dynamics*. Phys. Rep., vol. 330(2-3):95–192 (2000). [37](#)
- [69] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. P. H. Schmidt, & H. Schmidt-Böcking. *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*. Reports Prog. Phys., vol. 66(9):1463–1545 (2003). [37](#)
- [70] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. L. Cocke, R. E. Olson, M. Schulz, U. Buck, & H. Schmidt-Böcking. *He²⁺ on He: State-selective, scattering-angle-dependent capture cross sections measured by cold target recoil ion momentum spectroscopy (COLTRIMS)*. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms, vol. 98(1-4):593–596 (1995). [37](#), [67](#)
- [71] W. Wu, K. L. Wong, C. L. Cocke, J. P. Giese, & E. C. Montenegro. *Recoil longitudinal momentum and Q-value measurements in electron-capture processes of fast multiply charged ions colliding with He*. Phys. Rev. A, vol. 51(5):3718–3725 (1995). [37](#)
- [72] A. Dorn, A. Kheifets, C. D. Schröter, B. Najjari, C. Höhr, R. Moshhammer, & J. Ullrich. *Double Ionization of Helium by Electron-Impact: Complete Pictures of the Four-Body Breakup Dynamics*. Phys. Rev. Lett., vol. 86(17):3755–3758 (2001). [37](#)
- [73] R. Dörner, H. Bräuning, J. M. Feagin, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, T. Vogt, H. Khemliche, M. H. Prior, J. Ullrich, C. L. Cocke, & H. Schmidt-Böcking. *Photo-double-ionization of He: Fully differential and absolute electronic and ionic momentum distributions*. Phys. Rev. A, vol. 57(2):1074–1090 (1998).
- [74] D. Fischer, R. Moshhammer, A. Dorn, J. R. Crespo López-Urrutia, B. Feuerstein, C. Höhr, C. D. Schröter, S. Hagmann, H. Kollmus, R. Mann, B. Bapat, & J. Ullrich. *Projectile-Charge Sign Dependence of Four-Particle Dynamics*

- in Helium Double Ionization*. Phys. Rev. Lett., vol. 90(24):243201 (2003).
[37](#)
- [75] X. Flechard, H. Nguyen, E. Wells, I. Ben-Itzhak, & B. D. DePaola. *Kinematically Complete Charge Exchange Experiment in the $Cs^+ + Rb$ Collision System Using a MOT Target*. Phys. Rev. Lett., vol. 87(12):123203 (2001).
[37](#)
- [76] M. van der Poel, C. V. Nielsen, M. A. Gearba, & N. Andersen. *Fraunhofer Diffraction of Atomic Matter Waves: Electron Transfer Studies with a Laser Cooled Target*. Phys. Rev. Lett., vol. 87(12):123201 (2001). [37](#)
- [77] V. G. Hasan, S. Knoop, R. Morgenstern, & R. Hoekstra. *State selective capture by highly charged Xe ions*. J. Phys. Conf. Ser., vol. 58(1):199–202 (2007). [38](#)
- [78] S. Otranto & R. E. Olson. *X-ray emission cross sections following Ar^{18+} charge-exchange collisions on neutral argon: The role of the multiple electron capture*. Phys. Rev. A, vol. 83(3):032710 (2011). [95](#), [96](#), [105](#), [118](#), [126](#), [156](#)
- [79] I. Blank, S. Otranto, C. Meinema, R. E. Olson, & R. Hoekstra. *State-selective electron transfer and ionization in collisions of highly charged ions with ground-state $Na(3s)$ and laser-excited $Na^*(3p)$* . Phys. Rev. A, vol. 85(2):022712 (2012).
- [80] S. Otranto, I. Blank, R. E. Olson, & R. Hoekstra. *Evidence of electron saddle swap oscillations in angular differential ion-atom charge exchange cross sections*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 45(17):175201 (2012).
- [81] I. Blank, S. Otranto, C. Meinema, R. E. Olson, & R. Hoekstra. *Angular differential studies of electron transfer in collisions of He-like ions with $Na(3s)$: The role of electron saddle crossings*. Phys. Rev. A, vol. 87(3):032712 (2013).
[38](#)
- [82] L. I. Pivovarov, V. M. Tubaev, & M. T. Novikov. *Electron Loss and Capture by 200-1500 keV Helium Ions in Various Gases*. Sov. Phys. JETP, vol. 41(1):26 (1961). [38](#)

