



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO**  
POSGRADO EN CIENCIAS FÍSICAS  
INSTITUTO DE CIENCIAS FÍSICAS

**EFFECTO DE LA SIMETRÍA DEL ESTADO BASE EN EL PODER  
DE FRENAMIENTO ELECTRÓNICO Y LEY DE ESCALAMIENTO**

TESIS QUE PARA OPTAR POR EL GRADO DE:  
MAESTRÍA EN CIENCIAS FÍSICAS (FÍSICA)

**PRESENTA:**  
CÉSAR MARTÍNEZ FLORES

**TUTOR PRINCIPAL:**  
DR. REMIGIO CABRERA TRUJILLO  
INSTITUTO DE CIENCIAS FÍSICAS, UNAM

**MIEMBROS DEL COMITÉ TUTORIAL:**  
  
DR. JOSÉ FRANCISCO RÉCAMIER ANGELINI  
INSTITUTO DE CIENCIAS FÍSICAS, UNAM  
  
DR. JOSÉ IGNACIO JIMÉNEZ MIER Y TERÁN  
INSTITUTO DE CIENCIAS NUCLEARES, UNAM

CUERNAVACA, MORELOS

FEBRERO 2014



Universidad Nacional  
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

**Biblioteca Central**



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.



---

*¡A todos mis  
seres queridos!*

---

.

---

# Resumen

En este trabajo se presenta un estudio del efecto que tiene la simetría orbital en la sección eficaz de poder de frenamiento (SEPF) dentro de la primera aproximación de Born. A partir de la aproximación de Bethe, se implementa el modelo del electrón independiente y el modelo del oscilador armónico y así se obtiene una expresión para la SEPF que toma en cuenta la simetría orbital “*s*” del blanco en términos de su contribución orbital y de la energía media de excitación. Esta energía se obtiene de manera autoconsistente, al emplear el teorema del Virial y el modelo del oscilador armónico, teniendo al final una expresión que depende de datos atómicos del blanco. Estas expresiones se emplean para estudiar a protones colisionando en átomos con número atómico  $Z \leq 54$ . A partir de esto, se propone una fórmula de escalamiento para átomos con simetría orbital “*s*”, es decir, para átomos con  $Z \leq 4$ , la cual presenta excelentes resultados para la región de altas energías. Además esta fórmula es útil cuando se estudian a protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases con simetría orbital  $\sigma$ . Para átomos con número atómico entre  $5 \leq Z \leq 54$  se encuentra que se necesita modificar la fórmula de la SEPF con simetría orbital “*s*” para obtener buenos resultados en la región de altas energías. Para esto, bajo las mismas consideraciones que para la simetría orbital “*s*”, se deducen nuevas expresiones analíticas que toman en cuenta las simetrías orbitales “*p*” y “*d*” del blanco en términos de la energía media de excitación. Al emplear las expresiones de la SEPF y la energía media de excitación se encuentra buenos resultados en la región de altas energías cuando se tienen protones colisionando con átomos de capa cerrada (gases nobles) y átomos de capa abierta (N, Si, Ca, Fe, Sr y Mo). Nuestros resultados muestran la relevancia de incluir la simetría orbital del blanco.

---

.

---

# Agradecimientos

A continuación quiero agradecer a todas aquellas personas que estuvieron de alguna forma en esta etapa de mi vida. A las personas que colaboraron en mi formación académica, a las personas que me brindaron su amistad y apoyo durante la realización de este trabajo.

Agradezco profundamente el apoyo que me han brindado mis padres: Isabel y Cirilo; y mis hermanos: Marisol, Karina y Miguel; durante la realización de mis estudios. También agradezco el apoyo incondicional de Magdalena durante todos estos años.

Mi más sincero agradecimiento al Dr. Remigio Cabrera Tujillo por haber tenido paciencia y haberme transmitido sus valiosos conocimientos durante la dirección de este trabajo. Así como compartir su entusiasmo por la ciencia. Gracias por los consejos que me ha brindado.

Agradezco al Dr. José Francisco Récamier Angelini, al Dr. Ricardo Méndez Fragoso, al Dr. Fernando Ramírez Martínez y al Dr. Jacques Soullard Saintrais por haber revisado minuciosamente el trabajo. A partir de sus valiosos comentarios, me ayudaron a mejorar este trabajo de tesis.

De igual forma agradezco a mis amigos y compañeros: Natalia, Adriana, Cristina, Ana, Carlos, Ricardo, Javier, Lorenzo, Edgar, Jazael, por haberme brindado su amistad y apoyo durante el transcurso de la maestría. No quiero dejar de mencionar a los amigos del fútbol del ICF-UNAM, que todos los viernes se reúnen para divertirse y mantenerse en forma.

Finalmente agradezco a las autoridades, personal administrativo y personal en general del Instituto de Ciencias Físicas UNAM por su agradable hospitalidad durante el curso de maestría, así como su excelente ambiente de trabajo. Doy las gracias a: CONACYT, PAPIIT 101611 y PAEP, por el apoyo económico brindado durante mis estudios de maestría.





# Índice

Índice	ix
<b>1 Introducción</b>	<b>1</b>
1.1 Propósito del trabajo . . . . .	2
<b>2 Aspectos generales de la teoría de dispersión</b>	<b>5</b>
2.1 Conceptos básicos . . . . .	5
2.1.1 Sección eficaz . . . . .	5
2.1.2 Pérdida de energía . . . . .	7
2.1.3 Pérdida de energía nuclear y electrónica . . . . .	7
2.2 Tratamiento clásico en la colisión de átomos . . . . .	8
2.2.1 Colisiones binarias clásicas . . . . .	8
2.2.2 Interacción con un potencial central . . . . .	9
2.3 Ejemplo: colisión debida a un potencial central . . . . .	9
<b>3 Teorías del poder de frenamiento electrónico</b>	<b>13</b>
3.1 Teoría de Bohr . . . . .	13
3.1.1 Colisiones distantes . . . . .	15
3.1.2 Sección eficaz . . . . .	17
3.2 Teoría de Bethe . . . . .	18
3.2.1 Aproximación de Born y sección eficaz . . . . .	20
<b>4 Efecto de la simetría en la SEPF</b>	<b>25</b>
4.1 Modelo del electrón independiente . . . . .	25
4.1.1 Resultados de Bethe . . . . .	27
4.2 Oscilador armónico tridimensional . . . . .	28
4.3 Implementación del OA en la SEPF . . . . .	28
4.4 Caso general . . . . .	29
4.4.1 Momento angular $l = 0$ . . . . .	30
4.4.2 Momento angular $l = 1$ . . . . .	32
4.4.3 Momento angular $l = 2$ . . . . .	35
4.5 Teorema de Virial y la energía media de excitación . . . . .	38
4.5.1 Ejemplo . . . . .	39

## ÍNDICE

---

<b>5</b>	<b>Ley de escalamiento y SEPF para átomos</b>	<b>43</b>
5.1	Ley de escalamiento en la simetría “s” . . . . .	43
5.1.1	Protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases . . . . .	47
5.2	Sección eficaz de poder de frenamiento . . . . .	47
5.2.1	Energía media de excitación . . . . .	47
5.2.2	Átomos de capa cerrada . . . . .	48
5.2.3	Átomos de capa abierta . . . . .	52
<b>6</b>	<b>Conclusiones</b>	<b>57</b>
<b>A</b>	<b>Potencial Central</b>	<b>59</b>
<b>B</b>	<b>Artículo I</b>	<b>63</b>
<b>C</b>	<b>Artículo II</b>	<b>75</b>
<b>D</b>	<b>Artículo III</b>	<b>85</b>
	<b>Bibliografía</b>	<b>95</b>

# Capítulo 1

## Introducción

El estudio de la pérdida de energía en colisiones atómicas ha sido un tema de interés para la comunidad científica desde el trabajo pionero llevado a cabo por N. Bohr a principios del siglo pasado (ver ref. [1]). En esta aproximación clásica, Bohr consideró la transferencia de energía al blanco como la energía absorbida en excitaciones de osciladores armónicos cargados debido al campo eléctrico del proyectil. Actualmente, el estudio de la pérdida de energía tiene implicaciones muy variadas, por ejemplo, lo encontramos en la implantación de iones de impurezas en sólidos en el análisis de materiales por un haz de iones (ver ref. [2, 3]). En este sentido, se necesita conocer la profundidad del camino dejado por las trazas de iones. Otro ejemplo lo encontramos en la terapia de radiaciones y la dosimetría. En la dosimetría, se trata de inferir la dosis de radiación pertinente para atacar cierto padecimiento localizado. Para esto, es necesario conocer la pérdida de energía que sufren las partículas incidentes en el tejido (ver ref. [4, 5, 6, 7, 8]).

En todos estos campos de investigación se necesitan conocer los fundamentos de la interacción de la radiación con la materia. Por lo tanto, utilizando las primeras ideas de la mecánica cuántica H. Bethe (1930) formuló la teoría de la pérdida de energía (ver refs. [9, 10]). En su trabajo, Bethe propuso estudiar la pérdida de energía de un proyectil resolviendo la ecuación de Schrödinger dependiente del tiempo, mediante la teoría de perturbaciones y después utilizó la primera aproximación de Born. Quedando al final una ecuación en donde se cuantifica la pérdida de energía en términos de las propiedades electrónicas del blanco y del proyectil (ver ref. [4, 11]). En este modelo se consideran las propiedades atómicas del proyectil y el blanco involucrados en la colisión. Las propiedades del blanco están implícitas en la cantidad llamada energía media de excitación  $I_0$ . Esta  $I_0$  es sólo la cantidad de energía promedio que se requiere para excitar electrones del blanco (ver Ref. [10]). Para obtener la energía media de excitación existen distintos métodos, algunos de ellos son los cálculos de química cuántica hechos por Oddershede y Sabin (OS) (ver ref. [12]), que lo hacen por medio del método del propagador en química cuántica. Meltzer, Sabin y Trickey (MST) (ver ref. [13]) la calculan mediante la generalización de la densidad orbital en la aproximación de plasma local (LPA) y el formalismo dieléctrico (ver ref. [7]), entre otros. Encontrar la energía media de excitación es una tarea primordial para poder obtener de manera adecuada la pérdida de energía que sufre una partícula cuando penetra en un medio.

Al considerar la sección eficaz de poder de frenamiento (SEPF) electrónico, debida a las interacciones que existen en la colisión de protones en átomos, se tienen diferentes aproximaciones con las cuales se ha abordado este problema (ver ref. [4, 10, 14]). Todas estas

aproximaciones coinciden en tomar como base el desarrollo inicialmente propuesto por H. Bethe. Dentro de los métodos para calcular la SEPF se encuentra el programa “The Stopping and Range of Ions in Matter” (SRIM, por sus siglas en Inglés) que se basa en el método de simulación Monte Carlo dentro de la aproximación de colisiones binarias (ver ref. [15]). Este programa calcula la SEPF para átomos y compuestos. Una recopilación de cómo se emplea se pueden ver en la ref. [16] o en [15].

## 1.1 Propósito del trabajo

En esta tesis se presenta un estudio de la SEPF para protones en átomos incorporando los efectos de las simetrías de los orbitales de los blancos en fórmulas cerradas. Para esto se implementa el modelo del electrón independiente mediante una ecuación tipo Hartree en el desarrollo propuesto por Bethe y así se obtiene una expresión que considera la totalidad de electrones en el blanco (descomposición orbital, ver ref. [14, 17]). Después, retomamos la idea original de Bohr para suponer que los electrones del blanco están ligados armónicamente al núcleo y así se obtienen expresiones cerradas para la SEPF electrónico dentro de la primera aproximación de Born. La implementación del oscilador armónico (OA) en la SEPF fue tratada previamente en la ref. [14], en donde se utilizan las funciones de onda del oscilador armónico como la base del sistema. Retomando esta idea, se emplean las funciones de onda del oscilador armónico y se calculan fórmulas cerradas en coordenadas cartesianas para la SEPF en términos de las simetrías orbitales “*s*”, “*p*” y “*d*” del blanco. Debido a la descomposición orbital, se obtiene que la simetría del blanco es de suma importancia al comparar con los datos experimentales. De estos resultados, se dedujo una ley de escalamiento universal para la simetría orbital “*s*”, similar a la de Montenegro *et al* (ver ref. [18]). Esta ley se emplea para obtener la SEPF en átomos con número atómico  $Z \leq 4$ . Además, se emplea esta fórmula en la colisión de protones en moléculas pequeñas y nucleobases (ver ref. [6, 7]). Finalmente, se emplean las expresiones de la SEPF, que incorporan los efectos de las simetrías del blanco, para el estudio de protones en átomos de capa cerrada (gases nobles) y capa abierta, esto es, para átomos con número atómico  $Z \geq 5$ . Los resultados presentados muestran un buen acuerdo con los datos experimentales disponibles en la región de altas energías, donde el modelo es válido. En la región de energías bajas-intermedias la primera aproximación de Born falla, además el modelo que se presenta, no toma en cuenta procesos como el de captura electrónica del proyectil y/o ionización que son muy comunes en la región de energías intermedias a bajas.

La estructura de este trabajo es la siguiente. En el capítulo 2 se da un resumen de los conceptos básicos necesarios que se utilizarán durante el desarrollo del trabajo, de igual forma se proporciona un ejemplo de la colisión debida a un potencial central tipo Coulomb en donde se obtiene la SEPF nuclear. Todo esto para ilustrar, de forma general, el tratamiento clásico en una colisión. En el capítulo 3 se desarrollan las dos aproximaciones que se consideran como base en el estudio de la pérdida de energía. Uno es el modelo clásico de N. Bohr y el otro es el modelo cuántico de H. Bethe. En el capítulo 4 se muestra la implementación del modelo del electrón independiente y el modelo del oscilador armónico para obtener la SEPF electrónico. Se presentan en forma detallada las fórmulas cerradas que se encontraron para los orbitales “*s*”, “*p*” y “*d*” en coordenadas cartesianas, así como la manera de obtener la energía media de excitación de forma autoconsistente usando el teorema del Virial dentro del modelo del oscilador armónico. En el capítulo 5 se muestra la ley universal obtenida para la

simetría orbital “s” en términos de la energía media de excitación y se presentan los resultados para protones colisionando en He, Li, Be, B, O y Ne. Además se menciona la aplicabilidad de esta ley en el caso de protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases (ver ref. [7]). Finalmente, en este mismo capítulo, se presentan los resultados para la SEPF al implementar las fórmulas cerradas que toman en cuenta las simetrías orbitales “s”, “p” y “d” del blanco. Se presentan resultados para protones colisionando en gases nobles (Ne, Ar, Kr, Xe) mostrando excelente acuerdo con los datos experimentales en la región de altas energías. De igual forma, se consideran protones colisionando en átomos de capa abierta (Ca, Sr, N, Si, Fe, Mo) teniendo un buen acuerdo con los datos experimentales en la región de altas energías. En el capítulo 6 se muestran las conclusiones finales del trabajo, así como las perspectivas a futuro. En el apéndice B se adjunta el artículo publicado consecuencia de esta investigación, en donde se muestra la aplicación de la ley universal presentada en el capítulo 5, pero para el caso de protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases en orbitales de simetría  $\sigma$  (tipo “s”) usando el método de Orbitales Gaussianos Esféricos Flotantes (FSGO por sus siglas en Inglés). En el apéndice C se incluye el borrador de un manuscrito en donde se presentan los resultados del efecto de la simetría en la SEPF. Se espera su eventual publicación en una revista de arbitraje internacional. Por último, en el apéndice D se adjunta el artículo publicado en donde muestran los resultados obtenidos durante el curso de Laboratorio Avanzado. Aquí se midió la sección eficaz total de despojo para la colisión de iones de metano en nitrógeno y oxígeno molecular en el Laboratorio de Colisiones Atómicas del ICF-UNAM. Aunque este tema de investigación es paralelo, pues estudia sección eficaz, a la línea principal que venimos tratando, consideramos importante incluirlo debido a que es un trabajo hecho durante el transcurso de la maestría y que se relaciona directamente con la investigación que aquí se presenta.



## Capítulo 2

# Aspectos generales de la teoría de dispersión

En este capítulo se resumirán brevemente los elementos necesarios de la teoría clásica de la dispersión que se necesitarán a lo largo de todo el trabajo y que nos proporcionarán un primer acercamiento a las colisiones binarias. Si bien, algunos de los conceptos aquí mostrados forman parte de los cursos básicos de física, considero importante dar una perspectiva general para poder abordar de una forma consistente los conceptos que se presentarán en los capítulos siguientes. En la sección 2.1 y 2.2 comenzamos definiendo conceptos básicos (sección eficaz, colisiones binarias y colisiones debidas a un potencial central) y algunos conceptos propios del estudio de la pérdida de energía (pérdida de energía, poder de frenamiento). En la sección 2.3 se presenta como ejemplo la colisión entre dos partículas con números atómicos  $Z_p = 1$  y  $Z_b = 2$ , para la cual se obtiene el ángulo de dispersión, la energía transferida del proyectil al blanco y la sección eficaz de poder de frenamiento (SEPF) nuclear.

### 2.1 Conceptos básicos

Los conceptos a abordar en esta sección son: sección eficaz, pérdida de energía y poder de frenamiento (ver ref. [19, 20, 1, 4, 21]).

#### 2.1.1 Sección eficaz

Se considera a un haz uniforme de partículas, no interactuante y monoenergético que incide en un blanco que actúa como medio dispersor. Asumimos que las partículas del haz están suficientemente lejos entre ellas para que en cada proceso de colisión existan sólo colisiones binarias, i.e. un gas diluido. Además, se supone que el blanco es suficientemente delgado por lo que la dispersión múltiple debido a varios dispersores puede despreciarse (ver ref. [19]). Bajo estas consideraciones, el haz incidente se aproxima al blanco desde el infinito con una velocidad definida en línea recta y un parámetro de impacto  $b$  (ver fig. 2.3). Cuando el haz incidente colisiona con el blanco, el haz se dispersa un ángulo sólido  $d\Omega$  en función de las coordenadas polares acostumbradas con respecto al centro de masa (ver refs. [1, 20]). Para un flujo de partículas incidentes  $\phi$ , el número de proyectiles por segundo que atraviesan un área que está entre los parámetros de impacto  $b$  y  $b + db$ , es  $\phi (2b db)$ . Este número de partículas por segundo se conserva después de la colisión dentro de un ángulo sólido  $d\Omega$  subtendido por



$\theta(b)$  y  $\theta(b) + d\theta$  (ver fig. 3.1). Por lo tanto, de la conservación de partículas se tiene:

$$\phi 2\pi b |db| = \phi \sigma(\theta) |d\Omega|,$$

donde  $\sigma(\theta)d\Omega$  es el número de partículas dispersadas dentro de un ángulo sólido  $d\Omega$  por segundo y por flujo incidente.

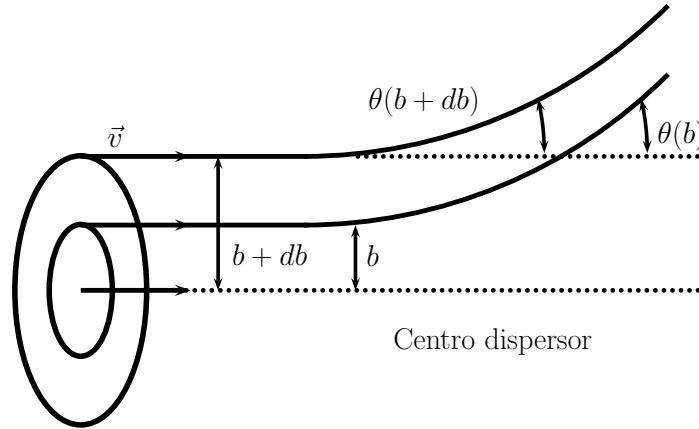


Figura 2.1: Proceso de dispersión para un haz incidente de partículas sobre un blanco fijo, donde  $b$  es el parámetro de impacto y  $\theta$  es el ángulo de dispersión.

Recordando que el ángulo sólido es  $d\Omega = 2\pi \sin\theta d\theta$ , se obtiene:

$$\sigma(\theta) = \frac{b}{\sin\theta} \left| \frac{db}{d\theta} \right|, \quad (2.1)$$

que es la *sección eficaz de dispersión* en la dirección  $\theta$ . Una definición alterna es cuando la sección eficaz está en términos de la energía transferida durante la colisión (ver ref. [11, 19]), esto es:

$$d\sigma(\theta) = \frac{d\sigma}{d\Omega}, \quad (2.2)$$

Desde el punto de vista experimental, la sección eficaz se puede medir utilizando diferentes métodos, un ejemplo es emplear un acelerador electrostático. Durante el curso regular de Laboratorio Avanzado del Posgrado en Ciencias Físicas, se midió la sección eficaz total de despojo del anión de metano  $CH_4^-$  colisionando con nitrógeno molecular  $N_2$  y oxígeno molecular  $O_2$ . En el apéndice D se proporcionan más detalles al respecto.<sup>1</sup>

---

<sup>1</sup>En suma, se escribió un artículo que actualmente se encuentra publicado en *Plasma Sources Science and Technology* (ver Ref. [22]). Cabe mencionar que el experimento se llevó a cabo en el Laboratorio de Colisiones Atómicas del Instituto de Ciencias Físicas a cargo del Dr. Guillermo Hinojosa Aguirre.

### 2.1.2 Pérdida de energía

Consideremos el proceso de pérdida de energía por una partícula cargada moviéndose a través de un medio dispersor. En esta colisión, el proyectil puede transferir parte de su energía cinética a los átomos o moléculas del blanco o medio dispersor en estado gaseoso<sup>2</sup> resultando en un decremento de la velocidad para el proyectil (ver ref. [1], [11]). Asumimos que el proyectil puede perder energía en pasos discretos  $T_j$  donde  $j = 1, 2, \dots$ , y  $T_j \ll E$  para todo  $j$ , donde  $E$  es la energía inicial del proyectil. Por lo tanto  $T_j$  representa la energía de los niveles de excitación del átomo o molécula (ver ref. [21]). La pérdida de energía es:

$$\Delta E = \sum_j n_j \Delta T_j, \quad (2.3)$$

donde  $n_j$  es el número de colisiones con una  $T_j$  transferencia de energía. Ahora, esto es para un sólo proyectil, pero en realidad tenemos un gran número de proyectiles que colisionan con nuestro blanco, por lo tanto, para encontrar la pérdida de energía promedio  $\langle \Delta E \rangle$  necesitamos argumentos estadísticos. El promedio estadístico se debe a que en la mayoría de las situaciones que tenemos en los fenómenos de penetración, se tienen colisiones de muchos proyectiles. Realizando un análisis estadístico, esto es, considerando un promedio de las colisiones que tiene un proyectil (ver ref. [11]) tenemos que  $\langle n_j \rangle = N \Delta x \sigma_j$ , aquí  $\sigma_j$  es la sección eficaz del  $j$ -ésimo proyectil,  $\Delta x$  es el grosor del blanco y  $N$  es la densidad de partículas. Se obtiene que el promedio de la *pérdida de energía* es:

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_j \langle n_j \rangle \Delta T_j, \quad \Rightarrow \quad \langle \Delta E \rangle = N \Delta x \sum_j \Delta T_j \sigma_j. \quad (2.4)$$

Por lo tanto, el *poder de frenamiento* por unidad de longitud por unidad de blanco es:

$$\frac{\langle \Delta E \rangle}{N \Delta x} = S = \sum_j \Delta T_j \sigma_j, \quad (2.5)$$

y la *sección eficaz de poder de frenamiento* es:

$$S = \sum_j \Delta T_j \sigma_j, \quad (2.6)$$

donde las unidades de  $S$  son [energía  $\times$  área]. Además la sección eficaz de poder de frenamiento en el límite continuo (ver ref. [4, 11]), es decir cuando tenemos un gran número de colisiones, se define como:

$$S = \int \Delta T d\sigma, \quad S = \int \Delta T \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega. \quad (2.7)$$

### 2.1.3 Pérdida de energía nuclear y electrónica

Consideremos nuevamente el caso en que una partícula cargada penetra en un medio gaseoso. A velocidades moderadas (no relativistas), el proyectil experimenta cambios en su velocidad durante la colisión, resultando en alguno de los siguientes procesos: 1) excitación o ionización

---

<sup>2</sup>El modelo se basa en tener colisiones binarias, por lo tanto, las partículas en estado gaseoso están suficientemente separadas unas de otras para estar en estas condiciones (ver ref. [10]).

de las partículas del blanco, 2) transferencia de energía al centro de masa del movimiento de los átomos del blanco, 3) cambios en el estado interno del proyectil y 4) emisión de radiación (ver ref. [10], [21]). A grandes rasgos el proceso 1) se refiere a la transferencia de energía cinética del proyectil en energía cinética y potencial de los electrones del blanco, la cual es llamada *pérdida de energía electrónica*. El proceso 2) se refiere a la energía transferida al núcleo y es llamada *pérdida de energía nuclear*. De igual forma a la pérdida de energía electrónica se le puede considerar como la transferencia de energía interna a las partículas que forman el blanco y a la pérdida de energía nuclear como la transferencia de energía al centro de masa.

## 2.2 Tratamiento clásico en la colisión de átomos

En esta sección se resumirán los elementos básicos de la teoría clásica de la dispersión. Se considera la interacción de dos cuerpos. Estos resultados son bien conocidos de mecánica clásica (ver refs. [1, 11, 20]).

### 2.2.1 Colisiones binarias clásicas

En una dispersión elástica clásica las dos partículas interactuantes permanecen sin cambios en su estructura (o energía) interna después de la colisión, además existe la conservación de la energía y momento. En general, consideremos la colisión binaria entre partículas de masa  $m_p$  y  $m_b$  (ver ref. [1, 11, 20]). Inicialmente el proyectil de masa  $m_p$  colisiona con un blanco de masa  $m_b$  que inicialmente está en reposo. Utilizando las leyes de conservación del momento lineal y de la energía se obtiene la expresión que nos permite hallar el ángulo de dispersión del proyectil  $\theta_L$  después de la colisión, que está en función del ángulo de dispersión del centro de masa como se observa de la fig. 2.2. El ángulo de dispersión del proyectil es:

$$\tan \theta_L = \frac{\sin \theta_{cm}}{\cos \theta_{cm} + m_p/m_b}. \quad (2.8)$$

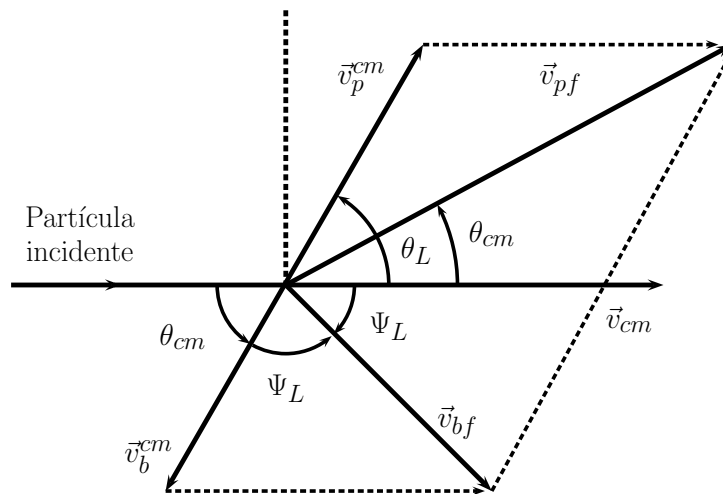


Figura 2.2: Esquema de la colisión de dos partículas.

donde  $\theta_L$  es el ángulo de dispersión del blanco en el sistema de laboratorio y  $\theta_{cm}$  es el ángulo de dispersión del centro de masa, ver fig. 2.2. Bajo consideraciones de conservación de momento lineal y de energía, se encuentra que la energía que es transferida del proyectil al blanco en una colisión binaria, es:

$$T = \frac{4m_p m_b}{(m_p + m_b)^2} E_0 \sin^2 \left( \frac{\theta_{cm}}{2} \right), \quad (2.9)$$

donde  $E_0 = m_p v_0^2/2$  es la energía cinética inicial del proyectil. Una vez encontrada la energía transferida podemos calcular la sección eficaz con la ec. (2.2).

### 2.2.2 Interacción con un potencial central

El ángulo de dispersión  $\theta_{cm}$  de la cc. (2.9) se puede evaluar analíticamente si suponemos que la interacción del proyectil y el blanco es de tipo central (ver Apéndice A). De un análisis cuidadoso obtenemos que el ángulo de dispersión en función del potencial central  $V(\rho)$  y el parámetro de impacto  $b$  es:

$$\theta_{cm} = \pi - 2b \int_{\rho_m}^{\infty} \frac{1}{\rho^2 f(\rho)} d\rho, \quad \text{donde} \quad f(\rho) = \sqrt{1 - \frac{b^2}{\rho^2} - \frac{V(\rho)}{E_0}}. \quad (2.10)$$

donde  $\rho_m$  es la distancia del máximo acercamiento y que es la raíz de  $f(\rho)$ . Por lo tanto, conociendo el ángulo de dispersión  $\theta$ , se puede hallar la energía cinética transferida del proyectil al blanco dada por la ec. (2.9) y obtener la sección eficaz de poder de frenamiento *nuclear* ( $S_n$ ) de forma analítica, ec. (2.6).

## 2.3 Ejemplo: colisión debida a un potencial central

Como ejemplo práctico, se considera la colisión en donde el proyectil y el blanco están sujetos a una interacción por un potencial central, se supone que es de tipo *Coulombiano* (dispersión de Rutherford) de la forma  $V(r) = Z_p Z_b e^2/r$ . Integrando la ec. (2.10) se obtiene el ángulo de dispersión del proyectil con respecto al centro de masa,

$$\sin \left( \frac{\theta_{cm}}{2} \right) = \frac{\gamma}{\sqrt{\gamma^2 + 4b^2}}, \quad (2.11)$$

donde  $\gamma = Z_p Z_b / E_0$  y  $E_0 = m_p v^2/2$  es la energía inicial del proyectil en el centro de masa. Sustituyendo la Ec. (2.11) en (2.9) se tiene:

$$\Delta T_n = \frac{2Z_p^2 Z_b^2}{m_b v^2} \frac{1}{b^2 + (\gamma/2)^2}, \quad (2.12)$$

que es la *energía nuclear* transferida al blanco.

La sección eficaz de poder de frenamiento, ec. (2.7), es:

$$S_i(E_0) = 2\pi \int_0^{\infty} b \Delta T_i(b, E_0) db, \quad (2.13)$$

donde se ha utilizado la ec. (2.1) y la definición del ángulo sólido (ver ref. [11]). Por lo tanto, sustituyendo la ec. (2.12) en (2.13) se obtiene la sección eficaz de poder de frenamiento nuclear:

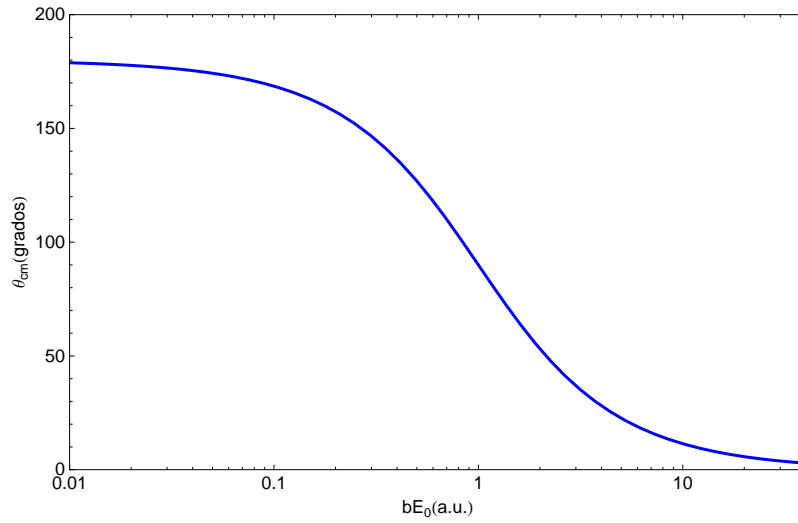


Figura 2.3: Ángulo de dispersión del centro de masa, ec. (2.11), en función del parámetro de impacto y la energía total.

$$S_n = \frac{\mu}{m_b} \frac{\pi Z_p^2 Z_b^2}{E_0} \ln \left[ 1 + \left( \frac{2E_0 b_{max}}{Z_p Z_b} \right)^2 \right], \quad (2.14)$$

donde  $b_{max}$  es el parámetro de impacto máximo que se tiene, si no la integral anterior diverge, y tiene un valor de  $b_{max} = 1.17$  u.a. (ver ref. [23]). La ec. (2.14) representa la sección eficaz de poder de frenamiento *nuclear* cuando el proyectil y el blanco están sujetos a una interacción de tipo central.

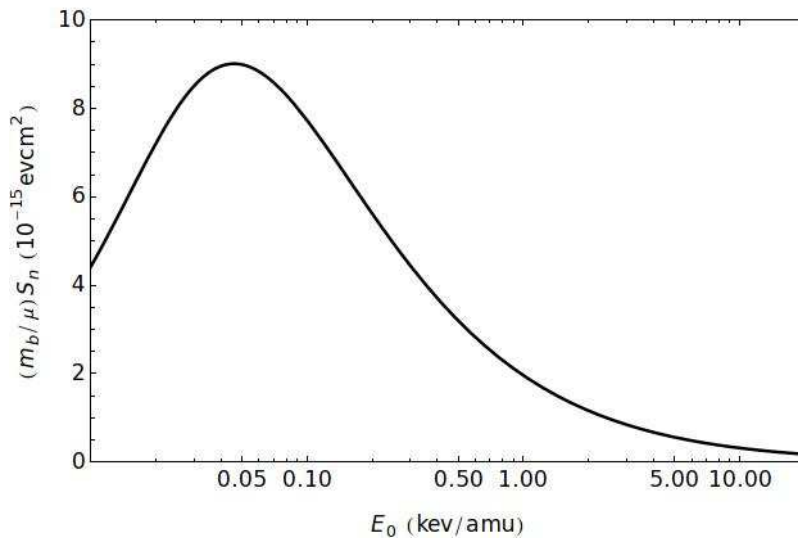


Figura 2.4: Sección eficaz de poder de frenamiento nuclear  $S_n$ , ec. (2.14).

En la fig. 2.3 se muestra el ángulo de dispersión, ec. (2.11), para una carga nuclear del proyectil  $Z_p = 1$  y del blanco  $Z_b = 2$  en función del parámetro de impacto  $b$  y la energía

del proyectil  $E_0$ , esto en unidades atómicas (u.a.). Como se observa de la figura, el ángulo de dispersión del proyectil con respecto al centro de masa  $\theta_{cm}$ , después de que colisiona con el blanco, depende de la energía inicial del proyectil. Ahora se considera el caso en que el parámetro de impacto está fijo. En la fig. 2.3 se observa que a una energía muy cercana a cero el ángulo de dispersión es  $\theta = 180^\circ$ , esto es, el proyectil rebota con el blanco (colisión de frente). También se observa que a  $bE_0 = 1$  u.a. el ángulo es  $\theta_{cm} = 90^\circ$ , en otras palabras el proyectil es deflectado en un ángulo de noventa grados después de chocar con el blanco. Finalmente a una energía de  $bE_0 = 100$  u.a. el ángulo de dispersión es prácticamente cero, esto es, el proyectil sigue en línea recta sin ser afectado por la presencia del blanco. En la figura 2.4 se muestra la SEPF nuclear  $S_n$ , ec. (2.14), para las mismas condiciones de carga antes mencionadas en función de la energía del proyectil  $E_0$ . De la figura para la SEPF nuclear, se observa que el máximo de la SEPF se encuentra a  $E_0 = 0.05$  keV.



## Capítulo 3

# Teorías del poder de frenamiento electrónico

En este capítulo se presenta dos tratamientos, el clásico y cuántico para obtener la pérdida de energía que sufren las partículas (proyectiles) que penetran en un medio (blanco). En esta sección se presenta un resumen de la teoría desarrollada por N. Bohr a principios del siglo XX, misma que utilizó para abordar el problema de la interacción de dos partículas, sólo utilizando ideas clásicas. Esto es: “*asumiendo que los electrones del blanco están ligados armónicamente a sus estados atómicos*” (ver ref. [1, 11, 21, 24]). También se presenta la aproximación hecha por H. Bethe (1930) que utilizó para resolver el mismo problema, pero ésta vez, él utilizó las primeras ideas de la mecánica cuántica basadas en la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo bajo la primera aproximación de Born, para obtener una ecuación que toma en cuenta el estado electrónico del blanco en la pérdida de energía (ver ref. [4, 10, 21]).

### 3.1 Teoría de Bohr

Comencemos describiendo la situación general que tenemos en una colisión clásica. Un proyectil incide con una velocidad  $v$ , masa  $m$ , carga  $Z$ , en línea recta a una distancia  $b$  de un centro dispersor. Este medio dispersor (blanco) está constituido por átomos o moléculas que a su vez están constituidos por electrones que orbitan en estados atómicos propios del blanco. Niels Bohr utilizó la siguiente idea: “desde el punto de vista clásico, cada electrón está ligado al núcleo mediante una fuerza restitutiva de tipo oscilador armónico  $k\mathbf{r} = m\omega_0^2\mathbf{r}$ , y cada electrón está caracterizado por una frecuencia particular  $\omega_0$ ” (ver refs. [21, 24]). Bajo estas consideraciones, la ecuación de movimiento no-relativista es de la forma:

$$\frac{d^2\mathbf{r}}{dt^2} + \Gamma\frac{d\mathbf{r}}{dt} + \omega_0^2\mathbf{r} = -\frac{e}{m}\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \quad (3.1)$$

donde  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$  es el campo eléctrico generado por el proyectil en el origen  $O$ ,  $\mathbf{r}$  es el vector de posición del electrón respecto al núcleo del blanco,  $\omega_0$  es la frecuencia característica del electrón y  $\Gamma$  es una constante de amortiguamiento. El factor de amortiguamiento no es esencial pero permite eliminar divergencias en el cálculo matemático (ver ref. [24]). En la fig. 3.1 se muestra el esquema de la colisión. Para resolver la ec. (3.1) se emplea el método de Fourier, esto es, se puede escribir al campo eléctrico y la posición en el espacio de Fourier como:



$$\mathbf{r}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{r}(\omega) e^{-i\omega t}, \quad (3.2)$$

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \mathbf{E}(\omega) e^{-i\omega t}. \quad (3.3)$$

Sustituyendo la ec. (3.2) y (3.3) en (3.1) se obtiene que el movimiento del electrón es:

$$\mathbf{r}(\omega) = \frac{e}{m} \frac{\mathbf{E}(\omega)}{\omega_0^2 - i\Gamma\omega - \omega^2}, \quad (3.4)$$

de aquí, conociendo el campo eléctrico  $\mathbf{E}(t)$ , se determina  $\mathbf{E}(\omega)$  y la solución a la ec. (3.1).

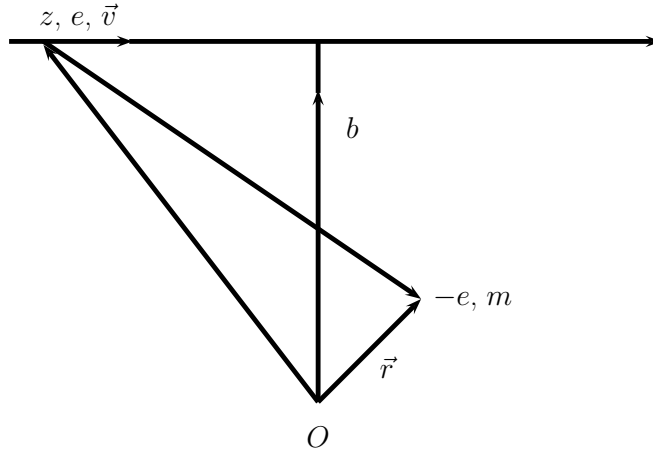


Figura 3.1: Esquema gráfico de una colisión atómica entre un proyectil y un blanco con electrones ligados.

Sin embargo, lo que realmente nos interesa no es el movimiento detallado del electrón, sino la energía transferida en la colisión. De esta manera, consideramos el trabajo hecho por la partícula incidente sobre la partícula ligada. Así, la rapidez con la que efectúa trabajo el proyectil sobre el blanco es:

$$\frac{dT}{dt} = \int \mathbf{E} \cdot \mathbf{J} dV', \quad (3.5)$$

donde  $\mathbf{J}$  es la densidad de corriente asociada al movimiento del electrón. El trabajo total hecho por el proyectil es:

$$\Delta T = \int_{-\infty}^{\infty} dt \int dV' \mathbf{E} \cdot \mathbf{J}. \quad (3.6)$$

Para el electrón ligado la densidad de corriente es  $\mathbf{J} = e\dot{\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}(t))$  (ver Jackson, ref [24]). Por lo tanto, la ec. (3.6) queda como:

$$\Delta T = e \int_{-\infty}^{\infty} dt \dot{\mathbf{r}} \cdot \mathbf{E}. \quad (3.7)$$

Sustituyendo la ec. (3.2) y (3.3) en (3.7), notando que las condiciones de realidad para  $\mathbf{E}$  y  $\mathbf{r}$  son:  $\mathbf{E}(-\omega) = \mathbf{E}^*(\omega)$  y  $\mathbf{r}(-\omega) = \mathbf{r}^*(\omega)$ . Además empleando las propiedades de la delta de Dirac, la energía transferida se escribe como:

$$\Delta T = 2e \int_0^\infty d\omega (i\omega) \mathbf{E}^*(\omega) \cdot \mathbf{r}(\omega). \quad (3.8)$$

Sustituimos la ec. (3.4) en la expresión anterior, arreglando términos se obtiene:

$$\Delta T = \frac{2e^2}{m} \int_0^\infty \frac{\Gamma \omega^2 |\mathbf{E}(\omega)|^2 d\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}. \quad (3.9)$$

Para valores pequeños de  $\Gamma$  el integrando es una función de pico agudo alrededor de  $\omega = \omega_0$  muy parecida a una Lorentziana. De esta manera, podemos aproximar el factor que involucra al campo eléctrico por su valor en  $\omega = \omega_0$ , esto es:

$$\Delta T = \frac{2e^2}{m} |\mathbf{E}(\omega_0)|^2 \int_0^\infty \frac{x^2 dx}{(\omega_0^2/\Gamma^2 - x^2)^2 + x^2}, \quad (3.10)$$

esta integral tiene el valor de  $\pi/2$  (ver ref. [24]), por lo tanto, se tiene:

$$T = \frac{\pi e^2}{m} |\mathbf{E}(\omega_0)|^2, \quad T = \frac{1}{2m} \left| \int_{-\infty}^\infty dt (-e \mathbf{E}(t)) e^{i\omega_0 t} \right|^2, \quad (3.11)$$

donde se pueden notar que la cantidad de movimiento es  $\int_{-\infty}^\infty dt (-e \mathbf{E}(t)) e^{i\omega_0 t}$ . Este es un resultado general para la transferencia de energía a un oscilador armónico por un campo electrostático externo, el cual es producido por una partícula cargada incidente (proyctil).

