

# Ionización múltiple y captura en colisiones protón-gases nobles a energías intermedias.

D. Fregenal<sup>1</sup>, S. Suárez<sup>1</sup>, A.D. González<sup>1</sup>

Centro Atómico Bariloche e Instituto Balseiro, Comisión Nacional de Energía Atómica, 8400, Bariloche, Argentina.  
e-mail: fregenal@cab.cnea.edu.ar

Se estudió experimentalmente la emisión electrónica en la dirección perpendicular a la del proyectil incidente en colisiones  $H^+$  y  $H^0$  con gases nobles para 50, 120 y 210 keV de energía. En el caso de protones, se observó una estructura característica, centrada en la velocidad del proyectil, para los procesos que involucran la emisión de dos electrones. Se analizaron además los procesos que involucran tres y más electrones y su importancia respecto de la emisión total.

We measured electrons emitted perpendicularly to the beam direction in collisions between  $H^+$  and  $H^0$  on rare gases for 50, 120 and 210 keV of incident energy. We found a characteristic structure for charged projectiles, centered at the projectile velocity, for two-electron processes. We considered also processes that involve three or more electrons and their importance in total electron emission.

## Introducción

En los últimos años la ionización múltiple en colisiones ion-átomo ha sido objeto de estudio creciente. Las primeras mediciones determinaron la importancia de los distintos procesos que conllevan la emisión de varios electrones en una colisión<sup>(1-6)</sup>. En estos estudios se observó que para energías altas (superiores a 700 keV para protones), la ionización múltiple ocurre a través de la emisión directa de electrones desde las capas externas de los átomos blanco, o por medio de la ionización de las capas internas, seguida por emisión Auger. En cambio para energías inferiores dominan los procesos de transferencia directa desde el blanco hacia el proyectil. Para energías comparables o menores que 100 keV, la emisión electrónica asociada con captura simultánea desde las capas externas del blanco es dominante, superando incluso a la ionización única como mecanismo de producción de electrones.

La emisión de varios electrones en una colisión induce a pensar en procesos en los cuales la correlación de los electrones en el átomo es importante. Diversos trabajos trataron de determinar el papel que ésta juega en los procesos de ionización múltiple<sup>(7-11)</sup>. Así, aún para energías altas, los procesos que involucran dos electrones (como la doble ionización y la ionización con transferencia simultánea de carga) no pueden ser bien descriptos por medio de una aproximación de electrones independientes<sup>(12,13)</sup> y los modelos deben incluir la correlación electrónica en los estados inicial y final de la colisión<sup>(14)</sup>. Para energías bajas, la polarización del átomo blanco induce un incremento de la densidad electrónica en la dirección de incidencia del proyectil, con lo que la interacción interelectrónica y el tiempo en que ésta actúa es mayor. Por ello se hace necesario, para estas energías incluir una "correlación electrónica dinámica" durante la colisión<sup>(15)</sup>.

En este trabajo presentamos mediciones de ionización múltiple en colisiones de protones con gases nobles (Ne, Ar, Kr) a energías intermedias. Los resultados muestran

una participación apreciable de los procesos múltiples en la emisión total de electrones. Esta participación crece con la energía de emisión en el caso de los procesos que involucran más de tres electrones. También se observa una estructura para las colisiones que producen dos electrones, que puede asociarse con un mecanismo de ionización con transferencia simultánea de carga en el que es emitido un electrón con una velocidad característica.

## Descripción experimental

Un haz de partículas incide sobre un blanco provisto por una aguja hipodérmica en medio de un conjunto de placas paralelas perpendiculares a la dirección del haz (ver figura 1). Las placas tienen orificios centrales cubiertos con mallas de alta transmisión a través de los cuales se extraen los iones y electrones originados en la colisión por medio de una tensión simétrica  $\pm V_{ext}$ .

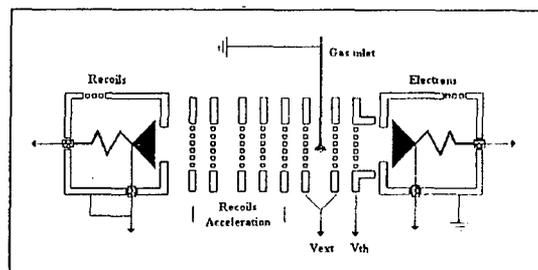


Figura 1: Esquema del sistema de detección de electrones e iones residuales del blanco. El haz incide perpendicularmente al plano de la figura.  $V_{ext}$  y  $V_{th}$  son los potenciales de extracción y de retardo, respectivamente.