- [83] S. K. Allison, J. Cuevas, & P. G. Murphy. *Experimental Cross Sections for Charge-Changing Collisions of He^+ and He^{++} Ions Traversing Gases*. Phys. Rev., vol. 102(4):1041–1048 (1956). [51](#), [52](#), [151](#)
- [84] C. F. Barnett & P. M. Stier. *Charge Exchange Cross Sections for Helium Ions in Gases*. Phys. Rev., vol. 109(2):385–390 (1958).
- [85] H. B. Gilbody, J. B. Hasted, J. V. Ireland, A. R. Lee, E. W. Thomas, & A. S. Whiteman. *Charge Transfer and Ionization by Positive Ions in the Energy Range 60 to 450 keV*. Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci., vol. 274(1356):40–54 (1963).
- [86] P. Hvelplund & A. Andersen. *Electron Capture by Fast H^+ , He^+ , and He^{++} Ions in Collisions With Atomic and Molecular Hydrogen*. Phys. Scr., vol. 26(5):375–380 (1982). [38](#), [51](#), [52](#), [151](#)
- [87] W. L. Nutt, R. W. McCullough, K. Brady, M. B. Shah, & H. B. Gilbody. *Electron capture by He^{2+} ions in collisions with H and H_2 at impact energies below 10 keV*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 11(8):1457–1462 (1978). [38](#)
- [88] D. Bordenave-Montesquieu & R. Dagnac. *Single-electron capture in He^{2+} - D_2 collisions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 27(3):543–553 (1994). [38](#)
- [89] S. Figueira da Silva, H. P. Winter, & F. Aumayr. *Single- and double-electron capture cross sections for slow He^{2+} impact on O_2 , H_2 , and D_2* . Phys. Rev. A, vol. 75(4):042706 (2007).
- [90] G. J. Frieling, R. Hoekstra, E. Smulders, W. J. Dickson, A. N. Zinoviev, S. J. Kuppens, & F. J. de Heer. *Cross sections for l -selective electron capture into the $He^+(n=4)$ shell in intermediate energy collisions of He^{2+} with H and H_2* . J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 25(6):1245–1255 (1992).
- [91] R. Hoekstra, H. O. Folkerts, J. P. M. Beijers, R. Morgenstern, & F. J. de Heer. *He^{2+} - H_2 collisions: non-dissociative and dissociative one-electron capture*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 27(10):2021–2031 (1994).

- [92] R. Hoekstra, A. R. Schlatmann, F. J. de Heer, & R. Morgenstern. *Electron capture into $He^+(2p)$ in low-energy collisions of He^{2+} with atomic and molecular hydrogen*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 22(20):L603–L607 (1989).
- [93] D. M. Kearns, R. W. McCullough, & H. B. Gilbody. *Studies of Electron Capture by Multiply Charged Ions from Molecules using Translational Energy Spectroscopy*. Int. J. Mol. Sci., vol. 3(3):162–175 (2002).
- [94] T. Kusakabe, Y. Miyamoto, M. Kimura, & H. Tawara. *Charge-transfer processes in collisions of He^{2+} ions with H_2 , N_2 , O_2 , CO , and CO_2 molecules below 4 keV/u*. Phys. Rev. A, vol. 73(2):022706 (2006).
- [95] R. J. Mawhorter, J. B. Greenwood, A. Chutjian, T. Haley, C. D. Mitescu, & J. Simcic. *Measurement of absolute charge-exchange cross sections for He^{2+} collisions with He and H_2* . Phys. Rev. A, vol. 84(5):052714 (2011).
- [96] L. Meng, R. E. Olson, H. O. Folkerts, & R. Hoekstra. *State-selective electron capture in He^{2+} - H_2 collisions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 27(11):2269–2276 (1994). [38](#), [48](#)
- [97] E. Pollack & Y. Hahn. *Advances in Atomic and Molecular Physics Volume 22*, vol. 22 of *Advances in Atomic and Molecular Physics*. Elsevier (1986). [39](#)
- [98] M. G. Suraud, R. Hoekstra, F. J. de Heer, J. J. Bonnet, & R. Morgenstern. *State selective electron capture into nl subshells in slow collisions of C^{5+} and N^{6+} with He and H_2 studied by photon emission spectroscopy*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 24(10):2543–2558 (1991). [39](#)
- [99] G. Lubinski, Z. Juhász, R. Morgenstern, & R. Hoekstra. *State-selective electron-capture cross section measurements for low-energy collisions of He-like ions on H_2* . J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 33(23):5275–5296 (2000). [39](#)
- [100] M. Alessi, D. Fregenal, & P. Focke. *Recoil-ion momentum spectroscopy applied to study charge changing collisions*. Nucl. Instruments Methods

- Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms, vol. 269(4):484–491 (2011). [41](#), [44](#), [55](#)
- [101] M. Alessi, S. Otranto, & P. Focke. *State-selective electron capture in $^3\text{He}^{2+} + \text{He}$ collisions at intermediate impact energies*. Phys. Rev. A, vol. 83(1):014701 (2011). [41](#)
- [102] D. R. Miller. *Atomic and Molecular Beam Methods*. Oxford University Press, New York (1988). [44](#)
- [103] H. S. W. Massey, E. H. S. Burhop, & H. B. Gilbody. *Electronic and Ionic Impact Phenomena: Electronic and ionic impact phenomena* (1969). [45](#)
- [104] J. Franck & E. G. Dymond. *Elementary processes of photochemical reactions*. Trans. Faraday Soc., vol. 21(February):536 (1926). [45](#)
- [105] E. Condon. *A Theory of Intensity Distribution in Band Systems*. Phys. Rev., vol. 28(6):1182–1201 (1926). [45](#)
- [106] E. Condon. *Nuclear Motions Associated with Electron Transitions in Diatomic Molecules*. Phys. Rev., vol. 32(6):858–872 (1928). [45](#)
- [107] T. E. Sharp. *Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions*. At. Data Nucl. Data Tables, vol. 2:119–169 (1971). [45](#), [46](#), [47](#), [150](#)
- [108] D. C. Frost, C. A. McDowell, & D. A. Vroom. *Photoelectron Spectroscopy with a Spherical Analyzer. The Vibrational Energy Levels of H^2+* . Phys. Rev. Lett., vol. 15(15):612–614 (1965). [47](#)
- [109] H. Wind. *Vibrational States of the Hydrogen Molecular Ion*. J. Chem. Phys., vol. 43(9):2956 (1965). [47](#), [150](#)
- [110] R. E. Olson & A. Salop. *Charge-transfer and impact-ionization cross sections for fully and partially stripped positive ions colliding with atomic hydrogen*. Phys. Rev. A, vol. 16(2):531–541 (1977). [48](#), [72](#), [121](#), [124](#)
- [111] L. Meng, C. O. Reinhold, & R. E. Olson. *Electron removal from molecular hydrogen by fully stripped ions at intermediate energies*. Phys. Rev. A, vol. 40(7):3637–3645 (1989). [48](#), [123](#)

- [112] C. J. Wood & R. E. Olson. *Double electron removal and fragmentation model of the H_2 molecule by highly charged ions*. Phys. Rev. A, vol. 59(2):1317–1328 (1999). [48](#), [72](#), [123](#)
- [113] G. Herzberg. *Molecular Spectra and Molecular Structure*. D. Van Nostrand Company, New York (1950). [49](#)
- [114] A. E. S. Green, D. L. Sellin, & A. S. Zachor. *Analytic Independent-Particle Model for Atoms*. Phys. Rev., vol. 184(1):1–9 (1969). [50](#)
- [115] D. R. Schultz, P. C. Stancil, & M. J. Raković. *Classical/quantal correspondence in state-selective charge transfer for partially stripped ion impact on atomic hydrogen: improvements to the CTMC method*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 34(13):2739–2746 (2001). [50](#), [51](#)
- [116] C. F. Barnett, J. A. Ray, E. Ricci, M. I. Wilker, E. W. McDaniel, E. W. Thomas, & H. B. Gilbody. *Atomic data for controlled fusion research*. Tech. rep., Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Oak Ridge, TN (United States) (1977). [51](#), [52](#), [151](#)
- [117] F. J. de Heer, J. Schutten, & H. Moustafa. *Ionization and electron capture for helium ions incident on noble and diatomic gases between 10 and 150 keV*. Physica, vol. 32(10):1793–1807 (1966). [51](#), [52](#), [151](#)
- [118] V. D. Rodríguez, Y. D. Wang, & C. D. Lin. *Theory of longitudinal recoil-ion momentum distribution in ion-atom ionization*. Phys. Rev. A, vol. 52(1):R9–R12 (1995). [58](#)
- [119] S. Otranto & R. E. Olson. *State-selective charge exchange from $H(1s)$, $H(n=2)$, Li and Na targets by very highly charged ions*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 43(14):144004 (2010). [59](#)
- [120] R. N. Bracewell. *The Fourier Transform and Its Applications*. McGraw Hill, 3rd ed. (2000). [65](#)
- [121] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nüttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. L. Cocke, R. E. Olson, M. Schulz, U. Buck,

- E. Zanger, W. Theisinger, M. Isser, S. Geis, & H. Schmidt-Böcking. *State Selective Scattering Angle Dependent Capture Cross Sections Measured by Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy*. Phys. Rev. Lett., vol. 74(12):2200–2203 (1995). [67](#)
- [122] W. C. Keever & E. Everhart. *Resonant Electron-Capture Measurements of Close $He^+ + He$ and $He^+ + H$ Collisions*. Phys. Rev., vol. 150(1):43–47 (1966). [67](#)
- [123] W. L. Hodge, A. L. Goldberger, M. Vedder, & E. Pollack. *Ion-molecule charge exchange: He^+ and Ar^+ on H_2 and N_2* . Phys. Rev. A, vol. 16(6):2360–2364 (1977). [67](#)
- [124] R. S. Gao, L. K. Johnson, C. L. Hakes, K. A. Smith, & R. F. Stebbings. *Collisions of kilo-electron-volt H^+ and He^+ with molecules at small angles: Absolute differential cross sections for charge transfer*. Phys. Rev. A, vol. 41(11):5929–5933 (1990). [69](#)
- [125] L. Landau. *Zur Theorie der Energieübertragung. II*. Phys. Sov. Union, vol. 2:46–51 (1932). [69](#)
- [126] C. Zener. *Non-Adiabatic Crossing of Energy Levels*. Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci., vol. 137(833):696–702 (1932). [69](#)
- [127] Y. N. Demkov. *Charge Transfer at Small Resonance Defects*. Sov. Phys. JETP, vol. 18(1):138 (1964). [69](#)
- [128] R. Cabrera-Trujillo, Y. Öhrn, E. Deumens, J. R. Sabin, & B. G. Lindsay. *Theoretical and experimental studies of the $H^+ - N_2$ system: Differential cross sections for direct and charge-transfer scattering at kilo-electron-volt energies*. Phys. Rev. A, vol. 66(4):042712 (2002). [69](#)
- [129] R. S. Gao, L. K. Johnson, G. J. Smith, C. L. Hakes, K. A. Smith, N. F. Lane, R. F. Stebbings, & M. Kimura. *Collisions between H^+ and H_2 at kilo-electron-volt energies: Absolute differential cross sections for small-angle direct, single-, and double-charge-transfer scattering*. Phys. Rev. A, vol. 44(9):5599–5604 (1991). [69](#)