### 3.1.1 Colisiones distantes

Ahora se considera el campo eléctrico generado por una partícula rápida cargada que sigue un movimiento uniforme. El campo está dado de la forma usual como:  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\nabla \Phi(\mathbf{r}, t)$ , donde el potencial es:  $\Phi(\mathbf{r}, t) = e/|\mathbf{r} - \mathbf{R}(t)|$ . Bajo la suposición de que la trayectoria del proyectil es en línea recta, i.e. para ángulos pequeños de dispersión (ver refs. [4, 11]), la trayectoria está dada por:

$$\mathbf{R}(t) = \mathbf{b} + \mathbf{v}t, \quad (3.12)$$

donde  $\mathbf{b}$  es el parametro de impacto, esto es, la distancia mínima que hay entre la trayectoria rectilínea del proyectil y el medio dispersor que se observa de la fig. 3.1. Por otro lado, para encontrar las componentes del campo eléctrico, se conoce que la transformada de Fourier del potencial de Coulomb, en términos del vector de onda  $\mathbf{q}$ , es:

$$\frac{1}{r} = \frac{1}{2\pi^2} \int d^3 \mathbf{q} \frac{1}{q^2} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}}. \quad (3.13)$$

Tomando la ec. (3.12) y (3.13) y combinando los elementos antes descritos, se obtiene que el campo eléctrico es:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{ie}{2\pi^2} \int d^3 \mathbf{q} \frac{\mathbf{q}}{q^2} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{b} - \mathbf{v}t)}. \quad (3.14)$$

Considerando desplazamientos cerca del equilibrio y desarrollando en series de Taylor, la parte exponencial de la ecuación anterior queda como:

$$e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}(t)} = 1 + i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}\dots \simeq 1. \quad (3.15)$$

La aproximación hecha en la ec. (3.15) se aplica cuando se considera la interacción a pequeñas distancias, esto es, toda la variación del campo eléctrico a una distancia del orden de la amplitud de oscilación de los electrones del blanco ha sido ignorada (ver ref. [24]). En otras palabras, la ec. (3.15) es la *aproximación dipolar* y es equivalente al desarrollo en series de potencias del potencial  $\Phi(\mathbf{r}, t)$ .

Una vez realizada esta aproximación, se sustituye la ec. (3.15) en (3.14) y de aquí se observa que la transformada de Fourier, ec. (3.3) sin la dependencia de  $\mathbf{r}(t)$ , es:

$$\mathbf{E}(\omega) = -\frac{ie}{2\pi^2} \int d^3\mathbf{q} \frac{\mathbf{q}}{q^2} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{b}} \delta(\omega - \mathbf{q}\cdot\mathbf{v}), \quad (3.16)$$

que queda en términos del vector de onda  $\mathbf{q}$  y una delta de Dirac. Para encontrar el campo eléctrico y subsecuentemente la energía transferida, es necesario integrar esta última expresión. Haciendo uso de las coordenadas cilíndricas escogemos al eje  $x$  como el eje a lo largo del movimiento del proyectil y el eje  $y$  a lo largo del parámetro de impacto  $b$ . Además, se utiliza la notación para el vector de onda como  $\mathbf{q} = (\omega/v, \mathbf{q}_\perp)$ , donde  $\mathbf{q}_\perp$  es un vector en el plano perpendicular que se forma entre los ejes  $xy$ . Después de integrar se obtiene:

$$\mathbf{E}(\omega) = \frac{e}{2\pi^2 v} \left( -i\frac{\omega}{v}, \frac{\partial}{\partial b}, 0 \right) \int d^2\mathbf{q}_\perp \frac{1}{q_\perp^2 + \omega^2/v^2} e^{-i\mathbf{q}_\perp\cdot\mathbf{b}_\perp}, \quad (3.17)$$

donde esta integral es una función de Bessel modificada (ver ref. [25]), que se resuelve de la siguiente forma:

$$\begin{aligned} \int d^2\mathbf{q}_\perp \frac{1}{q_\perp^2 + \omega^2/v^2} e^{-i\mathbf{q}_\perp\cdot\mathbf{b}_\perp} &= \int_0^\infty \frac{q_\perp dq_\perp}{q_\perp^2 + \omega^2/v^2} \int_0^{2\pi} d\phi e^{-iq_\perp b \cos \phi}, \\ &= \int_0^\infty \frac{q_\perp dq_\perp}{q_\perp^2 + \omega^2/v^2} 2\pi J_0(q_\perp b) = 2\pi K_0\left(\frac{\omega b}{v}\right). \end{aligned} \quad (3.18)$$

Agrupando términos se tiene:

$$\mathbf{E}(\omega) = -\frac{e_1\omega}{\pi v^2} \left( iK_0\left(\frac{\omega b}{v}\right), K_1\left(\frac{\omega b}{v}\right), 0 \right). \quad (3.19)$$

Finalmente la transferencia de energía se obtiene de la ec. (3.9), como:

$$T(b) = \frac{2e^4}{mv^2 b^2} f(b), \quad (3.20)$$

donde

$$f(b) = f_{distante}(b) = \left[ \frac{\omega_0 b}{v} K_0\left(\frac{\omega_0 b}{v}\right) \right]^2 + \left[ \frac{\omega_0 b}{v} K_1\left(\frac{\omega_0 b}{v}\right) \right]^2. \quad (3.21)$$

Los límites asintóticos de las funciones modificadas de Bessel cuando  $\omega_0 b/v \ll 1$  son:

$$K_0\left(\frac{\omega_0 b}{v}\right) \sim \ln \frac{v}{\omega_0 b}, \quad K_1\left(\frac{\omega_0 b}{v}\right) \sim \frac{v}{\omega_0 b}. \quad (3.22)$$

Estas aproximaciones serán importantes cuando se trate de hallar la sección eficaz de poder de frenamiento en la siguiente sección.

### 3.1.2 Sección eficaz

Ahora utilizaremos los elementos presentados en la sección anterior para encontrar la SEPF en el modelo clásico de Bohr. Recordemos que basta con integrar la energía cinética sobre el parámetro de impacto  $b$  para obtenerla. Si bien, de la ec. (3.22) se observa que existe un problema en la divergencia del logaritmo natural para valores de  $b$  muy pequeños, esta dificultad la resolvió Bohr utilizando la *Ley de Rutherford* para una dispersión de Coulomb en el caso de colisiones cercanas (ver ref. [1], [11]). Esta ley, escrita en la forma de la ec. (3.21), es:

$$f(b) = f_{cerca}(b) = \frac{1}{1 + (\gamma/2b)^2}, \quad (3.23)$$

donde  $\gamma = 2Z_1e^2/mv^2$ . Integrando la energía  $T_{cerca}$  desde un intervalo que va de 0 a  $b_0$  se obtiene:

$$S_{cerca}(b) = \int_0^{b_0} 2\pi b db T_{cerca}(b) = \frac{2\pi e^4}{mv^2} \ln \left( 1 + \frac{4b_0^2}{\gamma^2} \right), \quad (3.24)$$

sí se aproxima este valor para velocidades altas surge:

$$S_{cerca}(b) \simeq \frac{4\pi e^4}{mv^2} \ln \frac{2b_0}{\gamma}. \quad (3.25)$$

En el caso de colisiones distantes se observa que  $K_1(\zeta) = -dK_0(\zeta)/d\zeta$  (ver ref. [25]), por lo tanto, integrando por partes se tiene:

$$S_{distante}(b) = \int_{b_0}^{\infty} 2\pi b db T_{distante}(b) = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{mv^2} \times \left( \int_{\zeta_0}^{\infty} d\zeta K_0(\zeta) \left[ \zeta K_0(\zeta) + \frac{d}{d\zeta}(\zeta K_1(\zeta)) \right] - \zeta K_0(\zeta) K_1(\zeta) \Big|_{\zeta_0}^{\infty} \right), \quad (3.26)$$

donde  $\zeta_0 = \omega_0 b_0/v$ . La expresión entre corchetes es cero (Abramowitz y Stegun, p. 376, ref. [26]), por lo tanto, la SEPF distante es:

$$S_{distante}(b) = \frac{4\pi e^4}{mv^2} \zeta_0 K_0(\zeta_0) K_1(\zeta_0). \quad (3.27)$$

Se puede realizar un desarrollo de las funciones de Bessel a primer orden como se muestra a continuación:

$$\zeta_0 K_0(\zeta_0) K_1(\zeta_0) = \ln(2/\zeta_0) - 0.5772 + O(\zeta_0^2), \quad (3.28)$$

e incorporando esta aproximación a la ec. (3.27), se obtiene para el límite de velocidades altas que la SEPF es:

$$S_{distante}(b) \simeq \frac{4\pi e^4}{mv^2} \ln \frac{2ve^{-0.5772}}{\omega_0 b_0}. \quad (3.29)$$

Finalmente, si se suman las contribuciones cercanas y distantes, la SEPF total es:

$$S = S_{cerca} + S_{distante} = \frac{4\pi e^4}{mv^2} \ln \frac{2Cv}{\gamma\omega_0}. \quad (3.30)$$

donde  $C = 2e^{-0.5772} = 1.1229$  y sustituyendo  $\gamma = 2Z_1e^2/mv^2$  finalmente la fórmula de Bohr para la SEPF es:

$$S = \frac{4\pi e^4}{mv^2} \ln \left( \frac{1.1229mv^3}{|e^2|\omega_0} \right). \quad (3.31)$$

Donde podemos notar que esta expresión no depende de  $b_0$ , y hay que recordar que es un tratamiento puramente clásico.

### 3.2 Teoría de Bethe

En el modelo de Bethe, se supone la interacción del proyectil con el núcleo y los electrones del blanco como una perturbación cuántica. Además se supone que el proyectil es lo suficientemente rápido de modo que su ímpetu no cambia apreciablemente en la dirección transversal de movimiento. De igual forma, no se toma en consideración la interacción entre electrones. Para un análisis detallado se recomienda revisar el trabajo original de Bethe [9], o el resumen de Cruz [4].

De esta forma, se considera a un blanco (átomo) constituido de  $Z_2$  electrones. Estos electrones pueden ocupar estados estacionarios  $|j\rangle$  con energías  $\epsilon_j$ , donde  $j$  ( $j \neq 0$ ) es un estado excitado y  $j = 0$  es el estado base (ver ref. [11, 19, 27]). Por lo tanto, las frecuencias de resonancia para un átomo en su estado base son:

$$\hbar\omega_{j0} = \epsilon_j - \epsilon_0. \quad (3.32)$$

Por otro lado, se conoce de la mecánica cuántica que el movimiento de los electrones está descrito por la ecuación de Schrödinger, en particular consideramos el caso no relativista, esto es:

$$(\hat{H}_p + \hat{H}_b + V)\Psi(\mathbf{r}, t) = i\hbar \frac{\partial \Psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad (3.33)$$

donde el hamiltoniano  $\hat{H}_p$  es debido a la energía cinética del proyectil y  $\hat{H}_b$  es la energía cinética de los electrones del blanco. La energía potencial que describe la interacción entre los electrones del átomo y el proyectil es:

$$V(\mathbf{r}, t) = \sum_{\nu=1}^{Z_2} (-e)\Phi(\mathbf{r}_\nu, t) = \sum_{\nu=1}^{Z_2} \frac{-e^2 Z_1}{|\mathbf{r}_\nu - \mathbf{R}(t)|}, \quad (3.34)$$

donde  $\mathbf{r}_\nu$  es el operador de posición del  $\nu$ -ésimo electrón y  $\mathbf{R}(t)$  es el operador de posición del proyectil, ver fig. (3.2).

La función dependiente del tiempo  $\Psi(\mathbf{r}, t)$  se puede desarrollar en términos de estados estacionarios  $|j\rangle$ , esto es:

$$|\Psi\rangle = \sum_j c_j(t) e^{-i\epsilon_j t/\hbar} |j\rangle, \quad (3.35)$$

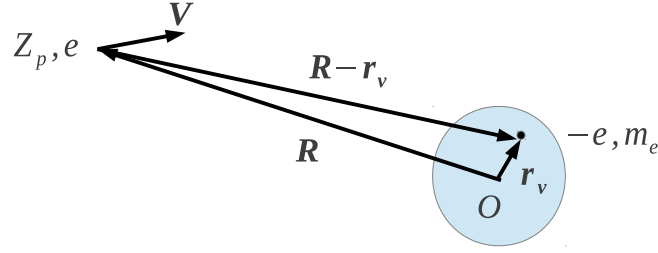


Figura 3.2: Esquema gráfico de la interacción entre un proyectil y un blanco con  $Z_2$  electrones ligados.

y los coeficientes  $c_j$  serán determinados utilizando la ec. (3.33). Además, de la teoría de perturbaciones dependiente del tiempo a primer orden se obtienen los coeficientes  $c_j(t)$  en función del potencial perturbativo  $V$  (ver ref. [28]). Los coeficientes son:

$$c_j(t) = \delta_{j0} + c_j^1(t) + \dots, \quad (3.36)$$

donde a primer orden en el potencial  $V(\mathbf{r}, t)$  los coeficientes son:

$$c_j^1(t) = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t dt' e^{i\omega_{j0}t'} \langle j | \hat{V}(\mathbf{r}, t') | 0 \rangle. \quad (3.37)$$

Las probabilidades de transición dentro del primer orden de perturbación son:

$$P_j(t) = |c_j^1(t)|^2. \quad (3.38)$$

En la ec. (3.37) está implícito que el átomo está en el estado base cuando  $t = -\infty$ . Ahora veamos que sucede en el límite asintótico cuando  $t \rightarrow \infty$ . Se conoce que los coeficientes  $c_j^1(\infty)$  ejemplifican *amplitudes de transición* (ver ref. [28] pp. 359). Estas amplitudes pueden ser evaluadas si insertamos la ec. (3.34) en (3.37), teniendo cuidado en expresar al potencial de Coulomb, ec. (3.13), en términos de su transformada de Fourier. Integrando sobre  $t'$  de forma similar que en la aproximación de Bohr se obtiene:

$$c_j^1(\infty) = -\frac{e^2}{i\pi\hbar} \int d^3\mathbf{q} \frac{e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{b}}}{q^2} M_{j0}(\mathbf{q}) \delta(\omega_{j0} - \mathbf{q} \cdot \mathbf{v}), \quad (3.39)$$

donde el factor de forma atómico es:

$$M_{j0}(\mathbf{q}) = \left\langle j \left| \sum_{\nu_1}^{Z_2} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_{\nu_1}} \right| 0 \right\rangle. \quad (3.40)$$

Si se toma el valor esperado del hamiltoniano  $\hat{H} = \hat{H}_p + \hat{H}_b$  y se evalúa al tiempo  $t \rightarrow \infty$  se obtiene:

$$\langle \Psi(\mathbf{r}, t) | \hat{H} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle_{t \rightarrow \infty} = \sum_j |c_j(t \rightarrow \infty)|^2 \epsilon_j, \quad (3.41)$$

ahora se toma en cuenta la ec. (3.36) y se obtiene la energía que se transmite al átomo debido a la interacción, esto es:

$$T_{av}(\mathbf{q}) = \langle \Psi(\mathbf{r}, t) | \hat{H} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle_{t \rightarrow \infty} - \langle \Psi(\mathbf{r}, t) | \hat{H} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle_{t \rightarrow -\infty} = \sum_j |c_j(t \rightarrow \infty)|^2 (\epsilon_j - \epsilon_0). \quad (3.42)$$

### 3.2.1 Aproximación de Born y sección eficaz

Ahora se calculará la sección eficaz dentro de la primera aproximación de Born. Recordemos que la sección eficaz  $\sigma_j$ , se define como el número de partículas  $N$  dispersadas en un elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  en la dirección  $(\theta, \phi)$  por unidad de tiempo y flujo incidente  $J_{inc}$  (ver ref. [28, 29]), es decir:

$$\frac{d\sigma_j(\theta, \phi)}{d\Omega} = \frac{1}{J_{inc}} \frac{dN(\theta, \phi)}{d\Omega}, \quad (3.43)$$

donde las densidades de corriente incidentes y dispersadas son:

$$\mathbf{J}_{inc} = \frac{i\hbar}{2\mu} (\phi_{inc} \nabla \phi_{inc}^* - \phi_{inc}^* \nabla \phi_{inc}), \quad \mathbf{J}_{dis} = \frac{i\hbar}{2\mu} (\phi_{dis} \nabla \phi_{dis}^* - \phi_{dis}^* \nabla \phi_{dis}). \quad (3.44)$$

Por otro lado, las partículas incidentes antes de la colisión, son descritas por una onda plana del tipo  $\phi(\mathbf{r}) = A \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})$ , donde  $\mathbf{k}_0$  es el vector de onda asociado con la partícula incidente y  $A$  es la constante de normalización. Cuando la onda incidente colisiona o interactúa con el blanco, una onda saliente es dispersada  $\phi_{dis}(\mathbf{r})$ . En general, la amplitud de la onda dispersada depende de la dirección  $(\theta, \phi)$  en la cual es deflectada, esto es,  $\phi_{dis}(\mathbf{r}) = Af(\theta, \phi) \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r})/r$ . Aquí  $f(\theta, \phi)$  es la amplitud de dispersión,  $\mathbf{k}$  es el vector de onda asociado con la partícula dispersada y  $\theta$  es el ángulo de dispersión entre  $\mathbf{k}_0$  y  $\mathbf{k}$ .

De la onda incidente y dispersada, se tiene que las densidades de flujo de corriente son:

$$J_{inc} = |A|^2 \frac{\hbar \mathbf{k}_0}{\mu}, \quad J_{dis} = |A|^2 \frac{\hbar \mathbf{k}}{\mu r^2} |f(\theta, \phi)|^2. \quad (3.45)$$

El número de partículas dispersadas en un elemento de ángulo sólido  $d\Omega$  en la dirección  $(\theta, \phi)$  y que pasan a través de un elemento de superficie  $dA = r^2 d\Omega$  por unidad de tiempo es  $dN(\theta, \phi) = J_{dis} r^2 d\Omega$ . De la ec. (3.45) y la expresión  $dN(\theta, \phi)$  en la ec. (3.43) se tiene:

$$\frac{d\sigma_j}{d\Omega} = \frac{k}{k_0} |f(\theta, \phi)|^2. \quad (3.46)$$

En la ecuación anterior sólo hace falta encontrar la amplitud de dispersión para obtener la sección eficaz. Debido a que el cálculo de la  $f(\theta, \phi)$  es extenso, sólo presento el resultado. Para un análisis detallado se recomienda revisar el libro de Zettili ref. [29] pp. 602 o también consultar Cohen-Tannoudji ref. [27] pp. 915. La amplitud de dispersión en el límite asintótico de la función de onda dispersada es:

$$f(\theta, \phi) = \left( \frac{m_1}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \int d^2\Omega | \langle j, \mathbf{k}_j | \hat{V}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) | l, \mathbf{k} \rangle |^2. \quad (3.47)$$

donde  $|j, \mathbf{k}_j\rangle$  es el estado final y  $|l, \mathbf{k}\rangle$  es el estado inicial en la transición. Los elementos de matriz del potencial son:

$$\langle j, \mathbf{k}_j | \hat{V}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) | l, \mathbf{k} \rangle = \int d^3 \mathbf{R} e^{-i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{R}} V_{j0}(\mathbf{R}) \Psi_l(\mathbf{R}). \quad (3.48)$$

Empleando la primera aproximación de Born, esto es, aproximar la onda dispersada como una onda plana, esto es:  $\Psi_l(\mathbf{R}) = \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R})$  (ver Zettili pp. 606 ref. [29], Cohen pp. 920 ref. [27], Sakurai y Napolitano pp. 396 ref. [28]), se obtiene:

$$\sigma_j = \frac{k_j}{k} \left( \frac{m_1}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \int d^2 \Omega |\langle j, \mathbf{k}_j | \hat{V}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) | 0, \mathbf{k} \rangle|^2. \quad (3.49)$$

La ecuación anterior se puede dejar en función del vector de onda  $\mathbf{k}$ , para esto, se combina la ec. (3.46) y (3.48) notando que esta es la conservación de energía en la colisión, esto es:

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 k_j^2}{2m_1} + \epsilon_j = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_1} + \epsilon_0. \quad (3.50)$$

Sustituyendo la ec. (3.50) en (3.49) resulta:

$$\sigma_j = \frac{1}{(2\pi)^2 \hbar v} \int d^3 \mathbf{k}' \delta \left( \frac{\hbar^2 k^2}{2m_1} + \epsilon_j - \frac{\hbar^2 k'^2}{2m_1} - \epsilon_0 \right) |\langle j, \mathbf{k}_j | \hat{V}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) | 0, \mathbf{k} \rangle|^2, \quad (3.51)$$

donde se ha renombrado a la variable  $\mathbf{k}_j$  como  $\mathbf{k}'$ . Esta última ecuación es una versión de la *Regla de Oro de Fermi*, que de manera general determina la razón de transición por unidad de tiempo a primer orden en la teoría de perturbaciones con un espectro de excitación (para más detalles ver refs. [11, 21, 27]).

Ahora se asume que existe una interacción del tipo Coulomb entre el proyectil y los electrones del blanco. De la ec. (3.13) y (3.34), la ec. (3.48) es:

$$\langle j, \mathbf{k}' | \hat{V}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) | 0, \mathbf{k} \rangle = \frac{4\pi e^4}{(\mathbf{k} - \mathbf{k}')^2} M_{j0}(\mathbf{k} - \mathbf{k}'), \quad (3.52)$$

donde  $M_{j0}$  es el factor de forma, y está definido por la ec. (3.40). De la ecuación anterior se identifica a  $\mathbf{k} - \mathbf{k}'$  como cambio en el vector de onda del proyectil y al momento transferido del proyectil al blanco como:  $\hbar \mathbf{q} = \hbar \mathbf{k} - \hbar \mathbf{k}'$ . Sustituyendo el momento transferido en la ec. (3.51) y (3.52) se obtiene:

$$\sigma_j = \frac{4e^4 Z_1^2}{\hbar v} \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{q^4} |M_{j0}(\mathbf{q})|^2 \delta(\epsilon_j - \epsilon_0 - \hbar \mathbf{q} \cdot \mathbf{v} + \hbar^2 q^2 / 2m_1). \quad (3.53)$$

Esta ecuación es una expresión general para la sección eficaz dentro de la primera aproximación de Born. Ahora, si se supone que el blanco (átomo) no tiene una orientación preferida, se toma el promedio sobre todas las direcciones del haz incidente (ver ref. [21] pp. 124). Por lo tanto, se tiene que la sección eficaz es:

$$\sigma_j = \frac{2e^4 Z_1^2}{\hbar^2 v^2} \int \frac{d^3 \mathbf{q}}{q^5} |M_{j0}(\mathbf{q})|^2. \quad (3.54)$$

Se define a una nueva variable como:  $Q = \hbar^2 q^2 / 2m$ , y se reescribe a la ec. (3.54). Así la sección eficaz en términos de la variable  $Q$  es:

$$\sigma_j = \frac{2\pi e^4 Z_1^2}{m v^2} \int \frac{dQ}{Q^2} |M_{j0}(Q)|^2, \quad (3.55)$$



Observando la cantidad  $Q$  y suponiendo que los electrones del blanco inicialmente estuvieran libres, estáticos y si todo el momento transferido en la colisión fuera a sólo un electrón del blanco entonces  $Q$  sería la energía del electrón después de la colisión (Ver ref. [21]). Por lo tanto, se propuso escribir la SEPF para un átomo dentro de la primer aproximación de Born como:

$$S = \int Q d\sigma_R(Q) \sum_j F_{j0}(Q), \quad (3.56)$$

donde  $d\sigma_R(Q)$  es la sección eficaz libre de Coulomb para la transferencia de energía  $Q$ . Los límites de la integración están sujetos a la ec. (3.55) y las funciones  $F_{j0}(Q)$  son las *tensiones de oscilador generalizado*, en términos de  $Z_2$  electrones ligados al núcleo, definidas como:

$$F_{j0}(Q) = \frac{1}{Z_2} \frac{\epsilon_j - \epsilon_0}{Q} |M_{j0}(\mathbf{Q})|^2. \quad (3.57)$$

En el límite en que  $\mathbf{q}$  es pequeño, la última expresión se reduce a las tensiones de oscilador dipolar (ver ref. [14]), esto es:

$$F_{j0}(Q)|_{Q=0} = f_{j0}. \quad (3.58)$$

Ahora, con todos estos elementos en mente, se tiene que la ec. (3.56) fue evaluada por Bethe en 1930 para proyectiles a velocidades altas. La idea general es separar las interacciones cercanas y distantes aplicadas a la transferencia del momento. Esto es, las interacciones distantes corresponden a bajos momentos transferidos  $\hbar q < \hbar q_0$  y las interacciones cercanas a altos momentos transferidos  $\hbar q > \hbar q_0$ . Como en el caso de Bohr, la ec. (3.56) se divide en dos partes: distante (transferencia de momentos pequeños) y cercana (transferencia de momentos grandes). La contribución para la parte distante es:

$$S_{distante} = \sum_j f_{j0} \int_{(\epsilon_j - \epsilon_0)^2 / 2mv^2}^{Q_0} Q d\sigma_R(Q), \quad (3.59)$$

donde la condición inferior de la integral viene del hecho que se consideran proyectiles pesados (ver ec. (3.55)). Para el caso de la contribución cercana, se calculan las tensiones de oscilador generalizadas utilizando el modelo del oscilador armónico (ver siguiente sección), se grafican y se observa un puente (de Bethe) en el espectro de las tensiones de oscilador que separa las contribuciones cercanas y distantes. En general, este puente es una característica general de los átomos y moléculas (ver ref. [21]). El valor del puente donde  $f_{j0}(Q)$  es diferente de cero es sólo alrededor del valor  $Q \simeq \epsilon_j - \epsilon_0$ . Colocando la cantidad  $Q = \epsilon_j - \epsilon_0$  en la expresión  $2mv^2 Q > (\epsilon_j - \epsilon_0 + mQ/m_1)^2$  bajo la suposición  $m_1 \gg m$  se obtiene que  $Q < 2mv^2$  que está de acuerdo con la máxima energía transferida a un electrón libre y estático, como ya lo habíamos mencionado anteriormente. Por lo tanto, para la contribución cercana se obtiene:

$$S_{cerca} = \int_{Q_0}^{2mv^2} Q d\sigma_R(Q) \sum_j F_{j0}(Q), \quad (3.60)$$

de la ecuación anterior se observa que  $\sum_j F_{j0}(Q)$  cumple con la regla de suma de Bethe,  $\sum_j F_{j0} = 1$  (ver ref. [14]). Por lo tanto, se tiene que la ec. (3.60) es:

$$S_{cerca} = \int_{Q_0}^{2mv^2} Q d\sigma_R(Q) \sum_j F_{j0} \equiv \sum_j F_{j0} \int_{Q_0}^{2mv^2} Q d\sigma_R(Q). \quad (3.61)$$

Finalmente tomando en cuenta las dos contribuciones, ec. (3.59) y (3.61), se tiene:

$$S = S_{distante} + S_{cerca} = \sum_j f_{j0} \int_{(\epsilon_j - \epsilon_0)^2/2mv^2}^{2mv^2} Q d\sigma_R(Q), \quad (3.62)$$

sustituyendo la sección eficaz  $d\sigma_R(T)$  libre de Coulomb dada por  $d\sigma \simeq 2\pi e^4 dT/m_2 v^2 T^2$  en la ec. (3.62), con  $Q = T$ , se obtiene:

$$S = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \sum_j F_{j0} \ln \left( \frac{2mv^2}{\epsilon_j - \epsilon_0} \right). \quad (3.63)$$

Por otro lado, si definimos la *energía media de excitación*  $I$  como:

$$\ln I = \sum_j f_{j0} \ln(\epsilon_j - \epsilon_0), \quad (3.64)$$

se obtiene:

$$S_e = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{mv^2} \ln \frac{2mv^2}{I}, \quad (3.65)$$

para  $m_1 \gg m$ . Esta última ecuación es llamada la *fórmula de Bethe*. Como comentario final recordemos que al inicio asumimos que la interacción a  $Q = Q_0$  es lo suficientemente distante tal que la aproximación del dipolo es válida. En el caso del oscilador armónico implica que  $Q_0$  cumple con la condición  $Q_0 \ll \hbar\omega_0$ . En este sentido la integral de  $S$  total debe estar entre los límites superior e inferior de  $Q_0$ , esto es  $(\hbar\omega_0)^2/2mv^2 < Q_0 < 2mv^2$ . Esta última expresión indica que la fórmula de Bethe es válida en el límite en el que la velocidad de los proyectiles es muy alta comparada con la velocidad de los electrones en el blanco (ver ref. [11, 10]).

Así, nótese que en el caso clásico  $S_e$  va como el  $C \ln(Av^3)$  ( el cubo de  $v$ , ver ec. (3.31)) y en el caso cuántico como  $C \ln(Bv^2)$  (el cuadrado de  $v$ , ver ec. (3.65)) en la región de altas energías, donde A, B y C son las constantes asociadas en cada caso. Al comparar con el experimento estas dos aproximaciones se observa que, la ecuación de Bethe presenta una mejor descripción de los datos experimentales. Esto en la región de altas energías, donde el modelo de Bethe es válido. Lo cual implica que el tratamiento cuántico es de suma importancia en la descripción de la interacción entre átomos y moléculas.



## Capítulo 4

# Efecto de la simetría en la SEPF

En el capítulo anterior se presentó, a groso modo, la fórmula de H. Bethe para la sección eficaz de poder de frenamiento (SEPF), ec. (3.65), dentro de la primera aproximación de Born. En este capítulo se partirá de las ecs. (3.56) y (3.57) (que están en términos de las tensiones de oscilador generalizado) para implementar el modelo del electrón independiente y el modelo del oscilador armónico para obtener la SEPF (ver refs. [14, 17]). Dentro de este modelo se calculará de forma autoconsistente la energía media de excitación,  $I_0$  ec. (3.64), en su descomposición orbital que estará relacionada con la frecuencia angular por medio de la regla de suma de Bragg. Dentro de esta aproximación, se encuentran nuevas expresiones teóricas que incorporan el efecto de la simetría orbital del blanco en coordenadas cartesianas. La simetrías orbitales consideradas son cuando el momento angular orbital es  $l = 0, 1, 2$ , esto es, para los orbitales “s”, “p” y “d” del blanco. Las expresiones para la SEPF son válidas para la región de altas energías, i.e. se basan en la primera aproximación de Born. Hay que notar que, en este modelo no se toman en cuenta procesos como el de captura electrónica del proyectil y/o ionización, que son muy comunes en la región de energías intermedias a bajas.

### 4.1 Modelo del electrón independiente

Para poder abordar con claridad la manera en que se empleará el método del electrón independiente en la SEPF, a continuación se describe el problema en general. Consideremos a un ión que se mueve con velocidad  $v$ , masa  $M_1$  y con una carga nuclear  $Z_1$  que colisiona con un blanco de masa  $M_2$  y con  $N_2$  electrones ligados al núcleo en algún estado estacionario inicial, el cual denotamos por  $|m_0\rangle$ . Recordemos que cuando el proyectil colisiona con el blanco éste se deflectará en un ángulo sólido  $d\Omega$  en la dirección de un ángulo polar  $(\phi, \theta)$  medido desde el sistema de referencia de laboratorio (ver capítulo 2). Después de la colisión, los electrones del blanco sufrirán una transición a un estado final, denotado por  $|m\rangle$ , debido a la transferencia de energía cinética que existe entre el ión y los electrones. La transferencia de energía cinética del proyectil al blanco está dada por:  $E_m - E_{m_0}$  (ver sección 3.2). De la fórmula de Bethe ec. (3.56) para la SEPF se tiene:

$$S_e(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{m > m_0} \int_{q_{min}}^{q_{max}} F_{mm_0}(\mathbf{q}) \frac{d\mathbf{q}}{q^2}, \quad (4.1)$$

donde  $F_{mm_0}$  son las *tensiones de oscilador generalizadas* (TOG o por sus siglas en Inglés GOS) definidas en sección 3.2, que están dadas por:

$$F_{mm_0}(\mathbf{q}) = \frac{2m_e}{\hbar^2 q^2} (E_m - E_{m_0}) |M_{mm_0}(\mathbf{q})|^2, \quad (4.2)$$

donde  $M_{mm_0}(\mathbf{q})$  son los factores de forma escritos como:

$$M_{mm_0}(\mathbf{q}) = \langle m_0 | \sum_{i=1}^{N_2} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_i} | m \rangle. \quad (4.3)$$

Aquí  $\mathbf{q}\hbar$  es la transferencia de momento del proyectil al blanco durante la colisión,  $\mathbf{q}$  es el vector de onda y la diferencial es  $d\mathbf{q} = qdq d\phi$ . Los límites de la integral ec. (4.1) se encuentran de consideraciones cinemáticas de la colisión (ver ref. [11, 14]), i.e. de la conservación de momento y energía se tiene  $\hbar\mathbf{q} = \hbar\mathbf{k}_f - \hbar\mathbf{k}_i$  y  $\hbar^2\mathbf{k}_i^2/2m_e + E_{m_0} = \hbar^2\mathbf{k}_f^2/2m_e + E_m$ . Por lo tanto, los límites son:

$$q_{max} = \frac{M_1 v}{\hbar} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{2(E_m - E_{m_0})}{M_1 v^2}} \right], \quad q_{min} = \frac{M_1 v}{\hbar} \left[ 1 - \sqrt{1 - \frac{2(E_m - E_{m_0})}{M_1 v^2}} \right]. \quad (4.4)$$

Por otro lado, la ec. (4.1) requiere la solución de la ecuación de Schrödinger no perturbada para un sistema de  $N_2$  electrones ligados al núcleo. En otras palabras, se requiere el conocimiento del espectro completo de excitación y las funciones de onda correspondientes. En lugar de tratar de resolver este problema, se propone utilizar el *modelo del electrón independiente* (ver ref. [14, 17]). Este modelo implica tener al sistema de  $N_2$  electrones descrito como una función de onda del tipo Hartree de la forma:

$$|m\rangle = |m_1, m_2, \dots, m_{N_2}\rangle, \quad (4.5)$$

donde  $|m_i\rangle$  es la eigenfunción para un solo electrón del sistema no perturbado. La energía transferida del estado base a cualquier estado excitado se puede escribir como:

$$E_m - E_{m_0} = \sum_{j=1}^{N_2} (E_{m_j} - E_{m_{0j}}), \quad (4.6)$$

para el  $j$ -ésimo electrón en el estado excitado  $|m\rangle$ . Si definimos al operador de un electrón como  $O = \sum_{j=1}^{N_2} O_j$  y suponemos que la excitación ocurre para el  $j$ -ésimo orbital, el factor de forma en la ec. (4.3) es:

$$M_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = \langle m_j | \hat{O}_j | m_{0j} \rangle, \quad (4.7)$$

donde  $m_j$  y  $m_{j0}$  denotan el  $j$ -ésimo estado excitado y base, respectivamente. Ahora, si se toman en cuenta las TOG en esta aproximación, se obtiene un operador que toma en cuenta todas las contribuciones de intercambio de energía en función de cada orbital, es decir:

$$\hat{G}_{mm_0}(\mathbf{q}) = \sum_{j=1}^{N_2} \hat{G}_{m_j m_{0j}}^j. \quad (4.8)$$

La contribución orbital está dada de forma usual por el factor de forma como:

$$\hat{G}_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = (E_{m_j} - E_{m_{0j}}) |\langle m_j | \hat{O}_j | m_{0j} \rangle|^2. \quad (4.9)$$

En esta aproximación, el operador de un electrón está dado por una onda plana, el cual es:  $\hat{O}_j = e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j}$  (ver ref. [14]). De ec. (4.9) se tiene que las TOG son:

$$F_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = \frac{2m_e}{\hbar^2 q^2} (E_{m_j} - E_{m_{0j}}) |\langle m_{0j} | e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j} | m_j \rangle|^2. \quad (4.10)$$

La SEPF está dada por la contribución del  $i$ -ésimo orbital, como se observa de la ec. (4.1), la cual está dada por:

$$S_e(v) = \sum_{i=1}^{N_2} S_{e,i}(v), \quad (4.11)$$

y la contribución del  $i$ -ésimo orbital es:

$$S_{e,i}(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{m_i=1}^{\infty} \int_{q_{min,i}}^{q_{max,i}} F_{m_i m_{0i}}^i(\mathbf{q}) \frac{d\mathbf{q}}{q^2}. \quad (4.12)$$

Este resultado reproduce la regla de suma del tipo Bragg y Kleeman (ver ref. [30]) para la SEPF. Hasta este momento he revisado algunos aspectos generales de la implementación del modelo del electrón independiente a la SEPF, como función de la contribución del  $i$ -ésimo orbital en la ec. (4.11). Esto a través de las TOG, ec. (4.8), y el factor de forma dado en la ec. (4.7). En secciones siguientes se obtendrán fórmulas cerradas que nos permitirán cuantificar la SEPF por contribución orbital.

#### 4.1.1 Resultados de Bethe

Es importante hacer notar que a partir de los resultados generales que se presentaron en la sección anterior, se puede derivar la expresión ya conocida para la SEPF encontrada por Bethe ec. (3.65) (ver ref. [14, 21]). Los límites de la ec. (4.12) están dados por consideraciones cinemáticas de la colisión de iones pesados, esto es,  $q_{max,i} = 2m_e v / \hbar$  y  $q_{min,i} = (E_{m_i} - E_{m_{0i}}) / \hbar v$ , el límite inferior fue reemplazado por el promedio independiente de la energía media de excitación, esto es  $q_{min,i} = I_{0i} / \hbar v$  (ver ref. [11]). Hay que notar que las TOG cumplen con la condición de la regla de suma de Bethe  $\sum_{m_j} F_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = 1$ . Por otro lado, si integramos la ec. (4.12) y usamos las condiciones antes descritas llegamos al resultado ya mencionado, esto es, la fórmula de Bethe ec. (3.65) para la SEPF:

$$S_{e,i}(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \int_{q_{min,i}}^{q_{max,i}} \frac{d\mathbf{q}}{q^2} = \frac{4\pi e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \ln \left( \frac{2m_e v^2}{I_{0i}} \right), \quad (4.13)$$

donde  $I_{0i}$  se define a través de la condición  $f_{m_i m_{0i}}^i = \lim_{q \rightarrow 0} F_{m_i m_{0i}}^i(\mathbf{q})$  como:

$$\ln I_{0i} = \sum_{m_i} f_{m_i m_{0i}}^i \ln(E_{m_i} - E_{m_{0i}}). \quad (4.14)$$

Observando que obtenemos una relación similar para la  $I_{0i}$ , ec. (3.64) del capítulo 3, pero en este caso para un orbital (electrón por electrón).

Bajo la suposición de que estamos en el caso de altas energías, se obtiene que la regla de descomposición de Bragg (ver ref. [14],[30]) para la energía de excitación media es:

$$N_2 \ln I_0 = \sum_{i=1} n_i \ln I_{0i}. \quad (4.15)$$

donde  $n_i$  es el número de ocupación del  $i$ -ésimo orbital tal que  $N_2 = \sum_i n_i$ .

## 4.2 Oscilador armónico tridimensional

Para obtener la SEPF, ec. (4.12), se necesitan calcular las TOG y los factores de forma involucrados en la ec. (4.10). De aquí es necesario conocer el estado inicial y final de las transiciones en el blanco. En este caso, seguiremos el método propuesto originalmente por Bohr ( ver ref. [14]), donde se considera: “que los electrones del blanco están ligados armónicamente al núcleo”, ver capítulo 3. De esta manera, se considera a la función de onda del oscilador armónico tridimensional en coordenadas cartesianas como nuestro estado base ( $|n = n_x + n_y + n_z\rangle$ ), y estado excitado ( $|m = m_x + m_y + m_z\rangle$ ). La función de onda es:

$$\psi_{n_x, n_y, n_z}(x, y, z) = A_n e^{-\alpha^2(x^2+y^2+z^2)/2} H_{n_x}(\alpha x) H_{n_y}(\alpha y) H_{n_z}(\alpha z), \quad (4.16)$$

donde  $A_n = (\alpha^2/\pi)^{3/4} / \sqrt{2^{n_x+n_y+n_z} n_x! n_y! n_z!}$  es la constante de normalización y  $H_{n_x}$  son los polinomios de Hermite. Además la energía total es  $E_{m_i} = \hbar\omega_{0i}(n_x + n_y + n_z + 3/2)$  y  $\alpha_i^2 = m_e\omega_{0i}/\hbar$  (ver ref. [27]).

