

UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO
Programa de Pós Graduação em Física

Jenifer Geribola Pinheiro

**Espalhamento Inelástico de Póstrons por Moléculas
Diatômicas**

Vitória
2023

Jenifer Geribola Pinheiro

Espalhamento Inelástico de Pósitrons por Moléculas Diatômicas

Tese apresentada ao Programa de Pós Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo como parte dos requisitos para a obtenção do título de Doutora em Física, na área de Física.

Orientador: Prof. Dr. Sérgio Vitorino de Borba Gonçalves
Coorientadora: Prof. Dra. Denise da Costa Assafrão de Lima

Vitória
2023

Ficha catalográfica disponibilizada pelo Sistema Integrado de Bibliotecas - SIBI/UFES e elaborada pelo autor

P654e Pinheiro, Jenifer Geribola, 1993-
Espalhamento inelástico de pósitrons por moléculas diatômicas / Jenifer Geribola Pinheiro. - 2023.
84 f. : il.

Orientador: Sergio Vitorino de Borba Gonçalves.
Coorientadora: Denise da Costa Assafrão de Lima.
Tese (Doutorado em Física) - Universidade Federal do Espírito Santo, Centro de Ciências Exatas.

1. Pósitron. 2. Espalhamento. 3. Superfície de energia potencial. 4. Seção de choque. I. Gonçalves, Sergio Vitorino de Borba. II. Lima, Denise da Costa Assafrão de. III. Universidade Federal do Espírito Santo. Centro de Ciências Exatas. IV. Título.

CDU: 53



UNIVERSIDADE FEDERAL DO ESPÍRITO SANTO
CENTRO DE CIÊNCIAS EXATAS
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

"Espalhamento Inelástico de Pósitrons por Moléculas Diatômicas"

JENIFER GERIBOLA PINHEIRO

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal do Espírito Santo, como requisito parcial para a obtenção do título de Doutor em Física.

Aprovada por:

Prof^ª. Dr^ª. Maria Cristina Andreolli Lopes
(PGF/UFJF)

Prof. Dr. Vinícius Cândido Mota
(Presidente da Banca - PPGFis/UFES)

Prof. Dr. Luis Argel Poveda Calviño
(CEFET-MG)

Prof^ª. Dr^ª. Denise da Costa Assafrão de Lima
(Coorientadora - DF/UFES)

Prof. Dr. Felipe Arretche
(PPGFSC/UFSC)

Prof. Dr. Wanderlã Luis Scopel
(PPGFis/UFES)

Prof. Dr. Antônio Canal Neto
(PPGFis/UFES)

Vitória-ES, 29 de setembro de 2023.





114ª Defesa de Jenifer Geribola - Ata de Submissão

Data e Hora de Criação: 30/01/2024 às 11:39:44

Documentos que originaram esse envelope:

- 114ª Defesa de Jenifer Geribola - Ata de Submissão.pdf (Arquivo PDF) - 1 página(s)



Hashs únicas referente à esse envelope de documentos

[SHA256]: ce3e3853345bdf0407b52ec92e602878760656a669278976c93ae33f96c61d3e

[SHA512]: 74b0e4e3e9cb6e1ae9f9f15643cedb9abefaa321880959c3ca557a792da610d95788c21258ae1a5bc8e6a9a74eb3935f2a647c3488a39329f36e7059b919be74

Lista de assinaturas solicitadas e associadas à esse envelope



ASSINADO - Antonio Canal Neto (antonio.canal@ufes.br)

Data/Hora: 06/02/2024 - 14:05:43, IP: 191.57.17.239

[SHA256]: 0e95d3e2f676d5b0dc2e64a7ef041fc0f0677a6bf6128d9a1fd82ae7d54cafd8



ASSINADO - Maria Cristina Andreolli Lopes (cristina.lopes@ufjf.edu.br)

Data/Hora: 30/01/2024 - 14:56:13, IP: 177.205.204.103

[SHA256]: 60dc47de490e500e8d8bb55b2bf1d2f643272c581a226e4081f55c6211ba2a5



ASSINADO - Denise Da Costa Assafrao De Lima (denise.lima@ufes.br)

Data/Hora: 30/01/2024 - 14:57:32, IP: 187.36.143.120, Geolocalização: [-20.264207, -40.268462]

[SHA256]: ede3670df4182edf6265efb0d45e62761817590db662ccd86fbc7294d03a62b9

DENISE DA COSTA ASSAFRAO DE LIMA



ASSINADO - Felipe Arretche (fartch@gmail.com)

Data/Hora: 05/02/2024 - 12:15:49, IP: 138.204.73.169, Geolocalização: [-27.612718, -48.510127]

[SHA256]: 534178c1f092f2d0c3794f9cd032cd6846872cecc451760605d0eb2ddea7c38f



ASSINADO - Luis Argel Poveda Calviño (poveda.calvino@gmail.com)

Data/Hora: 05/02/2024 - 13:37:51, IP: 201.17.211.149

[SHA256]: 763169d2bfb87ef461f3f0d06bc79904f8a62460f46e48c9c376856a0019314c



ASSINADO - Vinicius Candido Mota (vinicius.c.mota@ufes.br)

Data/Hora: 02/02/2024 - 16:16:37, IP: 191.57.4.89, Geolocalização: [-20.282096, -40.301156]

[SHA256]: 50439f4eaadfc69b0ccad6c9c2d49e4e42d358c59f575a7c30847e177e390e



ASSINADO - Wanderla Luis Scopel (wanderla.scopel@ufes.br)

Data/Hora: 30/01/2024 - 11:50:04, IP: 131.255.21.224, Geolocalização: [-20.271296, -40.286683]

[SHA256]: bf54e94789a2cb022eacba46270667834f2ac0df45f47b126d9a044108226e65

Histórico de eventos registrados neste envelope

06/02/2024 14:05:44 - Envelope finalizado por antonio.canal@ufes.br, IP 191.57.17.239
06/02/2024 14:05:44 - Assinatura realizada por antonio.canal@ufes.br, IP 191.57.17.239
05/02/2024 13:37:51 - Assinatura realizada por poveda.calvino@gmail.com, IP 201.17.211.149
05/02/2024 13:37:45 - Envelope visualizado por poveda.calvino@gmail.com, IP 201.17.211.149
05/02/2024 12:15:49 - Assinatura realizada por fartch@gmail.com, IP 138.204.73.169
05/02/2024 12:15:31 - Envelope visualizado por fartch@gmail.com, IP 138.204.73.169
02/02/2024 16:16:37 - Assinatura realizada por vinicius.c.mota@ufes.br, IP 191.57.4.89
02/02/2024 16:16:34 - Envelope visualizado por vinicius.c.mota@ufes.br, IP 191.57.4.89
30/01/2024 14:57:32 - Assinatura realizada por denise.lima@ufes.br, IP 187.36.143.120
30/01/2024 14:57:31 - Envelope visualizado por denise.lima@ufes.br, IP 187.36.143.120
30/01/2024 14:56:13 - Assinatura realizada por cristina.lopes@ufjf.edu.br, IP 177.205.204.103
30/01/2024 11:50:04 - Assinatura realizada por wanderla.scopel@ufes.br, IP 131.255.21.224



114ª Defesa de Jenifer Geribola - Ata de Submissão

Data e Hora de Criação: 30/01/2024 às 11:39:44

Documentos que originaram esse envelope:

- 114ª Defesa de Jenifer Geribola - Ata de Submissão.pdf (Arquivo PDF) - 1 página(s)



Hashs únicas referente à esse envelope de documentos

[SHA256]: ce3e3853345bdf0407b52ec92e602878760656a669278976c93ae33f96c61d3e

[SHA512]: 74b0e4e3e9cb6e1ae9f9f15643cedb9abefaa321880959c3ca557a792da610d95788c21258ae1a5bc8e6a9a74eb3935f2a647c3488a39329f36e7059b919be74

Histórico de eventos registrados neste envelope

30/01/2024 11:44:10 - Envelope registrado na Blockchain por jose.cruz@ufes.br, IP 200.137.65.106

30/01/2024 11:44:09 - Envelope encaminhado para assinaturas por jose.cruz@ufes.br, IP 200.137.65.106

30/01/2024 11:39:45 - Envelope criado por jose.cruz@ufes.br, IP 200.137.65.106

Agradecimentos

À Deus.

À professora Denise por me acompanhar e ajudar durante todos esses longos anos.

Aos professores Poveda e Rachid por todas as discussões que com certeza contribuíram muito para o desenvolvimento deste trabalho.

À toda a minha família, que espera ansiosamente pelo término desta longa etapa.

Ao meu namorado Luciano, o meu muitíssimo obrigada por todo consolo e ajuda que me ofereceu durante esses anos. Te amo.

Agradeço também a todos os meus amigos, de dentro e fora da UFES.

Agradeço ao PPGFis e a CAPES pelo suporte financeiro.

Resumo

A interação entre elétrons e pósitrons com átomos e moléculas é alvo de muitos estudos, teóricos e experimentais, nos últimos anos pois possibilita o avanço no entendimento da dinâmica de interação entre essas partículas e a matéria. Ao abordar colisões entre elétrons e pósitrons com alvos moleculares ou atômicos precisamos considerar os diferentes canais de interação, que incluem, além da colisão elástica, os canais de excitação (eletrônica, vibracional, rovibracional), ionização, dissociação e, quando o projétil é um pósitron, os canais de formação de Positrônio e aniquilação. Essas duas características exclusivas do espalhamento por pósitron representam uma dificuldade adicional no tratamento destes sistemas, principalmente do ponto de vista experimental e considerando o limite de baixas energias. A análise experimental, iniciada nos anos 1970, ainda enfrenta desafios, com discrepâncias persistentes nos dados. Essas diferenças se devem, principalmente às dificuldades observadas na produção e controle do feixe de pósitrons incidente, especialmente em baixas energias. Teoricamente, as dificuldades não são menos presentes. A interação entre pósitrons e alvos moleculares ou atômicos são descritos por meio de um potencial pósitron-alvo que levam em conta três regiões: uma região repulsiva de curto alcance, uma região atrativa de longo alcance e uma região intermediária que envolve efeitos de correlação e polarização do alvo. Esta última é, sem dúvida, a região que desafia os teóricos. O efeito desta interação é resultado da modificação da carga molecular/atômica devido à aproximação do projétil e deve ser maior quanto menor for a energia do projétil incidente. Neste contexto, propomos uma abordagem teórico computacional para a construção de uma superfície de energia potencial (SEP) para a interação pósitron-moléculas diatômicas, dependente parametricamente da distância pósitron-alvo e que, em princípio, contém informação sobre as três regiões de interesse. Como ponto de partida, usamos a metodologia *Finite Nuclear Mass Correction* (FNMC) que trata o pósitron como um núcleo leve. A FNMC vem sendo usada no tratamento de sistemas positrônicos, em especial, na construção de potenciais de interação pósitron-átomos com resultados comparáveis aos melhores dados experimentais disponíveis. Nesta tese, aperfeiçoamos a metodologia ao aplicá-la em sistemas pósitron-moléculas. A SEP é representada por uma função analítica ajustada nos pontos *ab-initio* FNMC e este potencial é usado para obter as seções de choque elástica e inelástica. As equações de espalhamento são resolvidas usando a aproximação Close-Coupling (CC) implementadas no código computacional MOLSCAT. Aplicamos nossa metodologia no cálculo das seções de choque de espalhamento elástico e inelástico (rotacional e vibracional) para os sistemas pósitron-H₂, N₂ e O₂ e comparamos com os dados experimentais e teóricos reportados recentemente. Como resultado, mostramos que a FNMC representa um modelo alternativo para tratar o problema do espalhamento de pósitrons por moléculas diatômicas homonucleares com resultados relevantes na compreensão do mecanismo de interação pósitron-molécula diatômica, uma vez que toda informação acerca da estrutura eletrônica do alvo é computada na SEP. Além disso, a possibilidade de se obter as seções de choque de espalhamento elástico e inelástico, considerando canais de excitação vibracional e rotacional, usando o mesmo poten-

cial de interação se torna extremamente atraente e aplicável a um grande número de sistemas.