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

<sup>1</sup> Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas (CONICET).

Los iones residuales del blanco son acelerados por medio de una serie de placas con tensiones crecientes hasta alcanzar 3.5 kV en un detector tipo ceratron. Una pequeña tensión de extracción basta para detectar todos los iones residuales producidos, ya que adquieren muy poca energía (del orden de los meV) en la colisión.

La aceptación angular de los electrones está dada prácticamente por el ángulo geométrico subtendido por el detector (0,15 srad) alrededor de 90 grados y es independiente de la tensión de extracción. Las mediciones se hicieron con un campo de 10 a 20 V/cm, para el que no existen variaciones entre los diferentes espectros obtenidos.

Los electrones con energía apenas superior a la asociada con la tensión de retardo, salen de esta región con una velocidad muy pequeña, por lo que son muy sensibles a los campos magnéticos espúreos. Para minimizar este problema se colocó una bobina que redujo estos campos a un valor inferior a 10 mG.

La presión de base de la cámara es de  $6 \cdot 10^{-7}$  Torr, mientras que la de trabajo fue del orden de  $1 \cdot 10^{-5}$  Torr.

Las señales producidas por iones y electrones son detectadas en coincidencia y en forma independiente.

La figura 2 muestra un espectro de coincidencias típico para la colisión  $H^0$  sobre Kr de 210 keV. Es notable la presencia de iones de Kr séptuplemente ionizados a tan baja energía.

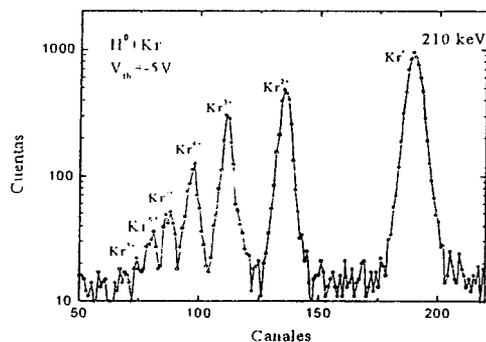


Figura 2: Espectro de coincidencias electrones-iones residuales del blanco para  $H^0 + Kr$ , y una energía de 210 keV. El potencial de retardo es 5V.

### Mediciones

Se obtuvieron espectros de coincidencia entre electrones emitidos en la dirección perpendicular a la del haz y los iones residuales, para colisiones  $H^+$  y  $H^0$  incidiendo sobre Ne, Ar y Kr con energías de 50, 120 y 210 keV. Para cada sistema, se registró el número de electrones correspondiente a un estado de carga del blanco residual, como función del potencial de retardo. Esto es, el número de electrones con una energía mayor que  $e \cdot V_{th}$  asociado con un estado de carga dado. Estos espectros se normalizaron al número total de iones residuales. La sección eficaz doblemente diferencial de producción de electrones para cada tipo de ion residual se puede obtener entonces a partir de la derivada de estas curvas.

Como la medición involucra la detección en coincidencia de un electrón con un ion residual, no se observarán procesos de captura única. Así, la producción de  $Ar^+$  estará asociada solamente con la emisión de un electrón. En cambio, en el caso de los estados de carga más altos, los procesos de captura con emisión simultánea se mezclan con los de ionización pura. Si la dependencia en energía de los procesos de ionización pura (simple, doble, triple, etc), es aproximadamente la misma, entonces la relación entre las distribuciones de procesos de más de dos electrones, respecto de la ionización única, podría dar cuenta de los efectos de procesos de transferencia de carga al proyectil sobre la emisión de electrones.