Como primera aproximación, se calculan las TOG y la SEPF utilizando la función de onda del oscilador armónico (OA) en coordenadas cartesianas debido a que las integrales involucradas en este cálculo son directas. En el caso de la simetría “ $s$ ” ( $l = 0$  implica  $m = 0$ ), no hay inconvenientes si utilizamos esta función de onda debido a la simetría esférica, pero si queremos considerar la simetría “ $p$ ” del blanco ( $l = 1$  implica  $m = 1, 0, -1$ ), se observa que en coordenadas cartesianas perdemos de vista información física. Esto es, en las coordenadas cartesianas no se exhiben las integrales de movimiento de forma directa y como consecuencia, los observables no se pueden medir.

Sin embargo, como primera aproximación utilizaremos las coordenadas cartesianas, dejando como trabajo a futuro el considerar el tratamiento de este problema en coordenadas esféricas. En estas coordenadas se tienen funciones de onda del tipo Gaussianas (ver ref. [31]) y aquí se exhibirán las integrales de movimiento y las simetrías asociadas. De igual manera, otra forma de obtener los resultados de la SEPF en coordenadas esféricas es emplear transformaciones entre coordenadas, por ejemplo ver la ref. [32].

## 4.3 Implementación del OA en la SEPF

Aquí se presenta un desarrollo general que nos permitirá encontrar el factor de forma, ec. (4.7), para un estado arbitrario inicial  $|n\rangle$  y un estado final  $|m\rangle$ . De esta manera encontramos la forma general de la SEPF. Después, como primer caso se considera la simetría orbital “ $s$ ” ( $l = 0$  implica  $m = 0$ ), como segundo caso se considera la simetría orbital “ $p$ ” ( $l = 1$  implica  $m = 1, 0, -1$ ) y la simetría orbital “ $d$ ” ( $l = 2$  implica  $m = 2, 1, 0, -1, -2$ ) del blanco. La razón de incorporar las propiedades de las simetrías de los orbitales “ $p$ ” y “ $d$ ” en las fórmulas de la SEPF, se debe a que en el capítulo siguiente se muestra que para átomos con número atómico  $Z \geq 5$  es necesario tomar en cuenta estas simetrías para obtener un buen acuerdo con los datos experimentales. Sin embargo, no es mi intención llevar un orden estricto en la

presentación de los resultados, y debido a eso, prefiero presentar en este capítulo las fórmulas encontradas en donde se incorporan los efectos de las simetrías orbitales asociadas al blanco.

## 4.4 Caso general

De la función de onda del OA, ec. (4.16), se calcula de forma general el factor de forma, ec. (4.7), de un estado inicial  $|n\rangle$  a un estado final  $|m\rangle$ . Por lo tanto, el factor de forma es:

$$M_{mn}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j} | n \rangle,$$

además se supone que el momento transferido total es sólo en alguna dirección, en este caso se elige la dirección  $z$  (ver ref. [14]). En coordenadas cartesianas el valor esperado es:

$$M_{mn}^j(\mathbf{q}) = A_m A_n \int_{-\infty}^{+\infty} H_m(\alpha x) H_n(\alpha x) e^{-\alpha^2 x^2} dx \int_{-\infty}^{+\infty} H_m(\alpha y) H_n(\alpha y) e^{-\alpha^2 y^2} dy \times \int_{-\infty}^{+\infty} H_m(\alpha z) H_n(\alpha z) e^{-iqz} e^{-\alpha^2 z^2} dz. \quad (4.17)$$

En la ecuación anterior se observa que las integrales en las variables  $x$ ,  $y$  son las mismas y que el momento transferido se ve reflejado sólo en la integral con respecto a la variable  $z$ .

Estas integrales son de la forma (ver ref. [25]):

$$\int_{-\infty}^{+\infty} H_m(a\zeta) H_n(a\zeta) e^{-a^2 \zeta^2} d\zeta = \delta_{mn} N_m, \quad N_m = \frac{\sqrt{\pi} 2^m m!}{a}. \quad (4.18)$$

Así las integrales para  $x$  y  $y$  son:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_x}(\alpha x) H_{n_x}(\alpha x) e^{-\alpha^2 x^2} dx = \delta_{m_x n_x} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha}, \quad (4.19)$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_y}(\alpha y) H_{n_y}(\alpha y) e^{-\alpha^2 y^2} dy = \delta_{m_y n_y} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha}. \quad (4.20)$$

Para la última integral, en la variable  $z$ , en el libro de Gradshteyn and Ryzhik<sup>1</sup> se encuentra la siguiente integral:

$$\int_{-\infty}^{+\infty} H_m(a\zeta) H_n(a\zeta) e^{-(\zeta-y)^2} d\zeta = 2^m \sqrt{\pi} n! y^{m-n} L_n^{m-n}(-2y^2), \quad (4.21)$$

para  $[n \leq m]$ , donde  $L_n^{m-n}$  son los polinomios de Laguerre. Comparando la Ec. (4.21) con la tercer integral del factor de forma en la variable  $z$ , ec. (4.17), se observa que sólo difieren por una constante en la parte exponencial. Así, se propone el siguiente cambio de variable para la parte exponencial de la ec. (4.17):

$$\begin{aligned} \xi = z\alpha, \quad \Rightarrow \quad d\xi = \alpha dz, \\ \Rightarrow \end{aligned}$$

---

<sup>1</sup>Gradshteyn & Ryzhik 7th edición pp. 804, 7.374, ec. 7, ref. [33]



$$\int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_z}(\alpha z) H_{n_z}(\alpha z) e^{-iqz} e^{-\alpha^2 z^2} dx = \frac{1}{\alpha} \int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_z}(\xi) H_{n_z}(\xi) e^{-\xi^2 - iq\xi/\alpha} d\xi. \quad (4.22)$$

Comparando la ec. (4.22) y (4.21) se propone el siguiente cambio de variable  $y = -iq/2\alpha$  y además se multiplica a la ec. (4.22) por un *uno* de la forma  $e^{y^2} e^{-y^2}$ . Agrupando términos se obtiene:

$$\frac{e^{y^2}}{\alpha} \int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_z}(\xi) H_{n_z}(\xi) e^{-\xi^2 + 2y\xi - y^2} d\xi, \quad (4.23)$$

notando que en el argumento de la exponencial se puede escribir como  $e^{(-\xi^2 + 2y\xi - y^2)} = e^{-(\xi - y)^2}$ , la integral anterior se reescribe como:

$$\frac{e^{y^2}}{\alpha} \int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_z}(\xi) H_{n_z}(\xi) e^{-(\xi - y)^2} d\xi, \quad \text{donde } y = -\frac{iq}{2\alpha}. \quad (4.24)$$

Finalmente de la ecuación anterior, que muestra el momento transferido en dirección  $z$  ec. (4.17), se puede realizar utilizando la ec. (4.21), esto es:

$$\frac{e^{y^2}}{\alpha} \int_{-\infty}^{+\infty} H_{m_z}(\xi) H_{n_z}(\xi) e^{-(\xi - y)^2} d\xi = \frac{2^{m_z} \pi^{1/2} n_z!}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left(\frac{iq}{2\alpha}\right)^{m_z - n_z} L_{n_z}^{m_z - n_z} \left(\frac{q^2}{2\alpha^2}\right). \quad (4.25)$$

Bajo la condición  $[n_z \leq m_z]$ . Empleando la ec. (4.19), (4.20) y (4.25) se puede encontrar el factor de forma para cada estado excitado que incorpora la simetría orbital del blanco de manera general.

#### 4.4.1 Momento angular $l = 0$

Primeramente comenzamos calculando el primer factor de forma cuando el momento angular es  $l = 0$  con  $m = 0$  (simetría orbital s). En otras palabras, se tiene la transición del estado base  $|0\rangle$  ( $n_x = 0, n_y = 0, n_z = 0$ ) a un estado excitado  $|m\rangle$  ( $m_x, m_y, m_z$ ). Utilizando las relaciones generales expuestas en la sección anterior, se obtiene que el factor de forma ec. (4.7), es:

$$M_{m0}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-iqz} | 0 \rangle = \int \psi_{m_x, m_y, m_z}(x, y, z) e^{-iqz} \psi_{0,0,0}(x, y, z) d\mathbf{r}.$$

En términos de los polinomios de Hermite de orden cero y orden  $m$  el factor de forma es:

$$M_{m0}^j(\mathbf{q}) = A_m A_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \prod_{\mathbf{r}=x,y,z} H_m(\alpha \mathbf{r}) \right) \left( \prod_{\mathbf{r}=x,y,z} H_0(\alpha \mathbf{r}) \right) e^{-iqz} e^{-\alpha^2(x^2 + y^2 + z^2)} d\mathbf{r}. \quad (4.26)$$

Donde el vector es  $\mathbf{r} = (x, y, z)$ . Separando la expresión anterior en las variables  $x$ ,  $y$  y  $z$ , las integrales de la ec. (4.26) se pueden llevar a cabo al emplear las ecs. (4.19), (4.20) y (4.25) para obtener una expresión analítica del factor de forma. Empleando estas relaciones se obtiene:

$$M_{m0}^j(\mathbf{q}) = \left[ \left(\frac{\alpha^2}{\pi}\right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{m_x + m_y + m_z} m_x! m_y! m_z!}} \right] \left[ \left(\frac{\alpha^2}{\pi}\right)^{3/4} \right] \left[ \delta_{m_x, n_x=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha} \right]$$

$$\times \left[ \delta_{m_y, n_y=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha} \right] \left[ \frac{2^{m_z} \pi^{1/2}}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} L_0^{m_z} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) \right].$$

donde las funciones de Laguerre<sup>2</sup> son:

$$L_0^k(x) = 1, \quad L_0^{m_z} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) = 1. \quad (4.27)$$

Incluyendo esta última relación y agrupando términos se obtiene:

$$M_{m_z 0}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_z} m_z!}{(2^{m_z} m_z!)^{3/2}} \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} 2^{m_z} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z}.$$

Notando que se ha cambiado la notación en el subíndice de  $M_{m_z 0}^j(\mathbf{q})$ , sólo para hacer énfasis de que el momento transferido es en la dirección  $z$ . Finalmente simplificando la expresión anterior se obtiene el factor de forma como:

$$M_{m_z 0}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_z/2}}{\sqrt{m_z!}} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} e^{-q^2/4\alpha^2}. \quad (4.28)$$

Ahora se calculan las TOG de forma directa empleando la ec. (4.10). Para esto, se toma en cuenta la energía del estado inicial y final, esto es,  $E_{m_j} - E_{m_{0j}} = \hbar\omega_{0i} m_z$  y realizando el valor esperado se obtienen las TOG:

$$F_{m_z 0}^j(\mathbf{q}) = \frac{1}{(m_z - 1)!} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z - 1} e^{-q^2/2\alpha^2}. \quad (4.29)$$

Finalmente podemos hallar la SEPF  $S_e(v)$  de manera analítica cuando tenemos una transición del estado base ( $|0\rangle$ ) a algún estado excitado ( $|m_z\rangle$ ). De la ec. (4.12) se obtiene:

$$S_{e,i}(v) = \frac{2e^4 Z_p^2}{m_e v^2} \frac{1}{(m_z - 1)!} \sum_{m_z} \int_0^{2\pi} \int_{q_{min}}^{q_{max}} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z - 1} e^{-q^2/2\alpha^2} \frac{q dq}{q^2} d\varphi.$$

si  $t = q^2/2\alpha^2$ , se tiene  $S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} \frac{1}{(m_z - 1)!} \sum_{m_z} \underbrace{\int_{t_{min}}^{t_{max}} t^{(m_z-1)-1} e^{-t} \frac{dt}{2}}_{\text{función gamma incompleta}}.$

Se identifica a la función gamma incompleta. Integrando se obtiene la SEPF:

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_s(v), \quad (4.30)$$

donde  $Z_p^2$  es la carga del proyectil,  $m_e$  es la masa del electrón,  $v$  es la velocidad del proyectil y el número de frenamiento  $L_s$ , está dado por:

$$L_s(v) = \sum_{m_z > 1}^{\lfloor E_p/I_{0i} \rfloor} \frac{1}{2(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right]. \quad (4.31)$$

---

<sup>2</sup>Arfken & Weber pp. 841, Ec. 13.71

Aquí  $\Gamma(m_z, q_{min}, q_{max})$  es la función gamma incompleta evaluada en los siguientes límites:

$$q_{max} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{2\hbar \omega_{0i} m_z}{M_1 v^2}} \right], \quad q_{min} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 - \sqrt{1 - \frac{2\hbar \omega_{0i} m_z}{M_1 v^2}} \right]. \quad (4.32)$$

Se observa que esta expresión está en función de la frecuencia angular  $\omega_{0i}$  que contiene toda la información física. Esta fórmula analítica es bien conocida del trabajo de R. Cabrera-Trujillo (ver ref. [14]) en donde se ocupa para el cálculo de la SEPF de varios átomos.

#### 4.4.2 Momento angular $l = 1$

En esta sección, se tiene como propósito incluir las propiedades de la simetría orbital “ $p$ ” del blanco que son de gran importancia cuando se calcula la SEPF para átomos con número atómico grande (ver ref. [14]). De esta manera tendremos expresiones analíticas que incluirán las propiedades de los orbitales atómicos de los blancos. En este caso, cuando la simetría del blanco es  $l = 1$  implica que el número cuántico principal para el OA es  $n = 1$ , esto es, para el valor total de  $n = n_x + n_y + n_z$  se tienen diferentes contribuciones en coordenadas cartesianas como  $p_x, p_y$  y  $p_z$  (ver ref. [27]). Estas combinaciones son:  $n = (n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 1)_z = (0, 1, 0)_y = (1, 0, 0)_x$  donde los subíndices en los parentesis indican la contribución del número cuántico en dicha dirección y denotamos al estado excitado como  $|m\rangle (m_x, m_y, m_z)$ . A continuación se considerarán estas tres situaciones.

##### Contribución en $p_z$

Ahora se considera el caso en que el número cuántico es  $n = (0, 0, 1)_z$ , por lo tanto el factor de forma, ec. (4.7), es:

$$M_{m1}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-iqz} | 1 \rangle = \int \psi_{m_x, m_y, m_z}(x, y, z) e^{-iqz} \psi_{0,0,1}(x, y, z) d\mathbf{r}.$$

Utilizando los resultados de las ecs. (4.19), (4.20) y (4.25), para  $n_z = 1$ , se obtiene que el factor de forma se puede escribir como:

$$M_{m0}^j(\mathbf{q}) = \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{m_x+m_y+m_z} m_x! m_y! m_z!}} \right] \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{11!}}} \right] \left[ \delta_{m_x, n_x=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha} \right] \\ \times \left[ \delta_{m_y, n_y=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha} \right] \left[ \frac{2^{m_z} \pi^{1/2}}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z-1} L_1^{m_z-1} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) \right],$$

donde la función de Laguerre es:

$$L_1^k(x) = -x + k + 1, \quad L_1^{m_z-1} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) = q^2/2\alpha^2 + m_z. \quad (4.33)$$

Reescribiendo el factor de forma utilizando la última ecuación se tiene:

$$M_{m_z1}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_z}}{\sqrt{2^{m_z}}} \frac{1}{2^{1/2} \sqrt{m_z!}} \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/2} \left( \frac{\pi^{3/2}}{\alpha^3} \right) e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z-1} (-q^2/2\alpha^2 + m_z).$$

Finalmente, se factorizan la expresión anterior y se obtiene el factor de forma cuando se incluye el efecto de la simetría del orbital  $p_z$ :

$$M_{m_z 1}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_z/2}}{\sqrt{m_z!}} \frac{1}{2^{1/2}} \left( \frac{i\mathbf{q}}{2\alpha} \right)^{m_z-1} e^{-q^2/4\alpha^2} (-q^2/2\alpha^2 + m_z). \quad (4.34)$$

Sustituyendo la ec. (4.34) en (4.10) y simplificando la expresión se obtienen las TOG:

$$F_{m_z 1}^j(\mathbf{q}) = \frac{m_z - 1}{m_z!} e^{-q^2/2\alpha^2} \left[ \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z} - 2m_z \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z-1} + m_z^2 \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z-2} \right]. \quad (4.35)$$

En la ec. (4.11) se sustituye la expresión anterior:

$$\begin{aligned} S_{e,i}(v) &= \frac{2e^4 Z_p^2}{m_e v^2} \sum_{m_j} \int_{q_{min,j}}^{q_{max,j}} F_{m_j n_j}^j(\mathbf{q}) \frac{d\mathbf{q}}{q^2}. \\ S_{e,i}(v) &= \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} \frac{m_z - 1}{m_z!} \sum_{m_z} \left[ \underbrace{\int_{q_{min}}^{q_{max}} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z} e^{-q^2/2\alpha^2} \frac{q dq}{q^2}}_{\text{gamma incompleta}} \right. \\ &\quad \left. - 2m_z \underbrace{\int_{q_{min}}^{q_{max}} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z-1} e^{-q^2/2\alpha^2} \frac{q dq}{q^2}}_{\text{gamma incompleta}} + m_z^2 \underbrace{\int_{q_{min}}^{q_{max}} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z-2} e^{-q^2/2\alpha^2} \frac{q dq}{q^2}}_{\text{gamma incompleta}} \right]. \end{aligned}$$

donde se identifica a la función gamma incompleta. Se integra sobre el vector de onda  $\mathbf{q}$  y  $E_{m_j} - E_{m_0 j} = \hbar\omega_{0i}(m - 1)$ . Por lo tanto, se obtiene una fórmula analítica para SEPF  $S_e(v)$  que toma en cuenta la simetría orbital  $p_z$  del blanco, es decir:

$$S_{ei}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{p_z}(v), \quad (4.36)$$

donde el número de frenamiento es:

$$\begin{aligned} L_{p_z}(v) &= \sum_{m_z > 1}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{m_z - 1}{2 m_z!} \times \\ &\quad \left[ -(\Gamma(m_z, q_{max}) - \Gamma(m_z, q_{min})) + 2m_z(\Gamma(m_z - 1, q_{max}) - \Gamma(m_z - 1, q_{min})) + \right. \\ &\quad \left. m_z^2(\Gamma(m_z - 2, q_{max}) - \Gamma(m_z - 2, q_{min})) \right]. \quad (4.37) \end{aligned}$$

Aquí  $\Gamma(m_z, q_{min}, q_{max})$  es la función gamma incompleta evaluada en los siguientes límites:

$$q_{max} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{2\hbar\omega_{0i}(m_z - 1)}{M_1 v^2}} \right], \quad q_{min} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 - \sqrt{1 - \frac{2\hbar\omega_{0i}(m_z - 1)}{M_1 v^2}} \right]. \quad (4.38)$$

**Contribución en  $p_x$  y  $p_y$** 

Ahora se considera el caso en que el número cuántico es  $n = (0, 1, 0)_y$ , por lo tanto el factor de forma ec. (4.7) es:

$$M_{m_1}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-iqz} | 1 \rangle = \int \psi_{m_x, m_y, m_z}(x, y, z) e^{-iqz}(x, y, z) \psi_{0,1,0} d\mathbf{r}.$$

Utilizando las ecs. (4.19), (4.20) y (4.25) para  $n_y = 1$  se obtiene:

$$M_{m_1}^j(\mathbf{q}) = \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{m_x+m_y+m_z} m_x! m_y! m_z!}} \right] \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^1 1!}} \right] \left[ \delta_{m_x, n_x=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha} \right] \\ \times \left[ \delta_{m_y, n_y=1} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha} \right] \left[ \frac{2^{m_z} \pi^{1/2}}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} L_0^{m_z} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) \right].$$

donde la función de Laguerre es la misma que para el caso de la simetría  $s$ , esto es:  $L_0^{m_z}(q^2/2\alpha^2) = 1$ . Simplificando la expresión anterior se tiene:

$$M_{m_z 1}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_z} 2}{2^{1/2} \sqrt{m_z! 2^{m_z+1}}} \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/2} \left( \frac{\pi^{3/2}}{\alpha^3} \right) e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z}.$$

Finalmente se obtiene el efecto de la simetría del orbital  $p_y$ . Se observa que es similar al de la ec. (4.28), salvo por el factor  $2^{-m_z/2}$ , es decir:

$$M_{m_z 1}^j(\mathbf{q}) = 2^{-m_z/2} \frac{2^{m_z}}{\sqrt{m_z!}} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} e^{-q^2/4\alpha^2}. \quad (4.39)$$

Las TOG están dadas por la ec. (4.29), salvo por el factor  $2^{-m_z}$ , esto es:

$$F_{m_z 1}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{-m_z}}{(m_z - 1)!} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z-1} e^{-q^2/2\alpha^2}. \quad (4.40)$$

De igual manera que en la simetría orbital  $s$ , ec. (4.30), se identifica a la función gamma incompleta y se integra sobre el vector de onda. Notando que la transición de energía es:  $E_{m_j} - E_{m_0 j} = \hbar\omega_{0i}(m_z - 1)$ , se obtiene la SEPF:

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{p_y}(v) \quad (4.41)$$

donde el número de frenamiento es:

$$L_{p_y}(v) = \sum_{m_z > 1}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{2^{-m_z}}{2(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right]. \quad (4.42)$$

notando que la SEPF es similar al de la ec. (4.30) salvo por el factor  $2^{-m_z}$  y donde los límites de integración están dados por la ec. (4.38) para la simetría orbital " $p$ ".

Ahora consideremos en caso en que  $n = (1, 0, 0)_x$ . Realizando las integrales igual que antes obtenemos un resultado similar al de la ec. (4.31). En la expresión donde se calcula el factor de forma para  $p_y$  observamos que es igual que el calculado anteriormente para  $p_x$ .

Salvo que ahora la delta de Kronecker es  $\delta_{m_x, n_x=1}$  para la componente en  $x$  y  $\delta_{m_y, n_y=0}$  para la componente en  $y$ . Tomando en cuenta estas consideraciones la SEPF para  $p_x$  es:

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{p_x}(v) \quad (4.43)$$

donde el número de frenamiento es:

$$L_{p_x}(v) = \sum_{m_z > 1}^{\lceil E_p/I_{0i} \rceil} \frac{2^{-m_z}}{2(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right]. \quad (4.44)$$

De igual forma este resultado es similar al de la ec. (4.30) salvo por el factor  $2^{-m_z}$  y donde los límites de integración están dados por la ec. (4.38) para la simetría orbital “ $p$ ”.

#### 4.4.3 Momento angular $l = 2$

Para la simetría orbital “ $d$ ” el momento angular es  $l = 2$  lo que implica que el número cuántico principal del OA es  $n = 2$  donde se tienen diferentes contribuciones para el valor total, i.e. en coordenadas cartesianas  $d_x, d_y, d_z, d_{xy}, d_{xz}, d_{yz}$ . Las contribuciones que tomaremos en cuenta son:  $n = (n_x, n_y, n_z) = (0, 0, 2)_z = (0, 2, 0)_y = (2, 0, 0)_x$  donde se ha indicado la dirección con el subíndice en el parentesis. Los casos en que el número cuántico toma los valores  $(1, 1, 0)_{xy} = (1, 0, 1)_{xz} = (0, 1, 1)_{yz}$  no serán considerados en este trabajo debido a la falta de tiempo para la realización de los cálculos computacionales. A continuación se muestran estos tres casos.

##### Contribución en $d_z$

Consideremos el caso en que el número cuántico principal es  $n = (0, 0, 2)_z$ . Se calcula por medio de la ec. (4.7) el factor de forma:

$$M_{m2}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-iqz} | 2 \rangle = \int \psi_{m_x, m_y, m_z}(x, y, z) e^{-iqz}(x, y, z) \psi_{0,0,2} dr.$$

Utilizando las ecs. (4.19), (4.20) y (4.25) para  $n_z = 2$  se obtiene:

$$M_{m2}^j(\mathbf{q}) = \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{m_x+m_y+m_z} m_x! m_y! m_z!}} \right] \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^2 2!}} \right] \left[ \delta_{m_x, n_x=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha} \right] \\ \times \left[ \delta_{m_y, n_y=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha} \right] \left[ \frac{2^{m_z} \pi^{1/2} 2!}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z-2} L_1^{m_z-2} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) \right].$$

donde la función de Laguerre es:

$$L_2^k(x) = \frac{x^2}{2} - (k+2)x + \frac{(k+2)(k+1)}{2}, \quad L_1^{m_z-2} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) = \frac{1}{2}(-1 + m_z)m_z + \frac{q^4}{8\alpha^4} - \frac{m_z q^2}{2\alpha^2}. \quad (4.45)$$

Sustituyendo la relación anterior y haciendo simplificaciones algebraicas se obtiene el factor de forma para la simetría en el estado  $d_z$ , es decir:

$$M_{m_z 2}^j(\mathbf{q}) = -\frac{2^{m_z/2}}{2^{1/2}\sqrt{m_z!}} e^{-q^2/4\alpha^2} \left(\frac{iq}{2\alpha}\right)^{m_z} \left(\frac{q^2}{2\alpha^2} - 2m_z + \left(\frac{2\alpha^2}{q^2}\right) m_z(m_z - 1)\right). \quad (4.46)$$

Sustituyendo la ec. (4.46) en (4.10) y realizando las operaciones necesarias se obtiene que las TOG son:

$$\begin{aligned} F_{m_z 2}^j(\mathbf{q}) = & e^{-q^2/2\alpha^2} \left(\frac{q^2}{2\alpha^2}\right)^{m_z} \left[ \frac{1}{m_z!} \left(2^{m_z-2} m_z - 2^{m_z+1} m_z^2\right) \right. \\ & - \frac{1}{\alpha_j^2 m_z!} \left(2^{m_z-1} q^2 - 2^{m_z-2} q^2\right) + \frac{1}{q^2 m_z!} \left(2^{m_z+2} m_z \alpha^2 \right. \\ & \left. - 2^{m_z+1} m_z^2 \alpha_j^2 - 2^{m_z+2} 3 m_z^2 \alpha^2 + 2^{m_z+1} 3 m_z^3 \alpha^2\right) + \\ & \frac{1}{q^4 m_z!} \left(-2^{m_z+4} m_z^2 \alpha^2 + 2^{m_z+3} m_z^3 \alpha_j^4 + 2^{m_z+4} m_z^3 \alpha_j^4 + \right. \\ & \left. - 2^{m_z+3} m_z^4 \alpha^4\right) + \frac{1}{q^6 m_z!} \left(-2^{m_z+3} m_z^2 \alpha^6 + 2^{m_z+2} m_z^3 \alpha^6 + \right. \\ & \left. 2^{m_z+4} m_z^3 \alpha^6 - 2^{m_z+4} m_z^4 \alpha^6 + 2^{m_z+2} m_z^5 \alpha^6\right) \left. \right]. \quad (4.47) \end{aligned}$$

De igual forma que en los casos anteriores, de la expresión anterior se obtiene la SEPF integrando la ec. (4.1) e identificando a la función gamma incompleta, además de notar que:  $E_{m_j - E_{m_{0j}}} = \hbar\omega_{0i}(m_z - 2)$ . Debido a la gran cantidad de términos involucrados en  $F_{m_z 2}^j(\mathbf{q})$  solo presento la expresión que encontré para la SEPF que incorpora la simetría orbital  $d_z$ :

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{d_z}(v), \quad (4.48)$$

donde el número de frenamiento es:

$$\begin{aligned} L_{d_z}(v) = & - \sum_{m_z > 2}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{m_z - 2}{4m_z!} \times \\ & \left[ (m_z - 1)^2 m_z^2 \left( \Gamma(m_z - 3, q_{max}) - \Gamma(m_z - 3, q_{min}) \right) - \right. \\ & (m_z - 1) m_z^2 \left( \Gamma(m_z - 2, q_{max}) - \Gamma(m_z - 2, q_{min}) \right) - \\ & 6(m_z^2 - m_z) \left( \Gamma(m_z - 1, q_{max}) - \Gamma(m_z - 1, q_{min}) \right) + \\ & \left. \left( \Gamma(m_z + 1, q_{max}) - \Gamma(m_z + 1, q_{min}) \right) \right]. \quad (4.49) \end{aligned}$$

donde  $\Gamma(m_z, q_{min}, q_{max})$  es la función gamma incompleta evaluada en los siguientes límites:

$$q_{max} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 + \sqrt{1 - \frac{2\hbar \omega_{0i}(m_z - 2)}{M_1 v^2}} \right], \quad q_{min} = \frac{M_1^2 v^2}{2m_e \hbar \omega_{0i}} \left[ 1 - \sqrt{1 - \frac{2\hbar \omega_{0i}(m_z - 2)}{M_1 v^2}} \right]. \quad (4.50)$$

### Contribución en $d_x$ y $d_y$

Ahora se considera que el número cuántico es  $n = (0, 2, 0)_y$ , por lo tanto el factor de forma, ec. (4.7), es:

$$M_{m_2}^j(\mathbf{q}) = \langle m | e^{-iqz} | 2 \rangle = \int \psi_{m_x, m_y, m_z}(x, y, z) e^{-iqz}(x, y, z) \psi_{0, 2, 0} d\mathbf{r}.$$

Utilizando las ecs. (4.19), (4.20) y (4.25) para  $n_y = 2$  se obtiene:

$$M_{m_2}^j(\mathbf{q}) = \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^{m_x + m_y + m_z} m_x! m_y! m_z!}} \right] \left[ \left( \frac{\alpha^2}{\pi} \right)^{3/4} \frac{1}{\sqrt{2^2 2!}} \right] \left[ \delta_{m_x, n_x=0} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_x} m_x!}{\alpha} \right] \\ \times \left[ \delta_{m_y, n_y=2} \frac{\sqrt{\pi} 2^{m_y} m_y!}{\alpha} \right] \left[ \frac{2^{m_z} \pi^{1/2}}{\alpha} e^{-q^2/4\alpha^2} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} L_0^{m_z} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right) \right].$$

donde la función de Laguerre es la misma que para el caso de  $l = 0$ , es decir  $L_0^{m_z} (q^2/2\alpha^2) = 1$ . Por lo tanto, el factor de forma para el orbital  $d_y$  es similar al de la ec. (4.28), salvo por el factor  $2^{-m_z/2}$ , esto es:

$$M_{m_2}^j(\mathbf{q}) = 2^{-m_z/2} \frac{2^{m_z}}{\sqrt{m_z!}} \left( \frac{iq}{2\alpha} \right)^{m_z} e^{-q^2/4\alpha^2}. \quad (4.51)$$

Por lo tanto las TOG son la ec. (4.29), salvo por el factor  $2^{-m_z}$ , e iguales a la ec. (4.39), es decir:

$$F_{m_2}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{-m_z}}{(m_z - 1)!} \left( \frac{q^2}{2\alpha^2} \right)^{m_z - 1} e^{-q^2/2\alpha^2}. \quad (4.52)$$

y de igual forma que en el caso de la simetría orbital  $s$ , se integra la SEPF tomando en cuenta las TOG en términos del vector de onda. Notando que la excitación de energía es:  $E_{m_j} - E_{m_0j} = \hbar \omega_{0i}(m_z - 2)$ , se obtiene que la SEPF es:

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{p_y}(v) \quad (4.53)$$

donde el número de frenamiento es:

$$L_{d_y}(v) = \sum_{m_z > 2}^{\lfloor E_p/I_{0i} \rfloor} \frac{2^{-m_z}}{2(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right]. \quad (4.54)$$

Notando que el resultado anterior, ec. (4.53), es similar al de la ec. (4.30) salvo por el factor  $2^{-m_z}$  y donde los límites están dados por la ec. (4.50).



Ahora consideremos el caso en que el número cuántico es  $n = (2, 0, 0)_x$ , realizando las operaciones correspondientes, de igual forma que en los casos anteriores, se obtiene que la SEPF es igual al de la ec. (4.53) e iguales a la contribución orbital  $p_{x,y}$ . Por lo tanto, la SEPF en  $d_x$  es:

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{d_x}(v) \quad (4.55)$$

donde el número de frenamiento es:

$$L_{p_x}(v) = \sum_{m_z > 2}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{2^{-m_z}}{2(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right], \quad (4.56)$$

donde los límites son la ec. (4.50).

## 4.5 Teorema de Virial y la energía media de excitación

Una vez obtenidas las relaciones que nos permiten tomar en cuenta las diferentes simetrías orbitales del blanco se debe notar que estas expresiones están en función de una variable llamada: *energía media de excitación*, denotada por  $I_0$  y definida previamente en la sección 3.2 como: *la energía promedio que absorben los electrones del blanco cuando colisionan con el proyectil*. Esta energía está definida a través de las tensiones de oscilador dipolar (TOD). Por lo tanto, si se calculan estas TOD bajo el modelo del oscilador armónico, se encuentra que la frecuencia angular y dicha energía están relacionadas de la siguiente forma:

$$I_{0i} = \hbar \omega_{0i}. \quad (4.57)$$

Por otro lado, se conoce que el *teorema de Virial* (ver ref. [27]) para el caso del OA es  $\langle T_i \rangle = \langle V_i \rangle_{OH}$  donde  $\langle V_i \rangle_{OH} = m_e \omega_o^2 \langle r_i^2 \rangle / 2$ . Para un potencial estilo Coulomb se tiene:  $\langle T_i \rangle = -\langle V_i \rangle / 2 = -\epsilon_{0i}$ , donde  $\epsilon_{0i}$  es la energía orbital electrónica para el  $i$ -ésimo orbital (ver ref. [14]). De este modo la energía media de excitación es:

$$I_{0i} = \sqrt{-\frac{2\hbar^2 \epsilon_{0i}}{m_e \langle r_i^2 \rangle}}, \quad (4.58)$$

ó

$$\omega_{0i} = \sqrt{\frac{-2\epsilon_{0i}}{m_e \langle r_i^2 \rangle}}. \quad (4.59)$$

Se observa de las ecuaciones anteriores que la  $I_{0i}$  está dada como una contribución orbital en términos de propiedades electrónicas  $\epsilon_{0i}$  y  $\langle r_i^2 \rangle$  de los átomos. Estas propiedades electrónicas están reportados en tablas de datos atómicas (ver ref. [34, 35]).

### 4.5.1 Ejemplo

Ahora se mostrará como utilizar las ecs. (4.58-4.59) para obtener la energía media de excitación a partir de las tablas de datos atómicos reportados por Clementi-Roetti y Bunge *et al* (ver ref. [34, 35]) para el neón ( $Z = 10$ ). Comencemos describiendo las cantidades que aparecen en la ec. (4.58),  $\epsilon_{0i}$  es la energía orbital electrónica para el  $i$ -ésimo electrón,  $\langle r_i^2 \rangle$  es el valor esperado del radio orbital  $r_i$  al cuadrado. Recordemos que la configuración electrónica del neón es  $1s2s2p$  y debido a que la energía media de excitación está en función de una descomposición orbital podemos obtener una  $I_{0i}$  para cada orbital.

$\epsilon_{0i}$		NEON 1S(2)2S(2)2P(6), 1S					
		T.E.=-0.128547050+03		P.E.=-0.257093860+03			
		K.E.= 0.128546810+03		V.T.=-0.200000180+01			
$n_{\lambda,p}$	$c_{\lambda,p}$	$\zeta_{\lambda,p}$					
	BASIS/ORB E		1S	2S	P	2P	
1S	9.48486	0.93717	-32.77248	-1.93043	BASIS/ORB E	-0.85044	
1S	15.56590	0.04899	0.93717	-0.23093	2P	1.45208	0.21799
2S	1.96184	0.00058	0.04899	-0.00635	2P	2.38168	0.53338
2S	2.86423	-0.00064	0.00058	0.16620	2P	4.48489	0.32933
2S	4.82530	0.00551	-0.00064	0.66899	2P	9.13464	0.01872
2S	7.79242	0.01999	0.00551	0.30910			
			0.01999	-0.13871			

Figura 4.1: Datos atómicos para el átomo de neón reportados en las tablas de Clementi y Roetti (ver Ref. [35]).

En la fig. (4.1) se muestran los datos atómicos del neón, que se encuentran en las tablas de datos atómicos de Clementi y Roetti. De estas tablas se observa la energía orbital electrónica  $\epsilon_{0i}$ , sin embargo, no se reporta el valor esperado del radio al cuadrado  $\langle r_i^2 \rangle$  necesario para obtener  $I_{0i}$ . Para obtener  $\langle r_i^2 \rangle$  se hizo un programa en Mathematica<sup>3</sup> desarrollando las funciones de onda e implementando los resultados obtenidos por Clementi y Roetti. El valor esperado del radio al cuadrado en términos de funciones de Hartree-Fock es:

$$\langle r_i^2 \rangle = \int_0^\infty \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \psi_i(r, \theta, \phi) r^2 \psi_i^*(r, \theta, \phi) r^2 \sin(\theta) d\theta d\phi dr, \quad (4.60)$$

$$\psi_i(r, \theta, \phi) = \sum_{p=1}^5 \chi_{p,\lambda,\alpha}(r, \theta, \phi) c_{\lambda,p}, \quad \chi_{p,\lambda,\alpha}(r, \theta, \phi) = R_{\lambda,p}(r) Y_{\lambda,\alpha}(\theta, \phi),$$

donde la parte radial es:

$$R_{\lambda,p}(r) = ((2n_{\lambda,p})!)^{-1/2} (2\zeta_{\lambda,p})^{n_{\lambda,p}+1/2} r^{n_{\lambda,p}-1} e^{-\zeta_{\lambda,p} r}.$$

De la fig. (4.1) se observa que las cantidades  $c_{\lambda,p}$ ,  $n_{\lambda,p}$  y  $\zeta_{\lambda,p}$  ya fueron reportadas, ahora sólo queda realizar las operaciones empleando las relaciones anteriores. En la tabla 4.1 se muestran los datos atómicos para el neón, que son los reportados en la fig. (4.1). Se muestran los resultados para  $\langle r_i^2 \rangle$  obtenidos mediante la ec. (4.60) para cada orbital. Además en la misma tabla se muestra el empleo de la ec. (4.58) para obtener  $I_{0i}$ , sólo sustituyendo los valores correspondientes a cada orbital.

De igual forma, se emplearon los datos atómicos reportados por Bunge *et al* para obtener la energía media de excitación. En la fig. (4.2) se muestran los datos atómicos para el neón.

<sup>3</sup>Wolfram Mathematica: <http://www.wolfram.com/mathematica/>

```

NEON, Z=10      1s(2)2s(2)2p(6)  1S
TOTAL ENERGY      KINETIC ENERGY      POTENTIAL ENERGY      VIRIAL RATIO
-128.5470980      128.5471001      -257.0941980      -1.999999984

RHOat0 = 3895.0667      Kato cusp = 1.999933

ORB.ENERGY      1s      2s      ORB.ENERGY      2p
<R>      -32.772442      -1.930391      <R>      -0.850410
<R**2>      0.157631      0.892113      <R**2>      0.965273
<1/R>      0.033470      0.967082      <1/R>      1.228454
<1/R**2>      9.618054      1.632554      <1/R**2>      3.058859
<1/R**3>      187.196960      11.071475      <1/R**3>      10.906781

1S  13.9074      0.392290      -0.053023      2P  12.3239      0.004391
1S  8.2187      0.425817      0.419502      2P  5.6525      0.133955
3S  26.0325      -0.000702      -0.000263      2P  3.5570      0.342978
2S  11.9249      0.217206      -0.055723      2P  2.2056      0.395742
2S  4.2635      0.002300      -0.349457      2P  1.4948      0.221831
2S  2.8357      0.000463      -0.523070
2S  2.0715      0.000147      -0.246038
    
```

Figura 4.2: Datos atómicos para el átomo de neón reportados en las tablas de Bunge *et al* (ver ref. [34])

Hay que notar que Bunge *et al* ya reporta los datos para la energía orbital electrónica  $\epsilon_{0i}$  y el valor esperado del radio al cuadrado  $\langle r_i^2 \rangle$ . Por lo tanto, en la tabla 4.1 se muestran los datos atómicos reportados por Bunge *et al* para el neón (ver fig. 4.2).

En la fig. (4.3) se muestran la comparación de los datos atómicos para el neón empleando las tablas de Clementi-Roetti y Bunge. Además, se presentan los datos atómicos para el argón. De la tabla 4.3 se observa que la energía orbital es muy similar y sólo hay un cambio en la cuarta décima de precisión, i.e. para el neón en el orbital 2s y el argón en el orbital 3s. Sin embargo, estos cambios no se ven reflejados en la energía de excitación media ya que al final sólo se toman en cuenta dos cifras de precisión para obtener  $I_{0i}$ . De igual forma, en la tabla 4.3 se observa el valor del radio orbital reportado por Bunge *et al* y el que se calculó mediante la ec. (4.60) para el neón y argón, de aquí se observa que son similares.

Z	Átomo	Orbital	$\epsilon_{0i}$ (hartrees)	$\langle r_i^2 \rangle$ (u.a.)	$I_{0i}$ (eV)
10	Ne	1s	0.0335	-32.7722	1203.68
		2s	0.9671	-1.9304	54.35
		2p	1.2285	-0.8504	32.00

Tabla 4.1: Datos atómicos reportados por Clementi y Roetti en su descomposición orbital para el caso del neón.

Z	Átomo	Orb.	$\langle r_i^2 \rangle$ (u.a.)	$\epsilon_k$ (hartrees)	$I_{0i}$ (eV)
10	Ne	1s	0.0335	-32.7722	1203.68
		2s	0.9671	-1.9304	54.35
		2p	1.2285	-0.8504	32.00

Tabla 4.2: Datos atómicos para el átomo de neón reportados en las tablas de Bunge *et al* (ver Ref. [34]).