Abstract

The interaction between electrons and positrons with atoms and molecules has been the subject of extensive theoretical and experimental studies in recent years, as it enables advancements in understanding the dynamic interplay between these particles and matter. When addressing collisions between electrons and positrons with atomic or molecular targets, considering various interaction channels becomes crucial. These channels encompass not only elastic collisions but also excitation channels (electronic, vibrational, rovibrational), ionization, dissociation, and, in the case of positron projectiles, channels related to Positronium formation and annihilation. These two distinct characteristics of positron scattering introduce an additional challenge in the treatment of such systems, particularly from an experimental perspective and given the context of low energies. The experimental analysis, initiated in the 1970s, continues to face challenges, with persistent discrepancies in data. These disparities primarily arise from difficulties in producing and controlling incident positron beams, especially at low energies. Theoretical challenges are equally prominent. The interaction between positrons and atomic or molecular targets is described through a positron-target potential that considers three regions: a short-range repulsive region, a long-range attractive region, and an intermediate region involving target correlation and polarization effects. The latter is undoubtedly the region that poses challenges for theorists. The effect of this interaction results from the modification of molecular/atomic charge due to the approach of the projectile and becomes more pronounced as the incident projectile energy decreases. In this context, we propose a theoretical computational approach to construct a potential energy surface (PES) for the interaction between positrons and diatomic molecules. This PES is parametrically dependent on the positron-target distance and, in principle, contains information about the three regions of interest. As a starting point, we employ the Finite Nuclear Mass Correction (FNMC) methodology, which treats the positron as a light nucleus. FNMC has been used in the treatment of positronic systems, particularly in constructing positron-atom interaction potentials with results comparable to the best available experimental data. In this study, we refine the methodology by applying it to positron-molecule systems. The PES is represented by an analytically adjusted function at ab-initio FNMC points, and this potential is used to compute elastic and inelastic cross-sections. The scattering equations are solved using the Close-Coupling (CC) approximation implemented in the computational code MOLSCAT. We apply our methodology to calculate cross-sections for elastic and inelastic scattering (rotational and vibrational) for positron- H_2 , N_2 , and O_2 systems and compare them with recently reported experimental and theoretical data. As a result, we demonstrate that FNMC represents an alternative model to address the positron scattering problem in homonuclear diatomic molecules, yielding relevant insights into the mechanism of positron-molecule interaction, as electronic target structure information is computed in the PES. Moreover, the potential to obtain cross-sections for elastic and inelastic scattering, considering vibrational and rotational excitation channels using the same interaction potential, becomes highly appealing and applicable to numerous systems.

Lista de Figuras

4.1	Sistema de coordenadas utilizado no cálculo da SEP para os sistemas e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2	41
4.2	SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 2.074a_0$ e r , para o sistema e^+N_2	43
4.3	SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 2.25a_0$ e r , para o sistema e^+O_2	44
4.4	SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 1.40a_0$ e r , para o sistema e^+H_2	44
4.5	Comparação entre os coeficientes $c_{000}(r)$ e $c_{200}(r)$ para e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2	45
4.6	Comparação entre os coeficientes $c_{001}(r)$ para e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 . Os pontos representam o potencial FNMC enquanto as linhas representam a forma analítica (equações 4.4 e 4.8) para o potencial.	46
4.7	Comparação entre as seções de choque elásticas obtidas para e^+N_2 com demais trabalhos da literatura.	48
4.8	Seção de choque de excitação rotacional 0-2 para e^+N_2 , obtida com a mesma metodologia descrita nesta tese, em comparação com outros trabalhos da literatura.	49
4.9	Seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+N_2 , obtida com a mesma metodologia descrita nesta tese, em comparação com outros trabalhos da literatura.	50
4.10	Temperatura do pósitron como função do tempo para o gás Nitrogênio em uma pressão de $15\mu Torr$ e $T_g = 300K$	51
5.1	Comparação entre nossos resultados de seção de choque de excitação vibracional elástica para e^+O_2 comparados com a literatura.	54
5.2	Comparação entre resultados experimentais e teóricos para espalhamento de e^+ por Ar, O_2 e N_2	56
5.3	Seção de choque de excitação rotacional ($1 \rightarrow 3$) para e^+O_2 . Nosso resultado comparados com outros trabalhos da literatura. Acima, a direita, estão apresentadas todas as excitações rotacionais $j \rightarrow j \pm 2$ obtidas em nosso cálculo.	58
5.4	Comparação entre nossos resultados de seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+O_2 com outros trabalhos disponíveis na literatura.	59
5.5	Seção de choque de excitação vibracional 0-1, 1-2 e 0-2 para e^+O_2	59
5.6	Nosso resultado de seção de choque elástica para e^+H_2 , comparado com outros trabalhos da literatura.	62
5.7	Seção de choque de excitação rotacional ($0 \rightarrow 2$) para e^+H_2 . Nosso resultado comparados com outros trabalhos da literatura. Acima, a direita, estão apresentadas todas as excitações rotacionais $j \rightarrow j \pm 2$ obtidas em nosso cálculo.	64

5.8	Comparação do nosso resultado de seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+H_2 com outros trabalhos disponíveis na literatura.	65
A.1	Termos $c_{\lambda 00}(r)$ do potencial e^+O_2	76
A.2	Termos $c_{\lambda 11}(r)$ do potencial e^+O_2	77
A.3	Termos $c_{\lambda 22}(r)$ do potencial e^+O_2	77
A.4	Termos $c_{\lambda 01}(r)$ do potencial e^+O_2	78
A.5	Termos $c_{\lambda 02}(r)$ do potencial e^+O_2	78
A.6	Termos $c_{\lambda 12}(r)$ do potencial e^+O_2	79
B.1	Termo $c_{\lambda 00}(r)$ do potencial $e + H_2$	80
B.2	Termo $c_{\lambda 11}(r)$ do potencial $e + H_2$	81
B.3	Termos $c_{\lambda 22}(r)$ do potencial e^+H_2	82
B.4	Termos $c_{\lambda 01}(r)$ do potencial e^+H_2	82
B.5	Termos $c_{\lambda 12}(r)$ do potencial e^+H_2	83
B.6	Termos $c_{\lambda 02}(r)$ do potencial e^+H_2	83

Lista de Tabelas

4.1	Valores escolhidos para coordenadas (r, R), de acordo com a figura 4.1, e ordem λ dos polinômios de Legendre utilizados de cada sistema.	42
4.2	Polarizabilidade dipolar de cada alvo usadas no processo de ajuste dos pontos FNMC ao potencial analítico.	43

Lista de Abreviaturas e Siglas

ABO	Aproximação de Born Oppenheimer
ANR	<i>Adiabatic Nuclear Rotation</i>
ARA	<i>Adiabatic Rotational Approximation</i>
BF	<i>Body-fixed</i>
CC	<i>Close-Coupling</i>
CCC	<i>Convergent Close Coupling</i>
CCSD	<i>Coupled-Cluster Singles and Doubles</i>
CEP	Curvas de Energia Potencial
CI	<i>Configuration Interaction</i>
DBOC	<i>Diagonal Born-Oppenheimer Correction</i>
FNMC	<i>Finite Nuclear Mass Correction</i>
HF	Hartree-Fock
IAM-SCAR+I	<i>Independent atom model with screening corrected additivity rule plus interference terms</i>
LFCC	<i>Rotational Laboratory-Frame Close-Coupling</i>
PAS	<i>Positron Annihilation spectroscopie</i>
PCOP	<i>Positron Correlation Polarization</i>
PET	<i>Positron Emission Tomography</i>
SEP	Superfície de Energia Potencial
SF	<i>Spaced-Fixed</i>

Sumário

1	Introdução	14
1.1	O pósitron	14
1.2	Espalhamento de pósitrons	16
2	Descrição do alvo molecular e Correção de massa nuclear finita	18
2.1	Abordagem de Born-Huang Para o Problema Molecular	19
2.2	Finite Nuclear Mass Correction	21
3	Teoria geral de Espalhamento e Equações de Close-Coupling	23
3.1	Espalhamento quântico por um potencial simples	25
3.2	Teoria geral de colisões inelásticas	28
3.2.1	Equações de movimento relativo	29
3.2.2	Matrizes de espalhamento e <i>Phase-Shift</i>	31
3.2.3	Espalhamento por um Campo Central	33
3.2.4	Espalhamento por um Potencial Anisotrópico	35
4	O Potencial de Espalhamento	40
4.1	Metodologia para obtenção do potencial	40
4.2	Seção de choque elástica	46
4.3	Excitação Rotacional e Vibracional	49
5	Resultados e Discussões	53
5.1	Resultados e^+O_2	53
5.1.1	Seção de choque elástica	54
5.1.2	Excitação Rotacional e Vibracional	56
5.2	Sistema e^+H_2	60
5.2.1	Seção de choque elástica	61
5.2.2	Excitação Rotacional e vibracional	63
6	Conclusões	66
	Referências bibliográficas	69
A	Potencial sistema pósitron-oxigênio	76
B	Potencial sistema pósitron-hidrogênio	80

Capítulo 1

Introdução

1.1 O pósitron

Um pósitron (e^+) é a antipartícula do elétron que foi proposto teoricamente por Paul Dirac em 1928 (DIRAC, 1930) e descoberto a partir de estudos sobre trajetória de raios cósmicos por Carl D. Anderson em 1932 (ANDERSON, 1933).

