

ESPALHAMENTO ELÁSTICO DE PÓSITRONS POR CH₄

JOSINEY DE SOUZA GLÓRIA¹; SARAH ESTHER DA SILVA SAAB²; WAGNER TENFEN³

¹Universidade Federal de Pelotas (UFPEL) – josineyjp3@gmail.com

²Universidade Federal de Pelotas (UFPEL) – sarahesthersaab@outlook.com

³Universidade Federal de Pelotas (UFPEL) – wtenfen@ufpel.edu.br

1. INTRODUÇÃO

O espalhamento de elétrons e pósitrons por moléculas de metano é interessante pelo fato de esta molécula estar presente em contextos atmosféricos e aplicações tecnológicas (BUNDSCHU *et al.* (1997), ZECCA *et al.* (2012)). Em particular, para o desenvolvimento de simulações computacionais de *electron* ou *positron tracking* neste ou em qualquer outro gás, as seções de choque integrais (ICS) e diferenciais (DCS) são necessárias considerando os diversos canais de espalhamento (BLANCO *et al.* (2013)). Quando a partícula incidente perde os seus últimos eV de energia no meio material em questão, as colisões relevantes para a sua termalização são as elásticas ou de excitação vibracional ou rotacional como verificado recentemente por SWANN; GREEN (2023).

Neste trabalho apresentamos as seções de choque integrais e diferenciais elásticas para as colisões de pósitrons com moléculas de CH₄. Determinamos estas quantidades do ponto de vista teórico, utilizando o Método das Frações Continuadas como programado por RIBEIRO *et al.* (2001). Utilizamos o modelo estático-correlação-polarização (SCP) na determinação do potencial espalhador assim como TENFEN; BARP; ARRETCHÉ (2019). Os resultados obtidos são comparados com o conjunto de dados teóricos e experimentais disponível na literatura.

Por se tratar de uma molécula relevante em diversos contextos, tal como indicado anteriormente, há certa riqueza de dados teóricos e experimentais para espalhamento elástico de pósitrons com CH₄ na literatura (ZECCA *et al.* (2012)). Entretanto, os dados experimentais mais antigos foram obtidos com espectrômetros que tinham baixa resolução angular, exigindo correções significativas para o efeito de espalhamento em baixos ângulos (SULLIVAN *et al.* (2011), BRUNGER; BUCKMAN; RATNAVELU (2016)). Esta característica dos dados experimentais mais antigos também afeta as abordagens teóricas, uma vez que os primeiros cálculos de seções de choque elásticas para espalhamento de pósitrons por moléculas de CH₄ foram determinados a partir de potenciais de interação que continham termos de polarização determinados em até segunda ordem de teoria de perturbação (JAIN; GIANTURCO (1991)), pois os resultados obtidos desta maneira concordavam satisfatoriamente com as seções de choque totais (TCS) disponíveis à época.

É importante notar que há seções de choque diferenciais experimentais determinadas para esta molécula (PRZYBYLA *et al.* (1997)). Estes dados são fundamentais para a verificação da adequação de modelos teóricos da interação de correlação-polarização, pois a qualidade da descrição destes termos do potencial espalhador reflete-se diretamente na região de baixos ângulos das seções de choque diferenciais (TENFEN; BARP; ARRETCHÉ (2019)), justamente a região comprometida na determinação das seções de choque totais em espectrômetros de baixa resolução angular (SULLIVAN (2011)). Dessa maneira, a comparação dos resultados obtidos neste estudo com as seções de choque teóricas e experimentais disponíveis na literatura permite a avaliação da qualidade do modelo adotado para o potencial espalhador.

2. METODOLOGIA

Adotamos o modelo SCP para determinar o potencial de interação de um pósitron com a molécula de CH_4 . Para a descrição da molécula em seu estado fundamental, utilizamos a base de funções gaussianas cartesianas tal como recomendada por MAROULIS (1994). Com esta base, a energia do estado fundamental na aproximação de campo auto-consistente foi determinada e comparada com o valor de referência, revelando que a descrição do estado fundamental da molécula de metano está satisfatória dentro da aproximação adotada. A partir desta função, determinamos numericamente o potencial eletrostrático para a interação de um pósitron com esta molécula, bem como a densidade eletrônica dada diretamente pelos orbitais moleculares.