- [130] I. Abbas, C. Champion, B. Zarour, B. Lasri, & J. Hanssen. *Single and multiple cross sections for ionizing processes of biological molecules by protons and alpha-particle impact: a classical Monte Carlo approach*. Phys. Med. Biol., vol. 53(4):N41–51 (2008). [71](#)
- [131] D. Bodewits, R. Hoekstra, B. Seredyuk, R. W. McCullough, G. H. Jones, & A. G. G. M. Tielens. *Charge Exchange Emission from Solar Wind Helium Ions*. Astrophys. J., vol. 642(1):593–605 (2006). [72](#), [94](#), [95](#)
- [132] C. Champion. *Electron impact ionization of liquid and gaseous water: a single-center partial-wave approach*. Phys. Med. Biol., vol. 55(1):11–32 (2010).
- [133] N. Djurić, S. J. Smith, J. Simcic, & A. Chutjian. *Absolute Single and Multiple Charge Exchange Cross Sections for Highly Charged C, N, and O Ions Colliding with CH₄*. Astrophys. J., vol. 679(2):1661–1664 (2008). [72](#)
- [134] T. Liamsuwan & H. Nikjoo. *Cross sections for bare and dressed carbon ions in water and neon*. Phys. Med. Biol., vol. 58(3):641–72 (2013).
- [135] S. Otranto, R. E. Olson, & P. Beiersdorfer. *X-ray emission cross sections following charge exchange by multiply charged ions of astrophysical interest*. Phys. Rev. A, vol. 73(2):022723 (2006). [71](#), [95](#)
- [136] J. B. Greenwood, I. D. Williams, S. J. Smith, & A. Chutjian. *Experimental investigation of the processes determining x-ray emission intensities from charge-exchange collisions*. Phys. Rev. A, vol. 63(6):062707 (2001). [72](#), [86](#), [88](#), [94](#), [95](#)
- [137] J. B. Greenwood, I. D. Williams, S. J. Smith, & A. Chutjian. *Measurement of Charge Exchange and X-Ray Emission Cross Sections for Solar Wind–Comet Interactions*. Astrophys. J., vol. 533(2):L175–L178 (2000). [86](#), [87](#), [88](#), [89](#), [94](#), [154](#)
- [138] D. Bodewits & R. Hoekstra. *Electron capture in collisions between O⁶⁺ ions and H₂O molecules*. Phys. Rev. A, vol. 76(3):032703 (2007). [88](#), [90](#)

- [139] P. Beiersdorfer, R. E. Olson, G. V. Brown, H. Chen, C. L. Harris, P. A. Neill, L. Schweikhard, S. B. Utter, & K. Widmann. *X-Ray Emission Following Low-Energy Charge Exchange Collisions of Highly Charged Ions*. Phys. Rev. Lett., vol. 85(24):5090–5093 (2000). [96](#)
- [140] H. Tawara, E. Takács, T. Suta, K. Makónyi, L. Ratliff, & J. D. Gillaspay. *K x-rays produced in collisions of bare ions with atoms: Contribution of multiple-electron transfer in Kr^{36+} , Ar^{18+} , and $Ne^{10+} + Ar$ collisions*. Phys. Rev. A, vol. 73(1):012704 (2006).
- [141] P. Beiersdorfer, K. R. Boyce, G. V. Brown, H. Chen, S. M. Kahn, R. L. Kelley, M. May, R. E. Olson, F. S. Porter, C. K. Stahle, & W. A. Tillotson. *Laboratory simulation of charge exchange-produced X-ray emission from comets*. Science, vol. 300(5625):1558–9 (2003). [94](#)
- [142] R. Ali, P. A. Neill, P. Beiersdorfer, C. L. Harris, D. R. Schultz, & P. C. Stancil. *CRITICAL TEST OF SIMULATIONS OF CHARGE-EXCHANGE-INDUCED X-RAY EMISSION IN THE SOLAR SYSTEM*. Astrophys. J., vol. 716(2):L95–L98 (2010).
- [143] F. Allen, C. Biedermann, R. Radtke, G. Fussmann, & S. Fritzsche. *Energy dependence of angular momentum capture states in charge exchange collisions between slow highly charged argon ions and argon neutrals*. Phys. Rev. A, vol. 78(3):032705 (2008). [72](#), [96](#), [104](#), [115](#), [116](#), [117](#), [155](#), [156](#)
- [144] W. Fritsch & C. D. Lin. *The semiclassical close-coupling description of atomic collisions: Recent developments and results*. Phys. Rep., vol. 202(1-2):1–97 (1991). [72](#)
- [145] N. Shimakura, S. Suzuki, & M. Kimura. *Molecular treatment of electron capture in collisions of O^{5+} ions with H atoms at energies from 6 eV/amu to 10 keV/amu: Transfer-excitation processes*. Phys. Rev. A, vol. 48(5):3652–3662 (1993). [72](#)
- [146] D. Greenspan. *Electron attraction as a mechanism for the chemical bond of ground state H_2* . Phys. Scr., vol. 52(3):267–270 (1995). [72](#)