Dirac, em seus estudos sobre a teoria quântica relativística, destacou que as soluções para a equação de onda que descrevia o movimento de um elétron em um campo elétrico, admita soluções negativas para energia cinética. Para justificar esses estados de energia negativa, Dirac postulou que todos os estados com energias menores que zero já estavam ocupados por elétrons. Assim os elétrons de energia positiva tem pouca chance de saltar pra os estados de energia negativa e se comportarão como os elétrons que observamos em laboratório. Porém, caso algum elétron com energia negativa absorva um fóton com uma energia suficiente para saltar do estado negativo para o estado de energia positiva, haverá um "buraco" no estado de energia negativa. Esse "buraco" atua agora como uma carga positiva e torna-se observável. Em princípio, Dirac assumiu que esse buraco era atribuído à um próton, porém ele logo compreendeu que não era o caso e que essa teoria previa uma nova partícula, que mais tarde foi chamada de pósitron (M.CHARLTON; HUMBERSTON, 2001).

Em 1932, através de estudos de trilhas de raios cósmicos, Anderson registrou um conjunto de trajetórias de partículas que não poderiam ser atribuídas à prótons. A partir de uma análise da perda de energia e da ionização produzida, Anderson atribuiu aos pósitrons as trilhas registrados em seus experimentos.

Após a descoberta dos pósitrons uma série de estudos com objetivos de entender os processos de aniquilação do pósitron na matéria foram iniciados.

No início dos anos 1950 Deustch et. al. fizeram estudos sobre a taxa de aniquilação de pósitrons em um gás atômico e molecular à pressão atmosférica (DEUTSCH, 1951b,a). Em meio a esses estudos, os pesquisadores descobriram o átomo de positrônio, que é um estado ligado entre um pósitron e um elétron. Eles calcularam o tempo de vida desse sistema e encontraram que, para o par chamado de ortopositrônio (que é quando o spin total do estado do par elétron-pósitron é de $S = 1$) o tempo de vida é de cerca de 142 ns. Um ortopositrônio decai predominantemente em três raios gama. Já para o par denominado parapositronio (spin total igual a $S = 0$), o tempo de vida é de 0,125 ns, e decaindo em 2 raios gama com energias de 511keV cada um.

Os pósitrons podem ser produzidos a partir de duas formas: podem ser emitidos espontaneamente a partir de núcleos de átomos radioativos, e também a partir de aceleradores de partículas ou em reatores. Entretanto, os pósitrons emitidos a partir dessas fontes apresentam um amplo espectro de energia, podendo variar acima ou abaixo da energia de repouso de um elétron, cerca de 511keV. Isso faz com que os feixes com energias da ordem de interesse para o espalhamento de baixa energia de pósitrons tenham baixo peso espectral (SURKO; GRIBAKIN; BUCKMAN, 2005), o que torna desafiador os estudos experimentais sobre a interação de pósitrons de baixa energia com a matéria.

O pósitron pode ser utilizado em diversas áreas de aplicação, que vão desde seu uso em aplicações científicas, como os testes para a teoria da eletrodinâmica quântica (AMORETTI et al., 2002), e também para aplicações tecnológicas, no qual podemos destacar a tomografia por emissão de pósitrons, a *Positron Emission Tomography* (PET) e na caracterização de materiais.

A PET combinada com a tomografia computadorizada (PET-CT) é um exame de imagem que utiliza radiofármacos que liberam pósitrons durante o seu decaimento, no interior das células. A PET detecta a radiação emitida pelo radiofármaco e usa essas informações para criar imagens detalhadas do corpo, permitindo a identificação de áreas anormais, como tumores, e a avaliação da extensão de doenças (MACMANUS, 2009). Essa técnica se diferencia das demais pois oferece imagens muito mais detalhadas, identificando lesões que podem não ser aparentes em outros exames. O radiofármaco mais utilizado nesses exames é o flúor-18, incorporados à molécula de glicose, chamado de flúor-de-soxi-glicose (FDG-¹⁸F). Porém, outros radiofárma-

cos estão sendo constantemente desenvolvidos (VALLABHAJOSULA; SOLNES; VALLABHAJOSULA., 2011).

Em ciências dos materiais, feixes de pósitrons podem ser usados para investigação de propriedades úteis em materiais semicondutores, metais, entre outros, através da *Positron Annihilation spectroscopie* (PAS) (SIEMEK et al., 2022). Esse mesmo método também já foi usado como técnica de detecção e diagnóstico precoce para a formação de câncer(JEAN et al., 2006).

1.2 Espalhamento de pósitrons

Um dos objetivos dos estudos que envolvem o espalhamento de pósitrons por moléculas é a compreensão das características dos alvos e das interações entre partículas subatômicas e a matéria. No campo experimental as dificuldades associadas à medida estão relacionadas à produção de feixes de pósitrons com energias bem definidas.

Segundo Surko et. al. (SURKO; GRIBAKIN; BUCKMAN, 2005), Cherry e Groce foram os precursores na investigação de materiais destinados a diminuir o amplo espectro de energia dos feixes de pósitrons, sendo esses materiais denominados moderadores. O progresso tecnológico na elaboração desses moderadores foi crucial para viabilizar uma extensa variedade de medições das seções de choque.

Do ponto de vista teórico existe uma série de modelos e métodos que descrevem a aproximação de um pósitron por uma molécula ou um átomo (JAIN, 1990b; JAIN, 1990a), (ZAMMIT et al., 2017) e (TAKATSUKA; MCKOY, 1984; GERMANO; LIMA, 1993a). Em todas essas abordagens, é necessário modelar um potencial de interação entre e^+ e o alvo, que na sequência é usado para obter as seções de choque de espalhamento, que são as grandezas experimentais mais importantes quando se trata de espalhamento quântico de moléculas.

O potencial de interação entre um e^+ e uma molécula é descrito na literatura por três regiões: a região de curto alcance, que representa a interação repulsiva entre o e^+ e o alvo; a região de correlação, definida por uma distância intermediária entre o e^+ e os elétrons do alvo; e a região de longo alcance, que é atrativa e bem descrita por uma expansão em multipolos dominada pelo termo $\frac{-\alpha_0}{2r^4}$.

Em geral, o modelo frequentemente utilizado para descrever a região de correlação e polarização é a *Positron Correlation Polarization* (PCOP), que trata do e^+ como uma impureza carregada positivamente em um gás de elétrons homogêneo(JAIN, 1990b; JAIN, 1990a). O po-

tencial PCOP é uma função analítica, que depende da posição do e^+ ao alvo, e que separa as regiões de curto e longo alcance através de um parâmetro denominado raio de corte. Como a seção de choque é muito sensível, mesmo frente à pequenas mudanças no potencial, o tamanho e forma da seção de choque podem variar dependendo da escolha desse parâmetro.

Neste trabalho vamos propor um potencial de interação entre o e^+ e as moléculas diatômicas que, a princípio, descreverá todas as três regiões do potencial. Faremos isso através da metodologia denominada *Finite Nuclear Mass Correction* (FNMC), que possibilita tratar o e^+ como um núcleo leve (MOHALLEM, 2004). Com esse potencial, obteremos as seções de choque de espalhamento elástico e inelástico para a interação de um e^+ com as moléculas de Oxigênio (O_2), Nitrogênio (N_2) e Hidrogênio (H_2), usando o método *Close-Coupling* (CC), que descreve o espalhamento de e^+ por moléculas por meio da expansão do estado final do sistema em termos do estado de canal, levando em conta a contribuição de vários canais de espalhamento (MORRISON; SUN, 1995; BARTSCHAT, 1996). O método CC está implementado no código MOLSCAT (HUTSON; SUEUR, 2019, 2020) e será usado neste trabalho para computar as seções de choque.

O método FNMC permite calcular uma Superfície de Energia Potencial (SEP) em todo o espaço de configuração para um sistema de três corpos. A característica principal da FNMC é a possibilidade de incluir a massa nuclear nos cálculos de estrutura eletrônica. Modelando o e^+ como um núcleo leve, toda a informação referente a ele estará contida na SEP. Esse método já foi testado, com boas comparações com a literatura, para colisões de e^+ com átomos (POVEDA; DUTRA et al., 2013; POVEDA; ASSAFRÃO; MOHALLEM, 2016) e, a partir desta tese, com a molécula de N_2 (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019), O_2 (PINHEIRO et al., 2023) e H_2 .

Este trabalho está dividido da seguinte forma: no capítulo 2 apresentaremos em detalhes a abordagem FNMC; no capítulo 3 abordaremos a teoria geral de espalhamento inelástico, bem como a formulação das equações CC. No capítulo 4 explicitaremos os passos para obtenção do potencial para cada alvo estudado nesta tese. E por fim, no capítulo 5, apresentaremos nossos resultados de seções de choque elástica e inelástica em comparação com outros trabalhos disponíveis da literatura.

Capítulo 2

Descrição do alvo molecular e Correção de massa nuclear finita

No estudo teórico da física molecular é comum o uso de modelos e aproximações para descrever a estrutura das moléculas e suas interações com campos externos. Isso porque a solução geral da equação de Schrodinger para sistemas com um número grande de partículas é algo impossível.

O modelo mais utilizado é chamado de modelo adiabático de uma molécula (MORGON; (EDS), 2007). Neste modelo, os elétrons são considerados mais leves e portanto mais velozes que os núcleos, que por sua vez, são considerados pesados e lentos. Dessa forma, é possível considerar que “os núcleos sintam apenas um campo médio devido aos elétrons” (Mohallem, J.R e Prudente, F. V. 2007, p. 286.) O modelo adiabático também dá origem a uma das ferramentas mais utilizadas na física molecular, a SEP ou Curvas de Energia Potencial (CEP), que permite estudar os movimentos eletrônicos, vibracionais e rotacionais. Uma SEP (ou CEP) é uma função de energia potencial de um sistema de partículas, como átomos e moléculas. Essa função de potencial dependerá das coordenadas relacionadas aos graus de liberdade da molécula ou sistema considerado. Apesar de ser uma simplificação da realidade, o modelo adiabático possibilitou o avanço teórico no entendimento da estrutura de moléculas e sólidos (MOHALLEM; PRUDENTE, 2007).

Do ponto de vista prático a separação dos movimentos eletrônicos, vibracionais e rotacionais de uma molécula se dá ao introduzir o hamiltoniano eletrônico de uma molécula. Uma das maneiras mais tradicionais de fazer isso é usar a Aproximação de Born Oppenheimer (ABO) (MORGON; (EDS), 2007). Nesta aproximação, as SEPs são obtidas fazendo com que

os cálculos eletrônicos sejam obtidos em diferentes configurações nucleares fixas, sem levar em conta a energia cinética dos núcleos no cálculo eletrônico.

Para que efeitos de massa sejam incorporados à solução geral, é possível utilizar a chamada *Diagonal Born-Oppenheimer Correction* (DBOC), que inclui os efeitos de correção adiabática de maneira perturbativa. Porém, a DBOC não modifica as funções de onda eletrônicas, o que impossibilita a obtenção de propriedades como efeitos isotópicos sobre a distribuição eletrônica.