Com a densidade eletrônica determinada, pudemos calcular o potencial de correlação, que diz respeito à energia introduzida no sistema pela distorção da nuvem eletrônica na presença do pósitron em coordenadas radiais que estão dentro do domínio da função de onda eletrônica da molécula. Este potencial de correlação é o mesmo que o adotado por JAIN; GIANTURCO (1991). Determinamos também o potencial de polarização, que diz respeito à energia introduzida no sistema pela distorção da nuvem eletrônica do alvo quando o pósitron ocupa posições fora do alcance da função de onda eletrônica da molécula. O potencial de correlação-polarização é então construído como sendo o potencial de correlação desde a origem do sistema de coordenadas até o ponto em que este cruza o potencial de polarização pela primeira vez. A partir deste ponto, o potencial de correlação-polarização é então dado exclusivamente pelo termo de polarização.

Diferentemente dos cálculos anteriores, o potencial de polarização adotado contém termos obtidos via teoria de perturbação até quarta ordem, garantindo a convergência da série perturbativa que determina as correções sobre a energia da molécula na presença do pósitron. Esta análise é feita verificando que o potencial espalhador e as respectivas seções de choque não alteram-se apreciavelmente em relação à terceira ordem quando adicionamos a quarta, da mesma forma que observado para outros alvos moleculares (TENFEN; BARP; ARRETICHE (2019), GLÓRIA (2023)).

Uma vez que o potencial espalhador foi determinado, as seções de choque foram calculadas diretamente a partir do Método das Frações Continuadas. Com as ICS e DCS elásticas em mãos, pudemos então comparar estes resultados com os dados da literatura, particularmente os mais recentes.

3. RESULTADOS E DISCUSSÃO

As seções de choque integrais elásticas para colisões de pósitrons com CH_4 foram determinadas na faixa de energias de 0,1 até 10 eV e comparadas com os dados experimentais de ZECCA *et al.* (2011), bem como com as teorias recentes de MAHATO; SHARMA; SRIVASTAVA (2021) e RAWLINS *et al.* (2023). Esta comparação é apresentada na figura 1, e observamos boa concordância entre os resultados do presente estudo e os dados teóricos de RAWLINS *et al.* (2023). Este é um resultado animador, levando em conta a natureza *ab initio* do cálculo de RAWLINS *et al.* (2023). A comparação com a teoria modelo de MAHATO; SHARMA; SRIVASTAVA (2021) também é satisfatória, assim como é a comparação com os dados experimentais. Vale notar que os dados experimentais não foram corrigidos para o efeito de espalhamento em baixos ângulos, de modo que estas medidas devem ser encaradas como um 'limite inferior'.

Na Figura 2 são reportadas as seções de choque diferenciais para colisões de pósitrons por CH_4 a 6 eV. Verifica-se que os resultados obtidos neste trabalho concordam de forma satisfatória com os cálculos de MAHATO; SHARMA; SRIVASTAVA (2021) e

com os dados experimentais de PRZYBYLA *et al.* (1997). É importante ressaltar que a teoria de MAHATO; SHARMA; SRIVASTAVA (2021) utiliza a polarização corrigida até a segunda ordem em teoria de perturbação, de modo que é esperado que as seções de choque obtida por aqueles autores fiquem sistematicamente abaixo dos valores obtidos no presente trabalho.

Figura 1. Seções de choque integrais de 0,1 a 10 eV.

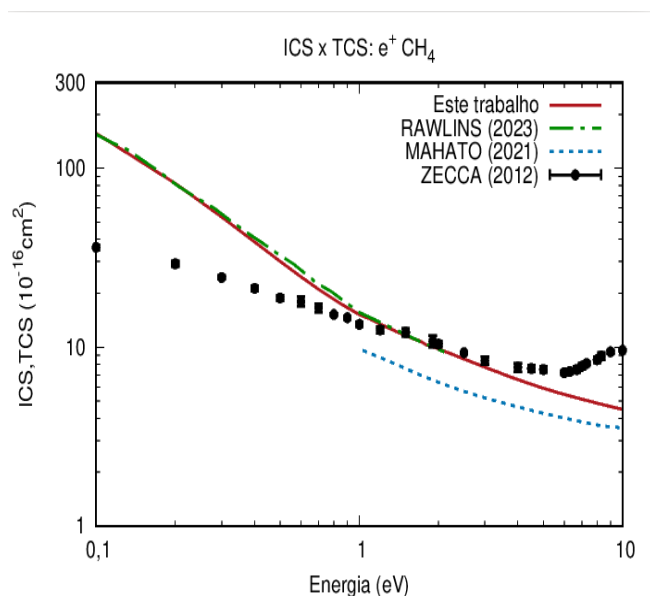
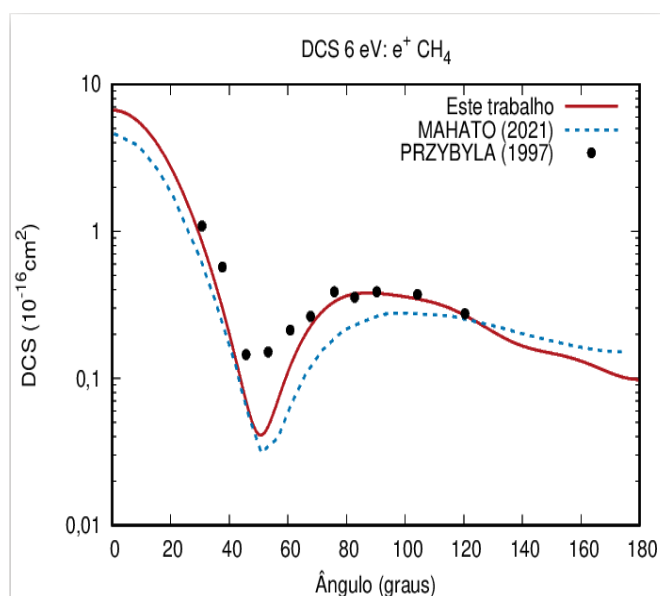