Sin embargo, para el orbital 1s del argón se observa un cambio significativo en la energía de excitación media, debido al valor de la energía orbital (ver tabla 4.3).

Z	Átomo	Orb.	Clementi-Roetti			Bunge		
			$\langle r_i^2 \rangle$	$\epsilon_k$	$I_{0i}$	$\langle r_i^2 \rangle$	$\epsilon_k$	$I_{0i}$
10	Ne	1s	0.0335	-32.7725	1203.68	0.0335	-32.7722	1203.68
		2s	0.9672	-1.9304	54.35	0.9671	-1.9304	54.35
		2p	1.2291	-0.8504	32.00	1.2285	-0.8504	32.00
18	Ar	1s	0.0100	-118.6104	4197.87	0.0099	-118.6103	4197.74
		2s	0.2012	-12.3222	301.02	0.2012	-12.3222	301.01
		2p	0.1743	-9.5715	285.01	0.1743	-9.5715	285.02
		3s	2.3505	-1.2773	28.36	2.3504	-1.2774	28.36
		3p	3.3110	-0.5910	16.25	3.3108	-0.5910	16.25

Tabla 4.3: Datos atómicos reportados por Clementi y Roetti en su descomposición orbital para el caso del Ne y Ar. Además se presentan los datos atómicos de Bunge para Ne y Ar.

Como se observa de la tablas anteriores, para la  $I_{0i}$ , los resultados al emplear las tablas de Clementi-Roetti o las de Bunge *et al* no cambian significativamente entre ellos. Sin embargo, a lo largo del trabajo se emplearán las tablas de Bunge *et al* para obtener la energía media de excitación, esto se debe simplemente a la precisión hecha en los cálculos y a que se toman en cuenta efectos relativistas.



## Capítulo 5

# Ley de escalamiento y SEPF para átomos

Aquí, se emplean las fórmulas del capítulo anterior para obtener la SEPF. Se consideran protones en átomos de capa cerrada y capa abierta. Para átomos con simetría orbital “*s*”, se observa que tienen un escalamiento universal para números atómicos  $Z \leq 4$ . Se propone una curva universal, en términos de la energía media de excitación, que se ajusta a nuestro modelo del OA para la simetría orbital “*s*”. De la evaluación numérica, se obtiene que la curva universal tiene un error menor al 1% con respecto a los resultados analíticos del OA. A partir de la ecuación universal, se obtiene la SEPF para varios átomos (He, Li, Be). Para átomos con  $Z \geq 5$  se observa que la ecuación universal con simetría orbital “*s*” no describe correctamente la SEPF. Esto se debe a que en esta ecuación no se consideran los efectos relacionados a las simetrías orbitales “*p*” o “*d*” del blanco. Por lo tanto, se emplea una combinación de las fórmulas encontradas en el capítulo anterior para átomos con número atómico entre  $5 \leq Z \leq 54$  según su configuración electrónica y así obtener la SEPF. Los resultados muestran buen acuerdo con los datos experimentales en la región de altas energías, donde es válido este modelo.

### 5.1 Ley de escalamiento en la simetría “*s*”

Para obtener una ecuación universal que dependa de la SEPF, observamos de las ec. (4.30) a (4.32), que podemos realizar un cambio de variable del tipo  $y = E_p/I_{0i}$  donde  $y$  es una variable adimensional,  $E_p$  es la energía del proyectil e  $I_{0i}$  es la energía media de excitación. Este cambio de variable nos permite dejar en términos de variables adimensionales a la ec. (4.30). Del lado derecho depende de propiedades del blanco y del lado izquierdo queda una expresión en términos de las propiedades del blanco y el proyectil. Realizando este cambio de variable se obtiene una curva universal que está dentro de la primera aproximación de Born y que sólo depende de las propiedades del blanco. Esta curva universal para la simetría “*s*” es:

$$\frac{m_e I_{0i}}{4\pi e^4 M_1 Z_p^2} S_{e,i}(v) = f(y), \quad (5.1)$$

donde:

$$f(y) = \sum_{m_z=1}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{1}{y(m_z - 1)!} \left[ \Gamma(m_z - 1, q_{min}) - \Gamma(m_z - 1, q_{max}) \right], \quad (5.2)$$

los corchetes del cociente  $[E_p/I_{0i}]$  indican que se consideran sólo los números enteros y los límites son:

$$q_{min}(y) = \frac{M_1}{m_e} y \left( 1 - \sqrt{1 - m_z/y} \right), \quad q_{max}(y) = \frac{M_1}{m_e} y \left( 1 + \sqrt{1 - m_z/y} \right). \quad (5.3)$$

De la ec. (5.1) y (5.2) se observa que después del cambio de variable sólo existe una dependencia de la masa  $M_1$  del lado izquierdo. Este efecto es conocido como el *efecto isotópico del proyectil* y es debido a la transferencia de momento (ver ref. [7]). En la fig. 5.1 se presenta la evaluación numérica de la ec. (5.1) (símbolos azules), considerando a un protón como proyectil, i.e. donde  $M_1 = m_p$  es la masa del proyectil.

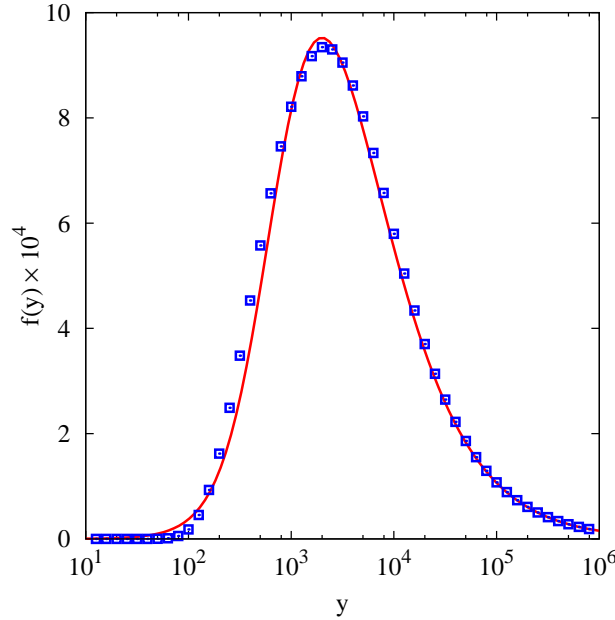


Figura 5.1: Símbolos azules: evaluación numérica de la ec. (5.1) para  $f(y)$ ; línea roja: curva analítica propuesta en la ec. (5.4).

Para obtener la curva universal en términos analíticos simples, se parte de la idea que originalmente utilizó Bohr en su modelo analítico para la sección eficaz de poder de frenamiento nuclear debida a un potencial central ec. (2.14), presentada en el capítulo 2. A partir de aquí se propone una ecuación del tipo

$$f(y) = \frac{\ln \left( 1 + \left( \frac{4m_e}{M_1} y \right)^2 \right)}{c + y}, \quad (5.4)$$

que se ajusta numéricamente al resultado analítico del OA, ec. (5.2). Donde el valor de la constante es  $c = 1145.23$  para un error menor al 1% en la evaluación numérica de la ec. (5.1) en el intervalo de energías  $y \geq 800$ , que está dentro de la región de validez de la primera

aproximación de Born. Se observa que, para valores grandes de  $y$ , la ec. (5.1) se reduce al resultado de Bethe, y para valores pequeños describe correctamente al OA. En la fig. 5.1 se muestra la curva que representa la ec. (5.4).

Z	Átomo	$I_0^{fit}$ (eV)	Z	Átomo	$I_0^{fit}$ (eV)
2	He	31.56	5	B	32.51
3	Li	35.22	8	O	51.22
4	Be	37.36	10	Ne	73.89

Tabla 5.1: La energía media de excitación para He, Li, Be, B, O y Ne. Todos los valores presentan un error numérico menor al 1.5%.

En las figs. 5.2 y 5.4, se presenta la SEPF para protones colisionando en Li, He, Li, Be, B, O y Ne empleando la fórmula universal, ec. (5.4).

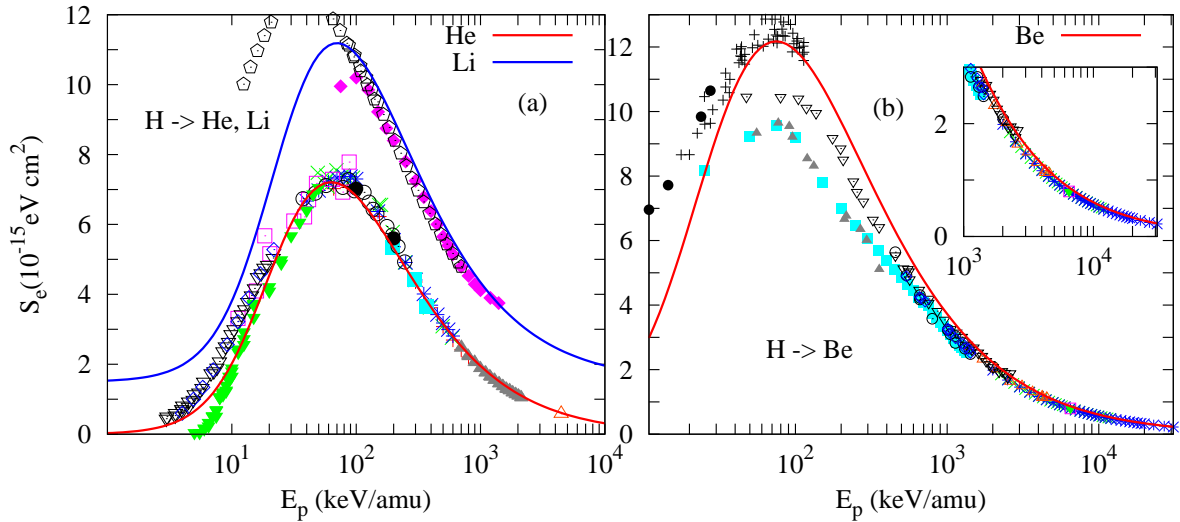


Figura 5.2: La SEPF  $S_e$  para protones en gas de He, Li y Be. (a): la ec. (5.2) representa la línea roja (He) y línea azul (Li) desfasada +1.5 en el eje  $S_e$ ; (b): la línea roja (Be) representa la ec. (5.2). Los datos experimentales se obtuvieron de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

Recordemos que para el He, Li y Be la configuración electrónica es sólo para el orbital “s” ( $1s^2 2s^2$ ). De la fig. 5.2 se observa que la ecuación universal describe correctamente la SEPF para la región de altas energías para el He, Li y Be. En particular, para el He se encuentra un buen acuerdo para todo el intervalo de energías. Al obtener la SEPF, ec. (5.1), utilizando la ec. (5.4), se define a la energía media de excitación de ajuste como  $I_0^{fit}$ . Aquí,  $I_0^{fit}$  juega el papel de el único parámetro ajustable a los datos experimentales correspondientes. Los valores de  $I_0^{fit}$  están reportados en la tabla 5.1 y todos los valores presentan un error numérico menor al 1.5%.

En la fig. 5.3 se muestran los datos experimentales de la SEPF escalados a la ecuación universal (5.4) para el He, Li y Be. En la figura se observa que en la región de altas energías los datos experimentales son descritos por la curva universal para la simetría orbital “s”. En



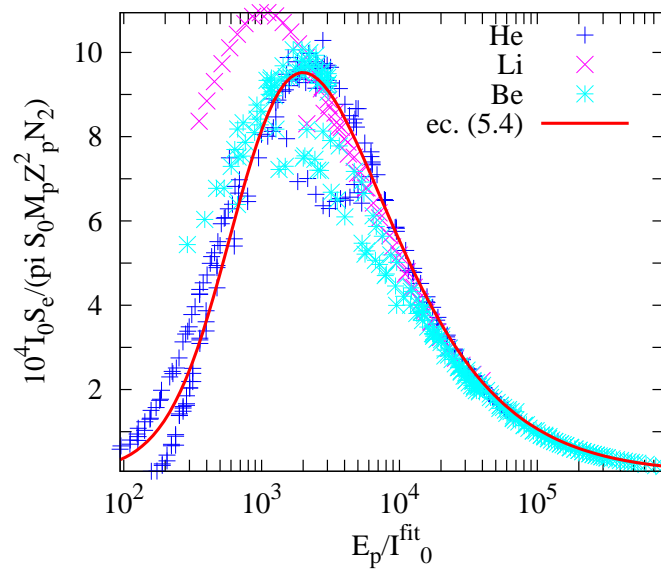


Figura 5.3: Datos experimentales de la SEPF  $S_e$  escalados a la ecuación universal, ec. (5.4), para protones colisionando en gas He, Li y Be. Los datos experimentales se obtuvieron de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

la región de energías bajas-intermedias el modelo falla, esto debido a que en este modelo no se consideran contribuciones como la carga efectiva del proyectil y captura electrónica (ver ref. [14]).

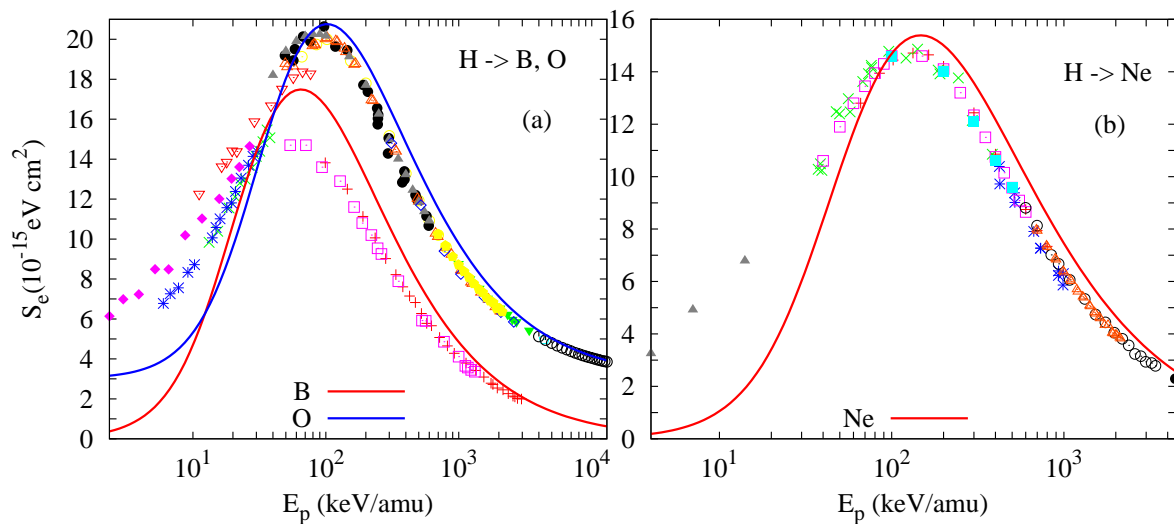


Figura 5.4: La SEPF  $S_e$  para protones colisionando en gas de Boro, Oxígeno y Neón. (a): la ec. (5.2) es representada por la línea roja (B) y línea azul (O) desfasada +3 en el eje  $S_e$ ; (b): la línea roja (Ne) representa la ec. (5.2). Los datos experimentales se obtuvieron de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

En la configuración electrónica de átomos con número atómico entre  $5 \leq Z \leq 10$  se van llenando en la capa “ $p$ ”, se espera que la fórmula universal no sea una buena aproximación. Esto se debe a que hemos partido de la expresión analítica encontrada en el modelo del OA para la simetría orbital “ $s$ ”. Como se observa de la fig. (5.2), para el átomo de O y Ne, en el intervalo de validez de esta aproximación, la ley de escalamiento queda por arriba de los datos experimentales. Aquí se observa que es necesario incorporar los efectos de las simetrías orbitales “ $p$ ” y “ $d$ ” en el cálculo de la SEPF para obtener mejores resultados.

### 5.1.1 Protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases

La ley universal, ec. (5.4), se puede emplear para obtener la SEPF electrónica para moléculas y nucleobases en términos de la descomposición orbital si el orbital es de tipo  $\sigma$  (simetría “ $s$ ”). Así, utilizando el modelo de OA junto con el modelo de *Orbitales Gaussianos Esféricos Flotantes* (FSGO por sus siglas en Inglés) podemos obtener una descripción adecuada de la SEPF electrónica (ver ref. [11]). El modelo de FSGO proporciona una manera de tomar en cuenta la composición química del blanco. Esta aproximación nos permite usar las contribuciones de orbitales de enlaces, orbitales internos y pares solitarios en las que puede ser descrita una molécula. En el artículo de L.N. Trujillo-López *et al* ( ver ref. [7]) empleamos este método para describir la sección eficaz de poder de frenamiento electrónico cuando protones colisionan en moléculas pequeñas en estado gaseoso:  $H_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2O$ ,  $C_2H_2$ ,  $CH_4$  y  $CO_2$ ; y también en nucleobases en estado gaseoso: guanina ( $C_5H_5N_5O$ ), citosina ( $C_4H_5N_2O_2$ ), tiamina ( $C_5H_6N_2O_2$ ), adenina ( $C_5H_5N_5$ ) y uracil ( $C_4H_4N_2O_2$ ). Básicamente el método empleado consistió en ver la relación que existe entre el modelo del OA y el FSGO, ambos en el estado base y así poder encontrar una forma de relacionar el parámetro de la frecuencia angular con el radio orbital. La relación entre estos dos parámetros permite encontrar la energía media de excitación en términos de la descomposición en orbitales de enlace, orbitales internos, pares solitarios y así encontrar la SEPF bajo la misma descomposición empleando la ecuación universal, ec. (5.4). Para obtener más detalles del método empleado en este trabajo así como los resultados obtenidos consultar la ref. [7] que agregó en el apéndice B. Además véase la tesis de maestría de L.N. Trujillo-López (ver ref. [6]).

## 5.2 Sección eficaz de poder de frenamiento

En la sección anterior vimos que la simetría del blanco es de suma importancia en el cálculo de la SEPF electrónica. Estos efectos son incorporados en las expresiones presentadas en el capítulo 4, en donde hemos considerado como primera aproximación el cálculo en coordenadas cartesianas. En esta sección se muestran los resultados obtenidos para dos casos: cuando los átomos son de capa cerrada (gases nobles), i.e. Ne, Ar, Kr Xe y cuando los átomos son de capa abierta, i.e. Ca, Sr, N, Si, Fe, Mo. Los resultados muestran un buen acuerdo cuando se comparan con los datos experimentales en la región de altas energías.

### 5.2.1 Energía media de excitación

En la tabla 5.2 se muestra la energía media de excitación  $I_{0i}$  (en  $eV$ ) para gases nobles, empleando los datos atómicos reportados por Bunge *et al* (ver Ref. [34]), utilizando las expresiones encontradas en la sección 4.5. En la tabla 5.3 se muestran los resultados obtenidos para la energía media de excitación para el caso de diferentes átomos de capa abierta. En

esta última tabla sólo se presentan las energías por orbital sin los datos atómicos correspondientes. Recordemos que, para obtener los datos atómicos reportados por Bunge *et al*, se usan las funciones de onda atómicas tipo Roothaan-Hartree-Fock para los átomos en estado fundamental. Por otro lado, con el fin de comparar los resultados presentados en la tabla 5.2, también se muestra la energía media de excitación para los gases nobles en su descomposición orbital calculado dentro de varios enfoques. Se presentan los cálculos de Oddershede y Sabin (OS) (ver ref. [12]) que utilizan las tablas de datos atómicos de Clementi y Roetti. Meltzer, Sabin y Trickey (MST) (ver ref. [13]) hacen lo propio por medio de la generalización de la densidad orbital en la aproximación local del plasma (LPA) calculada con la aproximación local de densidad de espín. Cabe mencionar que Cabrera-Trujillo (ver ref. [14]) calcula la energía media de excitación usando las tablas de datos atómicos de Clementi y Roetti (ver ref. [35]) bajo el mismo modelo que aquí se presenta. En otras palabras, en este trabajo de tesis se reproducen satisfactoriamente los valores encontrados para  $I_{0i}$  presentados en la ref. [14]. El objetivo de utilizar las tablas de datos atómicos reportados por Bunge es tener una energía de excitación media más precisa debido a los cambios significativos de la energía orbital electrónica y radio orbital reportados entre las tablas de Clementi-Roetti y Bunge *et al*. Estas energías serán utilizadas en la siguiente sección cuando calculemos la SEPF en su descomposición orbital.

### 5.2.2 Átomos de capa cerrada

En la sección anterior calculamos la energía media de excitación por contribución orbital para átomos, en particular en la tabla 5.2 se muestran los resultados para átomos nobles. Ahora emplearemos los valores de  $I_{0i}$  para calcular la SEPF para Ne, Ar, Kr y Xe. En la Fig. 5.5 y 5.6 se muestran los resultados de la sección eficaz de poder de frenamiento para el caso en que protones colisionan con átomos nobles. Para esto usamos combinaciones de los resultados encontrados en el capítulo anterior para las simetrías de los orbitales “*s*”, “*p*” y “*d*”. Para el gas de Helio no reportamos la SEPF, ya que sería la misma de la fig. 5.2. En el caso del Helio, la fórmula para la SEPF, ec. (4.30), funciona bien en el régimen de bajas energías, a pesar de que la teoría desarrollada está basada en la primera aproximación de Born. Sin embargo, este resultado ya era conocido y fue reportado en la ref. [14].

En la fig. 5.5 se muestran los resultados para neón usando diferentes contribuciones orbitales, esto es, se toman en cuenta las contribuciones orbitales de acuerdo a la configuración electrónica de cada átomo. En la tabla 5.4 se muestran las contribuciones y las ecuaciones que se tomaron en cuenta para cada combinación de la SEPF. De la figura 5.5 se observa para el Ne, que se han tomando en cuenta dos contribuciones totales para la SEPF, estas son:  $S_{p_z}$  (línea roja) y  $S_{p_{x,y}}$  (línea azul). En la misma figura se muestra la contribución a la SEPF del orbital externo  $2p$  en la contribución  $S_{p_z}$  (línea morada). Comparando nuestra aproximación teórica con los datos experimentales, se observa un buen acuerdo para la región de altas energías si sólo tomamos en cuenta la contribución de los electrones de valencia (orbital  $2p$ , línea morada). En la misma figura se muestran los resultados obtenidos empleando sólo la expresión para la simetría orbital “*s*”. En otras palabras, para los orbitales “*p*” se empleó el resultado analítico para la simetría “*s*”, ec. (4.30) (Línea rosa). Cuando se obtiene la SEPF total, se observa que la curva asociada tiene la pendiente correcta a altas energías en las contribuciones  $S_s$ ,  $S_{p_z}$  y  $S_{p_{x,y}}$ , sin embargo, la aproximación está por arriba (o debajo) de los datos experimentales. Este comportamiento lo atribuimos a que estamos considerando al protón como una carga congelada, es decir, despreciamos captura electrónica por el proyectil.

Z	Átomo	Orb.	$\langle r_i^2 \rangle$ (u.a.)	$\epsilon_k$ (hartrees)	$I_{0i}$ (eV)	$I_k^{MST}$ (eV)	$I_k^{OS}$ (eV)
2	He	1s	1.1848	-0.9180	33.86	33.66	38.83
10	Ne	1s	0.0335	-32.7722	1203.68	497.75	982.68
		2s	0.9671	-1.9304	54.35	38.35	92.22
		2p	1.2285	-0.8504	32.00	70.81	81.37
18	Ar	1s	0.0099	-118.6103	4197.74	1241.21	1948.72
		2s	0.2012	-12.3222	301.01	125.13	388.29
		2p	0.1743	-9.5715	285.02	297.87	572.56
		3s	2.3504	-1.2774	28.36	20.53	49.93
36	Kr	3p	3.3108	-0.5910	16.25	33.17	32.95
		1s	0.0024	-520.1655	17863.50	3599.10	4229.23
		2s	0.0413	-69.9031	1582.93	419.46	1353.15
		2p	0.0320	-63.0098	1706.81	1062.50	1588.54
		3s	0.3317	-10.8495	219.99	88.12	290.12
		3p	0.3435	-8.3315	189.43	183.57	344.29
54	Xe	3d	0.3715	-3.8252	123.44	224.99	564.77
		4s	3.0403	-1.1529	23.69	17.27	38.22
		4p	4.4548	-0.5249	13.19	27.68	23.81
		1s	0.0011	-1224.3978	41361.5		
		2s	0.0172	-189.3401	4040.61		
		2p	0.0129	-177.7824	4513.16		
		3s	0.1159	-40.1757	716.28		
		3p	0.1108	-35.2217	685.80		
		3d	0.0926	-26.1189	645.92		
		4s	0.6256	-7.8563	136.32		
		4p	0.6855	-6.0083	113.88		
		4d	0.8809	-2.7779	68.31		
		5s	4.4401	-0.9444	17.74		
		5p	6.2764	-0.4573	10.38		

Tabla 5.2: La energía media de excitación (en eV) para gases nobles, calculada con la ec. (4.58) y el valor de expectación dado por  $\langle r_i^2 \rangle$  a través de las tablas reportadas por Bunge et al. [34]  $I_k$ ;  $I_k^{MST}$  son de la ref. [13] y  $I_k^{OS}$  son de la ref. [12].

Recordando que el momento transferido sólo lo hemos tomado a lo largo del eje  $z$ , en este caso la contribución  $S_{p_z}$  toma en cuenta dicha característica.

En la misma figura 5.5, del lado derecho, se muestran los resultados para el gas de argón implementando los resultados para las simetrías orbitales “ $s$ ” y “ $p$ ” del blanco, ecs. (4.30) y (4.36), respectivamente. La línea roja muestra la contribución orbital total  $S_{p_z}$ , la línea azul es la contribución  $S_{p_{x,y}}$  (ver tabla 5.4). La línea rosa es la contribución orbital  $S_s$ , esto es, los orbitales “ $p$ ” se describen con el resultado para el orbital “ $s$ ”. Para la contribución  $S_s$ , se observa de la fig. 5.5 que es necesario incluir el efecto de la simetría orbital “ $p$ ” para tener una descripción más apropiada de la SEPF. También se observa que la pendiente no es correcta en toda la región de energías. Como se puede observar de la figura 5.5, al incorporar las contribuciones orbitales “ $p$ ”,  $S_{p_z}$  y  $S_{p_{x,y}}$ , se tiene la pendiente correcta para valores de  $E_p \geq 200$  keV en el caso de  $S_{p_z}$  y  $E_p \geq 200$  keV para  $S_{p_{x,y}}$ . Sin embargo,

Z	Átomo	Orb.	$I_k$ (eV)	Z	Átomo	Orb.	$I_k$ (eV)	Z	Átomo	Orb.	$I_k$ (eV)
7	N	1s	573.70	38	Sr	1s	1991.60	42	Mo	4s	67.79
		2s	25.51			2s	1800.88			4p	25.34
		2p <sup>3</sup>	18.16			2p	1953.72			4d	5.55
14	Si	1s	2469.16	26	Fe	3s	264.02	42	Mo	1s	24602.90
		2s	155.39			3d	168.39			2s	2271.39
		2p	132.32			4s	35.79			2p	2488.15
		3s	11.87			4p	23.85			3s	354.38
20	Ca	1s	5248.53	26	Fe	5s	3.28	42	Mo	3p	322.09
		2s	399.24			3p	232.98			4s	259.16
		2p	391.28			1s	9085.73			4p	52.62
		3s	46.36			2s	745.68			4d	37.42
		3p	32.24			2p	770.22			5s	11.09
		4s	3.76			3s	89.32			5p	4.41

Tabla 5.3: La energía media de excitación (en eV) para átomos usando la ec. (4.58) y el valor de expectación  $\langle r_i^2 \rangle$  a través de las tablas reportadas por Bunge et. al. [34]  $I_k$ .

estas contribuciones quedan por arriba (o debajo) de los datos experimentales. Para valores menores a estas energías la SEPF son incorrectas debido a que en el modelo presentado no se toman en cuenta procesos como el de captura electrónica que es muy común en la región de energías intermedias a bajas. Además hay que notar que al igual que en el caso anterior el momento transferido está incluido en  $S_{p_z}$ .

G. Schiwietz y P.L. Grande realizaron un estudio de la SEPF para gases nobles en la aproximación unitaria de convolución (UCA por sus siglas en Inglés, ver ref. [36]), aquí se toman en cuenta efectos tales como la excitación-ionización del blanco y la captura electrónica. En dicho trabajo se muestran diferentes contribuciones a la SEPF mediante contribuciones a los efectos de excitación-ionización. Para el caso de protones en He, ellos presentan una curva para todo el intervalo de energías teniendo buen acuerdo con datos experimentales. En el caso de Ne, su modelo presenta un buen acuerdo para energías mayores a  $E_p = 300$  keV. Para el caso de Ar, a energías mayores a  $E_p = 100$  keV se muestra un buen acuerdo con los datos experimentales. Notemos que mis resultados conciden con los que se presentan en el trabajo de G. Schiwietz y P.L. Grande en la región de altas energías.

En la fig. 5.6 se muestran los resultados para protones en los gases de kriptón y xenón. Para ambos casos se toman en cuenta las simetrías orbitales “s”, “p” y “d” de los blancos.

$S_{Total}$	Contribución Orbital	Ecuación
$S_{p_z}$	$S_s + S_{p_z}$	(4.30), (4.36)
$S_{p_{x,y}}$	$S_s + S_{p_{x,y}}$	(4.30), (4.41,4.43)
$S_{p_z,d_z}$	$S_s + S_{p_z} + S_{d_z}$	(4.30), (4.36), (4.48)
$S_{p_z,d_{x,y}}$	$S_s + S_{p_z} + S_{d_{x,y}}$	(4.30), (4.36), (4.53,4.55)
$S_{p_{x,y},d_z}$	$S_s + S_{p_{x,y}} + S_{d_z}$	(4.30), (4.41,4.43), (4.48)

Tabla 5.4: Contribuciones orbitales totales a la SEPF según las ecuaciones obtenidas en el capítulo 4. Ver figuras para las implementación de estas secciones eficaces totales.

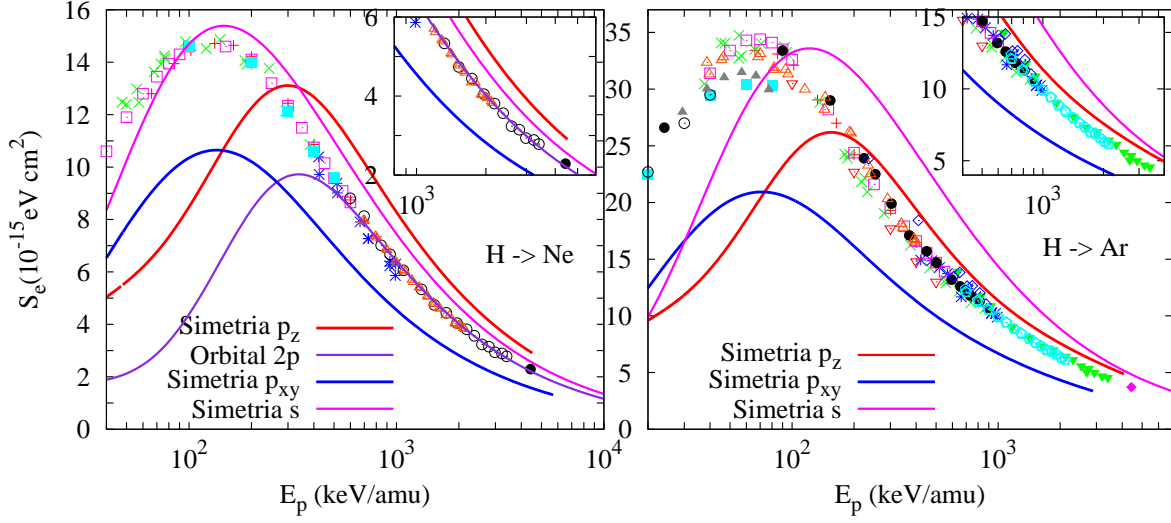


Figura 5.5: La SEPF  $S_e$  para protones en gas de Neón y Argón usando los resultados para las simetrías orbitales “s” y “p”. Ver texto para los detalles de  $S_{p_z}$  y  $S_{p_{x,y}}$  y tabla 5.4. Los datos experimentales son de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

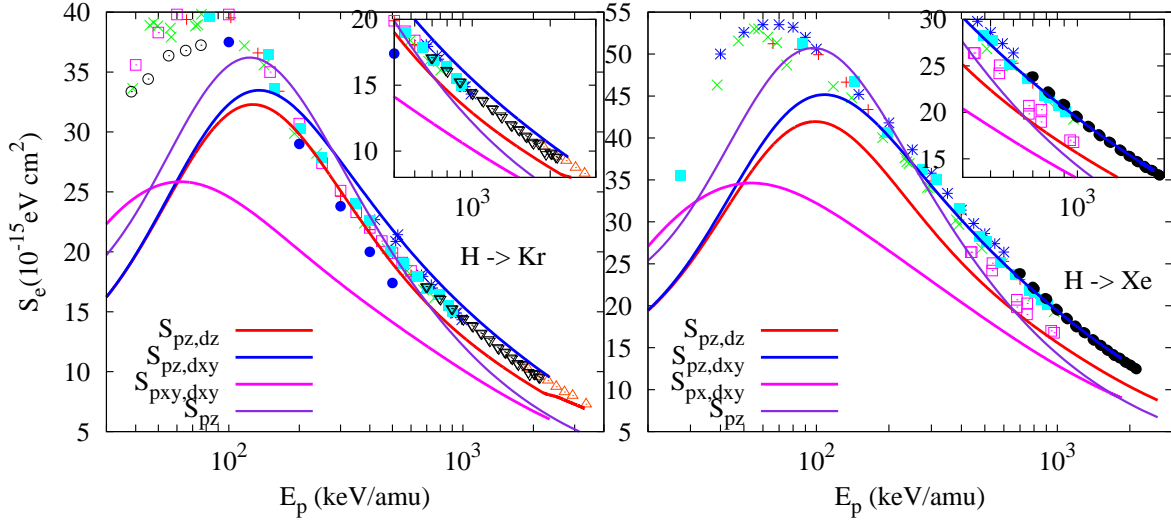


Figura 5.6: La SEPF  $S_e$  para protones colisionando en gas de kriptón y xenón usando los resultados para las simetrías orbitales “s”, “p” y “d”. Ver texto para los detalles de  $S_{p_z}$  y  $S_{p_{x,y}}$  y tabla 5.4. Los datos experimentales son de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

Para el kriptón, se presentan cuatro combinaciones:  $S_{p_z}$  (línea morada),  $S_{p_z,d_z}$  (línea roja),  $S_{p_z,d_{x,y}}$  (línea azul) y  $S_{p_{x,y},d_{x,y}}$  (línea rosa) conforme a la tabla 5.4. En la fig. 5.6 se observa la contribución  $S_{p_z}$ , donde se han tratado a los electrones en el orbital “d” con los resultados del orbital “p”. Esto para resaltar la necesidad de incluir en el cálculo de la SEPF la simetría orbital

“ $d$ ”. Se observa de la figura que en todo el intervalo de validez del modelo, la aproximación  $S_{p_z}$  tiene la pendiente incorrecta, y por lo tanto proporciona una descripción errónea de los datos experimentales. En los casos  $S_{p_z, d_z}$ ,  $S_{p_z, d_{x,y}}$  y  $S_{p_{x,y}, d_{x,y}}$  se observa que en la aproximación de OA se tienen las pendientes correctas en la región de altas energías. Sin embargo, en el caso de  $S_{p_z, d_{x,y}}$ , se obtiene la mejor aproximación para energías mayores a  $E_p \geq 300$  keV, que es la región de altas energías en donde el modelo es válido. Para la región de energías bajas-intermedias la descripción de la SEPF es incorrecta. Hay que recordar que el modelo de OA no toma en cuenta procesos de captura electrónica, que se presentan comunmente en la región de bajas energías. Cabe mencionar que en la contribución  $S_{p_z, d_{x,y}}$ , el momento transferido sólo está presente en el orbital  $p_z$ , en el orbital  $d_{x,y}$  no se considera. En otras palabras, el número cuántico principal  $n = (n_x, n_y, n_z)$  para el orbital  $p_z$  es  $n = 1 = (0, 0, 1)_z$  y para el orbital  $d_{x,y}$  es  $n = 2 = (0, 2, 0)_y$ . Aquí se observa que el número cuántico puede estar orientado en  $x$  o  $y$ , el subíndice  $d_{x,y}$  sólo nos indica que se han considerados ambos casos. Hay que notar que la SEPF en el caso de  $d_x$  y  $d_y$  es la misma (ver capítulo 4). La contribución  $S_{p_{x,y}, d_{x,y}}$  se observa que está muy por debajo de los datos experimentales. En el caso de xenón se presentan las mismas combinaciones para la SEPF que para el kriptón. Como se observa de la figura 5.6, la contribución  $S_{p_z, d_{x,y}}$  es la mejor aproximación para energías  $E_p \geq 300$  keV, que está constituida de la misma manera que para el caso anterior respecto a los números cuánticos.

### 5.2.3 Átomos de capa abierta

Ahora usaremos la aproximación del OA para calcular la sección eficaz de poder de frenamiento de protones colisionando en diferentes átomos de capa abierta. En la fig. 5.7, se muestra la SEPF para protones colisionando en átomos de calcio y estroncio con orbital externo  $4s$  y  $5s$ , respectivamente. En todas estas colisiones hemos usado los resultados encontrados en el capítulo 4 para las simetrías orbitales “ $s$ ”, “ $p$ ” y “ $d$ ” de los electrones. Como hicimos antes, utilizamos la contribución orbital para cada átomo y así obtenemos la SEPF total. Empleando la descomposición orbital, se observa que la contribución mayor a  $S_e$  está dada por los orbitales externos, que en este caso son con simetría orbital “ $s$ ”, además la forma de la pendiente en la curva total de la SEPF está determinada por este orbital externo, como se observa de la fig. 5.7. De igual forma, se observa el comportamiento usual del OA, si comparamos con el modelo de Bethe, ver ec. (4.13), encontramos que en esta aproximación no tenemos presente la divergencia del logaritmo. En estas figuras se muestran las contribuciones  $S_{p_z, d_z}$  y  $S_{p_z, d_{x,y}}$ . Para el Ca la primera contribución, a energías mayores a  $E_p \geq 500$  keV, presenta un buen acuerdo con los datos experimentales dentro de la región de validez del modelo. Para energías menores a 400 keV nuestro modelo falla debido a las mismas razones expuestas anteriormente. Para el gas de Sr, de igual forma, se grafican las dos contribuciones  $S_{p_z, d_z}$  y  $S_{p_z, d_{x,y}}$  observando un buen acuerdo con los datos experimentales disponibles para energías mayores a  $E_p \geq 300$  keV. A falta de datos experimentales, esperamos que nuestro modelo sirva como guía en la predicción de futuras mediciones de la SEPF a energías de  $E_p \geq 700$  keV.

En la fig. 5.8 se presenta la SEPF para protones colisionando en gases de nitrógeno y silicio con el orbital incompleto  $p$ . Para el blanco de N se presentan las dos contribuciones  $S_{p_z}$  (línea roja) y  $S_{p_{x,y}}$  (línea azul). Se observa que, para valores de energía arriba de  $E_p \geq 200$  keV tenemos un excelente acuerdo para la primera contribución comparada con los datos experimentales. En el intervalo de bajas energías nuestro modelo falla en ambos casos como

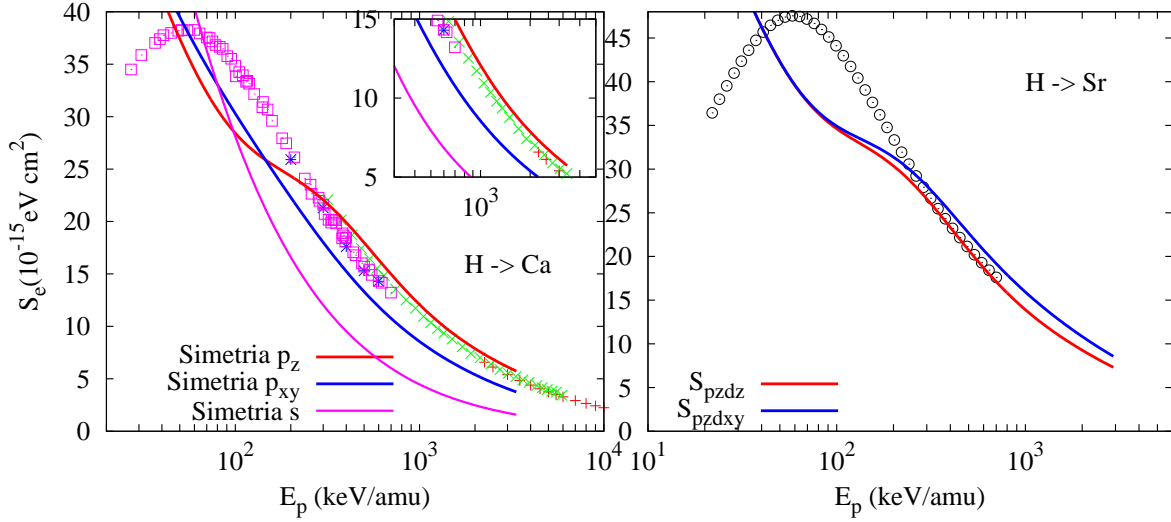


Figura 5.7: La SEPF  $S_e$  para protones en gas de calcio y estroncio con orbitales externos  $4s^2$  y  $5s^2$  respectivamente. Ver texto para los detalles de  $S_{p_z,d_z}$  y  $S_{p_z,d_x,y}$  y tabla 5.4. Los datos experimentales son de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

ya lo esperábamos. La contribución del orbital externo se muestra en la misma figura (línea verde). Para el Si se observa un buen acuerdo para la contribución  $S_{p_z}$ . Para el N, en la contribución  $S_{p_z}$ , en el intervalo de energías ( $E_p$ ) de 200 a 1000 keV nuestra aproximación está en buen acuerdo con los datos experimentales disponibles y está por arriba de los datos experimentales para energías mayores a 1000 keVs. Para la contribución  $S_{p_{x,y}}$  se observa que queda por debajo de los datos experimentales, sin embargo se observa que la SEPF tiene la pendiente correcta.