Para superar isso, é possível “construir hamiltonianos puramente eletrônicos que contêm dependência nas massas nucleares. Assim, as aproximações adiabáticas geradas podem dar conta dos efeitos isotópicos” (Mohallem, J.R e Prudente, F. V. 2007, p. 289). Uma construção alternativa de hamiltoniano eletrônico, em que a massa nuclear é mantida nos cálculos é chamada de Finite Nuclear Mass Correction (FNMC) e pode ser usada juntamente com os métodos de química quântica já conhecidos como o método Hartree-Fock (HF), o *Coupled-Cluster Singles and Doubles* (CCSD), *Configuration Interaction* (CI) entre outros.

A Aproximação de Born Oppenheimer, e também a FNMC, será apresentada a partir da abordagem variacional de Born-Huang ao problema molecular.

2.1 Abordagem de Born-Huang Para o Problema Molecular

Assim como feito no capítulo 8 livro (MORGON; (EDS), 2007), vamos considerar ao longo de toda descrição, unidades atômicas: a massa e carga do elétron, a constante de Bohr (a_0) e constante de Planck (\hbar) tem valor unitário. Também assumiremos que toda a descrição é válida para o caso de uma molécula diatômica AB de massa reduzida μ_{AB} dada por:

$$\mu_{AB} = \frac{M_A M_B}{M_A + M_B}, \quad (2.1)$$

e que $M = M_A + M_B$.

A função de onda molecular total $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$ pode ser escrita em termos de uma base de funções eletrônicas previamente conhecidas $\Phi_k(\vec{r}, \vec{R})$ da forma:

$$\Psi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_k \chi_k(\vec{R}) \Phi_k(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_k \chi_k \Phi_k. \quad (2.2)$$

As funções eletrônicas $\Phi_k(\vec{r}, \vec{R})$ dependem parametricamente das coordenadas nucleares, enquanto que as funções nucleares $\chi_k(\vec{R})$ são as funções de onda nucleares a ser determinadas.

Como usual em problemas de mecânica quântica, resolveremos a equação de Schrödinger independente do tempo para $\Psi(\vec{r}, \vec{R})$ dado em 2.1 para o seguinte Hamiltoniano total:

$$H = -\frac{\nabla_A^2}{2M_A} - \frac{\nabla_B^2}{2M_B} - \sum_i \frac{\nabla_i^2}{2} + V_{ele} + \frac{Z_A Z_B}{R}. \quad (2.3)$$

Nesta expressão, os operadores ∇_A^2 e ∇_B^2 são os laplacianos tomados nas coordenadas nucleares de A e B respectivamente, enquanto que ∇_i^2 é tomado nas coordenadas eletrônicas. O termo V_{ele} representa o potencial Coulombiano entre os elétrons, e o último termo representa a repulsão nuclear para a distância internuclear R.

A equação 2.3 representa a molécula no referencial do laboratório (LAB). Em um referencial do centro de massa das moléculas (MOL) podemos reescrever a equação 2.3 como (MOHALLEM; PRUDENTE, 2007):

$$H = -\frac{\nabla_R^2}{2\mu_{AB}} - \sum_{ij} \frac{1}{2M} \vec{\nabla}_i \cdot \vec{\nabla}_j - \sum_i \frac{\nabla_i^2}{2} + V \quad (2.4)$$

Usando 2.4 na equação de Schrödinger e sabendo que $\nabla_R^2(\chi\Phi) = \Phi\nabla_R^2\chi + \chi\nabla_R^2\Phi + 2\nabla_R\Phi \cdot \nabla_R\chi$:

$$\sum_k \left\{ -\frac{1}{2\mu_{AB}} [\Phi_k \nabla_R^2 \chi_k + \chi_k (\nabla_R^2 \Phi_k) + 2\nabla_R \Phi_k \cdot \nabla_R \chi_k] - \frac{1}{2M} \left(\sum_{ij} \nabla_i \cdot \nabla_j \Phi_k \right) \chi_k - \frac{1}{2} \chi_k \sum_i \nabla_i^2 \Phi_k + V \chi_k \Phi_k \right\} = E \sum_k \chi_k \Phi_k. \quad (2.5)$$

Multiplicando a esquerda por Φ_l^* e integrando nas coordenadas eletrônicas teremos:

$$\left\{ -\frac{1}{2\mu_{AB}} (\nabla_R^2 + (\nabla_R^2)_{kk} + 2(\nabla_R)_{kk} \cdot \nabla_R) - \frac{1}{2M} \sum_{ij} (\nabla_i \nabla_j)_{kk} - \frac{1}{2} \left(\sum_i \nabla_i^2 \right)_{kk} + (V)_{kk} - E \right\} \chi_k = \sum_{k \neq l} \left\{ \frac{1}{2\mu_{AB}} [+(\nabla_R^2)_{lk} + 2(\nabla_R)_{lk} \cdot \nabla_R] + \frac{1}{2M} \sum_{ij} (\nabla_i \cdot \nabla_j)_{lk} + \frac{1}{2} \left(\sum_i \nabla_i^2 \right)_{lk} - (V)_{lk} \right\} \chi_l. \quad (2.6)$$

Aqui, usamos o símbolo $A_{lk} \equiv \langle \Phi_l | A | \Phi_k \rangle$ para um operador genérico A, e a premissa que a base de funções Φ_k é ortonormal $\langle \Phi_l | \Phi_k \rangle = \delta_{lk}$.

Comparando a equação (2.6) com a 2.4 vemos que podemos reescrever (2.6) da forma:

$$\left\{ -\frac{\nabla_R^2}{2\mu_{AB}} + H_{kk} - \frac{(\vec{\nabla}_R)_{kk} \cdot \nabla_R}{\mu_{AB}} - E \right\} \chi_k = \sum_{l \neq k} \left\{ -H_{lk} + \frac{(\vec{\nabla}_R)_{lk} \cdot \vec{\nabla}_R}{\mu_{AB}} \right\} \chi_l. \quad (2.7)$$

A equação 2.7 (ou equação (2.6)) representam um conjunto de equações acopladas cuja solução exata levaria para as funções nucleares $\chi_k(R)$. Porém, este é um problema que não tem solução analítica. Por isso, precisamos fazer uso de aproximações moleculares.

A Aproximação Adiabática é a mais utilizada em problemas moleculares. Ela assume total desacoplamento dos estados eletrônicos e permite separar os movimentos eletrônicos, rotacional e vibracional, o que simplifica o problema molecular.

Um caso particular da aproximação adiabática é a Aproximação de Born-Oppenheimer que despreza, além do acoplamento dos estados eletrônicos, todos os termos que envolvem massas nucleares das equações acopladas. Como consequência, a Aproximação de Born-Oppenheimer não é apta para a obtenção de propriedades que dependam da massa nuclear, como por exemplo, efeitos isotópicos.

Devemos assumir que a base eletrônica que minimiza os efeitos não adiabáticos será aquela em que $H_{kl} = 0$ na equação 2.7. Sendo assim, vamos apresentar uma abordagem que considera uma transformação do Hamiltoniano em sua forma eletrônica porém, mantendo um termo que dependerá das coordenadas nucleares.

2.2 Finite Nuclear Mass Correction

Foi desenvolvida uma transformação do Hamiltoniano total em uma forma puramente eletrônica, que depende das massas nucleares (MOHALLEM, 2004).

O Hamiltoniano de uma molécula de m núcleos e n elétrons, com $n = n_A + n_B + \dots$ passa ser:

$$H_{lab} = -\sum_A^m \frac{\nabla_A^2}{2M_A} - \sum_i^n \frac{\nabla_i^2}{2} + V = -\sum_A^m \frac{\nabla_A^2}{2M_A} + H_{BO}, \quad (2.8)$$

em que $\sum_A^m \frac{\nabla_A^2}{2M_A}$ representa a energia cinética dos núcleos e o termo $\sum_i^n \frac{\nabla_i^2}{2} + V$ é equivalente à Hamiltoniana na aproximação de Born-Oppenheimer. Postulando que o momento linear nos átomos seja conservado separadamente, e não globalmente, teremos num átomo genérico, o

operador ∇_A pode ser escrito como $\vec{\nabla}_A = -\sum_i^{n_A} \vec{\nabla}_i$. Isso leva para $\nabla_A^2 \approx \sum_i^{n_A} \nabla_i^2$. Assim teremos

$$H_{mol} = H = -\sum_{j=1}^{n_A} \frac{\nabla_j^2}{2M_A} - \sum_{k=n_A+1}^{n_A+n_B} \frac{\nabla_k^2}{2M_B} + \dots - \sum_i^n \frac{\nabla_i^2}{2} + V. \quad (2.9)$$

Para que não haja distinção de elétrons pertencentes a um átomo específico, postula-se que os termos de correção serão nulos quando envolver diferentes átomos. Simbolicamente isso é feito a partir do operador projeção P_A , dado por $P_A = |\chi_A\rangle\langle\chi_A|$, em que χ_A representa um orbital atômico.

$$H = \sum_A^m P_A \left(-\frac{\sum_i^n \nabla_i^2}{2M_A} P_A \right) - \sum_i^n \frac{\nabla_i^2}{2} + V \quad (2.10)$$

A forma final de 2.10 já está implementada no pacote computacional GAMESS (GONÇALVES; MOHALLEM, 2004) e já foi usada em diferentes trabalhos em que a massa nuclear é importante, como em cálculos dos efeitos isotópicos (GONÇALVES; MOHALLEM, 2003).

Note que para um pósitron, com massa quase duas mil vezes menor que a massa de um próton, a contribuição para a correção de massa, dada pelo termo $-\frac{\sum_i^n \nabla_i^2}{2M_A} P_A$ da equação 2.10, será maior do que para qualquer outro núcleo. (ASSAFRÃO et al., 2011; POVEDA; DUTRA et al., 2013; POVEDA; ASSAFRÃO; MOHALLEM, 2016; POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019).

Capítulo 3

Teoria geral de Espalhamento e Equações de Close-Coupling

A FNMC nos permite tratar o e^+ como um núcleo leve e podemos obter uma SEP para os sistemas que escolhemos estudar. Com esse potencial podemos resolver as equações de espalhamento, que são construídas por meio de um modelo adequado para o tratar o espalhamento de pósitrons por moléculas diatômicas. Os modelos de espalhamento podem ser de três tipos: elástico, inelástico ou reativo (CHILD, 1984). O caso elástico é aquele que apenas trata da transferência de momento linear entre a partícula espalhadora e o alvo. O modelo inelástico, que vamos adotar nesta tese, trata também da mudança da energia interna do sistema devido a partícula espalhadora. Já o modelo reativo é capaz de tratar das mudanças químicas que podem ocorrer durante um experimento de espalhamento.(MORRISON; SUN, 1995)

Para cada um desses modelos, quando tratamos do espalhamento quântico, a grandeza experimental mais importante é a seção de choque de espalhamento. A seção de choque é uma seção transversal (área) normal a direção incidente do feixe incidente (CHILD, 1984). Dizemos que a seção de choque total $\sigma(E)$ inclui todos os eventos de espalhamento elástico e inelásticos para uma dada energia E do feixe incidente. Já a seção de choque diferencial elástica $\frac{d\sigma}{d\theta}$ contabiliza todos os eventos de espalhamento elástico que ocorrem numa dada orientação θ .