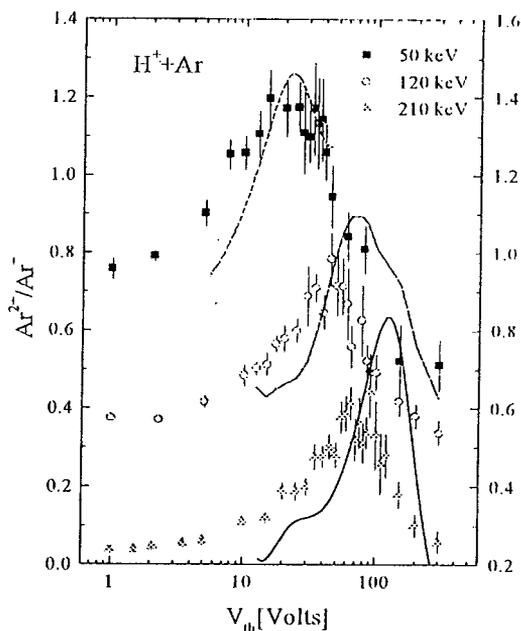


Figura 3: Cocientes de las áreas  $Ar^{2+}/Ar^+$  en colisiones  $H^+ + Ar$  en función del potencial de retardo para tres energías diferentes: 50, 120 y 210 keV. Los datos de 210 keV corresponden a la escala de la derecha. Las curvas representan el cociente de las derivadas de las secciones eficaces medidas.

En la figura 3 se muestra el cociente  $Ar^{2+}/Ar^+$  para protones incidentes sobre Ar, y tres energías de colisión: 50, 120 y 210 keV. La escala para el caso de 210 keV se encuentra a la derecha de la figura. Vemos en todos los casos que existe una estructura pronunciada cuya posición se mueve hacia tensiones de retardo mayores a medida que crece la energía del proyectil. También se observa que la intensidad del cociente disminuye. La estructura está centrada en una tensión de retardo cercana a la asociada con una energía  $e \cdot V_{th}$  para la cual la velocidad electrónica es igual a la velocidad del proyectil. Debemos notar que el área del  $Ar^{2+}$  para 50 keV es mayor que la de  $Ar^+$  en la zona del máximo: el cociente es superior a 1. Para obtener las secciones eficaces doblemente diferenciales ajustamos estas curvas con funciones adecuadas y luego las derivamos respecto del potencial de retardo. El cociente de estas derivadas se

muestra en línea llena en la figura 3. Encontramos picos pronunciados en  $\sim 23$ ,  $\sim 70$  y  $\sim 124$  eV para 50, 120 y 210 keV respectivamente (para estas curvas, las abscisas corresponden a valores de energía en eV). La posición en energía de estos picos involucran a electrones con velocidad igual a la del proyectil incidente.

Esta misma estructura se presenta en todos los blancos medidos. En la figura 4 se representan los cocientes entre los estados de carga 2 y 1 para blancos de Ne, Ar y Kr en colisiones con protones de 50 keV

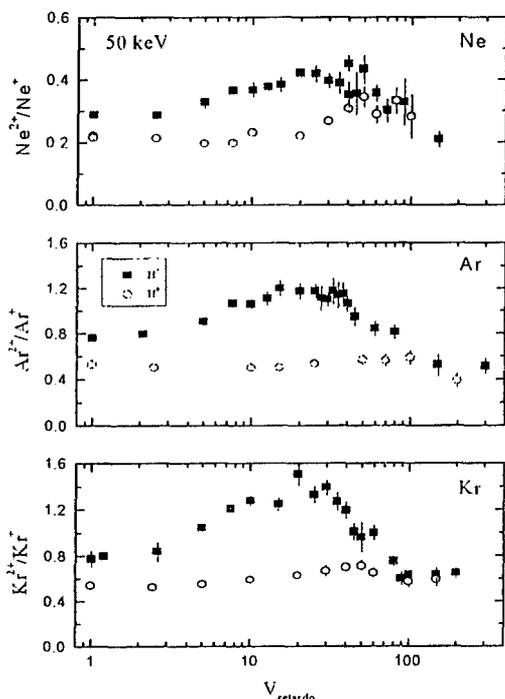


Figura 4: Cocientes de las áreas de los iones doble y simplemente cargados como función de la tensión de retardo para diferentes blancos: a) Ne, b) Ar, c) Kr. Puntos llenos:  $H^+$ . Puntos vacíos:  $H^0$ .