- [147] T. Kirchner, M. Horbatsch, & H. J. Lüdde. *Time-dependent independent-particle model calculation of multiple capture and ionization processes in p - Ar , p^- - Ar , and He^{2+} - Ar collisions*. Phys. Rev. A, vol. 66(5):052719 (2002). [73](#)
- [148] A. Salehzadeh & T. Kirchner. *Strong multiple-capture effect in slow Ar^{17+} - Ar collisions: a quantum mechanical analysis*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 46(2):025201 (2013). [73](#), [95](#)
- [149] P. M. M. Gabás, L. F. Errea, L. Méndez, & I. Rabadán. *Ab initio treatment of charge transfer in ion-molecule collisions based on one-electron wave functions*. Phys. Rev. A, vol. 85(1):012702 (2012). [74](#)
- [150] R. S. Mulliken. *Electronic Population Analysis on LCAO[Single Bond]MO Molecular Wave Functions. I*. J. Chem. Phys., vol. 23(10):1833 (1955). [75](#)
- [151] C. L. Kirschbaum & L. Wilets. *Classical many-body model for atomic collisions incorporating the Heisenberg and Pauli principles*. Phys. Rev. A, vol. 21(3):834–841 (1980). [75](#), [123](#)
- [152] R. E. Olson. *Collisional mechanisms for single and double ionization of He by protons and antiprotons*. Phys. Rev. A, vol. 36(3):1519–1521 (1987). [75](#), [123](#)
- [153] W. M. Huo. *Electronic Structure of CO and BF*. J. Chem. Phys., vol. 43(2):624 (1965). [77](#), [78](#), [153](#)
- [154] P. Kumar. *Potential energy curves for neutral and multiply charged carbon monoxide*. Pramana, vol. 74(1):49–55 (2010). [78](#)
- [155] R. J. Mawhorter, A. Chutjian, T. E. Cravens, N. Djurić, S. Hossain, C. M. Lisse, J. A. MacAskill, S. J. Smith, J. Simcic, & I. D. Williams. *Absolute single and multiple charge exchange cross sections for highly charged C, O, and Ne ions on H_2O , CO, and CO_2* . Phys. Rev. A, vol. 75(3):032704 (2007). [80](#), [81](#), [83](#), [84](#), [85](#), [153](#), [154](#)

- [156] K. A. Miller, W. W. Smith, T. Ehrenreich, Q. C. Kessel, E. Pollack, C. Verzani, V. A. Kharchenko, A. Chutjian, J. A. Lozano, N. Djurić, & S. J. Smith. *X-RAY EMISSIONS FROM COLLISIONS OF O^{6+} IONS WITH CO*. *Astrophys. J.*, vol. 742(2):130 (2011). [86](#), [87](#), [90](#)
- [157] <http://astro-h.isas.jaxa.jp/en/>. [93](#)
- [158] C. M. Lisse, K. Dennerl, J. Englhauser, M. Harden, F. E. Marshall, M. J. Mumma, R. Petre, J. P. Pye, M. J. Ricketts, J. Schmitt, J. Trumper, & R. G. West. *Discovery of X-ray and Extreme Ultraviolet Emission from Comet C/Hyakutake 1996 B2*. *Science* (80-.), vol. 274(5285):205–209 (1996). [93](#)
- [159] C. M. Lisse, D. J. Christian, K. Dennerl, K. J. Meech, R. Petre, H. A. Weaver, & S. J. Wolk. *Charge exchange-induced X-ray emission from comet C/1999 S4 (LINEAR)*. *Science*, vol. 292(5520):1343–8 (2001). [94](#)
- [160] K. Dennerl. *Charge Transfer Reactions*. *Space Sci. Rev.*, vol. 157(1-4):57–91 (2010). [94](#)
- [161] V. Krasnopolsky. *X-Ray Emission from Comet McNaught-Hartley (C/1999 T1)*. *Icarus*, vol. 160(2):437–447 (2002). [95](#)
- [162] V. Krasnopolsky. *Comparison of X-rays from Comets LINEAR (C/1999 S4) and McNaught–Hartley (C/1999 T1)*. *Icarus*, vol. 167(2):417–423 (2004). [95](#)
- [163] M. Rigazio, V. Kharchenko, & A. Dalgarno. *X-ray emission spectra induced by hydrogenic ions in charge transfer collisions*. *Phys. Rev. A*, vol. 66(6):064701 (2002). [95](#)
- [164] N. D. Cariatore & S. Otranto. *Development and evaluation of a many-electron–multicenter classical-trajectory Monte Carlo model in charge-exchange processes involving collisions of multiply charged ions and CO*. *Phys. Rev. A*, vol. 88(1):012714 (2013). [95](#), [123](#)
- [165] H. Tawara, E. Takács, T. Suta, K. Makónyi, L. Ratliff, & J. Gillaspay. *K x rays produced in collisions of bare ions with atoms: Contribution of multiple-*