O modelo inelástico de colisões considera, além de coordenadas relativas entre a partícula espalhadora (o pósitron) e o alvo (moléculas diatômicas), um sistema de coordenadas internas do alvo. A seção de choque de espalhamento inelástico neste modelo será escrita por $\sigma_{ij}(E)$ e

representa uma área através da qual o feixe de partículas incidentes deve passar, em uma dada energia, para que provoque uma mudança de estado do sistema de i para j .

O modelo de espalhamento inelástico entre um átomo e uma molécula diatômica formulado por Curtiss e seus colaboradores na década de 1950 ficou conhecido como *Body-fixed* (BF) (CURTISS; ADLER, 1952). Nesta formulação, o eixo de quantização do momento angular rotacional com o vetor que liga a partícula espalhadora e a molécula alvo, levando para expressões mais simples para a amplitude de espalhamento e seções de choque diferenciais inelásticas e total (CHILD, 1984).

Na mesma época, Arthurs e Dalgarno (ARTHURS; DALGARNO, 1960) propuseram uma formulação diferente para tratar do problema de colisão entre um átomo e uma molécula diatômica, modelada como um rotor-rígido. Nesta formulação, que ficou conhecida como *Spaced-Fixed* (SF), o eixo de quantização é tomado ao longo da direção incidente (CHILD, 1984).

Russel T. Pack, em 1974, descreve ambas as formulações e discute qual é a mais apropriada, do ponto de vista computacional, a ser usada dependendo das características do sistema (PACK, 1974). Ambas formulações resultam em um conjunto de equações integrais ou diferenciais acopladas que podem ser resolvidas computacionalmente através de programas baseados no método *Close Coupling* CC.

O método CC é um método não-perturbativo padrão para tratar de espalhamento de baixa energia de pósitrons e elétrons. Ele é baseado na expansão da função de onda total do sistema em um conjunto de funções construídas a partir dos estados do alvo, que podem incluir os graus de liberdade rotacional e vibracional. Há uma extensão da abordagem CC denominada *Convergent Close Coupling* (CCC) para tratar colisões de alta energia (BARTSCHAT, 1996).

O MOLSCAT (HUTSON; SUEUR, 2019, 2020) é um programa computacional que constrói as equações acopladas CC para diferentes tipos de sistemas e resolve-as propagando a função de onda da região de curto alcance para a região assintótica (HUTSON; SUEUR, 2019). O usuário pode selecionar os observáveis relacionados ao espalhamento como seções de choque integral e comprimento de espalhamento. Este programa é de uso livre e está escrito em linguagem FORTRAN. Usaremos este programa para resolver as equações acopladas e encontrar as seções de choque de excitação vibracional, rotacional e elástica.

Neste capítulo começaremos apresentando o caso mais simples de espalhamento quântico por um potencial. Em seguida, apresentaremos a teoria geral de colisões inelásticas para dois

casos particulares: o espalhamento por campo central e o espalhamento por um potencial anisotrópico.

3.1 Espalhamento quântico por um potencial simples

Nesta seção vamos estudar o caso mais simples de espalhamento quântico. O potencial de interação entre um projétil e o alvo será dito central. Ou seja, sua dependência será apenas na coordenada que liga o centro de massa do alvo com a partícula espalhadora. Não vamos considerar características particulares do alvo, como suas coordenadas internas. A função de onda que descreve o sistema alvo+projétil tem a seguinte forma assintótica ($r \rightarrow \infty$)

$$\Psi(\vec{r}) \rightarrow \tilde{\Psi}(\vec{r}) + f(\theta)e^{ik/r}. \quad (3.1)$$

Aqui, $\tilde{\psi}(\vec{r})$ representa o estado do sistema na ausência da partícula espalhadora e é determinado por condições físicas do experimento. Em geral, $\tilde{\psi}(\vec{r})$ assume a forma de uma onda plana e^{ikz} . Essa forma garante a inclusão de todos os parâmetros de impacto com um dado momento angular $k\hbar$ na direção z . Uma vez que $\psi(\vec{r})$ é autofunção de \hat{P}_z

$$\hat{P}_z \psi(\vec{r}) = -i\hbar \frac{d}{dz} e^{ikz} = k\hbar e^{ikz}. \quad (3.2)$$

O fator e^{ikr} garante que a onda espalhada tenha momento $k\hbar$, enquanto que $f(\theta)$ é chamado amplitude de espalhamento e governa a distribuição angular do problema de espalhamento. Consideramos aqui a simetria azimutal.

A amplitude de espalhamento está intimamente ligada a seção de choque de espalhamento. Esta conexão é feita através da comparação entre o fluxo de partículas incidentes com a taxa de espalhamento dentro de uma região limitada por um ângulo sólido $d\Omega$ (CHILD, 1984):

$$\sigma = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega = 2\pi \int_0^\pi |f(\theta)|^2 \sin \theta d\theta. \quad (3.3)$$

O problema passa então a encontrar uma expressão para $f(\theta)$ para uma dada função $V(r)$. Isso requer resolver uma equação de Schrödinger numa região o potencial de interação seja significativo. Um método utilizado para obter $f(\theta)$ é o método de ondas parciais. Neste método,

a função de onda do sistema é expandida num base de funções de Legendre

$$\psi(\vec{r}) = \frac{1}{r} \sum_{l=0}^{\infty} A_l P_l(\cos \theta) \psi_l(r) \quad (3.4)$$

em que $\psi_l(\vec{r})$ são denominadas funções radiais e satisfazer

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - U_l(r) \right] \psi_l(r) = 0 \quad (3.5)$$

em que

$$U_l(r) = U(r) + \frac{l(l+1)}{r^2} \quad (3.6)$$

é denominado potencial efetivo. A solução $\psi_l(r)$ para este potencial efetivo, tem a seguinte forma assintótica (CHILD, 1984):

$$\psi_l(r) \sim \sin(kr + \delta_l) \quad (3.7)$$

ou

$$\psi_l(r) \sim \frac{1}{2i} [\exp(ikr - i\delta_l) - \exp(-ikr - i\delta_l)] \quad (3.8)$$

Chamamos o termo e^{-ikr} de "onda de entrada" e e^{ikr} como "onda de saída". Portanto, o espalhamento elástico afeta as fases relativas as ondas de entrada e saída. Essas mudanças de fase determinam o padrão de interferência, representado pela amplitude de espalhamento $f(\theta)$.

Neste ponto, é interessante deixar claro quais são as contribuições do potencial $U(r)$. Para isso, é introduzido o *phase-shift* η_l

$$\eta_l = \delta_l - \tilde{\delta}_l \quad (3.9)$$

O termo $\tilde{\delta}_l$ surge devido ao termo centrífugo $l(l+1)/r^2$ na equação 3.6. Para descobrir exatamente quanto vale essa contribuição, basta fazer $U(r) = 0$ na equação 3.6 e resolver a equação 3.5 para uma função $\tilde{\psi}_l(r)$

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] \tilde{\psi}_l(r) = 0. \quad (3.10)$$

A solução de $\tilde{\psi}_l(r)$ é expressa em termos da função de Bessel esférica

$$\tilde{\psi}_l(r) = kr j_l(kr). \quad (3.11)$$

com forma assintótica (CHILD, 1984):

$$\tilde{\psi}_l(r) \sim \sin(kr - l\pi/2), \quad (3.12)$$

que implica em $\tilde{\delta}_l = -l\pi/2$. A forma geral de $\psi_l(r)$ então pode ser dada como:

$$\psi_l(r) \sim \sin(kr - l\pi/2 + \eta_l). \quad (3.13)$$

A relação entre o phase-shift e a amplitude de espalhamento $f(\theta)$ pode ser encontrada decompondo a função de onda plana $\tilde{\Psi}(\vec{r})$, dada pela equação 3.1, em ondas parciais assim como fizemos em 3.4

$$\tilde{\Psi}(\vec{r}) = e^{ikz} = \frac{1}{r} \sum_{l=0}^{\infty} \tilde{A}_l \tilde{\psi}_l(r) P_l(\cos \theta), \quad (3.14)$$

que é equivalente à expansão de Rayleigh (CHILD, 1984)

$$e^{ikz} = \sum_{l=0}^{\infty} i^l (2l+1) j_l(kr) P_l(\cos \theta). \quad (3.15)$$

Esta comparação é possível porque a função $\tilde{\psi}_l(r)$ é escrita em termos da função de Bessel esférica dada por 3.11. Comparando então 3.15 com 3.14 podemos escrever \tilde{A}_l

$$\tilde{A}_l = (2l+1) i^l / k. \quad (3.16)$$

Retornando para a equação 3.1, podemos reescreve-la como:

$$\Psi(\vec{r}) - \tilde{\Psi}(\vec{r}) \sim f(\theta) e^{ikr} / r, \quad (3.17)$$

e usando as equações 3.13 como solução de $\Psi(\vec{r})$, a equação 3.12 como solução de $\tilde{\Psi}(\vec{r})$ e a expansão em ondas parciais 3.14 teremos:

$$\Psi(\vec{r}) - \tilde{\Psi}(\vec{r}) \sim \frac{1}{r} \sum_{l=0}^{\infty} [A_l \sin(kr - l\pi/2 + \eta_l) - \tilde{A}_l \sin(kr - l\pi/2)] P_l(\cos \theta). \quad (3.18)$$

Esta expressão deve obedecer 3.17, ou seja, não deve haver termos de entrada "incoming". Para isso, fazemos:

$$A_l = \tilde{A}_l e^{i\eta_l} = i^l (2l+1) e^{i\eta_l} / k. \quad (3.19)$$

Retornando a equação 3.18, usando as relações

$$\begin{aligned}\sin x &= \frac{e^{ix} - e^{-ix}}{2i}, \\ i^l &= e^{il\pi/2},\end{aligned}\tag{3.20}$$

e a equação 3.19 finalmente obteremos:

$$\Psi(\vec{r}) - \tilde{\Psi}(\vec{r}) \sim \frac{1}{r} \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(2l+1)}{2ik} (e^{2i\eta_l} - 1) P_l(\cos \theta) e^{ikr}.\tag{3.21}$$

Comparando as equações 3.21 e 3.17 podemos escrever $f(\theta)$ como:

$$f(\theta) = \frac{1}{2ik} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) (e^{2i\eta_l} - 1) P_l(\cos \theta).\tag{3.22}$$

Esta expressão fornece a conexão entre a amplitude de espalhamento e o phase-shift. Usando a equação 3.3 podemos obter a seção de choque elástica:

$$\begin{aligned}\sigma &= 2\pi \int_0^{\pi} |f(\theta)|^2 \sin \theta d\theta \\ &= \frac{\pi}{2k^2} \sum_{l,l'} (2l+1)(2l'+1) |(e^{2i\eta_l} - 1)(e^{2i\eta_{l'}} - 1)| \int_{-1}^1 P_l(x) P_{l'}(x) dx\end{aligned}\tag{3.23}$$

$$\sigma = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \sin^2 \eta_l.\tag{3.24}$$

3.2 Teoria geral de colisões inelásticas

Na teoria de espalhamento por um potencial central as seções de choque elástica são determinadas a medida em que encontramos o *phase-shift* de espalhamento, que mede a diferença de fase entre onda incidente e onda espalhada. Na teoria geral de colisões moleculares é conveniente definir uma grandeza chamada matrizes de espalhamento, que são uma generalização do *phase shift*. As matrizes de espalhamento são úteis para encontrar expressões para as amplitudes de espalhamento $f_{ij}(\theta, \phi)$, de um canal i para um canal j . Antes de definirmos matrizes de espalhamento, vamos começar escrevendo as equações de movimento relativo.