En la fig. 5.9 se muestran los resultados para protones colisionando en los gases de Fe y Mo de capa abierta  $d$ . En ambos casos, se tienen comportamientos similares para ambas contribuciones. Hay una región entre las energías de 150 a 600 keVs y de 70 a 200 keVs para Fe y Mo respectivamente. Donde  $S_{p_z,d_z}$  tiene un cambio de pendiente cuando tomamos en cuenta la contribución orbital total. Considerando esta contribución total, se observa que existe un cambio abrupto de pendiente a las energías de 150 y 70 keVs, respectivamente. La SEPF para Fe a energías mayores a 600 keVs muestra un acuerdo excelente con los datos experimentales y para energías menores nuestro modelo falla. Para el gas de Mo tenemos una situación muy similar, para energías mayores a  $E_p \geq 300$  keVs obtenemos un excelente acuerdo comparando con los datos experimentales y para energías menores nuestro modelo falla. En ambos casos la capa orbital incompleta es  $3d^4$  (Fe) y  $4d^4$  (Mo) haciendo evidente la relevancia de su contribución a la SEPF como se puede observar de la ec. (4.48). Para la contribución  $S_{p_z,d_{x,y}}$  no se observa dicho cambio de pendiente que teníamos en el caso anterior, sin embargo, para ambos casos se observa un buen comportamiento para la región de altas energías. En el caso del Fe ambas contribuciones coinciden después de  $E_p \geq 1$  MeV.

Finalmente, en todas las figuras se observa que al incorporar la simetría orbital del blanco en la aproximación del OA se obtienen excelentes resultados en la SEPF al comparar con los datos experimentales para la región de altas energías. Es evidente de las figuras que, una combinación adecuada de orbitales nos proporciona la SEPF total que describe más



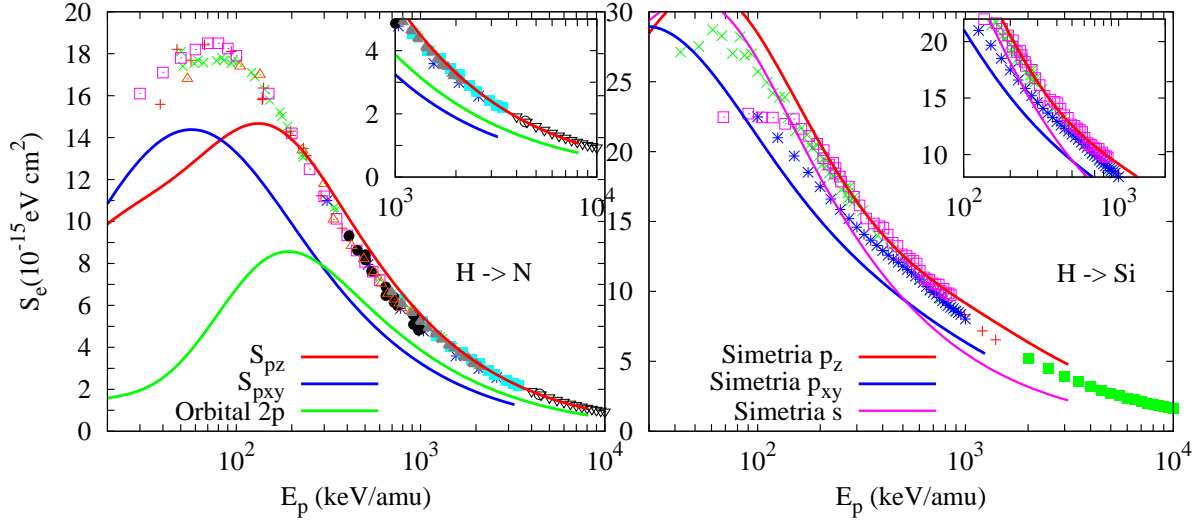


Figura 5.8: La SEPF  $S_e$  para protones en N y Si con orbitales externos  $2p^3$ ,  $3p^2$ . Ver texto para los detalles de  $S_{p_z}$  y  $S_{p_{x,y}}$  y tabla 5.4. Los datos experimentales son de la compilación de Helmut Paul (ver Ref. [16]).

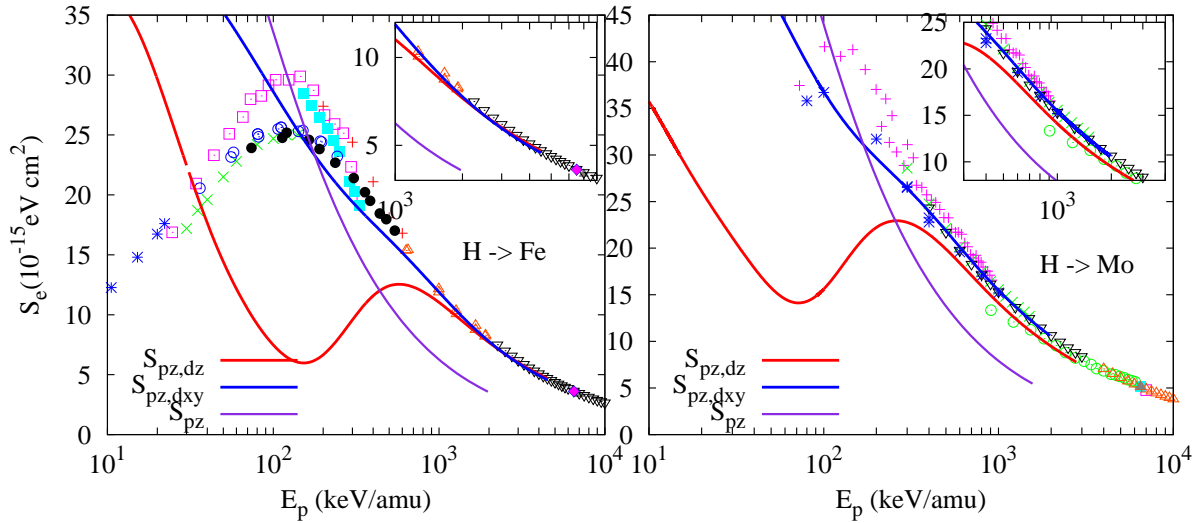


Figura 5.9: La SEPF  $S_e$  para protones en Fe and Mo con orbital externo  $3d^4$  y  $4d^4$ . Ver texto para los detalles de  $S_{p_z,d_z}$  y  $S_{p_z,d_{x,y}}$  y tabla 5.4. Los datos experimentales son de la compilación de Helmut Paul (ver ref. [16]).

apropiadamente a los datos experimentales. Para bajas energías el modelo falla, esto se debe a que en el modelo presentado está basado en la primera aproximación de Born. Además, en el modelo no se toman en cuenta procesos como el de captura electrónica del proyectil que es muy común en la región de energías intermedias a bajas. Por otro lado, trabajar en coordenadas cartesianas nos dificulta el poder decir algo acerca de la posible relación entre los

momentos angulares y sus respectivas proyecciones así como la influencia de la transferencia de momento que se pueda tener. A pesar de ello esta primera aproximación nos servirá como preámbulo para comparar cuando implementemos esta metodología en coordenadas esféricas.

Con esto, en el apéndice C se muestra un borrador del manuscrito donde se presentan en forma resumida los resultados aquí obtenidos, esperando su pronta publicación en una revista de arbitraje internacional.



## Capítulo 6

# Conclusiones

Se estudió la sección eficaz de poder de frenamiento electrónica dentro de la primera aproximación de Born en términos de su descomposición orbital. Se implementó el modelo del electrón independiente, considerando al blanco en estado gaseoso y compuesto de un conjunto de partículas independientes, esto es, no se toman en cuenta las interacciones entre partículas del blanco. Junto con el modelo del oscilador armónico se reprodujeron los resultados ya conocidos para la simetría orbital “*s*” y para la energía media de excitación en términos de la misma descomposición orbital (regla de Bragg). Dentro de la primera aproximación de Born se encontró una ley de escalamiento para protones colisionando en átomos que presentan simetría orbital “*s*”, misma que depende de la frecuencia angular de cada orbital. Cabe mencionar que esta ley de escalamiento es útil en el caso de protones colisionando con moléculas pequeñas y nucleobases que presentan simetría orbital  $\sigma$  [7].

Dentro de la aproximación para la simetría orbital “*s*”, comparé estos resultados con datos experimentales encontrando un buen acuerdo para átomos con número atómico  $Z \leq 4$ , en la región de altas energías, donde es válido este modelo. En particular se observó un acuerdo excelente para el átomo de He. Sin embargo, se encontró que la SEPF electrónica para átomos con  $Z \geq 5$  debía ser modificada para incorporar los efectos de la simetría orbital del blanco y así mostrar un buen acuerdo con los datos experimentales. Debido a esto, se hizo una extensión del modelo de Bethe. Utilizando el modelo del electrón independiente y el modelo del oscilador armónico se encontraron nuevas fórmulas cerradas que toman en cuenta las simetrías de los orbitales “*p*” y “*d*” del blanco, en coordenadas cartesianas y en términos de la energía media de excitación. Estas nuevas fórmulas están en función de su descomposición orbital. Por otra parte, se empleó el teorema del Virial para obtener la energía media de excitación en la descomposición orbital. Esta energía media está en términos de datos atómicos del blanco, por lo tanto, se emplearon tablas de datos atómicos para hallarla. Utilizando los resultados para las simetrías orbitales “*s*”, “*p*” y “*d*” del blanco, así como los valores de la energía media de excitación, se obtuvo la SEPF para protones colisionado en átomos de capa cerrada (gases nobles) y átomos de capa abierta (N, Si, Ca, Fe, Sr y Mo). Los resultados muestran un buen acuerdo en la región de altas energías. En el caso del Kr y Xe la combinación  $S_{p_z, d_{x,y}}(v)$ , presenta excelentes resultados al comparar con los datos experimentales, notando que la transferencia de momento está presente sólo en el término del orbital  $p_z$  y no en los términos de los orbitales  $d_{x,y}$ . Esto resalta la importancia de incorporar las simetrías orbitales del blanco al cálculo de la sección eficaz. A energías bajas-intermedias el modelo falla en todos los casos. Este comportamiento lo atribuimos principalmente a que

el modelo presentado se basa en la primera aproximación de Born y a las consideraciones hechas en el hamiltoniano del sistema. Además hay que recordar que este modelo no toma en cuenta procesos como el de captura electrónica del proyectil, que son muy comunes en la región de energías intermedias a bajas.

A pesar del buen acuerdo que presentan los resultados obtenidos, es necesario considerar el obtener las fórmulas cerradas para la SEPF, que incorporan las simetrías orbitales del blanco, en términos de las coordenadas naturales, en este caso esféricas. Ésto para observar los efectos de transferencia debido a los distintos momentos angulares. Además, en las coordenadas naturales del sistema, se exhiben las integrales de movimiento de forma directa y como consecuencia, las observables pueden ser medidas. Este trabajo se encuentra en desarrollo y formará parte de mi trabajo doctoral.

## Apéndice A

# Potencial Central

El ángulo de dispersión  $\theta_{cm}$  de la ec. (2.9) puede evaluarse analíticamente si suponemos que la interacción del proyectil y el blanco es de tipo central (ver ref. [19]). Tomando como sistema de referencia el centro de masa (CM) podemos escribir la energía cinética de este arreglo como:

$$T = \frac{1}{2}m_p\mathbf{v}_p^{2cm} + \frac{1}{2}m_b\mathbf{v}_b^{2cm}, \quad (\text{A.1})$$

donde podemos dejar a esta energía en función de la velocidad relativa. De la fig. 2.2 se pueden obtener los vectores referidos al CM de las dos partículas y después los vectores relativos al sistema, estos son:

$$\mathbf{v}^{cm} = \mathbf{v}_b^{cm} - \mathbf{v}_p^{cm}, \quad \mathbf{v} = \mathbf{v}_b - \mathbf{v}_p. \quad (\text{A.2})$$

Sustituyendo en la Lagrangiana del sistema obtenemos:

$$L = \frac{1}{2}\mu\dot{r}^2 - V(r), \quad (\text{A.3})$$

dado que el movimiento es de caracter central hacemos nuestro análisis en coordenadas polares  $\rho$  y  $\phi$ . Obteniendo las ecuaciones de movimiento se observa fácilmente que la ecuación en la coordenada  $\phi$  es la que nos refiere a la conservación del momento angular. La segunda ecuación en la variable  $\rho$  nos refiere a la dinámica del sistema, esta es:

$$\mu\ddot{\rho} - \mu\rho\dot{\phi}^2 + \dot{V}(\rho) = 0. \quad (\text{A.4})$$

En la fig. A.1 se observa la interacción de caracter central entre el proyectil y blanco. Como ya mencionamos anteriormente, al inicio de la interacción el proyectil se encuentra en movimiento con una velocidad  $|\dot{\rho}| = v_0$  y el blanco está fijo en el origen de nuestro sistema. Debido a la conservación del momento angular  $\mathbf{L}_{inicial} = \mathbf{L}_{final}$  y conociendo que el parámetro de impacto  $b$  está definido en este caso como  $b = \rho_0 \sin \alpha$ , por lo tanto obtenemos que la ec. (A.4) es:

$$\mu\ddot{\rho} - \mu\frac{v_0^2 b^2}{\rho^3} + \frac{dV(\rho)}{dt} = 0, \quad (\text{A.5})$$

o reescribiendo la ecuación obtenemos:

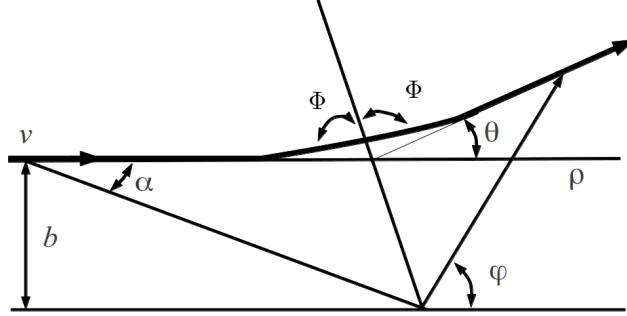


Figura A.1: Colisión debida a un potencial central tipo Coulomb.

$$\mu\ddot{\rho} = \mu \frac{v_0^2 b^2}{\rho^3} - \frac{dV(\rho)}{dt} = -\frac{d}{d\rho} \left[ \frac{1}{2} \mu v_0^2 \left( \frac{b^2}{\rho^2} + V(\rho) \right) \right]. \quad (\text{A.6})$$

Si multiplicamos a toda la ecuación por  $\dot{\rho}$  y agrupamos términos obtenemos

$$\frac{d}{dt} \left[ \frac{1}{2} \mu \dot{\rho}^2 + \frac{1}{2} \mu v_0^2 \left( \frac{b^2}{\rho^2} + V(\rho) \right) \right] = 0. \quad (\text{A.7})$$

De la ecuación anterior podemos ver que la energía total del sistema se conserva obteniendo la siguiente ecuación de la que podemos derivar una expresión para  $\dot{\rho}$ , esto es:

$$\frac{1}{2} \mu \dot{\rho}^2 + \frac{1}{2} \mu v_0^2 \left( \frac{b^2}{\rho^2} + V(\rho) \right) = E_0 = \frac{1}{2} \mu v_0^2, \quad (\text{A.8})$$

donde:

$$\dot{\rho} = \pm v_0 \left[ 1 - \frac{b^2}{\rho^2} - \frac{V(\rho)}{E_0} \right]^{1/2}. \quad (\text{A.9})$$

Nuevamente reescribimos a la ecuación anterior de la siguiente forma sólo tomando en cuenta la definición de  $\dot{\phi}$ :

$$\frac{d\rho}{d\phi} = \pm \frac{\rho^2}{b} \left[ 1 - \frac{b^2}{\rho^2} - \frac{V(\rho)}{E_0} \right]^{1/2}. \quad (\text{A.10})$$

Observemos que de la ec. (A.10) se tiene el máximo acercamiento entre el proyectil y el blanco cuando tomamos el signo negativo, en otras palabras  $\rho$  aumenta y  $\phi_m$  disminuye. Por lo tanto la ecuación orbital es:

$$d\phi = -\frac{b}{\rho^2} [f(\rho)]^{-1} d\rho, \quad \text{donde} \quad f(\rho) = \sqrt{1 - \frac{b^2}{\rho^2} - \frac{V(\rho)}{E_0}}. \quad (\text{A.11})$$

De la fig. A.1 se observa que el máximo acercamiento está dado cuando  $\rho = \rho_m$ . De la misma figura observamos que  $\psi = \Phi + \theta_{cm}$ . Para el caso en el que  $\rho \rightarrow \infty$  el ángulo es  $\psi = \theta_{cm}$  donde  $2\Phi + \theta_{cm} = \pi$ . Por lo tanto integrando la ec. (A.11) del máximo acercamiento hasta infinito obtenemos:

$$\Phi = \int_{\psi=\Phi+\theta_{cm}}^{\psi=\theta_{cm}} d\phi = -b \int_{\rho_m}^{\infty} \frac{1}{\rho^2 f(\rho)} d\rho. \quad (\text{A.12})$$

Finalmente encontramos que el ángulo de dispersión está en función de un potencial central  $V(\rho)$  y términos que involucran el parámetro de impacto, esto es:

$$\theta_{cm} = \pi - 2b \int_{\rho_m}^{\infty} \frac{1}{\rho^2 f(\rho)} d\rho. \quad (\text{A.13})$$





## Apéndice B

### Artículo I

La ley universal encontrada en el Capítulo 5 junto con el método de *Floating Spherical Gaussian Orbital* (FSGO), fueron empleados para obtener la SEPF para protones colisionando en moléculas pequeñas y nucleobases con simetría orbital  $\sigma$ . Con la colaboración de nuestro equipo de trabajo se presentan los resultados analíticos comparados con datos experimentales de la SEPF. Además se proporcionan valores recomendados para la energía de excitación media.

La referencia del trabajo es:

**Autores:** *L.N. Trujillo-López, C. Martínez-Flores, y R. Cabrera-Trujillo*

**Título:** *Universal scaling behavior of molecular electronic stopping cross section for protons colliding with small molecules and nucleobases*

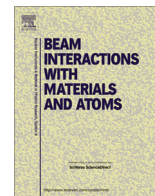
**Revista:** *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*

**Volumen/páginas:** *313: 5-13*

**Año:** *Octubre 2013*

Se anexa en las siguientes páginas el artículo.





# Universal scaling behavior of molecular electronic stopping cross section for protons colliding with small molecules and nucleobases



L.N. Trujillo-López<sup>a</sup>, C. Martínez-Flores<sup>a</sup>, R. Cabrera-Trujillo<sup>a,b,\*</sup>

<sup>a</sup> Instituto de Ciencias Físicas, Universidad Nacional Autónoma de México, Ap. Postal 43-8, Cuernavaca, Morelos 62251, Mexico

<sup>b</sup> Departamento de Física, Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa, Ap. Postal 55-534, 09340 México, D.F., Mexico

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 24 June 2013

Received in revised form 15 July 2013

Available online 17 August 2013

### Keywords:

Energy loss

Stopping cross section

Mean excitation energy

Harmonic oscillator

FSGO

Universal behaviour

## ABSTRACT

The electronic stopping cross section and mean excitation energy for molecules and 5 nucleobases have been calculated within the first Born approximation in terms of an orbital decomposition to take into account the molecular structure. The harmonic oscillator (HO) description of the stopping cross section together with a Floating Spherical Gaussian Orbital (FSGO) model is implemented to account for the chemical composition of the target. This approach allows us to use bonds, cores, and lone pairs as HO basis to describe the ground state molecular structure. In the HO model, the orbital angular frequency is the only parameter that connects naturally with the mean excitation energy. As a result, we obtain a simple expression for the equivalent mean excitation energy in terms of the orbital radius parameter, as well as an analytical expression of the stopping cross section. For gas phase molecular targets, we provide HO based orbital mean excitation energies to describe any molecule containing C, N, O, H, and P atoms. We present results for protons colliding with H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, propylene (C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>), methane (CH<sub>4</sub>), ethylene (C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) and the nucleobases – guanine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>O), cytosine (C<sub>4</sub>H<sub>5</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>), thymine (C<sub>5</sub>H<sub>6</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>), adenine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>) and uracil (C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). The results for the stopping cross section are compared with available experimental and theoretical data showing good to excellent agreement in the region of validity of the model. The HO approach allows us to obtain a universal stopping cross section formula to describe a universal scaling behavior for the energy loss process. The universal scaled curve is confirmed by the experimental data.

© 2013 Elsevier B.V. All rights reserved.

## 1. Introduction

This year marks the centennial of Bohr's pioneering study of the interaction of swift, heavy particles with matter and whose applications extend to many fields of science, e.g. astrophysics, metallurgy, electronic industries, nuclear physics, materials science, radiotherapy, and dosimetry among others. In particular, radiation therapy consists of destroying the cancerous tumor cells by ionizing radiation, a process known as radiation damage. Radiation damage is produced in the material in two ways: directly, in which the radiation destroys the molecules, and indirectly, in which electrons and low energy photons are absorbed by the material, ionizing it. In living matter, the most significant damage from radiation is due to red water molecule fragments and secondary electrons or by a direct hit that ruptures or fragments a DNA molecules. That is why finding the slowing down characteristic curve for biomolecules, as well as the study of the mechanism by

which the ion losses energy as it penetrates matter is of paramount importance.

As mentioned above, Niels Bohr [1], proposed the first model to analyze the energy loss for a projectile while penetrating a target using only classical ideas. Bohr treated the collision system by assuming the target electrons were harmonically bound and excited by the electric field of the incoming projectile. Later, Hans Bethe [2] proposed the first quantum mechanical treatment of the problem using perturbation theory for the projectile-target interaction by means of the first Born approximation. The fundamental idea behind Bethe's treatment is the use of momentum transfer from the projectile to the electrons in the target as the dynamic factor in the collision.

According to Bethe's theory, the electronic stopping cross section,  $S_e$ , for a swift, heavy ion with charge  $Z_1e$  colliding with a target with  $N_2$  bound electrons is given by:

$$S_e(v) = \frac{4\pi e^4 Z_1^2 N_2}{m_e v^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e v^2}{I_0} \right) \right], \quad (1)$$

valid for projectile velocities,  $v$ , higher than the target electron velocity. Here,  $I_0$  is the mean excitation energy of the target which is defined in terms of the dipole oscillator strength (DOS),  $f_{n0}$ , as:

\* Corresponding author at: Instituto de Ciencias Físicas, Universidad Nacional Autónoma de México, Ap. Postal 43-8, Cuernavaca, Morelos 62251, Mexico. Tel.: +52 55 56 22 77 57; fax: +52 55 56 22 77 75.

E-mail address: [trujillo@fis.unam.mx](mailto:trujillo@fis.unam.mx) (R. Cabrera-Trujillo).

$$\ln I_0 = \frac{\sum_n f_{n0} \ln(E_n - E_0)}{\sum_n f_{n0}}. \quad (2)$$

Here,  $E_0$  and  $E_n$  denote the energies of the system in the initial and final state, respectively. However, to obtain  $I_0$  requires knowledge of the full excitation spectrum of the target, a difficult task even in these days. So, it may be necessary to resort to quantum chemistry methods [3,4] or to fits to experimental data [5]. For molecular targets, the situation is even more complicated due to the larger N-body problem [6].

In the field of radiotherapy, accurate values of the mean excitation energy for biological materials, such as DNA, are necessary [7]. A good characterization of  $I_0$  as well as the penetrating range and stopping curve of therapeutic ion beams is biologically relevant for the accuracy of the energy deposition in nanometer volumes [8,7].

The study of the mean excitation energy for several small biomolecules has been the focus of research of the Danish group [9] based on the work of Oddershede and Sabin (OS) [10]. OS have treated shell corrections and mean excitation energies by using the propagator method within the Bethe approximation to obtain the excitation spectra of molecules containing C–H, C–C, C=C, O–H, C–O and C=O bonds. Once  $I_0$  has been obtained, use of the kinetic theory [11] was made to report molecular stopping cross sections. In this context, Lindhard's theory [12] has been also used in the study of several biomolecules, finding good agreement with other similar treatments if the proper optical energy loss function is used [8,13].

Experimentally, there exists very strong evidence that supports the use of molecular fragments in the analysis of stopping cross section [14–16]. Recently, the atomic Bragg rule has been under scrutiny, reaching the conclusion that it fails in the low energy region where molecular bonds start to become important [17,18]. The data suggest that the molecular stopping cross section can be expressed as a sum of contributions of characteristic molecular groups. Thus, OS implemented a core and bonds description of a molecular target which allowed a fragment treatment of the target. Use of these ideas was made by Cabrera-Trujillo et al. [19] within the molecular floating spherical Gaussian orbital (FSGO) model [20–25], the local plasma approximation (LPA) [26], and the kinetic theory to describe the molecular stopping cross section, confirming the main idea of OS.

These previous treatments were based mainly on reporting mean excitation energies needed in the Bethe approximation, Eq. (1). However, the full analytical evaluation of the stopping cross section within the first Born expression, to obtain an analytical formula outside of the Bethe approximation, is necessary. Such a formula should account, in a simple way, for the full target excitation spectra, as well as to take into account the bond contribution to correct Bragg's rule [27,17,18] which states that "the total stopping cross section is the weighted sum of the atomic stopping cross sections  $S_{e,i}$ , where the weight factors are the numbers of atoms of type  $i$ ".

Several analytical expressions for the stopping cross section, based on functional fits [28] or universal curves [29], have been reported in the literature. In this regard, an analytical expression for the stopping cross section based on the harmonic oscillator (HO) model has been also reported [30]. The justification for the use of a HO scheme is that to first order any bound electron can be described by a harmonic potential, as originally considered by Bohr. A further advantage of the HO model is that its exact ground state is a Gaussian wave function which connects naturally with quantum theoretical wave-functions used in Quantum Chemistry models, e.g. the FSGO model.

In this work we propose to study the stopping cross section of small molecules and nucleobases by knowing only the ground state electronic structure, i.e. by implementing the HO analytical description of  $S_e$  in a self contained and parameter free approach, providing a simple analytical procedure to describe any molecular target. As a consequence of the HO model, we obtain an universal scaling behavior of the electronic stopping cross section.

The work is presented with the following structure. In Section 2 we start with a summary of Bethe's stopping power theory, within the independent particle model and the harmonic oscillator approach in conjunction with the FSGO model. In Section 3 we discuss and compare the results of our approach with experimental and theoretical available data. We present the result in two subsections: small molecules and nucleobases. Finally in Section 4, we present the conclusions and future perspectives for this work.

## 2. Stopping cross section

In this section we summarize the harmonic oscillator description within the independent particle model for  $S_e$  as proposed in Ref. [30]. In contrast to Ref. [19], we calculate all the physical parameters within the same model in a self contained way. The only approximations to our approach are the first Born approximation and the independent particle model.

### 2.1. $S_e$ in the independent particle model

In the independent particle model [30], that is, one electron that moves without interaction in the mean field produced by the other target electrons, the electronic stopping cross section can be written as

$$S_e(v) = \sum_{i=1}^{N_2} S_{e,i}(v), \quad (3)$$

where

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{n=1}^{\infty} \int_{q_{min,i}(n)}^{q_{max,i}(n)} F_{n_i,0_i}(\mathbf{q}) \frac{dq}{q} \quad (4)$$

is the contribution of the  $i$ -th electron. Here  $\mathbf{q}$  is the momentum transfer and  $F_{n_i,0_i}$  are the generalized oscillator strengths (GOSs) given by:

$$F_{n_i,0_i}(\mathbf{q}) = \frac{2m_e}{\hbar^2 q^2} (E_{n_i} - E_{0_i}) |M_{n_i,0_i}(\mathbf{q})|^2 \quad (5)$$

with

$$M_{n_i,0_i}(\mathbf{q}) = \langle 0_i | e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} | n_i \rangle. \quad (6)$$

Here  $M_{n_i,0_i}$  is the atomic form factor of the  $i$ -th electron for an initial ground state  $|0_i\rangle$  to a final state  $|n_i\rangle$ . In Eq. (4), the limits of integration are given by,

$$q_{min,i}^{max,i}(n) = \frac{M_1 v}{\hbar} \left[ 1 \pm \sqrt{1 - \frac{2(E_{n_i} - E_{0_i})}{M_1 v^2}} \right]. \quad (7)$$

Eq. (3) resembles Bragg and Kleeman's additivity rule [27] for the stopping cross section, but in this case reformulated for the electrons.

Now, in the Bethe approximation, valid for high velocities, Eq. (4) becomes Eq. (1) but for the  $i$ -th orbital, i.e. we replace  $I_0$  by  $I_{0i}$  where  $I_{0i}$  defines the orbital mean excitation energy for the  $i$ -th electron and where the DOSs are, by definition,  $f_{n_i,0_i} = F_{n_i,0_i}(q \rightarrow 0)$ . Thus, one sees that in the high-velocity regime, Eq. (3) defines a molecular mean excitation energy,  $I_0$ , given as:

$$N_2 \ln I_0 = \sum_{i=1} m_i \ln I_{0i}. \quad (8)$$

where  $m_i$  is the occupation number of the  $i$ -th orbital, such that  $N_2 = \sum_i m_i$ . This result justifies the OS orbital decomposition for the mean excitation energy [10,30] as a orbital by orbital decomposition.

One advantage of the independent particle model is that it allows to take into account bond contributions to  $S_e$ , as we shall show in the next section.

## 2.2. Harmonic oscillator model

In order to obtain an analytical expression for  $S_{e,i}$ , we implement the HO model proposed in Ref. [30]. For an isotropic spherical three dimensional harmonic oscillator with a natural angular frequency  $\omega_{0i}$ , the ground state wave function is given as,

$$\Psi_0(\mathbf{r}) = \langle \mathbf{r} | 0 \rangle = \left( \frac{\alpha_i}{\pi} \right)^{3/4} e^{-\alpha_i^2 r^2 / 2}, \quad (9)$$

where  $\alpha_i^2 = m_e \omega_{0i} / \hbar$ . One consequence of the HO model is that  $f_{0i} = \delta_{i1}$  and consequently, the orbital mean excitation energy is related to the orbital electron natural angular frequency as

$$I_{0i} = \hbar \omega_{0i} \quad (10)$$

connecting directly the HO angular frequency  $\omega_{0i}$  and the orbital mean excitation energy. We note at this stage that Eq. (10) represents a rough approximation for the orbital mean excitation energy constructed from appropriate molecular wave-functions. Furthermore, Eq. (10) is in agreement to Lindhard's calculation of the mean excitation energy in the LPA [12]. As we shall see below, this simple expression provides a useful means to consistently construct a universal stopping curve for  $S_e$ .

The analytical expression for  $S_{e,i}$  in Ref. [30] has been expressed in terms of a series involving the exponential integral function. However, one can determine easily that the same expression can be rewritten as

$$S_{e,i}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_1^2}{m_e v^2} L_i(v), \quad (11)$$

where the orbital stopping number,  $L_i(v)$ , is given by:

$$L_i(v) = \frac{1}{2} \sum_{v=1}^{\lfloor E_p / I_{0i} \rfloor} \frac{\Gamma(v-1, x_{\min}) - \Gamma(v-1, x_{\max})}{(v-1)!}, \quad (12)$$

where  $\Gamma(x, a)$  is the incomplete gamma function and

$$x_{\min}^{\max}(v) = \frac{M_1 E_p}{m_e I_{0i}} \left( 1 \pm \sqrt{1 - \frac{I_{0i} v}{E_p}} \right)^2, \quad (13)$$

where  $E_p = M_1 v^2 / 2$  is the projectile kinetic energy and where we have made use of Eq. (10). Eq. (11) provides an analytical closed form for  $S_{e,i}$ .

## 2.3. Universal curve for $S_{e,i}$

Furthermore, from Eqs. (11)–(13) we can immediately see, that by making  $y = E_p / I_{0i}$ , we obtain a general, single –universal– curve within the first Born approximation that only depends on the target properties. This universal curve is expressed as

$$\frac{m_e I_{0i}}{4\pi e^4 M_1 Z_1^2} S_{e,i}(v) = f(y), \quad (14)$$

where

$$f(y) = \sum_{v=1}^{\lfloor y \rfloor} \frac{\Gamma(v-1, x_{\min}(y)) - \Gamma(v-1, x_{\max}(y))}{y(v-1)!} \quad (15)$$

and

$$x_{\min}^{\max}(y) = \frac{M_1}{m_e} y \left( 1 \pm \sqrt{1 - \frac{y}{M_1}} \right)^2 \quad (16)$$

such that the left hand side of Eq. (14) depends only on the projectile-target properties and the right hand side (RHS) on a single universal curve. The RHS shows only a projectile dependence on the projectile mass,  $M_1$ , – projectile isotopic effect – through the momentum transfer, a fact that already has been reported for protons and muons [31]. In Fig. 1, we show the numerical evaluation of Eq. (14) (open square symbols) for  $M_1 = m_p$  the proton mass. Thus, by knowing the orbital mean excitation energy,  $I_{0i}$ , we can obtain the  $i$ -th electron contribution to the molecular stopping cross section.

Although Eq. (15) is expressed in terms of incomplete gamma functions, we can obtain an analytical expression based on a previous analytical result [32]. The idea is to use the analytical expression for the stopping cross section, as obtained in the original Bohr model, to adjust to our HO expression. Thus our proposed analytical expression is

$$f(y) = \frac{\ln \left( 1 + \left( \frac{4m_e}{M_1} y \right)^2 \right)}{c + y} \quad (17)$$

with  $c = 1145.23$  with an error of 1% respect to the numerical evaluation of Eq. (15) for  $y \geq 800$  which is the region of validity of the first Born approximation. For larger values of  $y$ , it reduces to Bethe's result, Eq. (1), and for low  $y$  values it describes the HO behavior reasonable well. In Fig. 1, we show the analytical fit (solid line) and compare to the exact HO results, showing a good agreement for the region of validity of the first Born approximation. As a consequence we note that the maximum of  $S_e$  is given at  $y_{\max} = 2000$  such that  $E_p^{\max} = y_{\max} I_{0i} = 2000 I_{0i}$ . The question of where the maximum of  $S_e$  occurs has been pondered before [33] and the answer is in agreement with this approach as we shall see below.

In order to implement the HO description of the molecular stopping cross section, we need a HO basis in terms of FSGO basis to obtain the orbital angular frequency  $\omega_{0i}$ .

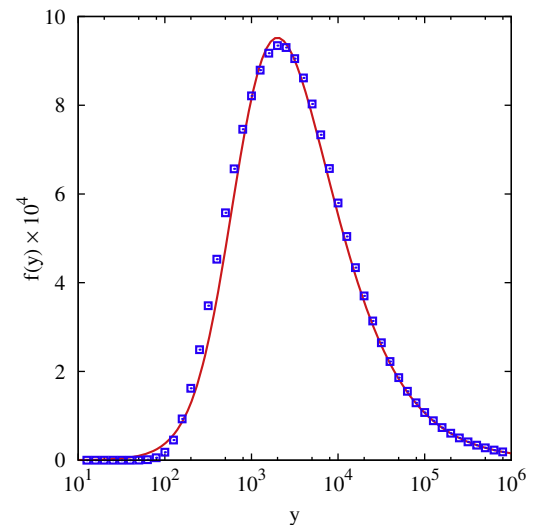
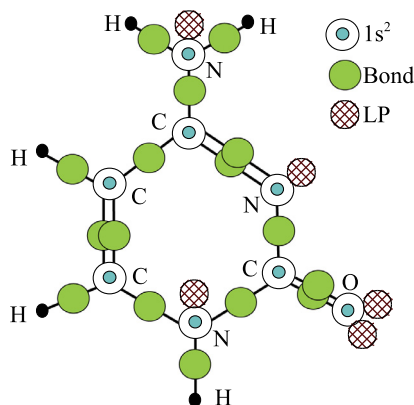


Fig. 1. Numerical evaluation of Eq. (14),  $f(y)$ , (open squared symbols) and its comparison to our analytical fit, Eq. (17) (solid line). See text for details.



**Fig. 2.** Visual representation of the FSGO orbitals in the cytosine molecule. See text for details.

#### 2.4. FSGO molecular orbitals

The FSGO describes a molecular electronic system with an even number of electrons  $2n$ , distributed in  $n$  localized orbitals represented by the function  $\Psi_i$ , with  $i = 1, 2, \dots, n$ , which are not necessarily orthogonal. For a review of the model see Ref. [25] and references therein. This model only allows us to consider closed shell systems. In this representation, each Gaussian orbital describes the core ( $1s^2$ ), bond, and lone pair (LP) orbitals of a molecule. Each one of them is represented by a Gaussian function given by:

$$\Psi_i(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) = \left(\frac{2}{\pi\rho_i^2}\right)^{3/4} e^{-\frac{(\mathbf{r}-\mathbf{R}_i)^2}{\rho_i^2}}, \quad (18)$$

where  $\rho_i$  is the orbital radius and  $\mathbf{R}_i$  is the position of the Gaussian center. In the FSGO model, the first two rows in the periodic table are described with  $s$ -orbitals and the  $p$ -orbitals too with

off-center Gaussians to describe the molecular bond. The set of molecular parameters  $\{\rho_i, \mathbf{R}_i\}$  is obtained by variationally minimizing the energy. The FSGO approach can predict reasonably well the electronic structure and geometry of a molecular system [25]. Since  $\rho_i$  represents the radius of a sphere containing about 74% of the electronic charge density, it allows us to visualize the molecular orbitals using spheres. In Fig. 2, we show an FSGO graphical representation of the orbitals for cytosine ( $C_4H_5N_3O$ ). Cytosine has 29 orbitals of which 8 are core ( $1s^2$ ), 16 are bonds (Bond), and 5 are lone-pairs (LP). From Eq. (3) the FSGO orbital representation of the molecule allows us to decompose it as

$$S_e(\text{molecule}) = S_e(1s^2) + S_e(\text{Bond}) + S_e(\text{LP}), \quad (19)$$

where  $S_e(1s^2)$ ,  $S_e(\text{Bond})$ , and  $S_e(\text{LP})$  are the sums of the contributions for the core, bond, and lone pair orbitals, respectively. Thus, this approach incorporates the molecular bond contribution in the spirit of the standard atomic version of Bragg's rule.

#### 2.5. Mean excitation energy in the FSGO model

One of the advantages of the FSGO model is that it readily provides a value for the HO angular frequency  $\omega_{0i}$ . By comparing the HO ground state wave function, Eq. (9), to the FSGO wave-function, Eq. (18), we find that

$$\frac{\alpha_i^2}{2} = \frac{m\omega_{0i}}{2\hbar} = \frac{1}{\rho_i^2}. \quad (20)$$

Thus, from Eq. (10), the mean excitation energy becomes a function of the Gaussian orbital radius,

$$I_{0i} = \frac{2\hbar^2}{m_e\rho_i^2}. \quad (21)$$

Consequently, the tighter an electron is bound, the larger the mean excitation energy becomes. The fact that  $I_{0i}$  is inversely proportional to the square of the orbital radius confirms a similar result obtained

**Table 1**  
Orbital ( $I_{0i}$ ) mean excitation energy values calculated in this work with the FSGO approach for different core, bonds, and lone pair orbitals appearing in the indicated molecule. Also shown are the corresponding theoretical calculations from the orbital LPA [19] ( $I_{0i}^{LPA}$ ) and Oddershede-Sabin's work ( $I_{0i}^{OS}$ ) [10]. All energy values are given in eV. The radius values are in bohr.

Molecule	Orbital	$\rho_i$	$I_{0i}$	$I_{0i}^{LPA}$	$I_{0i}^{OS}$
H <sub>2</sub>	H–H <sup>a</sup>	1.772	17.33	19.47	–
O <sub>2</sub>	O ( $1s^2$ )	0.240	944.44	390.62	729.41
	LP (O)	1.271	33.76	32.05	–
	O=O	1.264	34.04	45.71	–
N <sub>2</sub>	N ( $1s^2$ )	0.277	708.98	315.03	590.00
	LP (N)	1.489	24.57	25.28	–
	N≡N	1.449	25.90	45.61	–
H <sub>2</sub> O	LP (O)	1.331	30.70	29.91	–
	O–H	1.308	31.79	30.70	40.68
CO	C ( $1s^2$ )	0.328	505.65	244.49	–
	LP (C)	1.489	29.58	–	–
	C=O	1.344	29.93	–	–
	LP (O)	1.358	29.49	–	–
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	C–H	1.642	20.17	21.83	–
	C=C	1.794	16.90	27.03	27.93
CH <sub>4</sub>	C–H	1.694	18.95	20.83	21.20
C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	C1–H	1.649	20.00	21.69	–
	C1=C2	1.796	16.86	26.99	–
	C2–H	1.645	20.10	21.77	–
	C3–H	1.688	19.09	20.94	–
	C2–C3	1.620	20.72	22.27	–
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	C–H	1.581	21.76	23.10	–
	C≡C	1.781	17.15	33.47	–



**Table 2**

Suggested averaged values for  $\rho_i$  and  $I_{0i}$  ordered by increasing orbital mean excitation energy. Here,  $\rho_i$  is in bohr and  $I_{0i}$  in eV.