(símbolos llenos) y átomos de hidrógeno (símbolos vacíos). Para el proyectil cargado, se observa la estructura para todos los blancos, centrada en el mismo valor de energía, con intensidad creciente con el número de electrones del blanco. En cambio, para el proyectil neutro la dependencia de los cocientes con el potencial de retardo es mucho más suave y no es posible definir estructuras dentro del rango estudiado.

A partir de espectros tales como el mostrado en la figura 2, pueden definirse fracciones de carga para el caso particular de electrones emitidos a  $90^\circ$  respecto de la dirección del haz de proyectiles. En la figura 5 se muestran las fracciones de carga  $F_q = Ar^{q+} / (\sum_i Ar^{i+})$ , con  $q=1, 2, 3$ , como función de la tensión de retardo para la colisión  $H^+ + Ar$  210 keV. Este número adimensional da cuenta de la importancia de los procesos asociados con cada estado de carga del ion residual en la producción de electrones de una determinada energía. En la figura se observa claramente un mínimo en la fracción de  $Ar^+$ , que se corresponde con máximos en las fracciones del  $Ar^{2+}$  y del  $Ar^{3+}$ , para la tensión asociada con la estructura de los

cocientes mostrados en la figura 3. Es decir que el aumento en la producción de electrones asociados con el estado doble y triplemente cargado, debido a la existencia de una estructura, se realiza a expensas de la participación de la ionización única en la producción de electrones. Ahora bien, la participación de los distintos procesos varía con la energía del proyectil. Para una energía menor, la contribución de los estados de carga mayores que  $q=1$  crece apreciablemente. Para el sistema  $H^+ + Ar$ , la fracción de  $Ar^{2+}$  crece desde 19%, hasta un 40%, mientras que la fracción de  $Ar^+$  cae desde el 78.5% hasta 52% en el rango de energías del proyectil estudiado. Los estados de carga altos ( $q>2$ ), también crecen en los intervalos medidos, a expensas de la participación de la ionización única.

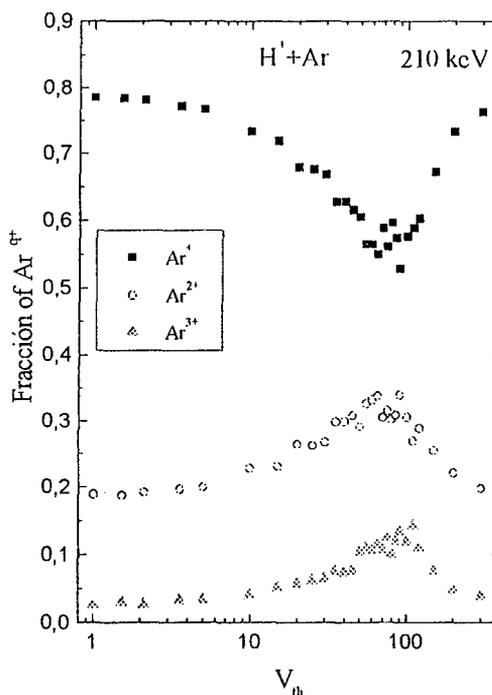


Figura 5: Fracciones de los estados de carga de  $Ar^{q+}$ , con  $q=1, 2$  y  $3$  en función de la tensión de retardo, para colisiones de  $H^+ + Ar$  de 210 keV.

## Discusión

Cada uno de los estados de carga medidos está asociado con diferentes procesos de emisión de electrones. Para el blanco simplemente cargado, el único proceso que contribuye es la ionización única (IU), mientras que para el doblemente cargado, los procesos posibles son la doble ionización (DI), y la ionización con captura simultánea (TI). Una estructura en cualquiera de ellos se vería amplificada en el cociente entre ambos estados de carga.

Sin embargo, comparando los datos de protones con los del proyectil neutro, para el cual la TI se supone pequeña frente a la doble ionización<sup>(5)</sup>, vemos que el cociente tiene un comportamiento plano, lo que implica una dependencia similar a la de IU (fig.4). Como este

mismo comportamiento se obtiene para todos los blancos estudiados, esto sugiere que la estructura asociada con los proyectiles cargados proviene de la ionización con captura simultánea. Esta suposición es consistente con lo observado en las figuras 3 y 4. Las secciones eficaces totales de TI crecen con el número de electrones del blanco<sup>(6)</sup> (figura 4). En cuanto a la dependencia con la energía, las secciones eficaces totales de TI para el Ar crecen a medida que disminuye la energía (figura 3). Esta dependencia también se comprueba para los blancos de Ne y Kr.