3.2.1 Equações de movimento relativo

Vamos considerar o espalhamento de feixe de partículas com uma molécula diatômica. A Hamiltoniana desse sistema pode ser escrita como:

$$H = H_{int}(\vec{R}) - \frac{\hbar^2}{2m} \nabla_r^2 + V(\vec{r}, \vec{R}) \quad (3.25)$$

em que H_{int} é o Hamiltoniano do movimento nuclear da molécula diatômica, \vec{R} representa as 3N-3 coordenadas da molécula diatômica, \vec{r} é a coordenada de espalhamento (ou coordenada relativa) e m é a massa reduzida do sistema

$V(\vec{r}, \vec{R})$ é o potencial de interação, que obedece a seguinte condição de contorno:

$$\lim_{r \rightarrow \infty} V(\vec{r}, \vec{R}) = 0. \quad (3.26)$$

A equação de Schrodinger independente do tempo para este problema é

$$H\Phi(\vec{r}, \vec{R}) = E\Phi(\vec{r}, \vec{R}). \quad (3.27)$$

A função de onda total $\Phi(\vec{r}, \vec{R})$ pode ser escrita como uma combinação linear dos autoestados da diatômica $\phi_j(\vec{R})$:

$$\Phi(\vec{r}, \vec{R}) = \sum_j \Psi_j(\vec{r}) \phi_j(\vec{R}) \quad (3.28)$$

com

$$H_{int}(\vec{R}) \phi_j(\vec{R}) = E_j \phi_j(\vec{R}). \quad (3.29)$$

Fazendo a substituição de $\Phi(\vec{r}, \vec{R})$ (equação 3.28) na equação 3.27 temos o conjunto de equações acopladas:

$$[\nabla_r^2 + k_i^2] \Psi_i(\vec{r}) = \sum_j U_{ij}(\vec{r}) \Psi_j(\vec{r}), \quad (3.30)$$

em que

$$k_i^2 = 2m(E - E_i)/\hbar^2, \quad (3.31)$$

$$U_{ij}(\vec{r}) = 2m/\hbar^2 \int \phi_i^*(\vec{R}) V(\vec{r}, \vec{R}) \phi_j(\vec{R}) d\vec{R}. \quad (3.32)$$

Chamamos de canal de *entrada* o termo do lado esquerdo da equação 3.30 $\Psi_i(\vec{r})$ e os demais canais são representados por $\Psi_j(\vec{r})$. Os termos $U_{ii}(\vec{r})$ contribuem diretamente para o espa-

lhamento elástico, enquanto os termos fora da diagonal $U_{ij}(\vec{r})$ são responsáveis pelo processo inelástico (CHILD, 1984).

Considerando as condições de contorno usuais a solução final da função de onda total podem ser escritas como (CHILD, 1984):

$$\begin{aligned}\Psi_i(\vec{r}) &\sim e^{ik_i z} + f_{ii}(\theta, \phi)e^{ik_i r}/r, \\ \Psi_j(\vec{r}) &\sim f_{ij}(\theta, \phi)e^{ik_j r}/r.\end{aligned}\quad (3.33)$$

Aqui, $f_{ij}(\theta, \phi)$ é interpretado como a amplitude de probabilidade para o espalhamento inelástica de um canal de entrada i para um canal j .

Por definição, a seção de choque diferencial é definida pela taxa:

$$\frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} = I_{ij}(\theta, \phi) = \frac{\text{fluxo de partículas espalhadas}}{\text{fluxo de partículas incidentes}}. \quad (3.34)$$

O fluxo de partículas incidente, associado à função de onda incidente $e^{ik_i z}$, que se move com uma velocidade v_i , é simplesmente $\frac{k_i \hbar}{m}$. Isso pode ser confirmado a partir da avaliação da componente z da densidade de corrente

$$\vec{j} = -\frac{i\hbar}{2m}(\Psi^* \nabla \Psi - \Psi \nabla \Psi^*). \quad (3.35)$$

De maneira similar, o fluxo de partículas espalhadas por unidade de tempo através de uma área $dS = r^2 \sin \theta d\theta d\phi$ é $v_j r^{-2} |f(\theta, \phi)|^2 dS$. Ou seja, usando a definição 3.34 teremos que:

$$(d\sigma_{ij}/d\Omega)d\Omega = I_{ij}(\theta, \phi) \sin \theta d\theta d\phi = (v_j/v_i)|f_{ij}(\theta, \phi)|^2 \sin \theta d\theta d\phi \quad (3.36)$$

em que

$$d\sigma_{ij}/d\Omega = I_{ij}(\theta, \phi) = (k_j/k_i)|f_{ij}(\theta, \phi)|^2. \quad (3.37)$$

E a seção de choque total integral inelástica é

$$\sigma_{ij} = (k_j/k_i) \int_0^{2\pi} \int_0^\pi |f_{ij}(\theta, \phi)|^2 \sin \theta d\theta d\phi \quad (3.38)$$

A obtenção de uma expressão matemática para $f_{ij}(\theta, \phi)$ passa pela definição das matrizes de espalhamento, que falaremos na próxima seção.

3.2.2 Matrizes de espalhamento e *Phase-Shift*

Para introduzir as matrizes de espalhamento \mathbf{S} , vamos começar com um problema de acoplamento do potencial (unidimensional) entre dois canais $\psi_0(r)$ e $\psi_1(r)$ de modo que (CHILD, 1984):

$$k_0^2 - U_{00}(r) = k_1^2 - U_{11}(r) = k^2 - U(r). \quad (3.39)$$

Isso significa fazer a soma em j da equação 3.30 para $j = 0, 1$. A equação de movimento relativo indica portanto que as equações:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k_0^2 - U_{00}(r) \right] \psi_0(r) = U_{01}(r) \psi_1(r) \quad (3.40)$$

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k_1^2 - U_{11}(r) \right] \psi_1(r) = U_{10}(r) \psi_0(r) \quad (3.41)$$

são desacopladas, se $U_{01}(r)$ e $U_{10}(r)$ são iguais e reais. Podemos introduzir das funções

$$\psi_{\pm}(r) = \frac{1}{\sqrt{2}} [\psi_0(r) \pm \psi_1(r)], \quad (3.42)$$

que leva à

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k^2 - U_{\pm}(r) \right] \psi_{\pm}(r) = 0, \quad (3.43)$$

com $U_{\pm} = U(r) \pm U_{01}(r)$. A equação 3.43 é idêntica ao problema de espalhamento elástico. Podemos escrever como solução assintótica de $\psi_{\pm}(r)$ (CHILD, 1984):

$$\psi_{\pm}(r) \stackrel{r \rightarrow \infty}{\sim} C_{\pm} \sin(kr - l\pi/2 + \eta_{\pm}). \quad (3.44)$$

As condições de contorno do problema de espalhamento 3.33, requerem que a forma assintótica dos canais de entrada contenha uma onda plana e um termo de saída, e para os demais canais, apenas ondas de saída. A escolha particular para C_{\pm} a fim de eliminar termos de entrada nos demais canais é

$$C_{\pm} = \pm(\sqrt{2})ie^{i\eta_{\pm}} \quad (3.45)$$

que leva, após a inversão de 3.42, a solução de $\psi^{(0)}(r)$ (referente à k_0 de 3.40):

$$\psi_0^{(0)}(r) \sim e^{-ikr+il\pi/2} - S_{00}e^{ikr-il\pi/2} \quad (3.46)$$

$$\psi_1^{(0)}(r) \sim -S_{01}e^{ikr-il\pi/2}$$

em que

$$S_{00} = e^{i(\eta_++\eta_-)} \cos(\eta_+ - \eta_-) \quad (3.47)$$

$$S_{01} = ie^{i(\eta_++\eta_-)} \sin(\eta_+ - \eta_-).$$

Similarmente, a escolha $C_{\pm} = \mp(\sqrt{2})ie^{i\eta_{\pm}}$, gera a solução $\psi^{(1)}$ (referente à k_1 da equação 3.41):

$$\psi_0^{(1)}(r) \sim -S_{10}e^{ikr-il\pi/2} \quad (3.48)$$

$$\psi_1^{(1)}(r) \sim e^{-ikr+il\pi/2} - S_{11}e^{ikr-il\pi/2}$$

em que S_{10} e S_{11} compõem a segunda linha da matriz \mathbf{S}

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} e^{i(\eta_++\eta_-)} \cos(\eta_+ - \eta_-) & ie^{i(\eta_++\eta_-)} \sin(\eta_+ - \eta_-) \\ ie^{i(\eta_++\eta_-)} \sin(\eta_+ - \eta_-) & e^{i(\eta_++\eta_-)} \cos(\eta_+ - \eta_-) \end{bmatrix}. \quad (3.49)$$

Retornando agora ao caso geral, consideramos que a equação do movimento relativo 3.30 tenha sido reduzida por uma expansão apropriada de funções angulares, tal como aquelas que serão discutidas para o caso de potencial central e o caso anisotrópico. Teremos um conjunto de N equações radiais acopladas com o formato:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k_i^2 \right] \psi_i(r) = \sum_j^N U_{ij}(r) \psi_j(r). \quad (3.50)$$

Neste caso, a matriz S é definida a partir da generalização das equações 3.46 e 3.47 em termos das N soluções independentes de 3.50, digamos $\psi^{(i)}(r)$, com a seguinte forma assintótica:

$$\psi_i^{(i)}(r) \sim f_{i-}(r) - S_{ii}f_{i+} \quad (3.51)$$

$$\psi_j^{(i)} \sim -S_{ij}f_{i+}$$

com

$$f_{i\pm}(r) = k_i^{-\frac{1}{2}} \exp(\pm ik_i r \mp i l \pi / 2) \quad (3.52)$$

A matriz S é uma matriz unitária e simétrica (CHILD, 1984). É comum escrever a matriz S em termos da matriz de transição T :

$$S = I - iT \quad (3.53)$$

Assim, a equação 3.51 fica escrita como:

$$\psi_i^{(i)}(r) \sim k_i^{-\frac{1}{2}} [\sin(k_i r - l\pi/2) - \frac{1}{2} T_{ii} \exp(ik_i r - il\pi/2)] \quad (3.54)$$

$$\psi_j^{(i)}(r) \sim -\frac{1}{2} k_j^{-\frac{1}{2}} T_{ij} \exp(ik_j r - il\pi/2).$$

3.2.3 Espalhamento por um Campo Central

Na teoria geral de colisões existem duas fontes de momento angulares: aquela relacionada ao movimento relativo entre os parceiros de colisão l , e aquela relacionada ao movimento interno do alvo de rotação dado por j . Em geral, estes momentos angulares são acoplados. Este último caso será abordado na seção 3.2.4. Antes disso, vamos analisar um caso particular em que j e l não são acoplados. Vamos considerar que o potencial é esféricamente simétrico e os momentos angulares orbital l e rotacional j são constantes de movimento. O objetivo é encontrar uma relação entre amplitude de espalhamento, agora representada por $f_{ij}(\theta, \phi)$ e a matriz de espalhamento S ou T .