Orbital	$\rho_k$	$I_{0k}$	Orbital	$\rho_k$	$I_{0k}$
P–H	1.948	14.34	C=O	1.348	29.93
C=C	1.795	16.88	P=O	1.348	29.93
C≡C	1.781	17.15	C≡O	1.348	29.93
H–H	1.772	17.33	C–O	1.340	30.29
C–H	1.669	19.56	P–O	1.340	30.29
C–C	1.666	19.66	LP (O)	1.329	30.84
N–H	1.554	22.57	O–H	1.324	31.05
N–C	1.554	22.57	O=O	1.264	34.04
N=C	1.554	22.57	$P_{1s}(2s^2)$	0.502	215.87
LP (N)	1.523	23.54	C ( $1s^2$ )	0.328	505.65
LP (C)	1.489	29.58	N ( $1s^2$ )	0.277	708.98
N≡N	1.449	25.90	O ( $1s^2$ )	0.240	944.44
			$P_{1s}(1s^2)$	0.123	3595.74

for electrons described within a Jellium model [34]. In the next section, we shall discuss the consequences of all these findings.

### 3. Results

#### 3.1. Mean excitation energy

In Table 1, we provide the orbital radius  $\rho_i$  for a set of molecules found in the literature [20–25] and the corresponding orbital mean excitation energy. In the same table, we give the mean excitation energies as reported by the LPA [19],  $I_{0i}^{LPA}$  and the OS [10],  $I_{0i}^{OS}$ , approaches.

The values for the core ( $1s^2$ ) orbital mean excitation energies are larger in our model than those reported by the LPA approximation for almost a factor of two. Their values are only shown in their first appearance in Table 1 since they do not change from molecule to molecule. These differences can be attributed to the  $I_{0i}$  dependence on  $\rho_i$  for the HO and LPA models. The HO has a  $\rho_i^{-2}$  dependence while the LPA has a  $\rho_i^{-3/2}$  dependence [19]. We note that our bond and lone-pair values for  $I_{0i}$  are of the same order as those reported by the LPA approximation.

Now, the bonds and lone pair (LP) orbitals do change slightly depending on the molecular environment. The change in the bond radius, for the same type of bond in several different environments, is less than 5%, with a corresponding small change in  $I_{0i}$ . The molecular parameter optimization for some biomolecules has not been reported in the literature and since we would like to apply our model to other set of molecules, in Table 2, we report averaged  $\rho_i$  and  $I_{0i}$  values to generate the  $S_{e,i}$  for any molecule involving these bonds. Note that the O–H bond and LP (O) have the smaller  $\rho_i$  and thus, the larger  $I_{0i}$ , while the P–H and C=C bonds have the larger  $\rho_i$  and thus the smaller  $I_{0i}$ . As a consequence, the larger  $I_{0i}$ , the smaller contribution to  $S_{e,i}$  with a maximum shifted to higher projectile energies.

For the missing orbital parameters, we have made use of the fragment idea [14–16] to make some replacements. For example, the carbon dioxide molecule has a C=O bond, but no values for  $\rho_i$  has been reported in the literature. In Table 1 the values for CO orbitals are given, where the C=O bond has been replaced by a C≡O bond. In biomolecules, the presence of the phosphate requires a radius  $\rho_i$  for the P–O orbital. Thus, we propose to make the substitution of a P–O orbital by a C–O orbital radius value taken from Table 1. Finally, we do the same for a P=O bond by replacing it by a C=O bond.

By using the averaged orbital mean excitation energy of Table 2, in Eq. (8), we obtain the molecular mean excitation energy which is shown in Table 3. In all these cases, the occupation number is  $m_i = 2$  for each orbital, since we have closed shells. In the same

Table, we provide the LPA data of Ref. [19], and those of OS, Ref. [10], as well as to recommended experimental fits [5] for comparison. Our results are in close agreement to the LPA mean excitation energy, but below the recommended values of Ref. [5]. Note that in average the value of  $I_0$  oscillates between 30 and 80 eV for these molecules. Thus, according to our HO model, the maximum of  $S_e$  should be around  $E_p^{max} = 60$  to 160 keV, with a mean value around 100 keV. This is in complete agreement with previous thoughts on this matter [33], as previously mentioned.

#### 3.2. Stopping cross section

##### 3.2.1. Molecular bond contribution

In Fig. 3, we show the molecular bond contribution to  $S_{e,i}$  for protons colliding with C–H, C–C, C=C, and C≡C bonds, as obtained from Eq. (14), as well as the experimental data from Reynolds [35] and Park and Zimmerman [36]. To obtain the experimental bond contribution, we followed the procedure of Belkova et al. [18], i.e.  $S_e(C-H) = S_e(CH_4)/4$ ,  $S_e(C-C) = S_e(C_2H_6) - 6S_e(C-H)$ ,  $S_e(C=C) = S_e(C_2H_4) - 4S_e(C-H)$ ,  $S_e(C≡C) = S_e(C_2H_2) - 2S_e(C-H)$ . Note the carbon atom core as well as the lone pair orbital contributions are neglected within this approach in the experimental data. The agreement at high energies is reasonably good. Our theoretical C–H and C–C contributions are almost identical over the whole energy range. That is due to the close value of the orbital radius i.e. similar orbital mean excitation energy as seen in Tables 1 and 2. Experimentally, the contributions are different for projectile energies below 200 keV. Also, we note that our theoretical maximum in  $S_{e,i}$  is at a lower projectile energy than the maximum in the experimental data. The reason is the assumption of fixed projectile charge of our model. An effective projectile charge approach might be one way to obtain better agreement with the experiment. However, since our model is expected to work better in the region of validity of the first Born approximation, we would not pursue an effective charge analysis.

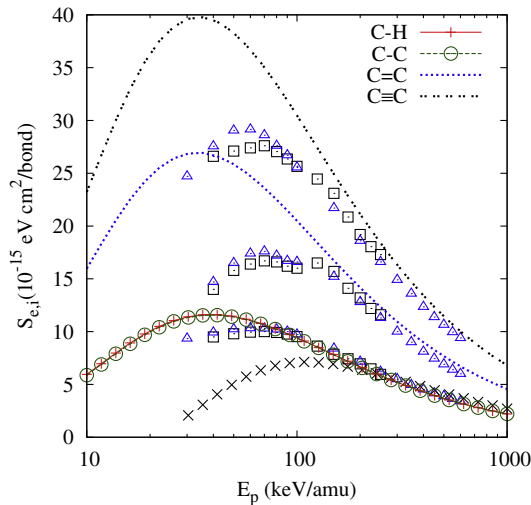
In Fig. 3, it can be seen that even in this approach, the  $S_e(C=C) \neq 2S_e(C-C)$  and  $S_e(C≡C) \neq 3S_e(C-C)$  due to the different electronic distribution in the C–C, C=C, and C≡C orbitals as evident from the  $\rho_i$  values. So, it is not possible to deduce bond contributions from an atomic-like Bragg rule or full experimental molecular stopping cross section data. A more detailed information on the molecular structure contribution is necessary.

**Table 3**

Total molecular mean excitation energy,  $I_0$ , values calculated with the values of Table 2. Also shown are the corresponding theoretical calculations from Refs: a, [19]; b, [10]; c, [9]; d, [5]; e, [13]; f, [9]; and g, [37]. We also show the fitted value,  $I_0^{fit}$ , for the scaling law (for details see Section 3.3). All energy values are given in eV.

Molecule	$I_0$	$I_0^{fit}$	$I_0^{LPA}$	Others $I_0$		
H <sub>2</sub>	17.33	–	19.47 <sup>a</sup>	–	19.20 <sup>d</sup>	19.26 <sup>f</sup>
N <sub>2</sub>	65.88	–	66.93 <sup>a</sup>	–	83.00 <sup>d</sup>	81.84 <sup>f</sup>
O <sub>2</sub>	74.36	52.87	65.44 <sup>a</sup>	–	96.50 <sup>d</sup>	95.02 <sup>f</sup>
H <sub>2</sub> O	61.31	42.07	50.53 <sup>a</sup>	40.68 <sup>b</sup>	72.00 <sup>d</sup>	72.46 <sup>f</sup>
CO	73.59	–	–	–	85.90 <sup>b</sup>	–
CO <sub>2</sub>	73.44	49.91	–	–	89.60 <sup>b</sup>	–
CH <sub>4</sub>	37.49	32.23	34.09 <sup>a</sup>	21.20 <sup>b</sup>	42.50 <sup>d</sup>	–
C <sub>2</sub> H <sub>2</sub>	46.82	33.42	48.27 <sup>a</sup>	53.13 <sup>b</sup>	57.80 <sup>d</sup>	–
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	42.52	32.22	42.13 <sup>a</sup>	27.93 <sup>b</sup>	51.30 <sup>d</sup>	49.93 <sup>f</sup>
C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	43.23	–	40.97 <sup>a</sup>	–	–	50.05 <sup>f</sup>
CH <sub>3</sub> OH	52.81	–	–	–	62.20 <sup>d</sup>	–
CH <sub>3</sub> NH <sub>2</sub>	63.33	–	–	–	–	–
Adenine	56.23	–	–	69.06 <sup>c</sup>	73.90 <sup>e</sup>	71.40 <sup>g</sup>
Guanine	58.37	–	–	71.58 <sup>c</sup>	78.25 <sup>e</sup>	75.00 <sup>g</sup>
Cytosine	57.19	–	–	69.60 <sup>c</sup>	73.22 <sup>e</sup>	74.60 <sup>g</sup>
Thymine	57.44	–	–	70.00 <sup>c</sup>	74.09 <sup>e</sup>	76.10 <sup>g</sup>
Uracil	59.91	–	–	73.13 <sup>c</sup>	76.77 <sup>e</sup>	–
DNA	62.68	–	–	–	86.74 <sup>g</sup>	81.5 <sup>g</sup>

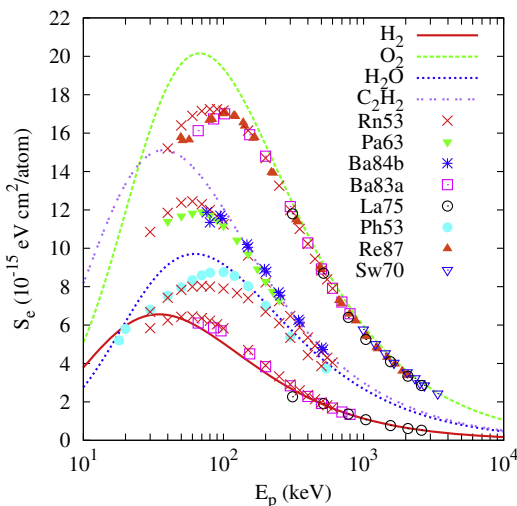




**Fig. 3.** Stopping cross section for protons colliding with a C–H (red solid line with a + symbol), C–C (green long dashed line with a  $\Delta$  symbol), C=C (blue dotted line), and C $\equiv$ C bond (black double-dotted line) as obtained with the  $I_{0i}$  values of Table 2. The symbols represent experimental data obtained from Reynolds et al. [35] and Park and Zimmerman [36]. See text for discussion. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

### 3.2.2. Stopping cross section of small molecules

In Fig. 4 we present the results for the molecular stopping cross section for protons colliding with H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, and C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> molecules obtained by using the averaged values for  $I_{0i}$  from Table 2 for each molecular bond in Eqs. (3), (14), and (17). We compare our results with experimental data from Refs. [41,36,44,38–40,42,43] adapted from Helmut Paul's compilation [45]. For energies above that of the maximum of  $S_e$ , we have good agreement when comparing to the experimental data, as well as a good agreement with the maxima position for  $S_e$ , for  $E_p > E_p^{max}$ , despite of our fixed projectile charge assumption. For projectile energies below the maximum, the first Born approximation does not account for the whole contribution to  $S_e$ . However, we present it to show that our approach does not have the logarithmic divergence characteristic of the Bethe expression, Eq. (1). The higher Born terms plus corrections due to electron



**Fig. 4.** Stopping cross section for protons colliding with H<sub>2</sub> (solid line), O<sub>2</sub> (dashed line), H<sub>2</sub>O (dotted line), and acetylene (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) molecules (double-dot line). The experimental data are from: Ba83a [38], La75 [39], Ph53 [40], Rn53 [41], Re87 [42], Sw70 [43], Pa63 [36], and Ba84b [44] adapted from the compilation by Helmut Paul [45].

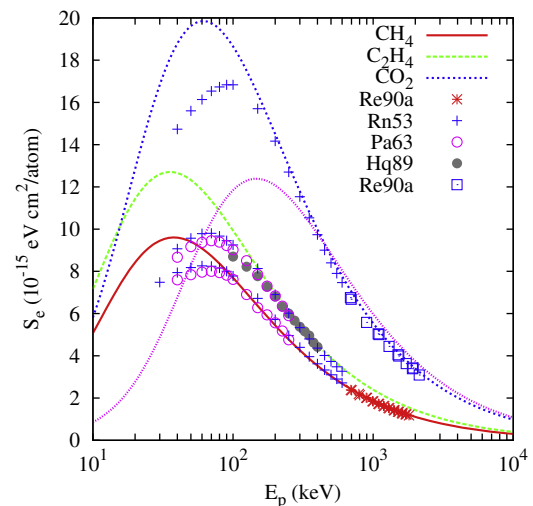
charge exchange should provide a better comparison to experiment as the projectile energy is reduced. As in Fig. 3, we expect the use of a projectile charge as a function of the projectile velocity would provide a better agreement to the experimental data. Note that for protons colliding with H<sub>2</sub> our model should be corrected for scattering of identical particles at low collision energies. We expect this is the reason why our results have a different slope and maximum with a better agreement in the high energy collision region for H<sub>2</sub>.

In Fig. 5, we show the results for methane, ethylene and carbon dioxide, obtained by the same procedure. Our results are compared to experimental data from Refs. [46,41,36,47] showing again a good agreement.

### 3.2.3. Stopping cross section of nucleobases

To assess the validity of the proposed averaged  $\rho_i$  and  $I_{0i}$  values, we consider nucleobases for which there is no explicit FSGO optimization of molecule parameters. Thus, the averaged mean excitation energies from Table 2 were used in Eq. (14) to determine the stopping cross sections for protons colliding with the following nucleobases: guanine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>O<sub>2</sub>), cytosine (C<sub>4</sub>H<sub>5</sub>N<sub>3</sub>O), thymine (C<sub>5</sub>H<sub>6</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>), adenine (C<sub>5</sub>H<sub>5</sub>N<sub>5</sub>), and uracil (C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>N<sub>2</sub>O<sub>2</sub>). See Table 4 for the number of orbitals used in the construction of these molecules.

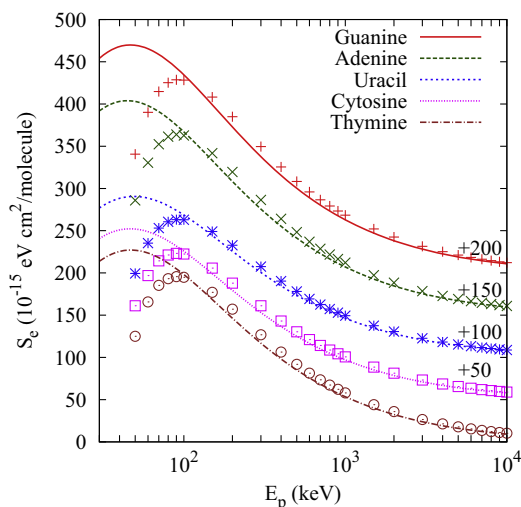
The results for the stopping cross section for protons colliding with adenine, guanine, cytosine, thymine, and uracil are shown in Fig. 6 which each curve has been shifted by  $50 \times 10^{-15}$  eV cm<sub>2</sub> units, respect to each other, in the y-axis to avoid clustering of the data. In the same figure, we compare with the theoretical results of Tan et al. [13], represented with symbols and obtained using Lindhard's dielectric theory. The agreement is excellent for the energy region of validity of the first Born approximation. Note that Tan's original data are reported for the stopping power, while we are showing the stopping cross section, thus a density is involved. Since we do not know the density and phase state of the molecule, we normalize their results to ours at the highest energy available ( $10^4$  keV). With this, it is interesting to note that the slopes for the stopping cross sections for all these nucleobases are in excellent agreement. In our case, the maximum of the stopping cross section is the same for the five nucleobases and is around a projectile energy of 50 keV, while Tan's results are at 100 keV.



**Fig. 5.** Stopping cross section for protons colliding with methane (solid line), ethylene (dashed line), and CO<sub>2</sub> (dotted line). The short-dash dot line for CO<sub>2</sub> is obtained with the molecular  $I_0$  value from Table 3. See text for discussion. The experimental data are from: Rn53 [41], Re90a [46], Pa63 [36], and Hq89 [47] adapted from the compilation by Helmut Paul [45].

**Table 4**  
Number of orbitals used in the construction of these molecules.

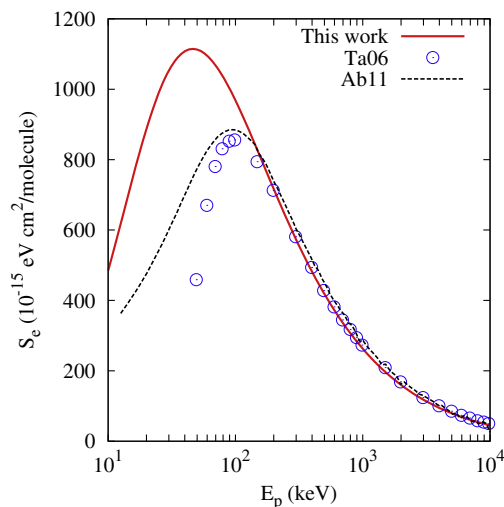
Orbital	Adenine	Cytosine	Guanine	Thymine	Uracile	DNA
C (1s <sup>2</sup> )	5	4	5	5	4	20
N (1s <sup>2</sup> )	5	3	5	2	2	7
O (1s <sup>2</sup> )	–	1	1	2	2	13
P <sub>L</sub> (1s <sup>2</sup> )	–	–	–	–	–	8
P <sub>K</sub> (2s <sup>2</sup> )	–	–	–	–	–	2
C–O	–	–	–	–	–	8
C=O	–	2	2	4	4	4
C–H	2	2	1	4	2	20
C–C	1	1	1	2	1	11
C=C	2	2	2	2	2	4
N–C	6	4	7	4	4	12
N=C	6	2	4	–	–	6
N–H	3	3	4	2	2	3
O–H	–	–	–	–	–	4
P–O	–	–	–	–	–	6
P=O	–	–	–	–	–	4
LP (N)	5	3	5	2	2	7
LP (O)	–	2	2	4	4	26



**Fig. 6.** Stopping cross section for protons colliding with five nucleobases: Adenine, Guanine, Cytosine, Thymine, and Uracil. The symbols are the theoretical data from Tan et al. [13].

Although the molecular  $I_0$  values from Table 3 for these nucleobases are almost equal, one would expect an equal curve for  $S_e$  for projectile energies above the maximum. We note in Fig. 6 that this is not the case in the low energy region around the maximum due to the different bond contributions in these molecules. However at high projectile energies, the proton stopping cross sections for the 5 nucleobases are indistinguishable, as already reported by Sauer et al. [9] from the molecular mean excitation energy analysis. Thus caution is recommended when concluding that similar values for  $I_0$  would give same ranges and stopping cross section since  $S_e$  might differ in the low energy collision region due different molecular composition, Barkas and low energy collision effects.

Let us consider a DNA nucleotide built by a pair of phosphate, two sugars, and one pair of thymine-adenine nucleotides [13,8]. This nucleotide has the molecular formula  $C_{20}H_{27}N_7O_{13}P_2$  (see Table 4 to see the number of orbitals for its construction). The result is shown in Fig. 7 and as we can see the curve obtained with our model has a good agreement for proton energies above the maximum, when compared to the theoretical results of Abril et al. [8] (dashed line) and Tan et al. [13] (open circles), both results were obtained using a dielectric approach. Again, we have normalized Abril and Tan results to our results at the highest projectile energy



**Fig. 7.** Stopping power cross section for protons colliding with DNA (Thymine-Adenine pair plus two phosphate groups and two sugars). Solid line, our results; Abril et al. [8], dashed line; Tan et al. [13], open circles.

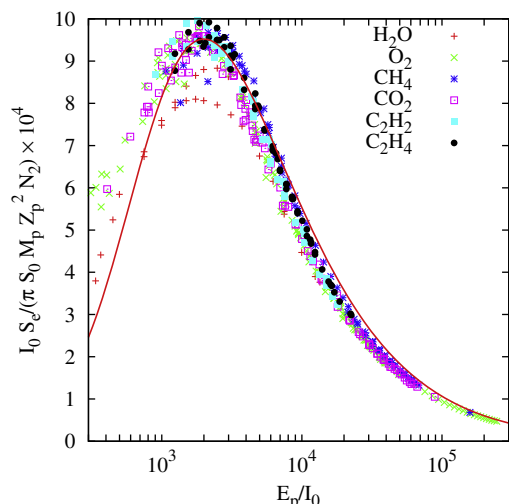
(10<sup>4</sup> keV) since we do not have a density target number. The agreement is good and the slope of both curves agrees for projectile energies where the first Born approximation is valid. Again, our maximum is around a projectile energy of 50 keV while Tan's et al. and Abril's et al. is around 100 keV. Also, Tan's theoretical results obtained with Lindhard's theory seem to have Bethe's characteristic logarithmic divergence at low energies (< 30 keV).

All our previous results are obtained with the assumption that the projectile charge is frozen during the slowing down process. A more realistic description of the electron transfer process is required for the projectile energy below the maximum of the stopping cross section. However, we already see that our results are in good to excellent agreement for projectile collision energies larger than 100 keV, where the first Born approximation is valid and where the proton charge is almost unity.

### 3.3. Universal scaled molecular stopping cross section

Finally, from Eq. (1) we see that the molecular mean excitation energy obtained as a logarithmic weighted sum is only valid for high projectile energies. So this molecular mean excitation energy, when used in Eq. (14) for the molecular equivalent version, would not give a proper description of the stopping cross section in the projectile intermediate energy region. This is observed in Fig. 5 for the case of CO<sub>2</sub> where we show the stopping cross section when use of the molecular mean excitation energy from Table 3 is made (short-dotted line). The agreement at large projectile energies is good when compared to the Bragg sum rule or to the experiment. However, in the intermediate energy region its predictions are lower than the experimental data. Thus, caution is recommended when use of the molecular mean excitation energy is used to describe intermediate to low projectile collision energies stopping power cross sections.

Experimentally, however, the shape of the stopping cross section suggest that our universal curve could serve to obtain a molecular angular frequency or molecular mean excitation energy that would describe the stopping cross section. We then proceed to let  $I_0$  be an adjustable parameter in Eq. (14) for the whole molecular contribution and fit it to the experimental data. Interestingly, the procedure produces an  $I_0^{fit}$  that adjust the experimental data within less than 1% of error. The obtained adjusted  $I_0^{fit}$  is given in



**Fig. 8.** Experimental scaled stopping power cross section for protons colliding with  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ , and  $\text{C}_2\text{H}_4$  as a function of  $E_p/I_0$  by using  $I_0^{fit}$  from Table 3 corresponding to the experimental fit. See text for discussion. The solid line is the universal curve, RHS of Eq. (14). Experimental points are scaled according to the LHS of Eq. (14) from Helmut Paul's compilation [45].

**Table 3.** The values obtained are within the same order of magnitude as those of the Bragg sum rule.

By using the adjusted  $I_0^{fit}$  value we can scale the experimental data to a single curve, equivalent to Eq. (17). In Fig. 8, we show the results of this procedure when applied to the experimental data compilation of Helmut Paul [45] for the same set of molecular targets of Figs. 4 and 5, e.g.  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ , and  $\text{C}_2\text{H}_4$ . The scaled behavior between all these experimental data adjust very well to a single scaled curve for  $E_p/I_0 > 10^3$ . At lower projectile energies, effects on the projectile state charge start to be present.

#### 4. Conclusions

In this work, we have shown that a Bragg sum rule for molecular core, bond, and lone-pair orbitals, provides a good description for the electronic stopping cross section if a proper model of the molecular structure is used. The molecular structure FSGO model gives, in a natural way, the core, bond, and lone-pair orbital description parameters of a molecule. Using a harmonic oscillator approach and the FSGO model, we found analytical expressions for the angular frequency (or the equivalent orbital mean excitation energy) and the orbital electronic stopping cross section for molecules, in the spirit of Bragg's rule. This orbital Bragg rule takes into account the molecular characteristics of the stopping cross section not present in the standard atomic version. Thus, we report values for the orbital mean excitation energy parameter for core, bond, and lone-pair orbitals of some characteristic molecules and nucleobases in the gas phase within the HO-FSGO model.

Our approach allows to obtain the stopping cross section for molecules containing H, C, N, O, and P atoms which are of atmospheric, astrophysical, and biological interest.

The theoretical approach allows us to find a scaling, universal behavior for the electronic stopping cross section that depends on the angular frequency. Within this approach, we compare our results with theoretical and experimental data finding good to excellent agreement for the energy regions of validity of the first Born approximation. This scaling behavior applies from the peak of the stopping cross section to higher projectile energies. For lower projectile collision energies, a projectile charge description is required to account for the neutralization processes in the

projectile. A universal scaled curve is derived and confirmed by the experimental data.

We conclude that a molecular mean excitation energy, as obtained by a Bragg-like logarithmic formula, would not describe properly the scaling behavior. The scaling characteristics of the electronic stopping cross sections, is obtained through a molecular mean excitation energy or molecular angular frequency parameter. Work is in progress to connect the molecular angular frequency to a mean excitation energy outside of the HO model in order to compare to ab initio mean excitation energies.

#### Acknowledgement

This work was supported by DGAPA-UNAM through grant PAPIIT-IN-101-611. RCT would like to thank Prof. S. A. Cruz for helpful discussions during sabbatical stay at UAM-I.

#### References

- [1] N. Bohr, On the theory of the decrease of velocity of moving electrified particles on passing through matter, *Philos. Mag.* 25 (1913) 10–31.
- [2] H. Bethe, Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie, *Ann. Phys.* 397 (3) (1930) 325–400, <http://dx.doi.org/10.1002/andp.19303970303>. URL <http://dx.doi.org/10.1002/andp.19303970303>.
- [3] J. Oddershede, *Propagator Methods*, John Wiley & Sons, Inc., 2007, <http://dx.doi.org/10.1002/9780470142943.ch3>. pp. 201–239 (Chapter 3).
- [4] J. Oddershede, P. Jorgensen, An order analysis of the particle-hole propagator, *J. Chem. Phys.* 66 (4) (1977) 1541–1556, <http://dx.doi.org/10.1063/1.434118>. URL <http://link.aip.org/link/?JCP/66/1541/1>.
- [5] S. Kamakura, N. Sakamoto, H. Ogawa, H. Tsuchida, M. Inokuti, Mean excitation energies for the stopping power of atoms and molecules evaluated from oscillator-strength spectra, *J. Appl. Phys.* 100 (6) (2006) 064905, <http://dx.doi.org/10.1063/1.2345478>. URL <http://link.aip.org/link/?JAP/100/064905/1>.
- [6] M. Inokuti, Inelastic collisions of fast charged particles with atoms and molecules the bethe theory revisited, *Rev. Mod. Phys.* 43 (1971) 297–347, <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.43.297>. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.43.297>.
- [7] A. Besemer, H. Paganetti, B. Bednarz, The clinical impact of uncertainties in the mean excitation energy of human tissues during proton therapy, *Phys. Med. Biol.* 58 (4) (2013) 887. <http://stacks.iop.org/0031-9155/58/i=4/a=887>.
- [8] I. Abril, R. García-Molina, C.C. Denton, I. Kyriakou, D. Emfietzoglou, Energy loss of hydrogen and helium-ion beams in dna: calculation based on a realistic energy-loss function of the target, *Radiat. Res.* 175 (2) (2011) 247.
- [9] S.P.A. Sauer, J. Oddershede, J.R. Sabin, Mean excitation energies for biomolecules: glycine to DNA, *Adv. Quantum Chem.* 62 (2011) 215–242, <http://dx.doi.org/10.1016/B978-0-12-386477-2.00011-5>. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780123864772000115>.
- [10] J. Oddershede, J.R. Sabin, Bragg rule additivity of bond stopping cross sections, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 42 (1) (1989) 7–10.
- [11] P. Sigmund, Kinetic theory of particle stopping in a medium with internal motion, *Phys. Rev. A* 26 (1982) 2497–2517, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.26.2497>. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.26.2497>.
- [12] J. Lindhard, M. Scharff, Energy loss in matter by fast particles of low charge, *Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd.* 27 (1953) 15.
- [13] Z. Tan, Y. Xia, M. Zhao, X. Liu, Electronic stopping power for proton in amino acids and protein in 0.0510 meV range, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 266 (9) (2008) 1938–1942.
- [14] R. Kreutz, W. Neuwirth, W. Pietsch, Analysis of electronic stopping cross sections of organic molecules, *Phys. Rev. A* 22 (1980) 2606–2616, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.22.2606>. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.22.2606>.
- [15] D.I. Thwaites, Departures from bragg's rule of stopping power additivity for ions in dosimetric and related materials, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 69 (1) (1992) 53–63.
- [16] R.E. Christoffersen, D. Spangler, G.G. Hall, G.M. Maggiora, Ab initio calculations of large molecules using molecular fragments: evaluation and extension of initial procedures, *J. Am. Chem. Soc.* 95 (1973) 8526.
- [17] Y. Belkova, Y. Teplova, Energy loss of light ions in different carbon compounds, *J. Surf. Invest.* 4 (2) (2010) 248–250, <http://dx.doi.org/10.1134/S1027451010020138>. URL <http://dx.doi.org/10.1134/S1027451010020138>.
- [18] Y. Belkova, Y. Teplova, Violation of the additivity rule for the ion energy loss in hydrocarbons, *J. Surf. Invest.* 5 (2) (2011) 225–227, <http://dx.doi.org/10.1134/S1027451011030062>. URL <http://dx.doi.org/10.1134/S1027451011030062>.
- [19] R. Cabrera-Trujillo, S.A. Cruz, J. Soullard, Bond stopping cross sections for protons incidents on molecular targets within the olpa/fsgo implementation of the kinetic theory, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 93 (1994) 166.
- [20] A.A. Frost, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. i. Computational procedure. lih as an example, *J. Chem. Phys.* 47 (10) (1967) 3707.
- [21] A.A. Frost, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. ii. One and two electron pair system, *J. Chem. Phys.* 47 (10) (1967) 3714.

- [22] A.A. Frost, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. iii. First-row atom hydrides, *J. Chem. Phys.* 72 (4) (1968) 1289.
- [23] A.A. Frost, R.A. Rouse, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. iv. Hydrocarbons, *J. Amer. Chem. Soc.* 90 (8) (1968) 1965.
- [24] S.Y. Chu, A.A. Frost, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. viii. second-row atom hydrides, *J. Chem. Phys.* 54 (2) (1971) 760.
- [25] S.Y. Chu, A.A. Frost, Floating spherical gaussian orbital model of molecular structure. ix. Diatomic molecules of first-row and second row-atoms, *J. Chem. Phys.* 54 (2) (1971) 764.
- [26] D.E. Meltzer, J.R. Sabin, S.B. Trickey, Calculation of mean excitation energy and stopping cross section in the orbital local plasma approximation, *Phys. Rev. A* 41 (1990) 220–232, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.41.220>.
- [27] W.H. Bragg, R. Kleeman, Xxxix. On the particles of radium and their loss of range in passing through various atoms and molecules, *Philosophical Magazine Series 6* 10 (57) (1905) 318–340, <http://dx.doi.org/10.1080/14786440509463378>. [www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786440509463378](http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786440509463378).
- [28] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [29] E. Montenegro, S. Cruz, C. Vargas-Aburto, A universal equation for the electronic stopping of ions in solids, *Phys. Lett. A* 92 (4) (1982) 195–202, [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601\(82\)90532-1](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9601(82)90532-1).
- [30] R. Cabrera-Trujillo, Stopping power in the independent-particle model: harmonic oscillator results, *Phys. Rev. A* 60 (1999) 3044.
- [31] R. Cabrera-Trujillo, Projectile isotope effects on stopping power: harmonic oscillator approach, *Nucl. Instr. Meth. B* 149 (1999) 228.
- [32] R. Cabrera-Trujillo, J.R. Sabin, Y. Ohrn, E. Deumens, N. Stolterfoht, Mass scaling laws due to isotopic effect in the energy loss of  $\text{He}^{2+}$  colliding on h, d, and t, *Phys. Rev. A* 83 (2011) 012715.
- [33] R. Cabrera-Trujillo, P. Apell, J.R. Sabin, Why does the maximum in the stopping cross section for protons occur at approximately 100 keV most of the time?, *AIP Conf Proc.* 680 (2003) 86.
- [34] P.B. Sabin, J.R. Sabin, Effects of confinement on mean excitation energy, *Int. J. Quantum Chem.* 82 (6) (2001) 277–281, <http://dx.doi.org/10.1002/qua.1050>.
- [35] H.K. Reynolds, D.N. Dunbar, W.A. Wenzel, W. Whaling, The stopping cross section of gases for protons, 30–600 keV, *Phys. Rev.* 92 (1953) 742.
- [36] J.T. Park, E.J. Zimmerman, Stopping cross sections of some hydrocarbon gases for 40–250 keV protons and helium ions, *Phys. Rev.* 131 (1963) 1611–1618, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.131.1611>.
- [37] M.J. Berger, J.S. Coursey, M.A. Zucker, J. Chang, NIST stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions, Online, available <<http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>> 2013 (15.05.2013)
- [38] H. Baumgart, W. Arnold, H. Berg, E. Huttel, G. Clausnitzer, Proton stopping powers in various gases, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 204 (23) (1983) 597–604, [http://dx.doi.org/10.1016/0167-5087\(83\)90093-5](http://dx.doi.org/10.1016/0167-5087(83)90093-5). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0167508783900935>.
- [39] R.A. Langley, Stopping cross sections for helium and hydrogen in  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ , and  $\text{H}_2\text{S}$  (0.3–2.5 meV), *Phys. Rev. B* 12 (1975) 3575–3583, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.12.3575>. <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.12.3575>.
- [40] J.A. Phillips, The energy loss of low energy protons in some gases, *Phys. Rev.* 90 (1953) 532–537, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.90.532>. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.90.532>.
- [41] H.K. Reynolds, D. Dunbar, W. Wenzel, W. Whaling, The stopping cross section of gases for protons, 30–600 keV, *Phys. Rev.* 92 (3) (1953) 742.
- [42] G. Reiter, H. Baumgart, N. Kniest, E. Pfaff, G. Clausnitzer, Proton and helium stopping cross sections in  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ , no and  $\text{N}_2\text{O}$ , *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 27 (2) (1987) 287–292, [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(87\)90567-2](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(87)90567-2). <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X87905672>.
- [43] J. Swint, R. Prior, J. Ramirez, Energy loss of protons in gases, *Nucl. Instr. Meth.* 80 (1) (1970) 134–140, [http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X\(70\)90308-3](http://dx.doi.org/10.1016/0029-554X(70)90308-3). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X70903083>.
- [44] H. Baumgart, W. Arnold, J. Gnzl, E. Huttel, A. Hofmann, N. Kniest, E. Pfaff, G. Reiter, S. Tharraketta, G. Clausnitzer, Proton and helium stopping cross sections in gaseous hydrocarbon compounds, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 5 (1) (1984) 1–9, [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(84\)90561-5](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(84)90561-5). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X84905615>.
- [45] H. Paul, Stopping power for light ions, Online, available <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/> 2009
- [46] G. Reiter, N. Kniest, E. Pfaff, G. Clausnitzer, Proton and helium stopping cross sections in  $\text{H}_2$ , he,  $\text{N}_2$ ,  $\text{O}_2$ , ne, ar, kr, xe,  $\text{CH}_4$  and  $\text{CO}_2$ , *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* 44 (4) (1990) 399–411, [http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X\(90\)90001-B](http://dx.doi.org/10.1016/0168-583X(90)90001-B). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X9090001B>.
- [47] A.K.M.M. Haque, A. Mohammadi, H. Nikjoo, Stopping power for low-energy protons, *J. Phys. D Appl. Phys.* 22 (8) (1989) 1196. <http://stacks.iop.org/0022-3727/22/i=8/a=027>.



## Apéndice C

### Artículo II

Debido a la relevancia del efecto de la simetría del blanco en la sección eficaz de poder de frenamiento, mostrado en el Capítulo 5, estamos elaborando un escrito donde se muestren estos resultados y eventualmente publicarlo. Los datos tentativos del trabajo son:

**Autores:** *C. Martínez-Flores y R. Cabrera-Trujillo*

**Título:** *Electronic stopping power implementing the harmonic oscillator approach for target symmetries  $l = 0, 1, 2$*

En las siguientes páginas anexo un borrador de el manuscrito con nuestros resultados.



# Electronic stopping power implementing the harmonic oscillator approach for target symmetries $l = 0, 1, 2$

C. Martínez-Flores and R. Cabrera-Trujillo\*

*Instituto de Ciencias Físicas, Universidad Nacional Autónoma de México,  
Ap. Postal 43-8, Cuernavaca, Morelos, 62251, México*

(Dated: January 13, 2014)

In this work, we implement the harmonic oscillator approach to study the stopping cross section within the first Born approximation. We found explicit new formulas as function of target symmetry for angular moment  $l = 0, 1, 2$  making evident the symmetry contribution to  $S_e$ . In a self-consistent way, we used the Virial theorem to calculate the mean excitation energy  $I_0$ . Using this approach, we obtained the stopping cross section for protons colliding with several closed (noble) and open shell atom gases. The results yield stopping cross section curves in agreement with available experimental measurements at high energy regimen.

## I. INTRODUCTION

When a projectile impact on a target, it losses energy during the penetration. The projectile energy loss could be transferred to the target in kinetic energy form, this energy is called the electronic energy loss and it is absorbed by the target.

In the present work, we study the stopping cross section under the first Born approximation of protons colliding with several closed and open shell atom gases. Under the harmonical oscillator approach we developed closed formulas taking into account the  $s$ ,  $p$  and  $d$  target symmetry.

## II. THEORY

In this section we review some of the well-known results from electronic stopping power theory and propose our model approximation. First, we present the independent particle model to calculate the stopping cross section. Second, we used the harmonic oscillator approach to find  $S_e$  taking into account target symmetry. Third, we show the Bragg rule decomposition to calculate the mean excitation energy.

### A. General treatment

In this process we have a projectile, in this case, an ion moving with velocity  $v$ , mass  $M_1$  and nuclear charge  $Z_1e$ , colliding with a gas phase target with mass  $M_2$  and  $N_2$  bound electrons in some initial stationary state denoted by  $|m_0\rangle$ . Considering the solid angle  $d\Omega$  that deflects the projectile along a direction with polar angle  $(\phi, \theta)$  measured since the laboratory frame. Supposing a final state  $|m\rangle$  that denotes a target transition where the kinetic energy of the projectile is  $E_m - E_{m_0}$ . From

Bethe's formula [REF] the electronic stopping cross section is given by

$$S_e(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{m > m_0} \int_{q_{min}}^{q_{max}} F_{mm_0}(\mathbf{q}) \frac{d\mathbf{q}}{q^2}, \quad (1)$$

where  $F_{mm_0}$  are the well-known generalized oscillator strengths (GOS) given by

$$F_{mm_0}(\mathbf{q}) = \frac{2m_e}{\hbar^2 q^2} (E_m - E_{m_0}) |M_{mm_0}(\mathbf{q})|^2, \quad (2)$$

with the atomic form factor

$$M_{mm_0}(\mathbf{q}) = \langle m_0 | \sum_{i=1}^{N_2} e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_i} | m \rangle, \quad (3)$$

where  $\mathbf{q}$  is the transfer momentum from the projectile to the target during the collision and  $d\mathbf{q} = q dq d\phi$ . The limits for the integral Eq. (1) are found by kinematic collision considerations and they are given by

$$q_{min}^{max} = \frac{M_1 v}{\hbar} \left[ 1 \pm \sqrt{1 - \frac{2(E_m - E_{m_0})}{M_1 v^2}} \right]. \quad (4)$$

The last equations are the well-known Bethe results for stopping power. The Eq. (1) implies the solution of the Schrödinger equation for  $N_2$  electrons system, instead of trying to solve this difficult work we use an approximate solution under the independent-particle model [1]. In this way our particle system for  $N_2$  electrons is described by an Hartree-Fock wave function given by

$$|m\rangle = |m_1, m_2, \dots, m_{N_2}\rangle. \quad (5)$$

We know that the energy transfer from the ground state to any excited state is

---

\* trujillo@fis.unam.mx



$$E_m - E_{m_0} = \sum_{j=1}^{N_2} (E_{m_j} - E_{m_{0j}}), \quad (6)$$

for the  $j$ th electron in the excited state  $|m\rangle$ . Defining the one-electron operator  $O = \sum_{j=1}^{N_2} O_j$  and supposing that the excitation occurs for the  $j$ th orbital the atomic wave factor Eq. (3) is given by

$$M_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = \langle m_j | O_j | m_{0j} \rangle. \quad (7)$$

Now taking into account the GOS in this approach we obtain for each individual orbital

$$G_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = \sum_{j=1}^{N_2} G_{m_j m_{0j}}^j, \quad (8)$$

where the orbital contribution is

$$G_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = (E_{m_j} - E_{m_{0j}}) |\langle m_j | O_j | m_{0j} \rangle|^2. \quad (9)$$

From this approach we observe that the one-electron operator is a plane wave given by  $O_j = e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j}$ , from Eq. (9) we obtain the GOS as

$$F_{m_j m_{0j}}^j(\mathbf{q}) = \frac{2m_e}{\hbar^2 q^2} (E_{m_j} - E_{m_{0j}}) |\langle m_{0j} | e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}_j} | m_j \rangle|^2. \quad (10)$$

Thus the stopping cross section is given by the contribution of the  $i$ th orbital as we observe from Eq. (1) and is given by

$$S_e(v) = \sum_{i=1}^{N_2} S_{ei}(v), \quad (11)$$

where the contribution to the  $i$ th orbital is

$$S_{ei}(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{m_i} \int_{q_{min,i}}^{q_{max,i}} F_{m_i m_{0i}}^i(\mathbf{q}) \frac{d\mathbf{q}}{q^2}. \quad (12)$$

Until now review the general treatment for the stopping cross section as function of the  $i$ th orbital contribution in Eq. (11) through the GOS Eq. (8) and the form factor given in Eq. (7).