Resta determinar el mecanismo que fija la posición en energía del pico. En 1927 Thomas<sup>(16)</sup> propuso un mecanismo clásico de captura de electrones por parte de proyectiles cargados de muy alta energía. En este mecanismo de doble colisión, el proyectil interactúa con el electrón como si estuviera libre (figura 6a). Luego el electrón colisiona con el blanco, y es emitido en la dirección del proyectil con la misma velocidad que éste. Para que esto ocurra el ángulo de emisión de los electrones en la primera colisión debe ser  $60^\circ$ , mientras que el proyectil se deflecta  $0.47$  mrad respecto de su dirección incidente.

Para el caso de captura con ionización simultánea se puede generalizar el mecanismo de Thomas<sup>(17,18)</sup>, como se observa en la figura 6b. El proyectil interactúa en forma binaria con un electrón. Este colisiona con otro y uno de ellos es capturado, mientras que el otro es emitido a  $90^\circ$  con la misma velocidad que la del proyectil. En este caso, el electrón producto de la primera colisión es dispersado en un ángulo de  $45^\circ$ , y el proyectil en  $0.55$  mrad.

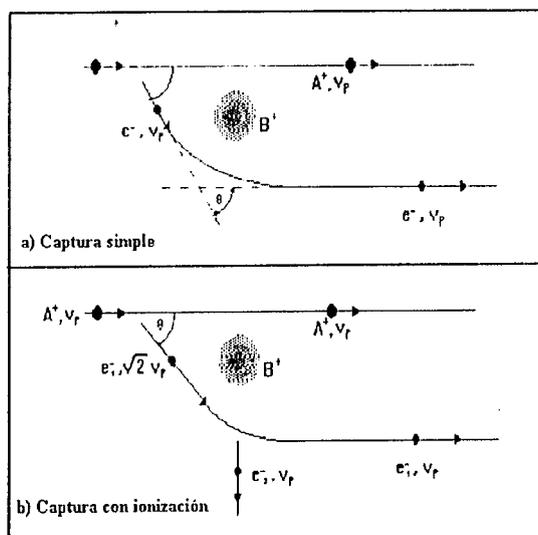


Figura 6: Representación clásica del Mecanismo de Thomas para a) Captura simple, y b) Captura con ionización simultánea.

Entonces, en un proceso de Thomas asociado con la ionización con transferencia de carga, la sección eficaz debe presentar un pico en la velocidad del proyectil para los electrones emitidos a  $90^\circ$ , ensanchado por mecanismos cuánticos<sup>(18,19)</sup>. Esta interpretación puede

darse a la estructura que se observa en el cociente entre los estados de carga dos y uno en los alrededores de la velocidad del proyectil.

Este efecto no ha sido aislado hasta el presente a pesar de varios esfuerzos en este sentido. Horsdal *et al.*<sup>(20)</sup> midieron un máximo en  $0.55$  mrad para el ángulo de deflexión del proyectil neutralizado en coincidencia con el estado de carga  $He^{2+}$ , en colisiones  $H^+ + He$  para un amplio intervalo de energías. Este máximo es consistente con el esperado para un proceso de tipo Thomas para TI. Sin embargo, Gayet y Salin<sup>(21)</sup> demostraron la existencia de un pico en la deflexión del proyectil aún en el caso de TI asociado con dos eventos independientes.

Palinkas *et al.*<sup>(22)</sup> midieron la distribución angular de los electrones emitidos en colisiones  $H^+ + He$  con  $1$  MeV de energía incidente y encontraron un máximo a  $90^\circ$  para electrones con velocidad similar a la del proyectil. Sin embargo, no encontraron esta estructura en Ne.