Na seção 3.2.1 escrevemos as equações do movimento relativo para modelar o problema de espalhamento geral, em que consideramos as coordenadas internas do alvo. A função de espalhamento $\Phi(\vec{r}, \vec{R})$ foi decomposta em termos dos autoestados do alvo, $\phi_j(\vec{R})$ 3.28. Neste caso particular em que os momentos angulares j e l são desacoplados, podemos escrever $\Psi_j(\vec{r})$

apropriadamente como:

$$\Psi_j(\vec{r}) = e^{ik_i z} = \frac{1}{r} \sum_{l=0}^{\infty} A_l \psi_{jl}(r) P_l(\cos \theta) \quad (3.55)$$

Usando este resultado nas equações 3.28 e 3.27, usando o Hamiltoniano em 3.25 obtemos as equações radiais

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k_i^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] \psi_{il}(r) = \sum_j U_{ij}(r) \psi_{jl}(r) \quad (3.56)$$

Cada momento angular l gera um conjunto de equações acopladas e uma diferente matriz S , digamos S^l . Uma vez que as condições de contorno 3.33 requerem uma componente de onda plana no canal i junto com termos de saída, podemos selecionar de 3.54 a solução de 3.56

$$\begin{aligned} \psi_{il}^{(i)}(r) &\sim \sin(k_i r - l\pi/2) - \frac{1}{2} T_{ii}^{(l)} e^{ik_i r - il\pi/2} \\ \psi_{jl}^{(l)}(r) &\sim -\frac{1}{2} (k_i/k_j)^{-\frac{1}{2}} T_{ij}^{(l)} e^{ik_j r - il\pi/2}. \end{aligned} \quad (3.57)$$

Em 3.55 o termo A_l , que pode ser reescrito por $A_l^{(i)}$, é obtido fazendo a multiplicação dos dois lados desta igualdade por $P_l(\cos \theta)$, integrando por partes e, usando a relação de ortogonalidade das funções de Legendre (para $\cos \theta = x$):

$$\int_{-1}^1 P_l(x) P_{l'}(x) dx = [2/(2l+1)] \delta_{ll'}. \quad (3.58)$$

Teremos assim:

$$\begin{aligned} r^{-1} A_l \psi_l(r) &= \left[\int_{-1}^1 e^{ikr x} P_l(x) dx \right] / \left[\int_{-1}^1 P_l(x)^2 dx \right] \\ &= \frac{(2l+1)}{2ik} \left\{ [e^{ikr x} P_l(x)]_1^{-1} - \frac{1}{ikr} \int_{-1}^1 \frac{dP_l}{dx} dx e^{ikr x} \right\} \\ &\approx \frac{(2l+1)}{kr} i^l \sin(kr - l\pi/2), \end{aligned} \quad (3.59)$$

porque $P_l(\pm 1) = (\pm 1)^l$, e termos de ordem $(kr)^{-2}$ torna-se negligenciável na região assintótica. Comparando a equação 3.59 com a forma assintótica de $\psi_{jl}(r)$ 3.60

$$\psi_{jl}(r) \approx \sin(k_i r - l\pi/2) \quad (3.60)$$

podemos escrever $A_l^{(i)}$ como:

$$A_l^{(i)} = (2l+1) i^l / k_i. \quad (3.61)$$

A função $\Psi_j(\vec{r})$ obedece a forma assintótica:

$$\Psi_j(\vec{r}) = \delta_{ij} e^{ik_j z} + f_{ij}(\theta) e^{ik_j r}/r, \quad (3.62)$$

em que $f_{ij}(\theta)$ pode ser escrito em termos da matriz S

$$f_{ij}(\theta) = \frac{1}{2i[k_i k_j]^{\frac{1}{2}}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1)(S_{ij}^{(l)} - \delta_{ij}) P_l(\cos \theta), \quad (3.63)$$

ou em termos da matriz T, usando a relação 3.53:

$$f_{ij}(\theta) = -\frac{1}{2[k_i k_j]^{\frac{1}{2}}} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) T_{ij}^{(l)} P_l(\cos \theta). \quad (3.64)$$

Combinando as equações 3.37, 3.38 e 3.63e usando a condição de ortogonalidade entre as funções de Legendre (equação 3.58) obtemos as expressões para as seções de choque diferencial e total inelástica:

$$\begin{aligned} \frac{d\sigma_{ij}}{d\Omega} &= I_{ij}(\theta) = (k_j/k_i) |f_{ij}(\theta)|^2 = \\ &= \frac{1}{4k_i^2} \left| \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) T_{ij}^{(l)} P_l(\cos \theta) \right|^2, \end{aligned} \quad (3.65)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{ij} &= (k_j/k_i) \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} |f_{ij}(\theta)|^2 \sin \theta d\theta d\phi \\ &= \frac{\pi}{k_i^2} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) |T_{ij}^{(l)}|^2. \end{aligned} \quad (3.66)$$

3.2.4 Espalhamento por um Potencial Anisotrópico

Nesta seção, vamos modelar o problema de espalhamento entre um átomo por uma molécula diatômica em que consideraremos os graus de liberdade rotacional e vibracional. Descreveremos as principais equações do modelo SF proposto por Arthus e Dalgarno (ARTHURS; DALGARNO, 1960).

Relembrando a seção 3.2.1 o operador Hamiltoniano para o sistema é:

$$H = H_{int}(R) - \frac{\hbar^2}{2\mu} \nabla_r^2 + V(r, R, \theta). \quad (3.67)$$

$V(r, R, \theta)$ é o potencial de interação entre o pósitron e a molécula diatômica que será calculado com base na Aproximação FNMC já descrita no capítulo 2.

O operador ∇_r^2 é o operador laplaciano nas coordenadas relativas r dado por:

$$\nabla_r^2 = \frac{1}{r} \frac{d^2}{dr^2} r - \frac{L^2}{r^2}, \quad (3.68)$$

μ é a massa reduzida do sistema e^+ diatômica e $H_{int}(R)$ representa o Hamiltoniano que governa o movimento nuclear da molécula diatômica.

As autofunções de $H_{int}(R)$ obedecem:

$$(H_{int} - \epsilon_{jv})\chi_v(R)Y_{jm_j}(\hat{R}) = 0, \quad (3.69)$$

em que Y_{jm_j} é a função harmônica esférica (autofunções rotacionais da diatômica), $\hat{R} = (\theta_R, \phi_R)$ são coordenadas angulares de R , $\chi_v(R)$ são as funções vibracionais do alvo e ϵ_{jv} são os níveis de energia ro-vibracionais. Além do momento angular J_R associado ao movimento interno da diatômica (com autofunções $Y_{jm_j}(\hat{R})$), temos o momento angular relativo L entre o pósitron e a diatômica. Vamos considerar que $Y_{lm_l}(\hat{r})$ são autofunções do operador L^2 e \hat{r} são coordenadas angulares de \vec{r} .

É conveniente neste cenário trabalhar num espaço de momento angular total J uma vez que L e J_R são acoplados

$$\vec{J} = \vec{J}_R + \vec{L}. \quad (3.70)$$

A função de onda, para cada J e M será descrita através do acoplamento entre $Y_{lm_l}(\hat{r})$ e $Y_{jm_j}(\hat{R})$:

$$\Phi_{j_l v}^M = \frac{1}{r} \sum_{j' l' v'} \psi_{j' l' v'}^{j l v}(r) \chi_{v'}(R) Y_{j' m_{j'}}^M(\hat{r}, \hat{R}), \quad (3.71)$$

em que $Y_{j_l}^M(\hat{r}, \hat{R})$ é a combinação:

$$Y_{j_l}^M(\hat{r}, \hat{R}) = \sum_{m_j=-j}^j \sum_{m_l=-l}^l C(jlJ; m_j m_l M) Y_{jm_j}(\hat{R}) Y_{lm_l}(\hat{r}). \quad (3.72)$$

$C(jlJ; m_j m_l M)$ são os coeficientes de Clebsh-Gordon.

Fazendo agora

$$(H - E)\Phi_{j_l v}^M = 0, \quad (3.73)$$

com H dado pela equação 3.67, considerando 3.68, 3.69 e 3.71, chegamos em um conjunto de equações acopladas para $\psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(r)$ dada por:

$$\left[\frac{d^2}{dr^2} + k_{jv}^2 - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] \psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(r) = \frac{2\mu}{\hbar^2} \sum_{j'l'v'} \langle jl\nu J | V | j'l'v' J \rangle \psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(r), \quad (3.74)$$

em que

$$k_{jv}^2 = \frac{2\mu}{\hbar^2} (E - \epsilon_{jv}), \quad (3.75)$$

caracterizam os números de onda do canal e energias. Os elementos de matriz do potencial do sistema e^+ diatômica é dado por:

$$\langle jl\nu J | V | j'l'v' J \rangle = \int_0^\infty R^2 dR \int d\hat{R} \chi_v^*(R) Y_{Jj'l}^{*M}(\hat{r}, \hat{R}) V(r, R, \theta) Y_{Jj'l'}^M(\hat{r}, \hat{R}) \chi_{v'}(R). \quad (3.76)$$

O potencial $V(r, R, \theta)$ é expandido em uma base de funções de Legendre

$$V(r, R, \theta) = \sum_{n=0}^{\infty} c_n(R, r) P_n(\cos \theta). \quad (3.77)$$

Substituindo 3.77 em 3.76 obtemos

$$\langle jl\nu J | V | j'l'v' J \rangle = \sum_n \int_0^\infty R^2 dR \chi_v^*(R) c_n(r, R) \chi_{v'}(R) \int Y_{Jj'l}^{*M}(\hat{r}, \hat{R}) P_n(\cos \theta) Y_{Jj'l'}^M(\hat{r}, \hat{R}) d\hat{R}. \quad (3.78)$$