### 1. Bethe results

In this section we only take into account some elements to reconsider the Bethe's classical formula to the stopping cross section. In this way, integrating Eq. (12) the standart Bethe result is given by

$$S_{ei}(v) = \frac{2e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \sum_{m_i} \int_{q_{min,i}}^{q_{max,i}} \frac{d\mathbf{q}}{q^2} = \frac{4\pi e^4 Z_1^2}{m_e v^2} \ln \left( \frac{2m_e v^2}{I_{oi}} \right), \quad (13)$$

where  $I_{oi}$  is the mean excitation energy defined through the GOS  $f_{m_i m_{0i}}^i = \lim_{q \rightarrow 0} F_{m_i m_{0i}}^i(\mathbf{q})$  as

$$\ln I_{oi} = \sum_{m_i} f_{m_i m_{0i}}^i \ln(E_{m_i} - E_{m_{0i}}). \quad (14)$$

Under the high velocity regimen we obtain the Bragg-like rule decomposition for the mean excitation energy as

$$N_2 \ln I_0 = \sum_{i=1}^{N_2} n_i \ln I_{oi}. \quad (15)$$

We review the general treatment to calculate  $S_e$  implementing the independent particle model.

## B. Harmonic oscillator results

In this section we review in detail the result obtained in [1] for the atomic form factor and the DOS. These results were implementing for  $s$  orbital target symmetry to obtain an analytic formula for  $S_e$ . We will present our extend model calculations to obtain differents stopping cross sections formulas for  $p$  and  $d$  target orbital symmetries using this approach.

### 1. $l = 0$ symmetry

To implement the harmonic oscillator approach, we need to consider that every electron of the target is bound harmonically with the nucleus. In that way, we will have that the wave function is spherically symmetric. Now we consider the wave function of the three-dimensional harmonic oscillator as

$$\phi_{m_i} = A_{m_i} e^{-\alpha_i^2(x_i^2 + y_i^2 + z_i^2)/2} \prod_{x=y=z} H_{m_{ix}}(\alpha_i x_i), \quad (16)$$

where  $A_{m_i}$  is a normalization constant that depends of characteristic frequencies,  $H_{m_{ix}}$  are the Hermit polynomials and as is usual  $\alpha_i^2 = m_e \omega_{oi} / \hbar$  [1]. The energy is  $E_i = \hbar(m_{ix} + m_{iy} + m_{iz} + 3/2)$ . Due to the wave function is spherically symmetry, we can suppose that all transfer moment is in some arbitrary direction, in this case  $z$ -direction, then using Eq. (7) and (16) the form factor is given by

$$M_{m_j m_{0j}}^j(q) = \frac{2m_j}{\sqrt{m_j!}} \left( \frac{iq}{2\alpha_j} \right)^{m_j} e^{-q^2/4\alpha_j^2}, \quad (17)$$

and from Eq. (10) the GOS are

$$F_{m_j m_{0j}}^j(q) = \frac{1}{(m_j - 1)!} \left( \frac{q^2}{\alpha_j^2} \right)^{m_j - 1} e^{-q^2/2\alpha_j^2}. \quad (18)$$

Now using Eq. (18) to integrate Eq. (12) we obtain an analytic formula for the stopping cross section  $S_e$  given by

$$S_{ei}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{si}(v) \quad (19)$$

where  $Z_p^2$  is the projectile charge,  $m_e$  the electron mass and  $v$  the projectile velocity. The stopping number is given by

$$L_{si}(v) = \sum_{m_j}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{1}{2(m_j - 1)!} \times \left[ \Gamma(m_j - 1, x_{min}) - \Gamma(m_j - 1, x_{max}) \right], \quad (20)$$

where  $\Gamma(m_j - 1, x_{min}^{max})$  is the incomplete gamma function which is evaluated in the limits

$$x_{min}^{max} = \frac{M_1 v^2}{2m_e \hbar \omega_{oi}} (1 \pm \sqrt{1 - \hbar \omega_{oi} \nu_i / M_1 v^2}). \quad (21)$$

Noting that this stopping number gave in Ref. [1] has been expressed in terms of a series involving the exponential integral function, one can determine that the same expression can be rewritten as Eq. (20).

### 2. $l = 1$ symmetry

Due to the relevant importance that the target symmetry has to obtain a correct stopping cross section we propose incorporate the  $p$  target symmetry when  $l = 1$ . We considerate the HO approach one more time and we assume that all transfer moment in along  $z$ -direction. Using the adequate wave function Eq. (16) into (7) we obtain the atomic form factor for  $p$  symmetry given by

$$M_{m_j m_{1j}}^j(\mathbf{q}) = \frac{2^{m_j/2}}{\sqrt{m_j!}} \frac{1}{2^{1/2}} \left( \frac{iq}{2\alpha_j} \right)^{m_j - 1} \times e^{-q^2/4\alpha_j^2} \left( -\frac{q^2}{2\alpha_j^2} + m_j \right), \quad (22)$$

taking the Eq. (22) into Eq. (10) we obtain de GOS given by

$$F_{m_j m_1}^j(q) = \frac{m_j - 1}{m_j!} e^{-q^2/2\alpha_j^2} \left[ \left( \frac{q^2}{2\alpha_j^2} \right)^{m_j} + -2m_j \left( \frac{q^2}{2\alpha_j^2} \right)^{m_j - 1} + m_j^2 \left( \frac{q^2}{2\alpha_j^2} \right)^{m_j - 2} \right]. \quad (23)$$

Now we insert the last expression into Eq. (12) obtaining the  $S_e$  for  $p$  symmetry given by

$$S_{ei}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{pi}(v) \quad (24)$$

where the he stopping number is

$$L_{pi}(v) = \sum_{m_j > 1}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{m_j - 1}{2m_j!} \times \left[ -(\Gamma(m_j, x_{max}) - \Gamma(m_j, x_{min})) + 2m_j(\Gamma(m_j - 1, x_{max}) - \Gamma(m_j - 1, x_{min})) + m_j^2(\Gamma(m_j - 2, x_{max}) - \Gamma(m_j - 2, x_{min})) \right]. \quad (25)$$

where the incomplete gamma functions are evaluated in the limits from Eq. (21).

### 3. $l = 2$ symmetry

In the same consistng way, we calculated the  $S_e$  when  $l = 2$ . Under the same assumptions as we did before, we found the atomic form factor for  $d$  symmetry using the adecuate wave function Eq. (16) into (7). The result is

$$M_{m_j m_{2j}}^j(\mathbf{q}) = -\frac{2^{m_j/2}}{2^{1/2} \sqrt{m_j!}} e^{-q^2/4\alpha_j^2} \left( \frac{iq}{2\alpha_j} \right)^{m_j} \left[ \frac{q^2}{2\alpha_j^2} - 2m_j + \left( \frac{2\alpha_j^2}{q^2} \right) m_j(m_j - 1) \right], \quad (26)$$

and from Eq. (10) the GOS for this atomic form factor is

$$F_{m_j m_{2j}}^j(q) = e^{-q^2/2\alpha_j^2} \left( \frac{q^2}{2\alpha_j^2} \right)^{m_j} \left[ \frac{1}{m_j!} \left( 2^{m_j - 2} m_j - 2^{m_j + 1} m_j^2 \right) \right]$$

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{\alpha_j^2 m_j!} \left( 2^{m_j-1} q^2 - 2^{m_j-2} q^2 \right) + \frac{1}{q^2 m_j!} \left( 2^{m_j+2} m_j \alpha_j^2 \right. \\
& \left. - 2^{m_j+1} m_j^2 \alpha_j^2 - 3 \cdot 2^{m_j+2} m_j^2 \alpha_j^2 + 3 \cdot 2^{m_j+1} m_j^3 \alpha_j^2 \right) + \\
& \frac{1}{q^4 m_j!} \left( -2^{m_j+4} m_j^2 \alpha_j^2 + 2^{m_j+3} m_j^3 \alpha_j^4 + 2^{m_j+4} m_j^3 \alpha_j^4 + \right. \\
& \left. - 2^{m_j+3} m_j^4 \alpha_j^4 \right) + \frac{1}{q^6 m_j!} \left( -2^{m_j+3} m_j^2 \alpha_j^6 + 2^{m_j+2} m_j^3 \alpha_j^6 + \right. \\
& \left. 2^{m_j+4} m_j^3 \alpha_j^6 - 2^{m_j+4} m_j^4 \alpha_j^6 + 2^{m_j+2} m_j^5 \alpha_j^6 \right) \Big]. \quad (27)
\end{aligned}$$

Finally we insert the last GOS into Eq. (12) and the  $S_e$  for  $d$  target symmetry is given by

$$S_{ei}(v) = \frac{4\pi e^4 Z_p^2}{m_e v^2} L_{di}(v) \quad (28)$$

where the he stopping number is given by

$$L_{di}(v) = - \sum_{m_j > 2}^{[E_p/I_{0i}]} \frac{m_j - 2}{4m_j!} \times$$

$$\begin{aligned}
& \left[ (-1 + m_j)^2 m_j^2 \left( \Gamma(m_j - 3, x_{max}) - \Gamma(m_j - 3, x_{min}) \right) - \right. \\
& (-1 + m_j) m_j^2 \left( \Gamma(m_j - 2, x_{max}) - \Gamma(m_j - 2, x_{min}) \right) - \\
& - 6m_j \left( \Gamma(m_j - 1, x_{max}) - \Gamma(m_j - 1, x_{min}) \right) + \\
& 6m_j^2 \left( \Gamma(m_j - 1, x_{max}) - \Gamma(m_j - 1, x_{min}) \right) + \\
& \left. \left( \Gamma(m_j + 1, x_{max}) - \Gamma(m_j + 1, x_{min}) \right) \right]. \quad (29)
\end{aligned}$$

where the incomplete gamma functions are evaluated in same limits as we did before. The combination of these analitic results will be show in next section for some testing cases.

### C. Virial theorem and mean excitation energy

To understand the physical implications of the angular frequency we remember that the mean excitation energy is defined using the dipole oscillator strenght (DOS). Calculating the DOS for the HO we will find how the angular frequency and the mean excitation energy are related. We have that the orbital mean excitation energy is  $I_{0i} = \hbar\omega_{0i}$  [1]. Using the virial theorem the mean excitation energy is given by

$$I_{0i} = \sqrt{-\frac{2\hbar^2\epsilon_{0i}}{m_e \langle r_i^2 \rangle}}, \quad (30)$$

This mean excitation energy take into account each orbital contributions.

## III. RESULTS

### A. Mean excitation Energy

In Table I we use the expressions found before to calculate the mean excitation energy  $I_k$  for noble gases using the atomic data reported by Bunge *et al* [2]. We do not present the mean excitation energy for all rest atoms considerer in this work, but they can be find in direct way. We note that Bunge and co-workers used the well-known Roothaan-Hartree-Fock atomic wave functions for atoms in ground-state. In order to compare our results, we show the mean excitation energy for noble gases in orbital descomposition calculated under several approaches. We present the calculations of Oddershede and Sabin (OS) [3] by means the atomic data tables. Meltzer, Sabin and Trickey (MST) [4] calculated it by the orbital density generalization of the local plasma approximation (LPA) calculated within the local-spin-density approximation. Furthermore, in previous work Cabrera-Trujillo [1] calculated the mean excitation energy using the Clementi and Roetti atomic data tables [5] under the same model. The aim of use the atomic data tables reported by Bunge and co-workers in this model is to have a more precise mean excitation energy due to the significant changes from electronic orbital energy and orbital radius reported.

### B. Stopping cross section

#### 1. Closed shell atoms

In section ?? we found the mean excitation energy descomposition into orbital contributions for atoms, in particularly we show the results for noble gases in Table I. Now we will use those values to calculate the stopping cross section for: He, Ne, Ar, Kr and Xe. In Fig. 1 and 2

TABLE I: The orbital mean excitation energy for noble gases as calculated by Eq. (30) and the expectation value  $\langle r_i^2 \rangle$  using the data tables reported by Bunge et. al. [2]  $I_k$ ;  $I_k^{MKS}$  are from Ref. [4] and  $I_k^{OS}$  are from Ref. [3].

Atom	Orb.	$\langle r_i^2 \rangle$ (a.u.)	$\epsilon_k$	$I_k$	$I_k^{MKS}$	$I_k^{OS}$	Atom	Orb.	$\langle r_i^2 \rangle$ (a.u.)	$\epsilon_k$	$I_k$	$I_k^{MKS}$	$I_k^{OS}$
He	1s	1.1848	-0.9180	33.86	33.66	38.83		3d	0.3715	-3.8252	123.44	224.99	564.77
Ne	1s	0.0335	-32.7722	1203.68	497.75	982.68		4s	3.0403	-1.1529	23.69	17.27	38.22
	2s	0.9671	-1.9304	54.35	38.35	92.22		4p	4.4548	-0.5249	13.19	27.68	23.81
	2p	1.2285	-0.8504	32.00	70.81	81.37	Xe	1s	0.0011	-1224.3978	41361.5	-	-
Ar	1s	0.0099	-118.6103	4197.74	1241.21	1948.72		2s	0.0172	-189.3401	4040.61	-	-
	2s	0.2012	-12.3222	301.01	125.13	388.29		2p	0.0129	-177.7824	4513.16	-	-
	2p	0.1743	-9.5715	285.02	297.87	572.56		3s	0.1159	-40.1757	716.28	-	-
	3s	2.3504	-1.2774	28.36	20.53	49.93		3p	0.1108	-35.2217	685.80	-	-
Kr	3p	3.3108	-0.5910	16.25	33.17	32.95		3d	0.0926	-26.1189	645.92	-	-
	1s	0.0024	-520.1655	17863.50	3599.10	4229.23		4s	0.6256	-7.8563	136.32	-	-
	2s	0.0413	-69.9031	1582.93	419.46	1353.15		4p	0.6855	-6.0083	113.88	-	-
	2p	0.0320	-63.0098	1706.81	1062.50	1588.54		4d	0.8809	-2.7779	68.31	-	-
	3s	0.3317	-10.8495	219.99	88.12	290.12		5s	4.4401	-0.9444	17.74	-	-
	3p	0.3435	-8.3315	189.43	183.57	344.29		5p	6.2764	-0.4573	10.38	-	-

we show the results of stopping cross section for protons colliding on noble gases using  $s$ ,  $p$  and  $d$  orbital combinations. For helium gas (red-solid line) we observe that under the HO approach for  $s$  orbital symmetry we obtain good results comparing with the experimental data as we see in Fig. (1). Despite that all the theoretical approach is base in the firsts Born approximation, the HO results for the  $s$  orbital works well in low energy regimen. This fact is due to the atom closed shell configuration [REF]. In the same figure we show the results obtained for neon gas (blue-solid line) using a combination of  $s$  and  $p$  orbital symmetries. In the same figure we show the contribution to stopping cross section of the outer orbital contribution (red dashed-line), in this case the  $2p$  orbital. Comparing our theoretical approach with experimental data, we found a good agreement for high energy regimen if we only take into account the valence electrons contribution ( $p$  orbital). For the total  $S_e$  we observe that the curve have the correct slope in Bethe regimen. However, we have not taken into account the contribution of proton frozen charge to stopping cross section. In Fig. 2 are the results for argon, krypton and xenon gas using the  $s$ ,  $p$  and  $d$  orbital symmetry combinations. For argon gas we show the total contribution (red-line) and the outer orbital contribution (dot red-line) to  $S_e$  as we did before. In this case we observe that, once again, the outer orbital produce the most contribution to  $S_e$ . Furthermore the total stopping cross section have a good agreement with experimental data for Bethe regimen. In the same figure we present the results for krypton (blue-line) and xenon (green-line) gas compared with experimental data. For both cases, the theoretical approach have good agreement with experimental data for high energy regimen. Furthermore, in both cases the slopes have the correct inclinations comparing with experimental data and both situations our approach is below.

## 2. Open shell atoms

Now we used the HO approach, as we did before, to calculate the stopping cross section for protons on different open shells atoms. In Fig. 3 we consider protons on Be, Mg, Ca and Sr with  $2s$ ,  $3s$ ,  $4s$  and  $5s$  outer orbital respectively. In all these collisions we used the theoretical approach present in Eqs. (19), (24) and (28). As we

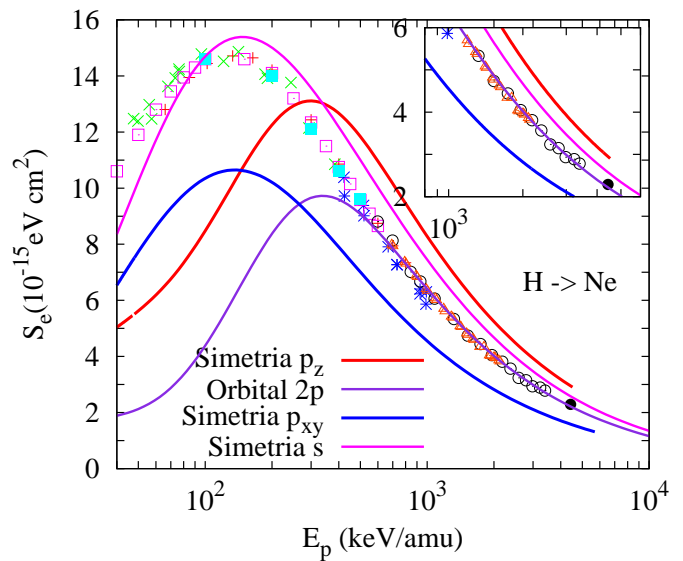


FIG. 1:  $S_e$  for protons on neon gas using  $s$  and  $p$  orbital results. For neon gas the experimental data are: Ba83 (+) [6]; Bs79 (x) [REF]; Ch54 (\*) [17]; Re53 (□) [7]; Bo71 (■) [11]; Sw70 (○) [18]; Br55 (●) [12]; Rt90 (△) [13] and Sc93 (▲) [16].

did before, we used an orbital combination to find the stopping cross section. Using this orbital decomposition we note that the largest contribution to  $S_e$  is given by the outer orbitals, in this case with  $s$  symmetry, and the slope shape is given again by the outer orbital. In the same figure, for Be atom (black-solid line) we observe the classical behavior of the HO, if we compare it with Bethe theory, our HO model do not have the typically logatimic divergence Eq. (13). After an energy of 500 keV we observe a good agreement with experimental data, noting that we are into the first Born approximation. For Mg atom (magenta-solid line) our HO approach fails for intermediate energy regimen comparing with experimental available data. In high energy regimen we did not found any experimental data reported to compare with our approach. We expect that our theoretical approach can give an insight for future experiment measurements in high energy regimen for this collision. In Ca target (blue-solid line) we have the  $s$  and  $p$  orbitals contributions ( $[\text{Ne}]3s^23p^64s^2$ ) to  $S_e$ . In the same way, from Fig. 3 we observe for energies above 400 keVs a good agree-

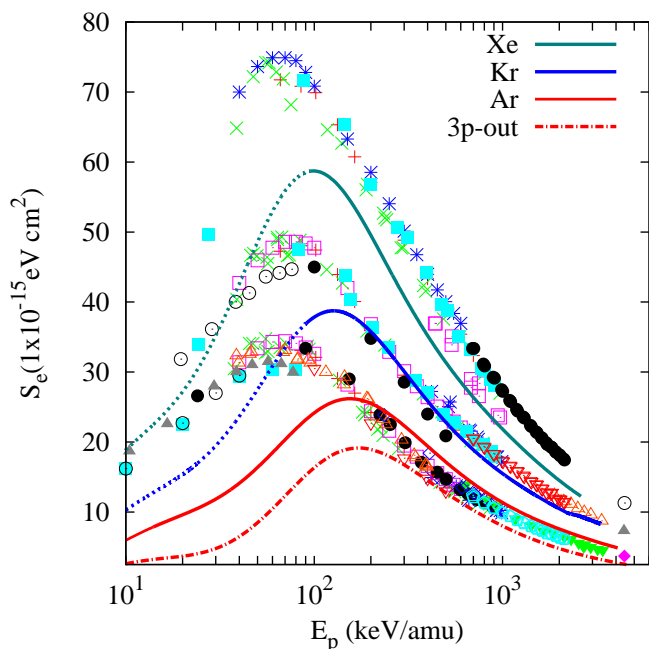


FIG. 2:  $S_e$  for protons on argon, krypton and xenon gas using  $s$ ,  $p$  and  $d$  orbital results. For argon gas the experimental data from: Ba83 (+) [6]; Bs79 (x) [REF]; Ch54 (\*) [17]; Re53 (□) [7]; Or68 (■) [19]; Or68 (○) [19]; Wo63 (●) [20]; We53 (△) [9]; Ph53 (▲) [8]; Bo71 (▽) [11]; Sw70 (▼) [18]; Ma66 (◇) [21]; Br55 (○) [12] and Rt90 (\*) [13]. For krypton gas: Ba83 (+) [6]; Bs79 (x) [REF]; Ch54 (\*) [17]; Re53 (□) [7]; Wo63 (■) [20]; Ph53 (○) [8]; Bo71 (●) [11]; Sw70 (△) [18]; Br35 (▲) [12] and Rt90 (▽) [13]. For xenon gas: Ba83 (+) [6]; Bs79 (x) [REF]; Re53 (\*) [7]; Ch54 (□) [17]; Wo63 (■) [20]; Br55 (○) [12] and Rt90 (●) [13].

ment with experimental available data noting the correct curve slope. For lowest energies our model fails. For Sr atom (red-solid line) we observe a good agreement with experimental data above 300 keVs. In the same way, we expect that our model can predict correctly the new stopping cross sections measurements for energies above 700 keVs.

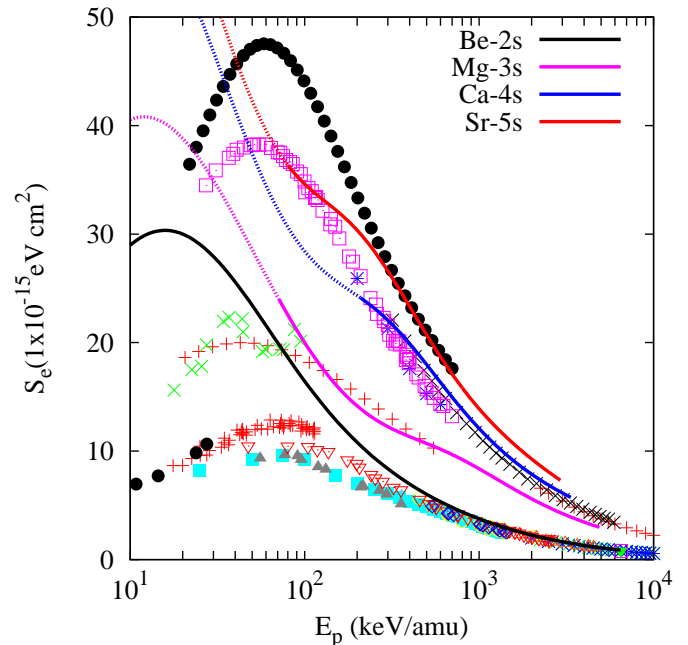


FIG. 3:  $S_e$  for protons on Be, Mg, Ca and Sr atoms with outer orbital  $2s^2$ ,  $3s^2$ ,  $4s^2$  and  $5s^2$  respectively. For Be the experimental data are from: Bn80 (+) [22]; An67 (x) [23]; Ts67 (\*) [24]; Is79 (□) [REF] Ishiwari; Ka53 (■) [25]; Mr68 (○) [26]; Md53 (●) [REF] Madsen; Ni61 (△) [REF] Nielsen; Wa49 (▲) [27]; Bd56 (▽) [28] and Sm94 (▼) [29]; Md48 (◇) [30]. For Mg are from: Fi96 (+) [31] and Bg98 (x) [32]; For Ca are form: An68 (+) [33]; Go67 (x) [34]; Bd56 (\*) [28] and Ep94 (□) [35]. For Sr are from: (●) [REF].

In Fig. 4 we calculated the stopping cross sections for protons on N, Si, Se and Sb with  $p$  open shell. For N target (red-solid line) we observe that above an 200 keVs energy we have excellent agreement compare it with experimental data. Under HO approach, we have been used a  $s$  and  $p$  orbital combination results. For low energy regimen our model fails. The outer contribution (red-dashed line) to  $S_e$  is plot in the same figure showing good agreement for high energies. In Si (blue-solid line) and Se (magenta-solid line) targets we have different asymptotic behaviors as we can see from Figure 4. In the first case, for 200 to 1000 keVs our approach its in good agreement with experimental data and it is above for 1000 keVs energies compared with experimental data. In this last part, we explain it if we considerer the shells corrections [REF]. In second case, for all energy range we are below

the experimental data and for energies below 2000 keVs we do not have the correct curve slope. For high energies we have the correct slope but our approach fails trying to describe the experimental available data. Finally for Sb atom (green-solid line) we have a similar situation like selenium atom discuss before.

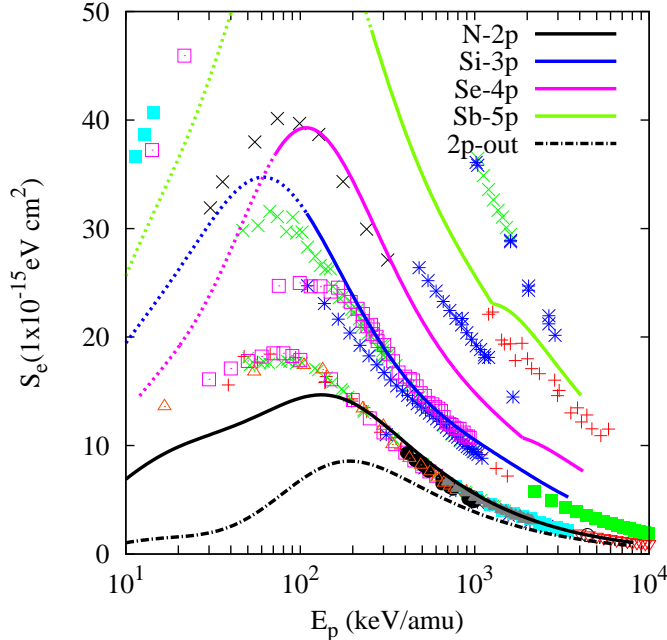


FIG. 4:  $S_e$  for protons on N, Si, Se and Sb atoms with outer orbital  $2p^3$ ,  $3p^2$  and  $4p^4$  respectively. For N the experimental data are from: Bs79 (+) [REF] Besenbacher; Re87 (x) [36]; La75 (\*) [37]; Re53 (□) [7]; Sw70 (■) [18]; By55 (○) [38]; Ct54 (●) [39]; Wo63 (△) [20]; Re90a (▲) [40]; Sm99a (▽) [41]. For Si are from: MI75 (+) [42]; Ca78 (x) [43]; Sa81a (\*) [44]; Iz80 (□) [45]; Ts67 (■) [24]; For Se are from: Co83 (+) [46]; Ec78 (x) [47]; Gr55 (\*) [48] and Na71 (□) [49]. For Sb are from: Ec78 (+) [47]; Gr55 (x) [48]; Le71 (\*) [REF] E.Leminen; Ar69 (□) [REF] E.P.Arhipov; Vs93 (■) [50].

In Fig. 5 we show the theoretical results found for Fe and Mo atoms with  $d$  open shell. In both cases we have a similar situation. There is a region where the HO approach suffer an abrupt slope change if we take into account all the  $S_e$  orbital contributions. The points are around 250 keVs for Fe and 450 keVs for Fe. For Fe atom (red-solid line) we have good agreement with experimental data for energies above to 1000 keV and for below energies our model fails as we can expect because we are into the first born approximation. For Mo atom (blue-solid line) we obtain a similar result, from energies above 1000 keVs we have a good agreement and for below energies our model fails. In this case the incomplete orbital shells are  $3d^4$  (Fe) and  $4d^4$  (Mo) makes evident the important contribution to stopping cross section.

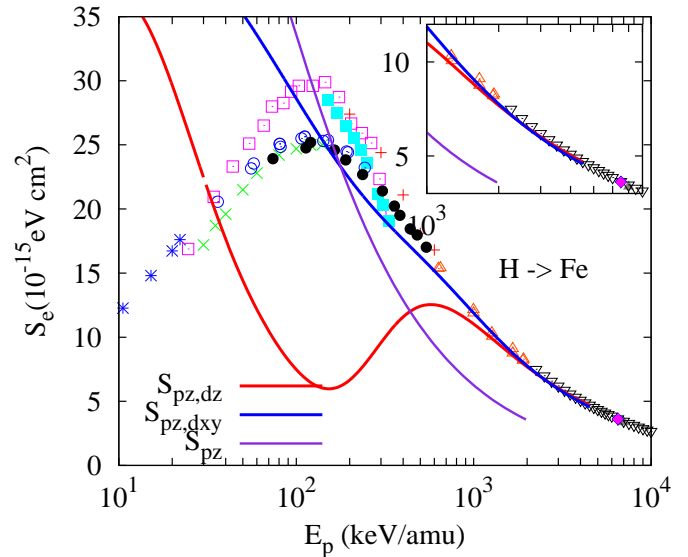


FIG. 5:  $S_e$  for protons on Fe with outer orbital  $3d^4$ . For Fe gas the experimental data from: Bd56 (+) [28]; Wh69 (x) [51]; Ar69 (\*) [REF] Arkhipov; Me82a (□) [52]; Me82b (■) [REF] P.Mertens <http://dx.doi.org/10.1063/1.330142>; Se90b (○) [53]; Se90b (●) [53]; Le71 (△) [REF] Leminen; Is74 (▲) [54]; An68 (▽) [33]; Is79 (▼) [55] and Sm94 (◇) [29].

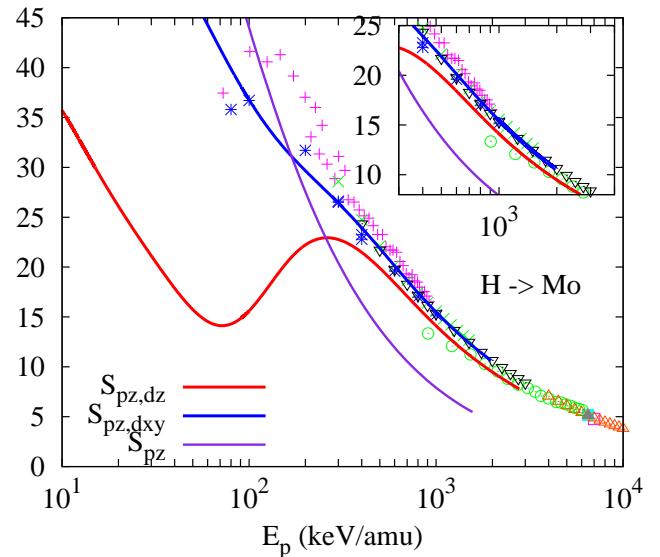


FIG. 6:  $S_e$  for protons on Mo atoms with outer orbital  $4d^4$ . For Mo the experimental data are from: Iz80 (+) [45]; Lu79 (x) [56]; Si84 (\*) [57]; Is74 (□) [54]; Is79 (■) [55]; Si72 (○) [REF] Sirotonin; Sk91 (●) [58]; Sm96a (△) [59]; Sm94 (▲) [29]; Sm99a (▽) [41] and BH92 (▼) [60].

Comparing the targets in Figs. 3, 4 and 5 we observe that the open shell symmetry of each atom is relevant

in the account of the stopping cross section. Comparing *Se* atom with  $Z = 34$  and  $4p^4$  open shell and *Kr* atom with  $Z = 36$  and  $4p^6$  close shell we observe some differences between them due to the symmetry contributions. In both cases the HO approach is below the experimental data being evident in selenium atom. Some people can think that this abrupt change in theoretical result can be explained noting the different chemical properties of each atom. As we mentioned before, the validity of OH approach is for high energy regimen and the projectile does not have time to interact with target electrons doing less important the chemical configurations [REF]. Then, we have a less contribution to  $S_e$  while the  $4p$  open shell becomes empty as we see from figures. In the same way, for *Sb* atom with  $Z = 51$  and  $5p^3$  open shell and *Xe* atom with  $Z = 54$  and  $5p^6$  we have a similar situation described before but in this case for  $5p$  open shell.

#### IV. CONCLUSIONS

Making use of the independent particle model and implementing the harmonic oscillator approach we found

new closed formulas into the first Born approximation to account the stopping cross section. These formulas account the target atom properties symmetries. A combination of these expressions for each target orbital gives us a correct description for high energy regimen comparing with available experimental data even for those atoms with largest atomic number and  $d$  outer orbital, our approach works well.

#### ACKNOWLEDGMENTS

This work was supported by DGAPA-UNAM through project PAPIIT-IN-101-611.

- 
- [1] R. Cabrera-Trujillo, Phys. Rev. A **60**, 3044 (1999), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.60.3044>.
- [2] C. Bunge, J. Barrientos, and A. Bunge, Atomic Data and Nuclear Data Tables **53**, 113 (1993), ISSN 0092-640X, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X8371003X>.
- [3] J. Oddershede and J. R. Sabin, Atomic Data and Nuclear Data Tables **31**, 275 (1984), ISSN 0092-640X, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0092640X8490024X>.
- [4] D. E. Meltzer, J. R. Sabin, and S. B. Trickey, Phys. Rev. A **41**, 220 (1990), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.41.220>.
- [5] E. Clementi and C. Roetti, Atomic Data and Nuclear Data Tables **14**, 177 (1974), ISSN 0092-640X, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X74800161>.
- [6] H. Baumgart, W. Arnold, H. Berg, E. Huttel, and G. Clausnitzer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research **204**, 597 (1983), ISSN 0167-5087, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0167508783900935>.
- [7] H. K. Reynolds, D. N. F. Dunbar, W. A. Wenzel, and W. Whaling, Phys. Rev. **92**, 742 (1953), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.92.742>.
- [8] J. A. Phillips, Phys. Rev. **90**, 532 (1953), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.90.532>.
- [9] P. K. Weyl, Phys. Rev. **91**, 289 (1953), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.91.289>.
- [10] J. T. Park and E. J. Zimmerman, Phys. Rev. **131**, 1611 (1963), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.131.1611>.
- [11] E. Bonderup and P. Hvelplund, Phys. Rev. A **4**, 562 (1971), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.4.562>.
- [12] J. E. Brolley and F. L. Ribe, Phys. Rev. **98**, 1112 (1955), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.98.1112>.
- [13] G. Reiter, N. Kniest, E. Pfaff, and G. Clausnitzer, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms **44**, 399 (1990), ISSN 0168-583X, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168583X9090001B>.
- [14] R. Golser and D. Semrad, Phys. Rev. Lett. **66**, 1831 (1991), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.66.1831>.
- [15] F. Raiola, G. Gyrky, M. Aliotta, A. Formicola, R. Bonetti, C. Brogini, L. Campajola, P. Corvisiero, H. Costantini, A. D'Onofrio, et al., The European Physical Journal A - Hadrons and Nuclei **10**, 487 (2001), ISSN 1434-6001, URL <http://dx.doi.org/10.1007/s100500170107>.
- [16] A. Schiefermüller, R. Golser, R. Stohl, and D. Semrad, Phys. Rev. A **48**, 4467 (1993), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.48.4467>.
- [17] A. B. Chilton, J. N. Cooper, and J. C. Harris, Phys. Rev. **93**, 413 (1954), URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.93.413>.
- [18] J. Swint, R. Prior, and J. Ramirez, Nuclear Instruments and Methods **80**, 134 (1970), ISSN 0029-554X, URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0029554X70903083>.
- [19] J. H. Ormrod, Canadian Journal of Physics **46**, 497 (1968).

## Apéndice D

### Artículo III

En este apéndice presentaré de forma breve el trabajo realizado en el curso de *Laboratorio Avanzado*, que fue realizado en el Laboratorio de Colisiones Atómicas del Instituto de Ciencias Físicas a cargo del Dr. Guillermo Hinojosa Aguirre. Como parte de los estudios y proyecto de maestría, se midió la sección eficaz total de despojo para la colisión de iones de metano  $CH_4^-$  en  $N_2$  y  $O_2$ . Actualmente, el artículo producto de estas mediciones está publicado. Los datos del trabajo son:

**Autores:** *E. M. Hernández, L. Hernández, C. Martínez-Flores, N. Trujillo, M. Salazar, A. Chavez y G. Hinojosa*

**Título:** *Electron detachment cross sections of  $CH_4^-$  colliding with  $O_2$  and  $N_2$  below 10 keV energies*

**Revista:** *Plasma Sources Science and Technology*

**Volumen/páginas:** *23: 015018*

**Año:** *Febrero 2014*

El experimento se llevó a cabo con un acelerador electrostático que opera a energías entre 1 a 10 keVs. En general, la técnica consiste en generar un haz de  $CH_4^-$  que interactúa en una celda de gas que contiene el gas de  $O_2$  o  $N_2$  teniendo colisiones binarias. Un haz de iones de  $CH_4^-$  es generado inyectando gas de metano en la fuente del ión, manteniendo una presión constante. Un electromagneto fue empleado para deflectar al haz. Después dos placas paralelas ayudan a colimar la trayectoria del haz hasta la celda donde se encuentran los gases  $O_2$  o  $N_2$ . Después de la interacción, los iones negativos del haz pueden perder un electrón, a una energía cinética dada, el haz neutro de  $CH_4$  es registrado y la sección eficaz se deriva de la intensidad del haz. La sección eficaz de despojo simple  $\sigma_{-10}$  de  $CH_4^-$  colisionando con  $O_2$  y  $N_2$  es medida registrando la intensidad de los iones de metano, los neutros de  $CH_4$  y la presión del gas en la celda. Los iones del haz son medidos con una jaula de Faraday y con un channeltron (CEM). Para derivar la sección eficaz de los datos registrados se emplearon dos métodos: el método del aumento de la señal (signal grow-rate method) en el intervalo de 4 a 10 keVs y el método de la atenuación del haz (beam attenuation technique) en el intervalo de energías de 0.3 a 10 keVs.

Finalmente los datos experimentales obtenidos se comparan con otros encontrados en la literatura, mostrando buen acuerdo. En las siguientes páginas se muestra el artículo.





# Electron detachment cross sections of $\text{CH}_4^-$ colliding with $\text{O}_2$ and $\text{N}_2$ below 10 keV energies

E M Hernández<sup>1,3</sup>, L Hernández<sup>1</sup>, C Martínez-Flores<sup>1</sup>, N Trujillo<sup>1</sup>, M Salazar<sup>2</sup>, A Chavez<sup>2</sup> and G Hinojosa<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Instituto de Ciencias Físicas, Universidad Nacional Autónoma de México, Apartado Postal 48-3, Cuernavaca 62251, México

<sup>2</sup> Centro Universitario de Ciencias Exactas e Ingeniería, Universidad de Guadalajara, México

<sup>3</sup> Facultad de Ciencias, Universidad Autónoma del Estado de Morelos, Avenida Universidad 1001, Cuernavaca 62209, México

E-mail: [hinojosa@fis.unam.mx](mailto:hinojosa@fis.unam.mx)

Received 10 September 2013, revised 17 November 2013

Accepted for publication 9 December 2013

Published 4 February 2014

## Abstract

Negative methane is an interesting molecular anion from a fundamental point of view and also because it can be a source of thermal electrons in low temperature hydrocarbon plasma. Measurements of collisional electron detachment from methane anions colliding with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  in the energy range of 0.3 to 10.0 keV are presented. Single electron detachment was measured with the signal grow-rate method and total electron detachment was measured with the beam attenuation technique. Both techniques were employed in order to study the process of electron detachment over the present energy range. The validity of the geometrical model is discussed.

Keywords: methane anion, collision detachment, lifetime

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

## 1. Introduction

Collision electron detachment (CED) from molecular anions is a process of fundamental interest in cold plasma physics. Detailed knowledge of CED is important in controlling the dielectric strength of gas mixtures because free electrons can be removed from a plasma when the effective electron attachment is larger than the effective electron detachment [1]. CED is a source of electrons in low temperature plasma that is of interest in a variety of applications [2]. In film deposition plasma techniques [3] free thermal electrons can initiate electric breakdowns [4]. The main optical emitting transition near to the electrode plate in negative corona discharges, studied in a pin-to-plate electrode configuration in  $\text{CH}_4$  with  $\text{N}_2$  mixtures, requires excitation via free electron collisions. The generation of such electrons may be attributed to collisional electron detachment from negative molecules [5]. Additionally, in combustion plasma, the process of

electron detachment may explain the electrical properties of a methane–air flame potential distribution [6].

The present measurements of electron detachment cross sections from  $\text{CH}_4^-$  in collisions with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  at low energies may shed light on the understanding of the details of plasma processes in hydrocarbon atmospheric environments. For instance, a large quantity of heavy negative ions was discovered in the atmosphere of Titan [7, 8]. Simulations of Titan's atmosphere with a mixture of  $\text{CH}_4$  with  $\text{N}_2$  gases show that negative ions play an important role in the production of large molecules [9]. In comets, methane is considered a parent specie in the composition of the coma plasma [10].

Evidence for the existence of the methane anion dates from the work of Trepka and Neurt [11] who identified negative ions in methane using a beam technique. More recently, in mass resolved spectra from RF discharge plasma [12], methane anions were clearly identified by mass spectrometry. An *ab initio* calculation for the electron affinity for methane is reported in [13].