Figura 2. Seções de choque diferenciais a 6 eV.



4. CONCLUSÕES

As seções de choque elásticas para as colisões de pósitrons com moléculas de CH₄ foram determinadas e comparadas com os dados existentes na literatura. Verificamos que a comparação das ICS com os resultados obtidos pelos cálculos *ab initio* recentes de RAWLINS *et al.* (2023) é plenamente satisfatória, mostrando que o potencial modelo adotado neste trabalho traduz com precisão a interação de pósitrons com a molécula de CH₄. Da mesma forma, a comparação dos resultados obtidos no presente estudo com as TCS e DCS experimentais disponíveis na literatura demonstra que o modelo de potencial de interação está bem descrito, isto é, verifica-se neste trabalho a necessidade de incluir a correção na energia do sistema em teoria de perturbação até quarta ordem.

5. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- BLANCO, F. *et al.* Modelling low energy electron and positron tracks in biologically relevant media. **The European Physical Journal D**, v. 67, p. 1-18, 2013.
- BRUNGER, M. J.; BUCKMAN, S. J.; RATNAVELU, K. Positron scattering from molecules: An experimental cross section compilation for positron transport studies and benchmarking theory. **Journal of Physical and Chemical Reference Data**, v. 46, n. 2, 2017.
- BUNDSCHU, C. T. *et al.* Low-energy electron scattering from methane. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 30, n. 9, p. 2239, 1997.

GLÓRIA, J. S. **Determinação das seções de choque elásticas para colisões de pósitrons com as moléculas F_2 e Cl_2** . Dissertação (Mestrado em Física), Instituto de Física e Matemática, Universidade Federal de Pelotas, 92f. 2023.

JAIN, A.; GIANTURCO, F. A. Low-energy positron collisions with CH_4 and SiH_4 molecules by using new positron polarization potentials. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 24, n. 9, p. 2387, 1991.

MAHATO, D.; SHARMA, L.; SRIVASTAVA, R. Study of positron impact scattering from methane and silane using an analytically obtained static potential with correlation polarization. **Atoms**, v. 9, n. 4, p. 113, 2021.

MAROULIS, G. Electric dipole hyperpolarizability and quadrupole polarizability of methane from finite-field coupled cluster and fourth-order many-body perturbation theory calculations. **Chemical Physics Letters**, v. 226, n. 3-4, p. 420-426, 1994.

PRZYBYLA, D. A. *et al.* Measurements of positron-methane differential scattering cross sections. **Physical Review A**, v. 55, n. 6, p. 4244, 1997.

RIBEIRO, E. M. S. *et al.* Application of the method of continued fractions to electron scattering by polyatomic molecules. Computer physics communications, v. 136, n. 1-2, p. 117-125, 2001.

SULLIVAN, J. P. *et al.* Forward angle scattering effects in the measurement of total cross sections for positron scattering. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 44, n. 3, p. 035201, 2011.

SWANN, A. R.; GREEN, D. G. Maxwellianization of positrons cooling in CF_4 and N_2 gases. **Physical Review Letters**, v. 130, n. 3, p. 033001, 2023.

TENFEN, W.; BARP, M. V.; ARRETCHE, F. Low-energy elastic scattering of positrons by O_2 . **Physical Review A**, v. 99, n. 2, p. 022703, 2019.

RAWLINS, C. M. *et al.* Many-Body theory calculations of positron scattering and annihilation in H_2 , N_2 and CH_4 . **Physical Review Letters**, v. 130, n. 26, p. 263001, 2023.

ZECCA, A. *et al.* Positron scattering from methane. **Physical Review A**, v. 85, n. 1, p. 012707, 2012.