- electron transfer in Kr^{36+} , Ar^{18+} , and $Ne^{10+} + Ar$ collisions.* Phys. Rev. A, vol. 73(1):012704 (2006). [96](#), [111](#), [120](#), [155](#)
- [166] M. A. Levine, R. E. Marrs, J. R. Henderson, D. A. Knapp, & M. B. Schneider. *The Electron Beam Ion Trap: A New Instrument for Atomic Physics Measurements.* Phys. Scr., vol. T22(T22):157–163 (1988). [96](#)
- [167] M. A. Levine, R. E. Marrs, J. N. Bardsley, P. Beiersdorfer, C. L. Bennett, M. H. Chen, T. Cowan, D. Dietrich, J. R. Henderson, D. A. Knapp, A. Osterheld, B. M. Penetrante, M. B. Schneider, & J. H. Scofield. *The use of an electron beam ion trap in the study of highly charged ions.* Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms, vol. 43(3):431–440 (1989).
- [168] R. E. Marrs, P. Beiersdorfer, & D. Schneider. *The Electron-Beam Ion Trap.* Phys. Today, vol. 47(10):27 (1994). [96](#)
- [169] D. Schneider, D. DeWitt, M. W. Clark, R. Schuch, C. L. Cocke, R. Schmieder, K. J. Reed, M. H. Chen, R. E. Marrs, M. Levine, & R. Fortner. *Ion-collision experiments with slow, very highly charged ions extracted from an electron-beam ion trap.* Phys. Rev. A, vol. 42(7):3889–3895 (1990). [96](#)
- [170] F. Allen. *Electron capture by highly charged ions from surfaces and gases.* Ph.D. thesis (2008). [98](#), [100](#), [102](#), [103](#), [154](#), [155](#)
- [171] P. Beiersdorfer. *Physics of Electronic and Atomic Collisions: Proceedings of ICPEAC XVII.* Brisbane (1992). [100](#)
- [172] P. Beiersdorfer, M. Bitter, M. Chen, V. Decaux, S. Elliott, S. Kahn, D. A. Knapp, R. E. Marrs, A. Osterheld, D. Vogel, & K. Widmann. *Spectroscopy and atomic physics in EBIT and superEBIT.* In *AIP Conf. Proc.*, vol. 322, 129–140. AIP (1995).
- [173] D. A. Knapp. *Physics with Multiply Charged Ions*, vol. 348 of *NATO ASI Series*. Springer US, Boston, MA (1995).

- [174] J. D. Gillaspy, Y. Aglitskiy, E. W. Bell, C. M. Brown, C. T. Chantler, R. D. Deslattes, U. Feldman, L. T. Hudson, J. M. Laming, E. S. Meyer, C. A. Morgan, A. I. Pikin, J. R. Roberts, L. P. Ratliff, F. G. Serpa, J. Sugar, & E. Takács. *Overview of the electron beam ion trap program at NIST*. Phys. Scr., vol. T59(T59):392–395 (1995). [100](#)
- [175] P. Beiersdorfer, L. Schweikhard, J. R. Crespo López-Urrutia, & K. Widmann. *The magnetic trapping mode of an electron beam ion trap: New opportunities for highly charged ion research*. Rev. Sci. Instrum., vol. 67(11):3818 (1996). [101](#)
- [176] J. R. Crespo López-Urrutia, P. Beiersdorfer, D. W. Savin, & K. Widmann. *Precision measurement of the lifetime of the $1s2s^3S_1$ metastable level in heliumlike O^{6+}* . Phys. Rev. A, vol. 58(1):238–241 (1998). [101](#)
- [177] G. Peach, S. L. Willis, & M. R. C. McDowell. *The classical theory of charge transfer and ionisation processes in collisions between complex atomic ions*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 18(19):3921–3937 (1985). [105](#)
- [178] S. L. Willis, G. Peach, M. R. C. McDowell, & J. Banerji. *Charge transfer and ionisation processes in collisions involving atoms and ions of hydrogen and helium*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 18(19):3939–3950 (1985). [105](#)
- [179] E. Clementi & C. Roetti. *Roothaan-Hartree-Fock atomic wavefunctions*. At. Data Nucl. Data Tables, vol. 14(3-4):177–478 (1974). [106](#), [107](#)
- [180] H. Goldstein, C. P. J. Poole, & J. L. Safko. *Classical Mechanics*. 3rd ed. (2001). [108](#)
- [181] Y. V. Ralchenko & Y. Maron. *Accelerated recombination due to resonant deexcitation of metastable states*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., vol. 71(2-6):609–621 (2001). [108](#)
- [182] R. Ali, P. A. Neill, P. Beiersdorfer, C. L. Harris, M. J. Raković, J. G. Wang, D. R. Schultz, & P. C. Stancil. *On the Significance of the Contribution of Multiple-Electron Capture Processes to Cometary X-Ray Emission*. Astrophys. J., vol. 629(2):L125–L128 (2005). [112](#)