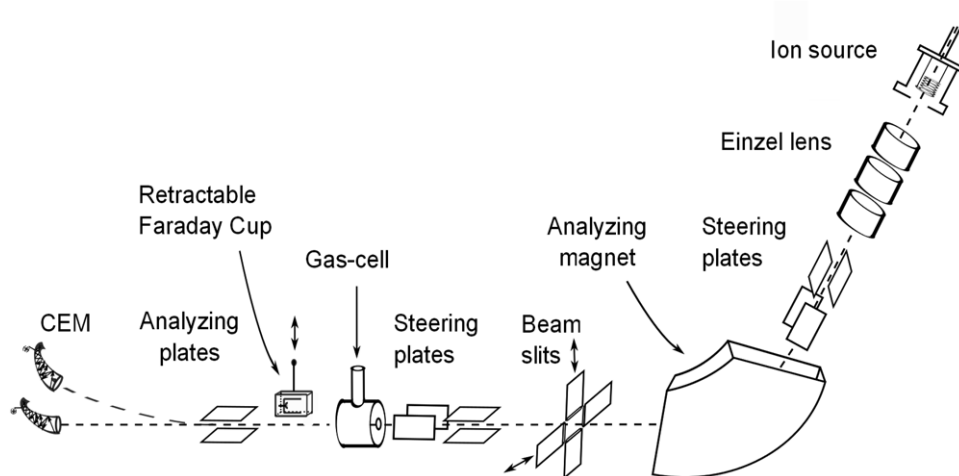


Figure 1. Schematic drawing of the apparatus.

In a Townsend swarm technique [14], observed avalanches of heavy negative ions in dense  $\text{CH}_4$  gas are attributed to the formation of the methane anion because, in these experiments, the close to zero kinetic energy of the electronic sheet is not enough to open the dissociation channel that peaks at 9.2 eV electron kinetic energy [15].

In this paper we present results of the CED cross sections in the energy range of 300 eV to 10 keV. Two different measurement techniques are discussed and a characterization of the ion source is given.

## 2. Experiment

The experiment was carried out using an electrostatic accelerator that operates below 10 keV. The technique consists of generating a beam of  $\text{CH}_4^-$  which interacts in a gas-cell with either  $\text{O}_2$  or  $\text{N}_2$  high purity gases under single collision conditions. As a result of the interaction, the negative ions from the beam may lose an electron. At a given kinetic energy, the resulting neutral  $\text{CH}_4$  is counted and the cross section is derived from the intensities of the ion beam and the resulting neutral molecules as a function of the gas target-density of the gas-cell. The method has been described before [16], here we provide a description relevant to the present data and some details of the ion source technique.

An ion beam of  $\text{CH}_4^-$  was generated by injecting high purity methane gas into the ion source, maintaining it at a constant flux pressure. The ion source assembly was acceleration-voltage biased, such that the negative ions produced inside were repelled toward a set of Einzel lenses. A  $60^\circ$  sector electromagnet was used for the mass-to-charge analysis of the ion beam. Two sets of parallel plates helped to fine tune the beam trajectory to the entrance of a gas-cell with input and output collimator orifices with diameters of 1.0 mm and 1.5 mm, respectively. A set of  $x$ - $y$  slits located after the electromagnet were used to control the ion beam width and to measure its profile. The ion beam width was typically less than 1.0 mm.

The neutral molecules resulting from its interaction with the gas were separated from the parent negative ions by a

perpendicular electric field (analyzing plates in figure 1) that directed the ions to a channel electron multiplier (CEM) located in one side of the accelerator axis. Neutral molecules were detected and counted using an identical CEM aligned with the axis of the accelerator.

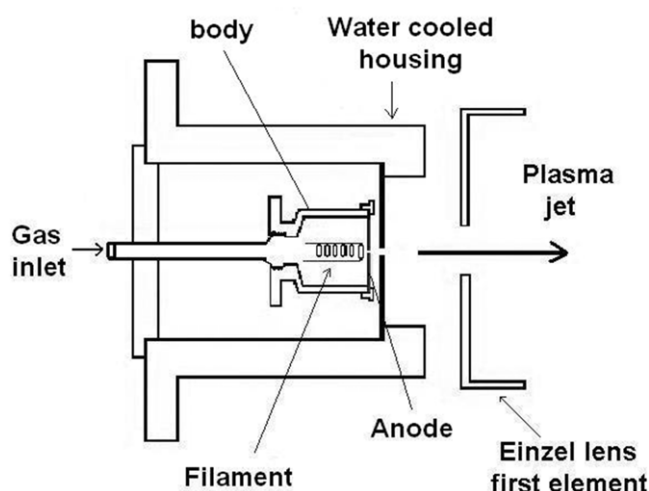
To check for the full collection of the particles, two tests were conducted. One consisted in measuring the cross sections with a small diameter collimator of 1.0 mm in the output of the gas-cell. An additional test was carried out to record the intensity of the negative ions as a function of the voltage of the analyzing plates. These measurements resulted in an intensity plateau as a function of the voltage, thereby showing that the ion beam diameter was smaller than the CEM collection aperture after dispersion in the gas-cell. The CEM aperture width was 0.7 cm.

In order to verify similar gain and efficiencies of the CEM detectors, the counting rate in the central CEM was measured with a rate-meter while the electric field of the analyzing plates was zero (counting the neutral particles plus the negative parent ion beam). With the electric field on, the lateral CEM count rate (parent ion beam) plus the central CEM count rate (neutral particles) was confirmed to be similar to the central CEM combined counting rate.

The ion source assembly was located in a region where the base pressure was  $8 \times 10^{-4}$  Pa without gas load. With gas load, the operation pressure in this section of the accelerator was  $5 \times 10^{-2}$  Pa. The pressure in the detection chamber was  $5 \times 10^{-5}$  Pa. Sources of systematic uncertainty came from temperature and pressure measurements, propagating a 10% systematic error to the cross sections. For the kinetic acceleration energy, a 1% systematic uncertainty is quoted.

### 2.1. Ion source

A  $\text{CH}_4^-$  ion beam was generated with a filament-type ion source by the simple injection of high purity methane gas or a mixture of methane and argon gases. The source used here is commercially available (Colutron® [17]). Its schematic is shown in figure 2. The ion source body is made of quartz and it can be considered as a plasma chamber with an extraction



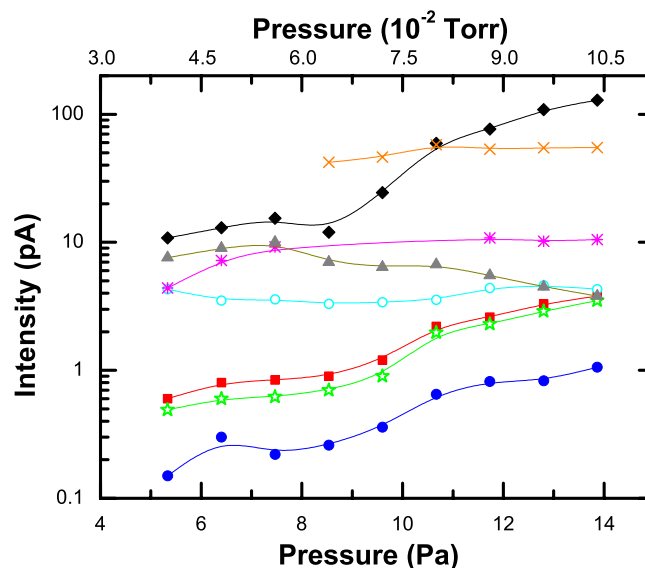
**Figure 2.** Schematic drawing of the ion source. The body is made of quartz. A voltage is applied to the metallic cap (anode) to pull electrons generated by the filament. Pressure was monitored at the beginning of the gas inlet with a resistor based pressure gauge.

orifice. One important parameter is the distance of the filament to the anode; this was set to 2.3 mm approximately. In addition, the anode central perforation diameter was increased to 1.6 mm; these modifications improved the ion beam intensities. The gas (or the mixture of gases) is injected at a constant flux pressure. We did not monitor the plasma temperature in the ion source. The anode voltage (or energy of the electrons in the plasma) was set to 100 V. The filament (20 mi specification of the supplier) was typically operated in the power interval of 80 to 150 W.

In order to attempt to characterize and check for the reproducibility of the ion source output, the ion beam intensities output as a function of the pressure for pure methane and for an admixture of 50% Ar and methane were measured (see figure 3). The main formation mechanism for the negative ion species that show an approximated monotonic behavior as a function of the source pressure, may be attributed to direct electron capture by collisions with thermal electrons (primary ions [18]):  $\text{CH}_4 + e^- \rightarrow (\text{CH}_4^-)^v$ , where  $v$  indicates vibrational excitation. A subsequent resonant collision (three-body collision process) may be required to quench the vibrational excitation energy:  $(\text{CH}_4^-)^v + \text{CH}_4 \rightarrow \text{CH}_4^- + (\text{CH}_4)^*$ . This mechanism has been observed in the formation of molecular  $\text{O}_2^-$  [19].

It is noticeable that  $\text{CH}_4^-$  is not reported by Melton and Rudolph [20].  $\text{C}_2\text{H}_2^-$  is abundant and appears above 60 mTorr, indicating that its formation process may be through secondary collisions. Its intensity, as in the case of  $\text{H}^-$ , was one order of magnitude larger than the rest of the negative species. Melton and Rudolph used 100 eV electron collisions with methane to form negative ions. Their most abundant primary negative ion was  $\text{H}^-$ , consecutively followed by  $\text{C}^-$ ,  $\text{CH}^-$ ,  $\text{CH}_2^-$  and  $\text{CH}_3^-$ . The present ion source output is consistent with that of Melton and Rudolph, except for the case of  $\text{CH}_3^-$ , which we did not detect, probably due to its low intensity.

Contamination of the ion beam from residual oxygen is a possibility. In order to find oxygen impurities, we performed two checks. Firstly, the ion source was operated with pure



**Figure 3.** Ion source output of negative ion species measured with the retractable Faraday cup as a function of the pressure. The pressure was measured with a resistor based sensor (Pirani). The data correspond to 100% of methane gas in the source: Black diamonds,  $\text{H}^-$ ; crosses,  $\text{C}_2\text{H}_2^-$ ; asterisks,  $\text{C}_2^-$ ; triangles,  $\text{C}_2\text{H}_3^-$ ; open circles,  $\text{CH}_4^-$ ; closed squares,  $\text{C}^-$ ; stars,  $\text{CH}^-$  and closed circles,  $\text{CH}_2^-$ .

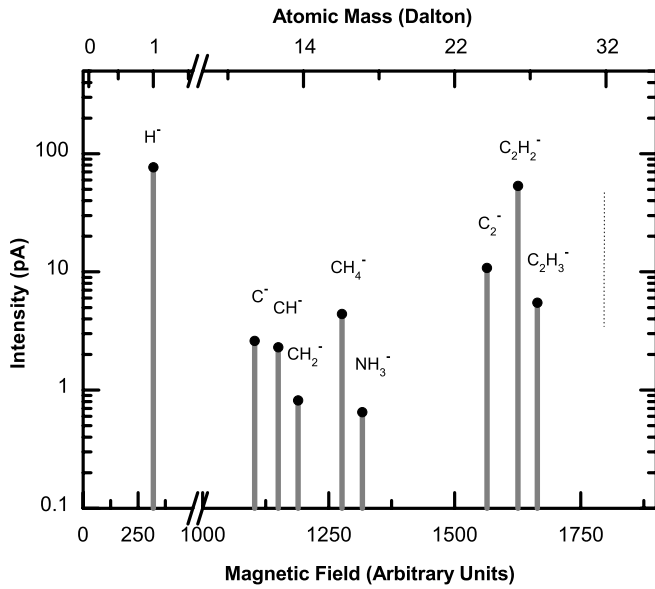
Ar and no evidence of residual  $\text{O}^-$  or  $\text{O}_2^-$  was measurable. Secondly, we did not detect an ion beam of  $\text{O}_2^-$  while running the ion source with methane (see figure 4).

With a mixture of 50% Ar and 50% methane, the relative intensities of the species were found to be approximately the same as in the case of pure methane and no new species were found. However, the beam absolute intensities were increased two orders of magnitude and we report beam intensities of 100 nA of  $\text{C}_2\text{H}_2^-$ , 10 nA of  $\text{H}^-$  and  $\text{CH}_4^-$  and 6 nA of  $\text{C}^-$ . We also found that the ion source relative intensity outputs were very sensitive to pressure and filament operating conditions. In terms of species, the reproducibility was 100%.

## 2.2. Cross sections

The cross sections for single electron detachment  $\sigma_{-10}$  from  $\text{CH}_4^-$  in collisions with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  were measured by monitoring the parent ion beam intensity of  $\text{CH}_4^-$ , the resulting neutral  $\text{CH}_4$  and the gas pressure in the gas-cell. The ion beam could be measured with the retractable Faraday cup and with a CEM. The neutral particles were measured with a CEM located in the axis of the apparatus. To measure the pressure in the gas-cell, an absolute calibrated Baratron equipped with a 1 Torr head was used.

Two methods to measure the cross sections were used; the signal grow-rate (SGR) method in the energy range of 4 to 10 keV and the beam attenuation technique (BAT) in the energy range of 0.3 to 10 keV. It is important to point out that the SGR measures single electron detachment cross sections  $\sigma_{-10}$ , while BAT measures total electron detachment  $\sigma = \sigma_{-10} + \sigma_{-11}$  where  $\sigma_{-11}$  corresponds to electron detachment and ionization. In this experiment it was not possible to resolve differences in the cross sections measured with both techniques, because in



**Figure 4.** Mass scan example for the ion source output. The top scale shows the atomic mass. The energy was 2 keV and the ion source pressure 83 mTorr. The position corresponding to 32 Dalton is marked with a dotted line.

general  $\sigma_{-11}$  is expected to be small compared to  $\sigma_{-10}$  [21]. For this experiment, we establish the approximation:  $\sigma \approx \sigma_{-10}$  below 10 keV collision energy.

The SGR method is described in detail in references [16, 22]. The fundamental idea of the method consists in the assumption that the number of neutral particles following the loss of an electron by collisions with the gas is proportional to the parent ion beam intensity and to the target gas pressure under single collision conditions. The cross section is derived from

$$I_0/I_1 = \sigma_{-10}\pi, \quad (1)$$

where  $I_0$  is the number of neutral particles resulting from the interaction with the gas and  $I_1$  is the number of parent ions in the beam.  $\sigma_{-10}$  is the single collision detachment cross section and  $\pi$  is the number of particles per unit area that the beam encounters in the gas-cell, given by

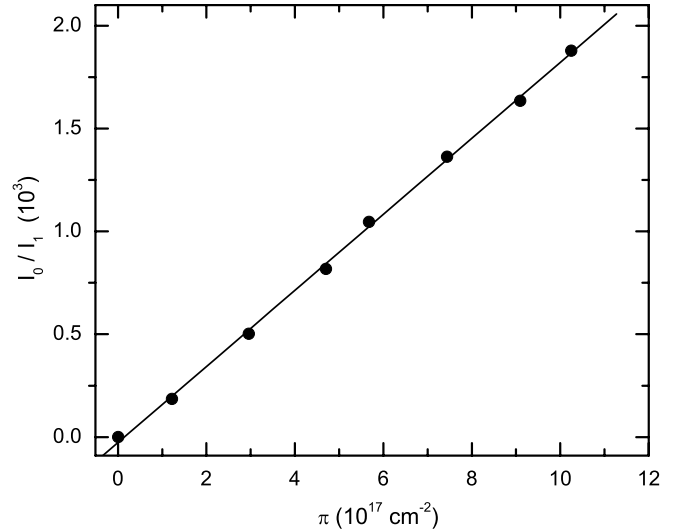
$$\pi = \frac{\ell P}{\kappa T}, \quad (2)$$

where  $\ell$  is the gas-cell effective length,  $P$  the pressure and  $T$  is the temperature of the gas-cell.  $\kappa$  is Boltzmann's constant. An example of a grow-rate curve of the present data is shown in figure 5. The linear dependence of  $I_0/I_1$  as a function of  $\pi$  verifies the approximation of one to one collisions.

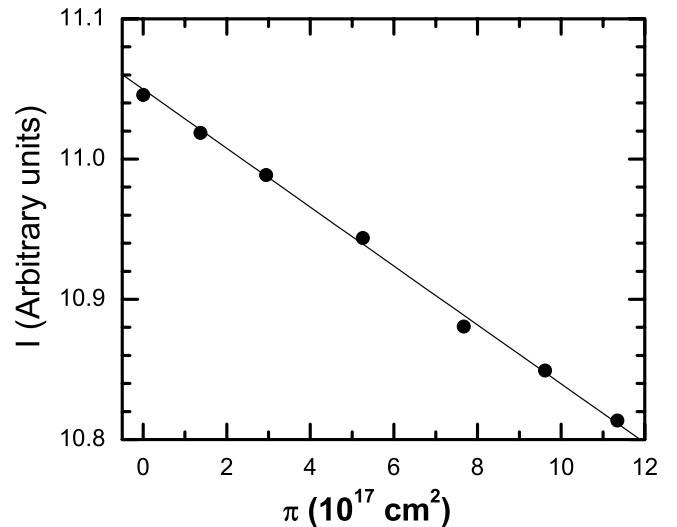
BAT was described in detail in references [23, 24]. The fundamental idea of this method consists of monitoring the decline of the parent ion beam intensity as a function of the gas-cell pressure according to

$$I_2 = I_1 \exp(-\sigma\pi), \quad (3)$$

where  $\pi$  is given by the equation (2),  $I_2$  and  $I_1$  are ion beam intensities measured in two different values of  $\pi$ . Under single collision conditions, the first approximation expansion of the equation (3) holds true, as shown in figure 6. This method



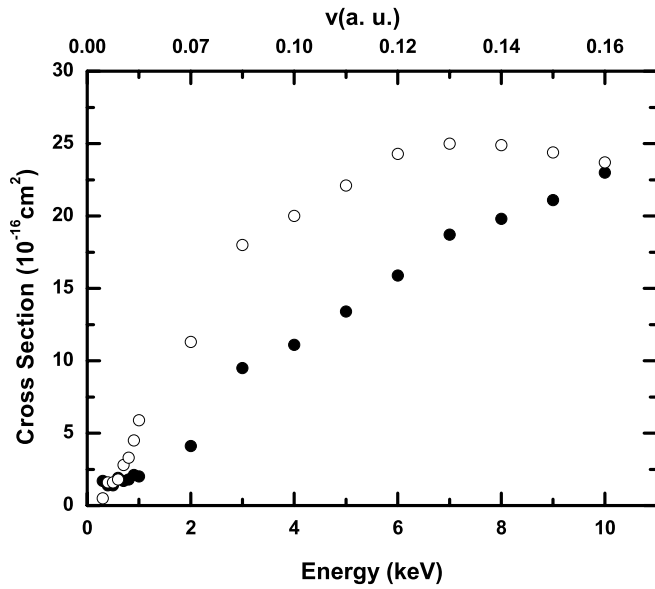
**Figure 5.** Example of a grow-rate curve for  $\text{CH}_4^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{CH}_4^* + \text{O}_2^* + e^-$  (see equations (1) and (4)). Linear dependence of  $I_0/I_1$  versus  $\pi$  is an indication of single collision conditions. The cross section  $\sigma_{-10}$  is the slope of the fitted curve (solid line) to the points. Several curves were measured for each impact energy. This example corresponds to 3.0 keV collision energy.



**Figure 6.** Ion beam intensity attenuation as a function of  $\pi$  for  $\text{CH}_4^-$  on  $\text{O}_2$  measured at 4 keV collision energy.  $\pi$  is given by equation (2).

has the advantage that CEM efficiency has no effect on the cross sections, allowing us to perform measurements in the low energy range of the present experiment.

Two additional tests were carried out in this experiment. One consisted of measuring a reference cross section to compare with the present method. We chose the cross section  $\sigma_{-10}$  for collisions of  $\text{H}^-$  with  $\text{O}_2$ . It was measured at 1.0, 3.0, 6.0 and 9.0 keV with both techniques and then compared to the reference values of Risley and Geballe [23] who measured theirs using an ionization gas-cell technique. We found that the present measurements are systematically higher than those of Risley and Geballe by a maximum of 35%. The difference may be attributed to systematic uncertainties in both experiments and possibly to a small signal underestimation caused by the



**Figure 7.** Cross section measurements of the collisional electron detachment of  $\text{CH}_4^-$  on  $\text{O}_2$  (open circles) and on  $\text{N}_2$  (closed circles). The data points and total errors are tabulated in table 1.

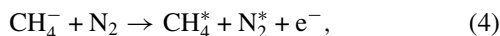
contribution of the double detachment process ( $\sigma_{-11}$ ), which in the ionization gas-cell technique is counted twice.

The second test was to investigate any possible effects of  $\text{CH}_4^-$  lifetime in the cross section. For this, we used the SGR method by measuring the ion beam intensity in the Faraday cup located close to the gas-cell output, spanning a time of flight over a distance of 0.7 m from the location of the lateral CEM where the ion beam was measured for both techniques. This method was used above 4 keV to avoid CEM efficiency effects. The cross sections agreed well and no measurable effects were found.

Dissociation processes induced by collisions with the target gases may affect the present measurements. To investigate possible effects from dissociation, charged fragment energy scans were performed by sweeping the voltage of the analyzing plates. Searches for positive and negative fragments were performed. Only a very small negative unidentified fragment was found. Moreover, neutral fragments may have caused an overestimation in the cross section measured with SGR. Considering that BAT accounts for any channel that causes the  $\text{CH}_4^-$  beam to lose its intensity, including dissociation channels, and that both methods (BAT and SGR) yielded approximately the same results, it can be concluded that within the reach of the present experiment, the contribution from dissociating channels is negligible.

### 3. Results

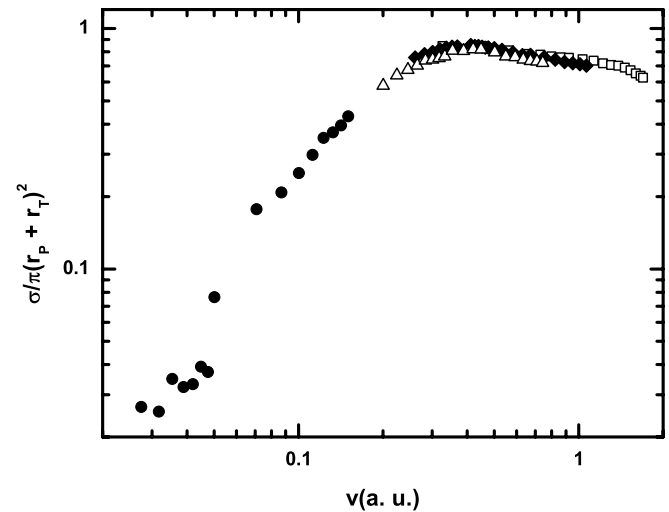
Results for the single electron detachment cross section of  $\text{CH}_4^-$  in collisions with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  are shown in figure 7 and table 1. The collision system is described by the equation



where  $\text{CH}_4^*$  and  $\text{N}_2^*$  final state internal energies are unknown. A similar equation applies for the case when  $\text{O}_2$  is the target.

**Table 1.** Electron detachment cross sections ( $\sigma_{-10}$ ) for methane anions in collision with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$ .  $\epsilon$  corresponds to total error. These data points are plotted in figure 7.

Energy (keV)	$\text{O}_2$ target		$\text{N}_2$ target	
	$\sigma_{-10}$ ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	$\epsilon$ ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	$\sigma_{-10}$ ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )	$\epsilon$ ( $10^{-16}\text{cm}^2$ )
0.3	0.5	0.2	1.7	1.5
0.4	1.6	0.4	1.4	0.4
0.5	1.6	0.4	1.4	0.3
0.6	1.8	0.3	1.9	0.2
0.7	2.8	0.3	1.7	0.3
0.8	3.3	0.4	1.8	0.3
0.9	4.5	0.5	2.1	0.2
1.0	5.9	0.6	2.0	0.2
2.0	11.3	1.2	4.1	0.5
3.0	18.0	1.8	9.5	1.2
4.0	20.0	2.0	11.1	1.3
5.0	22.1	2.5	13.4	1.4
6.0	24.3	2.5	15.9	1.6
7.0	25.0	2.7	18.7	2.1
8.0	24.9	2.6	19.8	2.1
9.0	24.4	2.5	21.1	2.2
10.0	23.7	2.5	23.0	2.4

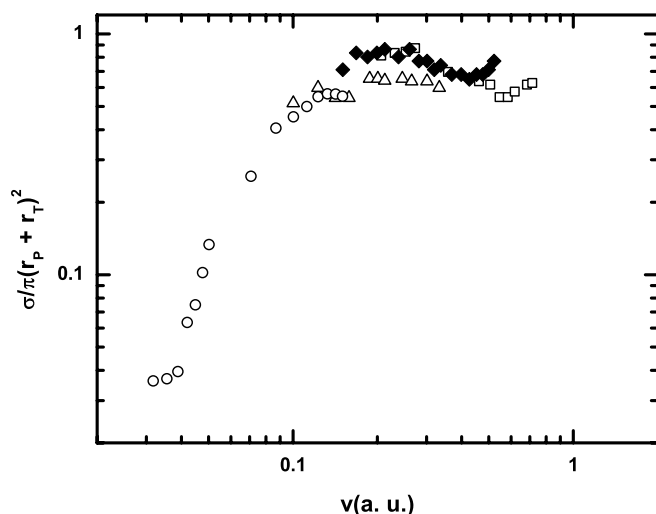


**Figure 8.** Scaled CED cross sections by the geometrical factor for  $\text{N}_2$  target: projectiles are: present data with  $\text{CH}_4^-$ , solid circles. From Sant'Anna *et al* [25], squares,  $\text{F}^-$ ; closed diamonds  $\text{Cl}^-$ ; up triangles  $\text{Br}^-$ .

The intensity difference in the cross sections for  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  is attributed to the inert nature of the nitrogen molecule when compared with the oxygen molecule which can be considered to have a larger impact parameter based on its reactivity and non-zero electronic affinity.

For the exception when the  $\text{H}^-$  is the projectile and at high energies, it has been demonstrated that CED from halogen anions is consistent with the geometrical model by Sant'Anna *et al* [25]. The model assumes that the CED cross sections reach their highest value when the overlap of the electronic clouds of the projectile and the target is maximum. It has been shown that CED cross sections follow a common trend when normalized to the effective overlap area given by  $\pi(r_p + r_t)^2$ , where  $r_p$  and  $r_t$  are the radii of the projectile and the target, respectively. In addition, this model is consistent with CED





**Figure 9.** Scaled CED cross sections by the geometrical factor for  $O_2$  target: Projectiles are: present data with  $CH_4^-$ , open circles. From Lichtenberg *et al* [21]: squares,  $F^-$ ; closed diamonds  $Cl^-$ ; up triangles  $Br^-$ .

cross sections for other molecular anions in collisions with  $N_2$  [26], where  $r_t$  is taken as the average of the molecule radius over all directions.

To apply this model to the present data we have used  $r_t = 0.75 \text{ \AA}$  for  $N_2$  [27]. We did not find a value for the methane anion  $r_p$ . For the neutral methane, a value of  $0.9 \text{ \AA}$  is reported [27]. However, the present data agree well with the geometrical model when  $r_p$  is adjusted to  $3.15 \text{ \AA}$  (see figure 8). By using the same  $r_p$  value for  $O_2$  target, the present CED cross sections agree well also, when compared to atomic anions CED cross sections (see figure 9)  $r_t$  for  $O_2$  was  $0.61 \text{ \AA}$  [28].

The present large radius for  $CH_4^-$  is consistent with an *ab initio* calculation where the  $CH_4^-$  is described as arising from the first Rydberg state on the molecule [13]. Molecular Rydberg states are known to have long range interaction distances [29]. This state could correspond to a low lying Rydberg excited state [30].

#### 4. Conclusions

By using a mass-to-charge analyzed ion source output, the detection of an apparently stable  $CH_4^-$  ion beam with a non-negligible intensity has been confirmed in this experiment. With it, single electron detachment cross sections have been measured in the low energy range of 0.3 to 10.0 keV. The geometrical model is consistent with the presented data, when the average radius of the methane anion is adjusted to  $3.15 \text{ \AA}$ . This large radius is consistent with both sets of data for the cross section when the targets are  $O_2$  and  $N_2$ .

No effect on the single electron detachment cross section due to the  $CH_4^-$  lifetime was measurable in this experiment.

#### Acknowledgments

The authors wish to acknowledge Professors Jaime de Urquijo and Alejandro Ramírez-Solís for interesting discussions.

Technical support was by Armando Bustos, Ulises Amaya, Reyes García and Anselmo González. Research partially funded by UNAM PAPIID IN106813 and IN113010.

#### References

- [1] Christophorou L G, Mathis R A, James D R and McCorkle D L 1981 On the role of electron attachment in the breakdown strength of gaseous dielectrics *J. Phys. D: Appl. Phys.* **14** 1889–901
- [2] Schulz von der Gathen V, Ropcke J, Gans T, Kaning M, Lukas C and Dobele H F 2001 Diagnostic studies of species concentrations in a capacitively coupled rf plasma containing  $CH_4/H_2/Ar$  *Plasma Sources Sci. Technol.* **10** 530–9
- [3] Clay K J, Speakman S P, Amaratunga G A J and Silva S R P 1996 Characterization of a-C:H:N deposition from  $CH_4/N_2$  rf plasmas using optical emission spectroscopy *J. Appl. Phys.* **79** 7227
- [4] Hansen D, Jungblut H and Schmidt W F 1983 Electron detachment from negative ions in sulphur hexafluoride *J. Phys. D: Appl. Phys.* **16** 1623
- [5] Antao D S, Staack D A, Fridman A I and Farouk B 2009 Atmospheric pressure dc corona discharges: operating regimes and potential applications *Plasma Sources Sci. Technol.* **18** 035016
- [6] Labuda S, Karrer M, Sotton J, Bellenoue M, Migoun A and Chernukho A 2012 Electrical properties of methane/air flames at elevated pressures *Combust. Sci. Technol.* **184** 1970–92
- [7] Linder D R, Coates A J, Woodliffe R D, Alsop C, Johnstone A D, Grande M, Preece A, Narheim B, Svenes K and Young D T 1998 The Cassini caps electron spectrometer *Measurement Techniques in Space Plasmas: Particles, AGU Geophysical Monograph* vol 102, ed R F Pfaff, J E Borovsky and D T Young (Washington, DC: American Geophysical Union) 257–62
- [8] Coates A J, Cray F J, Lewis G R, Young D T, Waite J H Jr and Sittler E C Jr 2007 Discovery of heavy negative ions in titan's ionosphere *Geophys. Res. Lett.* **34** L22103
- [9] Horvath G, Skalny J D, Mason N J, Klas M, Zahoran M, Vladiu R and Manole M 2009 Corona discharge experiments in admixtures of  $N_2$  and  $CH_4$ : a laboratory simulation of titan's atmosphere *Plasma Sources Sci. Technol.* **18** 034016
- [10] Cordiner M A and Charnley S B 2013 Negative ion chemistry in the coma of comet 1P/Halley *Meteoritics & Planetary Science* (Greenbelt, MD: NASA Goddard Space Flight Center) p 1
- [11] Trepka L V and Neurt H 1963 *Z. Naturf.* **18** 1295
- [12] Hollenstein Ch, Schwarzenbach W, Howling A A, Courteille C, Dorier J L and Sansonnens L 1996 Anionic clusters in dusty hydrocarbon and silane plasmas *J. Vac. Sci. Technol. A* **14** 535
- [13] Ramirez-Solis A 2013 On the electron affinity of methane: benchmark *ab initio* calculations submitted
- [14] de Urquijo J, Arriaga C A, Cisneros C and Alvarez I 1999 A time-resolved study of ionization, electron attachment and positive-ion drift in methane *J. Phys. D: Appl. Phys.* **32** 41–5
- [15] Christophorou L G (ed) 1984 *Electron–Molecule Interactions and their Applications* vol 1 (Orlando, FL: Academic) p 32887
- [16] Salazar-Zepeda M H, Gleason C, González E, González-Magaña O and Hinojosa G 2010 Double electron capture by protons in collisions with  $H_2$  *Nucl. Instrum. Methods B* **268** 1558–63
- [17] 2013 Colutron Research Corporation [www.colutron.com/](http://www.colutron.com/)

- [18] Drabner G, Poppe A and Budzikiewicz H 1990 The composition of the CH<sub>4</sub> plasma *Int. J. Mass Spectrom. Ion Process.* **97** 1
- [19] Chanin L M, Phelps A V and Biondi M A 1962 Measurements of the attachment of low-energy electrons to oxygen molecules *Phys. Rev.* **128** 219–30
- [20] Melton C E and Rudolph P S 1967 Radiolysis of methane in a wide-range radiolysis source of a mass spectrometer: I. individual and total cross sections for the production of positive ions, negative ions, and free radicals by electrons *J. Chem. Phys.* **47** 1771
- [21] Lichtenberg W J, Brthgr K and Schmidt-Bocking H 1980 Electron-loss cross sections for negative ions at high energies *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **13** 343
- [22] Heinemeier J, Hvelplund P and Simpson F R 1976 Collisional detachment cross sections for H<sup>-</sup> and He<sup>-</sup> at high energies *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **9** 2669
- [23] Risley J S and Geballe R 1974 Absolute H<sup>-</sup> detachment cross sections *Phys. Rev. A* **9** 2485
- [24] Tawara H and Russek A 1973 Charge changing processes in hydrogen beams *Rev. Mod. Phys.* **45** 178
- [25] Sant'Anna M M, Zappa F, Santos A C F, de Barros A L F, Wolff W, Coelho L F S and de Castro Faria N V 2004 Electron-detachment cross sections of halogen negative-ion projectiles for inertial confinement fusion *Plasma Phys. Control. Fusion* **46** 1009
- [26] Nascimento R F, Mello S L A, Magnani B F, Sant Anna M M, Ginette Jalbert and de Castro Faria N V 2013 Total detachment cross sections of C<sup>-</sup>, CH<sup>-</sup>, C<sub>2</sub><sup>-</sup>, and C<sub>2</sub>H<sup>-</sup> incident on N<sub>2</sub> at KeV energies *Phys. Rev. A* **87** 062704
- [27] Kammeyer C W 1972 Quantum mechanical calculation of molecular radii: I. hydrides of elements of periodic groups IV through VII *J. Chem. Phys.* **56** 4419
- [28] Lide D R and Frederike H P R (ed) 1994/1995 *CRC Handbook of Chemistry and Physics* vol 75th (Boca Raton, FL: CRC Press) pp 9–21
- [29] Bendkowsky V, Butscher B, Nipper J, Shaffer J P, Low R and Pfau T 2009 Observation of ultralong-range rydberg molecules *Nature* **458** 1005–8
- [30] Halpern A M 1996 The size of molecular rydberg states revisited *J. Mol. Spectrosc.* **180** 154–5





# Bibliografía

- [1] N. Bohr. On the theory of the decrease of velocity of moving electrified particles on passing through matter. *Philosophical Magazine Series 6*, 25(145):10–31, 1913. 1, 5, 7, 8, 13, 17
- [2] Stephen Campbell. *The science and engineering of microelectronic fabrication*. Oxford University Press, 2 edition, 2001. 1
- [3] Claude Leroy and Pier-Giorgio Rancoita. *Principles of radiation interaction in matter and interaction*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2 edition, 2009. 1
- [4] Salvador A. Cruz. On the energy loss of heavy ions in amorphous materials. *Radiation Effects*, 88(3-4):159–215, 1985. 1, 5, 7, 13, 15, 18
- [5] E.B. Podgorsak. *Radiation oncology Physics: a handbook for teachers and students*. International Atomic Energy Agency, 2 edition, 2005. 1
- [6] L.N. Trujillo-López. *Estudio de la sección eficaz de poder de frenamiento en moléculas simples y compuestos orgánicos*. Tesis de maestría, ICF-UNAM, 2014. 1, 2, 47
- [7] L.N. Trujillo-López, C. Martínez-Flores, and R. Cabrera-Trujillo. Universal scaling behavior of molecular electronic stopping cross section for protons colliding with small molecules and nucleobases. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 313:5 – 13, 2013. 1, 2, 3, 44, 47, 57
- [8] Möller Wolfhard. *Fundamentals of Ion-Surface Interaction*. Lecture held at the Technical University of Dresden, 1 edition. 1
- [9] H. Bethe. Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie. *Annalen der Physik*, 397(3):325–400, 1930. 1, 18
- [10] Mitio Inokuti. Inelastic collisions of fast charged particles with atoms and molecules-the bethe theory revisited. *Rev. Mod. Phys.*, 43:297–347, Jul 1971. 1, 7, 8, 13, 23
- [11] R. Cabrera-Trujillo. *Efectos de enlaces químicos en la sección de frenamiento de iones pesados a bajas energías*. Tesis de maestría, UAM-I, 1994. 1, 6, 7, 8, 9, 13, 15, 17, 18, 21, 23, 26, 27, 47
- [12] Jens Oddershede and John R. Sabin. Orbital and whole-atom proton stopping power and shell corrections for atoms with  $z \leq 36$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 31(2):275 – 297, 1984. 1, 48, 49

- [13] David E. Meltzer, John R. Sabin, and S. B. Trickey. Calculation of mean excitation energy and stopping cross section in the orbital local plasma approximation. *Phys. Rev. A*, 41:220–232, Jan 1990. 1, 48, 49
- [14] R. Cabrera-Trujillo. Stopping power in the independent-particle model: Harmonic oscillator results. *Phys. Rev. A*, 60:3044–3052, Oct 1999. 1, 2, 22, 25, 26, 27, 28, 29, 32, 38, 46, 48
- [15] James F. Ziegler. *Particle Interaction with Matter*. <http://www.srim.org/> 2013. 2
- [16] Paul Helmut. *Stopping Power for Light Ions: Graphs, Data, Comments and Programs*. <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/> 2009. 2, 45, 46, 51, 53, 54
- [17] A. Zsabo and N. Ostlund. *Modern Quantum Chemistry, Introduction to Advanced Electric Structure Theory*. Dover Publications Inc., 1 edition, 1996. 2, 25, 26
- [18] E.C. Montenegro, S.A. Cruz, and C. Vargas-Aburto. A universal equation for the electronic stopping of ions in solids. *Physics Letters A*, 92(4):195 – 202, 1982. 2
- [19] B.H. Bransden and C.J. Joachain. *Physics of atoms and molecules*. Logman Scientific and Technical, 5 edition, 1983. 5, 6, 18, 59
- [20] Goldstein H., C. Poole, and J. Safko. *Classical Mechanics*. Addison Wesley, 3 edition, 2002. 5, 8
- [21] P. Sigmund. *Particle penetration and radiation effects*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2 edition, 2006. 5, 7, 8, 13, 21, 22, 27
- [22] E M Hernández, L Hernández, C Martínez-Flores, N Trujillo, M Salazar, A Chavez, and G Hinojosa. Electron detachment cross sections of  $\text{CH}_4^-$  colliding with  $\text{O}_2$  and  $\text{N}_2$  below 10 keV energies. *Plasma Sources Science and Technology*, 23(1):015018, 2014. 6
- [23] R. Cabrera-Trujillo, J. R. Sabin, Y. Öhrn, E. Deumens, and N. Stolterfoht. Mass scaling laws due to isotopic effects in the energy loss of  $\text{He}^{2+}$  colliding with H, D, and T. *Phys. Rev. A*, 83:012715, Jan 2011. 10
- [24] J.D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. 2 edition, 1962. 13, 14, 15, 16
- [25] H.J. Weber and G. B. Arfken. *Essential Mathematical Methods for Physicists*. Elsevier Academic Press, 6 edition, 2005. 16, 17, 29
- [26] Abramowitz y Stegun. *Handbook of Mathematical Functions with Formulas, Graphs, and Mathematical Tables*. Dover Publications Inc., 1 edition, 1964. 17
- [27] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Lalöe. *Quantum Mechanics Vol. 1*. Wiley-Interscience, 3 edition, 2006. 18, 20, 21, 28, 32, 38
- [28] J.J. Sakurai y Jim Napolitano. *Modern Quantum Mechanics*. Addison-Wesley, 2 edition, 2011. 19, 20, 21
- [29] N. Zettili. *Quantum Mechanics: Concepts and applications*. John Wiley Sons Inc., 1 edition, 2001. 20, 21

- [30] W. H. Bragg y R. Kleeman. *Phil. Mag.*, (10):305, 1918. 27
- [31] Sigeru Huzinaga. Gaussian-type functions for polyatomic systems. i. *The Journal of Chemical Physics*, 42(4):1293–1302, 1965. 28
- [32] P. Jorgensen y J. Olsen T. Helgaker. *Molecular electronic structure theory*. John Wiley Sons Inc., 1 edition, 2000. 28
- [33] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik. *Table of integrals, series and products*. Elsevier Academic Press, 7 edition, 2007. 29
- [34] C.F. Bunge, J.A. Barrientos, and A.V. Bunge. Roothaan-hartree-fock ground-state atomic wave functions: Slater-type orbital expansions and expectation values for  $z = 2-54$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 53(1):113 – 162, 1993. 38, 39, 40, 47, 49, 50
- [35] Enrico Clementi and Carla Roetti. Roothaan-hartree-fock atomic wavefunctions: Basis functions and their coefficients for ground and certain excited states of neutral and ionized atoms,  $Z \leq 54$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 14(34):177 – 478, 1974. 38, 39, 48
- [36] G. Schiwietz and P.L. Grande. Stopping of protons improved accuracy of the uca model. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 273:1 – 5, 2012. 50