Finalmente, Hippler *et al.*<sup>(23)</sup> obtuvieron la distribución en energía de los electrones emitidos a  $90^\circ$  en coincidencia con el proyectil neutralizado para colisiones de protones con He, Ne y Ar a  $300$  keV de energía incidente. La estructura que observaron para el Ar fue atribuida a electrones producto de procesos L-Auger, puesto que la velocidad del proyectil corresponde a una energía de  $163$  eV, y la energía de los electrones Auger es de  $200$  eV. Por otra parte, la estructura debería ser pequeña, porque la sección eficaz de TI es dos órdenes de magnitud inferior respecto de la DI para  $300$  keV.

En conclusión, se observó una estructura en la emisión electrónica a  $90^\circ$  en colisiones de protones con gases raros y centrada en la velocidad del proyectil. Esta estructura podría asociarse con electrones emitidos en una doble colisión en procesos que llevan a la captura del otro electrón interviniente (mecanismo de Thomas).

### Estados de carga altos

Como ya se ha mostrado en la figura 2, los espectros de más alta energía en colisiones protón-átomo, muestran picos fácilmente detectables para los estados de carga altos. La idea de un protón que interactúa con un átomo multielectrónico provocando la emisión de varios electrones en una sola colisión induce a pensar el proceso ya no como una sucesión de eventos independientes, sino un mecanismo en el que la correlación electrónica es la responsable de la emisión simultánea de varios electrones. La interacción de un protón con cinco o seis electrones descarta la hipótesis de una interacción clásica.

En la figura 7 se muestra la fracción de los estados de carga altos (tres a seis) en función del potencial de retardo para colisiones de  $H^+ + Kr$  a  $210$  keV. Para todos ellos existe un crecimiento en la contribución a medida que la energía de los electrones crece. Mientras que la participación de estos procesos es baja en promedio para electrones de todas las energías (8, 3, 2, 0.6%, con  $V_{th}=1V$  para los estados de carga  $q=3, 4, 5$  y  $6$  respectivamente), su importancia se incrementa con la

energía de los electrones. Así, en promedio la fracción de electrones es entre 2.7 y 3 veces superior cuando consideremos electrones de más de 100 eV. (Se muestran curvas promedio en lugar de los datos experimentales debido a la gran dispersión de estos).

En la figura 7(b), se muestran las fracciones en el caso de  $H^0$ . Se observa que la participación de los estados con carga altos ha crecido con respecto al proyectil cargado y tenemos un 12, 4, 2, 1% para  $q=3, 4, 5$  y 6 respectivamente, cuando  $V_{0i} \approx 1V$ . La dependencia con la energía de los electrones en cambio, es más suave comparada con la de protones, y sólo crece entre un 30 y un 70% en la región de energías más altas.

La conclusión más importante de esta sección es que la participación de los procesos relacionados con los estados de carga altos crece con la energía de los electrones, siendo este crecimiento mucho más pronunciado para el caso de los proyectiles cargados.

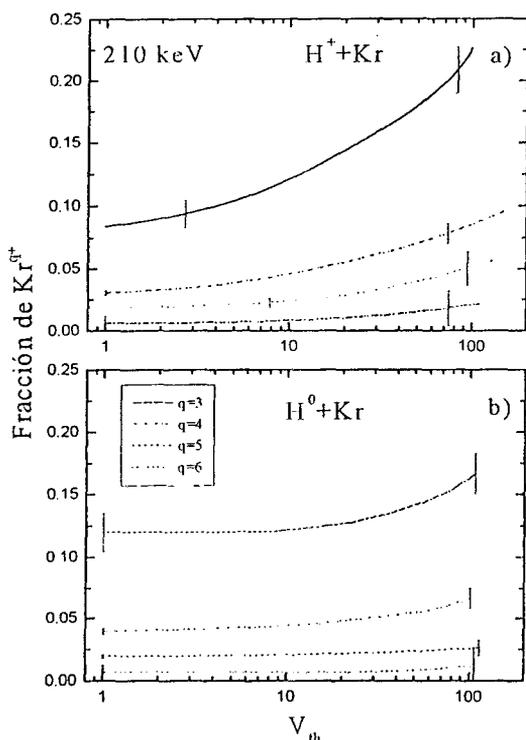


Figura 7: Fracciones de los estados de carga altos  $Kr^{q+}$ , con  $q=3, 4, 5$  y 6 en función de la tensión de retardo, para colisiones de  $H^+ + Kr$  a 210 keV.