- [183] M. Trassinelli, C. Prigent, E. Lamour, F. Mezdari, J. Mérot, R. Reuschl, J. P. Rozet, S. Steydli, & D. Vernhet. *Investigation of slow collisions for (quasi) symmetric heavy systems: what can be extracted from high resolution x-ray spectra*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 45(8):085202 (2012). 118, 119, 156
- [184] D. Eichenauer, N. Grun, & W. Scheid. *Classical trajectory calculations for H^+ -H collisions with the Wigner function as initial phase space distribution*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 14(20):3929–3941 (1981). 122
- [185] J. S. Cohen. *Classical phase-space distributions for atomic hydrogen collisions*. J. Phys. B At. Mol. Phys., vol. 18(9):1759–1769 (1985). 123
- [186] M. L. McKenzie & R. E. Olson. *Ionization and charge exchange in multiply-charged-ion - helium collisions at intermediate energies*. Phys. Rev. A, vol. 35(7):2863–2868 (1987). 123
- [187] A. E. Wetmore & R. E. Olson. *Electron loss from helium atoms by collisions with fully stripped ions*. Phys. Rev. A, vol. 38(11):5563–5570 (1988). 123
- [188] M. Alessi, N. D. Cariatore, P. Focke, & S. Otranto. *State-selective electron capture in $He^+ + H_2$ collisions at intermediate impact energies*. Phys. Rev. A, vol. 85(4):042704 (2012). 123
- [189] <http://www.ccfе.ac.uk/JET.aspx>. 123
- [190] R. Hoekstra, H. Anderson, F. W. Blik, M. G. von Hellermann, C. F. Maggi, R. E. Olson, & H. P. Summers. *Charge exchange from $D(n=2)$ atoms to low- Z receiver ions*. Plasma Phys. Control. Fusion, vol. 40(8):1541–1550 (1998). 123, 140
- [191] H. Anderson, M. G. von Hellermann, R. Hoekstra, L. D. Horton, A. C. Howman, R. W. T. Konig, R. Martin, R. E. Olson, & H. P. Summers. *Neutral beam stopping and emission in fusion plasmas I: deuterium beams*. Plasma Phys. Control. Fusion, vol. 42(7):781–806 (2000). 123

- [192] R. C. Isler & R. E. Olson. *Contribution of excited hydrogen atoms to charge-exchange excitation of impurities in fusion plasmas*. Phys. Rev. A, vol. 37(9):3399–3402 (1988). [123](#), [140](#)
- [193] W. Fritsch & C. D. Lin. *Atomic-orbital-expansion studies of electron transfer in bare-nucleus $Z(Z=2,4-8)$ -hydrogen-atom collisions*. Phys. Rev. A, vol. 29(6):3039–3051 (1984). [123](#)
- [194] K. Igenbergs, J. Schweinzer, A. Veiter, L. Perneczky, E. Frühwirth, M. Wallerberger, R. E. Olson, & F. Aumayr. *Charge exchange and ionization in N^{7+} -, N^{6+} -, C^{6+} - $H(n=1,2)$ collisions studied systematically by theoretical approaches*. J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 45(6):065203 (2012). [123](#), [124](#), [129](#), [130](#), [136](#), [137](#), [139](#), [145](#), [156](#), [157](#)
- [195] K. Igenbergs. *Calculations of Cross Sections Relevant For Diagnostics of Hot Fusion Plasmas*. Ph.D. thesis, Vienna University of Technology (2011). [124](#), [129](#), [130](#), [136](#), [139](#), [156](#), [157](#)
- [196] N. Toshima. *Ionization and charge transfer of atomic hydrogen in collision with multiply charged ions*. Phys. Rev. A, vol. 50(5):3940–3947 (1994). [123](#)
- [197] S. Otranto, N. D. Cariatore, & R. E. Olson. *X-ray emission produced in charge-exchange collisions between highly charged ions and argon: Role of the multiple electron capture*. Phys. Rev. A, vol. 90(6):062708 (2014). [126](#)
- [198] T. Weber, K. Khayyat, R. Dörner, V. D. Rodríguez, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Schmidt, K. A. Müller, F. Afaneh, A. Gonzalez, & H. Schmidt-Böcking. *Abrupt Rise of the Longitudinal Recoil Ion Momentum Distribution for Ionizing Collisions*. Phys. Rev. Lett., vol. 86(2):224–227 (2001). [129](#), [144](#)
- [199] P. Song, H. J. Singer, & G. L. Siscoe. *Space Weather Effects on Technologies*. Geophysical Monograph Series. American Geophysical Union, Washington, D. C. (2001). [147](#)
- [200] E. C. Montenegro, M. B. Shah, H. Luna, S. W. J. Scully, A. L. F. de Barros, J. A. Wyer, & J. Lecointre. *Water Fragmentation and Energy Loss by*

Carbon Ions at the Distal Region of the Bragg Peak. Phys. Rev. Lett., vol. 99(21):213201 (2007). [147](#)

- [201] Z. D. Pešić, R. Hellhammer, B. Sulik, & N. Stolterfoht. *Strong anisotropy in the proton emission following fragmentation of H₂O molecules by impact with slow, highly charged Xenon ions.* J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., vol. 42(23):235202 (2009). [147](#)

Publicaciones Realizadas

Las publicaciones de las investigaciones llevadas a cabo directamente relacionadas con esta tesis se listan a continuación:

1. **“State-selective electron capture in $\text{He}^+ + \text{H}_2$ collisions at intermediate impact energies”**
M. Alessi, N. D. Cariatore, P. Focke, and S. Otranto
Phys. Rev. A **85** 042704 (2012).
2. **“Development and evaluation of a many-electron–multicenter classical-trajectory Monte Carlo model in charge-exchange processes involving collisions of multiply charged ions and CO”**
N. D. Cariatore and S. Otranto
Phys. Rev. A **88** 012714 (2013).
3. **“X-ray emission produced in charge-exchange collisions between highly charged ions and argon: Role of the multiple electron capture”**
S. Otranto, N. D. Cariatore, and R. E. Olson
Phys. Rev. A **90** 062708 (2014).
4. **“Classical description of $\text{H}(1s)$ and $\text{H}^*(n = 2)$ for cross-section calculations relevant to charge-exchange diagnostics”**
N. D. Cariatore, S. Otranto, and R. E. Olson
Phys. Rev. A **91** 042709 (2015).

7.0. CONCLUSIONES

Otras publicaciones realizadas en el marco de las investigaciones publicadas:

5 “The role of multiple electron capture in the x-ray emission process following charge exchange collisions with neutral targets”

S. Otranto, N. D. Cariatore, and R. E. Olson

J. Phys.: Conf. Ser. **583** 012010 (2015)

Presentaciones a Congresos Internacionales derivadas de las investigaciones realizadas en el marco del doctorado:

1 “COLTRIMS aplicado al estudio de colisión ion-átomo e ion-molécula, junto con un método numérico alternativo al enfriamiento externo del blanco para la obtención de momentos transversales”

M. Alessi, P. Focke, N. D. Cariatore y S. Otranto

VI Encuentro Sudamericano de Colisiones Inelásticas en la Materia

Rosario, Argentina, 2012.

2 “Many-electron-multicenter CTMC study of charge exchange collisions of solar wind ions with CO”

N. D. Cariatore and S. Otranto

17th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions

San Carlos de Bariloche, Argentina, 2014.

Presentaciones a Congresos Nacionales derivadas de las investigaciones realizadas en el marco del doctorado:

4 “Estudio del proceso de captura electrónica simple selectiva en el sistema $\text{He}^+ + \text{H}_2$ mediante COLTRIMS”

M. Alessi, P. Focke, N. D. Cariatore y S. Otranto

97^aReunión Nacional de Física. Asociación Física Argentina

Villa Carlot Paz, Córdoba, Argentina, 2012.

5 “Captura electrónica selectiva en colisiones de H^+ y O^{6+} con CO”

N. D. Cariatore, R. E. Olson y S. Otranto

97^aReunión Nacional de Física. Asociación Física Argentina

Villa Carlot Paz, Argentina, 2012.

7.0. CONCLUSIONES

6 “Captura electrónica selectiva en colisiones de iones múltiplemente cargados sobre CO”

N. D. Cariato y S. Otranto

98^aReunión Nacional de Física. Asociación Física Argentina

San Carlos de Bariloche, Argentina, 2013.

7 “Captura electrónica selectiva en colisiones de iones altamente cargados con H₂O”

N. D. Cariato y S. Otranto

99^aReunión Nacional de Física. Asociación Física Argentina

Tandil, Argentina, 2014.