La dependencia con la energía del proyectil depende de los estados de carga considerados. Así, para  $q=2$  y 3, en Ne, Ar y Kr, las fracciones crecen a medida que la energía del proyectil disminuye dentro del rango estudiado. En cambio, para los iones de mayor carga en Kr, la fracción se mantiene o crece levemente (para 50 keV, la fracción de los estados de carga 4, 5, 6 es de 2, 1 y 0.3% para  $V_{0i} \approx 1V$ ).

Para el caso de Ne, el único estado de carga alto medido fue  $Ne^{3+}$ , con una gran dispersión. Sin embargo el comportamiento con la carga del proyectil se

mantiene: con una fracción del orden de 2% para ambos proyectiles para  $V_{th} \approx 1V$ , y un crecimiento de un 100% para protones, mientras el comportamiento es plano, dentro de la dispersión estadística, para el hidrógeno.

En conclusión, los procesos que involucran más de un electrón deben ser tenidos en cuenta para una determinación precisa de la producción de electrones, y esta contribución se vuelve más importante para los electrones de alta energía. Los estados de carga altos ( $q > 2$ ) proveen la mitad de los electrones emitidos a  $90^\circ$  para energías de 50 keV en colisiones de protones sobre Ar y Kr, mientras que para el Ne, representan el 24%.

## Referencias

- 1.- E.S. Solov'ev, R.N. Win, V.A. Oparin, y N.V. Fedorenko, Sov. Phys. JETP 15, 459 (1962).
- 2.- S. Wexler, J. Chem. Phys. 41, 1714 (1964).
- 3.- H.K. Haugen, L.H. Andersen, P. Hvelplund, y H. Knudsen, Phys. Rev. A 26, 1962 (1982).
- 4.- R.D. Dubois, L.H. Toburen, y M.E. Rudd, Phys. Rev. A 29, 70 (1984).
- 5.- R.D. Dubois y A. Köver, Phys. Rev. A 40, 3605 (1989).
- 6.- R.D. Dubois y S.T. Manson, Phys. Rev. A 35, 2007 (1987).
- 7.- J.F. Reading, T. Bronk y A.L. Ford, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 29, 6075 (1996).
- 8.- J.A. Tanis, Nucl. Instrum. and Meth. B 40/41, 70 (1989).
- 9.- J.P. Giese y Erik Horsdal, Phys. Rev. Lett. 60, 2018 (1988).
- 10.- H. Knudsen, L.H. Anderson, P. Hvelplund, J. Sørensen y D. Ciri'c, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 20, L253 (1987).
- 11.- T. Aberg, Nucl. Instrum. and Meth. B 87, 5 (1994).
- 12.- R.K. Janev, E.A. Solov'ev y D. Jakimovski, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 28, L615 (1995).
- 13.- L.A. Wehrman, A.L. Ford y J.F. Reading, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 29, 5831 (1996).
- 14.- F. Martín y A. Salin, Phys. Rev. Lett. 76, 1437 (1996).
- 15.- J.F. Reading, T. Bronk, A.L. Ford, L.A. Wehrman y K.A. Hall, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 30, L189 (1997).
- 16.- L.H. Thomas, Proc. Roy. Soc. London 11, 5161 (1927).
- 17.- R. Shakeshaft y L. Spruch, Rev. Mod. Phys. 51, 369 (1979).
- 18.- J. Briggs y K. Taulbjerg, J. Phys. B 12, 2565 (1979).
- 19.- T. Ishihara y J. McGuire, Phys. Rev. A 38, 3310 (1988).
- 20.- E. Horsdal, B. Jensen y K.O. Nielsen, Phys. Rev. Lett. 57, 1414 (1989).
- 21.- R. Gayet y A. Salin, "Proc. of High-Energy Ion-Atom Collisions", Debrecen Hungría, 1990. Lecture Notes in Physics. Edit. Springer-Verlag.
- 22.- J. Pálincas, R. Schuch, H. Cederquist y O. Gustafsson, Phys. Rev. Lett. 63, 2464 (1989).
- 23.- R. Hippler, G. Schiwietz, y J. Bossler, Phys. Rev. A 35, 485 (1987).