A segunda integral é conhecida como os coeficientes de Percival-Seaton $f_n(j, l, j'l'; J)$ (PERCIVAL; SEATON, 1957). Podemos reescrever a equação 3.78 como

$$\langle jl\nu J | V | j'l'v' J \rangle = \sum_n c_{nvv'}(r) f_n(j, l, j'l'; J), \quad (3.79)$$

com $c_{nvv'}(r)$ sendo:

$$c_{nvv'}(r) = \langle \chi_v^*(R) | c_n(r, R) | \chi_{v'}(R) \rangle = \int_0^\infty \chi_v^*(R) c_n(r, R) \chi_{v'}(R) R^2 dR. \quad (3.80)$$

Voltando as equações acopladas 3.74, as soluções $\psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(r)$ estão sujeitas as condições de contorno de serem nulas quando $r = 0$, ou seja, $\psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(0) = 0$, e que quando $r \rightarrow \infty$ a forma assintótica de $\psi_{j'l'v'}^{Jl\nu}(r)$ pode ser escrita em termos da matriz S, como já mostramos na seção 3.2.2 com as equações 3.51 e 3.52. Neste caso particular, para cada momento angular total J temos a J-ésima matriz S denominada S^J

A forma assintótica de $\psi_{j'l'v'}^{Jlv}(r)$ então é:

$$\psi_{j'l'v'}^{Jlv}(r) \sim k_{jv}^{-1/2} \{ \exp(-ik_{jv}r + il\pi/2) \delta_{jj'} \delta_{ll'} \delta_{vv'} - S^J(j, l, v|j', l', v') \exp(ik_{j'v'} - il'\pi/2) \}. \quad (3.81)$$

Até aqui obtemos a forma assintótica das funções radiais $\psi_{j'l'v'}^{Jlv}(r)$ e agora, resta combinar as funções para cada J e M, Φ_{jlv}^M , para encontrar a solução geral radial Ψ_{jm_jv}

$$\Psi_{jm_jv} = \sum_{J,l} A_{Jl}^{m_j} \Phi_{jlv}^M, \quad (3.82)$$

que deve satisfazer as condições de contorno 3.33 quando $r \rightarrow \infty$. Arthurs e Dalgarno (1960) escolheram a direção incidente z para o movimento relativo, o que leva para a seguinte escolha de $A_{Jl}^{m_j}$:

$$A_{Jl}^{m_j} = \frac{i\pi^{1/2}}{k_{jv}} (2l+1)^{1/2} (-1)^l C(jlJ; m_j 0M). \quad (3.83)$$

Para esta escolha de $A_{Jl}^{m_j}$ temos a forma assintótica de Ψ_{jm_jv} sendo (PACK, 1974):

$$\Psi_{jm_jv} \sim \exp(ik_{jv}z) \chi_{jv} Y_{jm_j}(\hat{R}) + \sum_{j'm'_jv'} f(j'm'_jv' \rightarrow jm_jv|\hat{r}) Y_{j'm'_j} \chi_{j'v'} \frac{1}{r} \exp ik_{j'v'} r, \quad (3.84)$$

em que f's são as amplitudes de espalhamento de um estado ($j'm'_jv'$) para (jm_jv) dadas por (PACK, 1974):

$$\begin{aligned} f(j'm'_jv' \rightarrow jm_jv|\hat{r}) &= \sum_{JMLl'm'_l} \pi^{1/2} (2l+1)^{1/2} i^{l-l'+1} (k_{jv} k_{j'v'})^{-1/2} C(jlJ; m_j 0M) \times \\ &\times C(j'l'J; m'_j m'_l M) T^J(j'l'v'|jlv) Y_{l'm'_l}(\hat{r}), \end{aligned} \quad (3.85)$$

em que T^J é a matriz de espalhamento T que se relaciona com S^J de acordo com a relação anterior 3.53:

$$T^J(j'l'v'|jlv) = \delta_{j'j} \delta_{l'l} \delta_{v'v} - S^J(j'l'v'|jlv). \quad (3.86)$$

A seção de choque diferencial pode ser encontrada por meio da intensidade de espalhamento $I(j'v' \rightarrow jv|\hat{r})$, assim como na equação 3.65:

$$\frac{d\sigma_{j'v' \rightarrow jv}}{d\Omega} = I(j'v' \rightarrow jv|\hat{r}) = (2j+1)^{-1} k_{jv}^{-1} k_{j'v'} \sum_{m_j m'_j} |f(j'm'_jv' \rightarrow jm_jv|\hat{r})|^2. \quad (3.87)$$

E, finalmente, a seção de choque integral de espalhamento inelástico de um estado $(j'v')$ para (jv) se torna:

$$\sigma_{j'v' \rightarrow jv} = \frac{\pi}{k_{jv}^2} \sum_{J=0}^{\infty} \frac{(2J+1)}{(2j+1)} \sum_{l=|J-j|}^{J+j} \sum_{l'=|J-j'|}^{J+j'} |T^J(j'l'v'|jlv)|^2 \quad (3.88)$$

Todo esse formalismo está implementado no pacote computacional MOLSCAT (HUTSON; SUEUR, 2020)(HUTSON; SUEUR, 2019) que usamos para obter as seções de choque de transição elástica e inelástica que serão apresentadas no capítulo 5.

Capítulo 4

O Potencial de Espalhamento

4.1 Metodologia para obtenção do potencial

Para cada sistema, obtemos o potencial da molécula diatômica usando a FNMC e em seguida fizemos a simulação do potencial pósitron - molécula diatômica. Para isso usamos o pacote computacional GAMESS (SCHMIDT et al., 1993), modificado para incluir a abordagem FNMC (GONÇALVES; MOHALLEM, 2004).

As bases utilizadas nesses cálculos foram a triplo- ζ de Noro e T. Koga (NORO; T. KOGA, 2012) para e^+N_2 e e^+O_2 , e a quádruplo- ζ (NORO; SEKIYA; KOGA, 2003) para e^+H_2 .

Seguindo os trabalhos anteriores que utilizavam a FNMC, o "núcleo"pósitron foi descrito usando uma base correspondente para o Hidrogênio com os expoentes da Gaussiana primitiva escalonados por um fator de 0,25. Este fator leva para o orbital 1s para o "átomo"de positrônio, computado com a aproximação FNMC, com raio de Bohr de $2a_0$ e a distância média elétron-pósitron de $3a_0$, como esperado para um par elétron-pósitron no estado fundamental. Note que o expoente de um determinante de um orbital do tipo Slater é proporcional a massa reduzida de um átomo ($0,5a.u$ para Ps), que corresponde a um fator de escala de $0,5^2 = 0,25a.u.$ para os expoentes de funções Gaussianas primitivas.

O nível de cálculo para todos os sistemas estudados neste trabalho foi o *Coupled Cluster Singles and Doubles* (CCSD).

A partir do potencial da molécula diatômica usamos o método Fourier Grid Hamiltonian (MARSTON; BALINT-KURTI, 1989) para obter as funções de onda vibracionais de cada alvo $\chi_\nu(R)$, para os três primeiros níveis $\nu = 0, 1, 2$, para e^+O_2 e e^+H_2 ; e $\nu = 0, 1, 2, 3$, para e^+N_2 . As

funções vibracionais são úteis para obter a forma final do potencial pósitron-diatômica dado pela equação 3.80.

Para a obter o potencial de espalhamento dos sistemas e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 , escolhemos algumas distâncias R que englobavam a região de mínimo do potencial de cada diatômica e, para cada distância escolhida, variamos a distância r do e^+ até o centro da molécula alvo. A figura 4.1 ilustra o sistema de coordenadas utilizados para o cálculo de cada SEP. O ângulo θ variou de 0° a 90° , com intervalos de 10° para os três sistemas estudados.

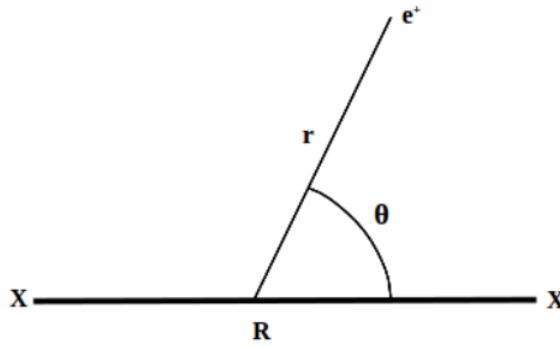


Figura 4.1: Sistema de coordenadas utilizado no cálculo da SEP para os sistemas e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 .

Para cada par (r,R) o comportamento da SEP ao longo da coordenada θ foi ajustado para um conjunto de polinômios de Legendre conforme a equação a seguir:

$$V(R, r, \theta) = \sum_{\lambda} c_{\lambda}(R, r) P_{\lambda}(\cos\theta). \quad (4.1)$$

Na forma matricial (equação 3.79) temos:

$$\langle j' l' v' J | V | j l v J \rangle = \sum_{\lambda} c_{\lambda v v'}(r) f_{\lambda}(j' l' j l J) \quad (4.2)$$

em que

$$c_{\lambda v v'}(r) = \langle \chi_{v'}(R) | c_{\lambda}(R, r) | \chi_v(R) \rangle. \quad (4.3)$$

Os coeficientes $c_{\lambda v v'}(r)$ compõem a forma final para o nosso potencial para os sistemas e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 . Como será visto com detalhes adiante, esses coeficientes serão ajustados para uma função analítica apropriada e inseridos no código MOLSCAT para a obtenção das seções de choque.

Os valores escolhidos para o cálculo do potencial $V(r, R, \theta)$ e a ordem λ dos polinômios de Legendre utilizados para cada sistema estão na tabela 4.1. Valores de maior ordem para os polinômios de Legendre (λ) retornavam coeficientes $c_{\lambda\nu\nu'}(r)$ muito pequenos, e por isso foram desprezados. As distâncias $R(a_0)$ entre os átomos da molécula diatômica, para o cálculo FNMC para cada sistema, foram escolhidas de maneira a englobar toda a região de mínimo do potencial FNMC calculado para a molécula diatômica.

Tabela 4.1: Valores escolhidos para coordenadas (r, R) , de acordo com a figura 4.1, e ordem λ dos polinômios de Legendre utilizados de cada sistema.

Sistema	$R(a_0)$ ($\Delta R= 0, 25$)	$r(a_0)$ ($\Delta r= 0, 5$)	λ
e^+N_2	$1, 5 \leq R \leq 3, 0$	$1, 5 \leq r \leq 10, 0$	0,2,4, ... , 12
e^+O_2	$1, 75 \leq R \leq 3, 0$	$0, 5 \leq r \leq 10, 0$	0,2,4, ... , 10
e^+H_2	$0, 25 \leq R \leq 3, 5$	$0, 5 \leq r \leq 10, 0$	0,2,4, ... , 8

As figuras 4.2, 4.3 e 4.4 ilustram o comportamento da SEP em função de θ , para cada sistema. A distância de equilíbrio da diatômica utilizada foi de $R = 2, 074a_0$ para N_2 , $R = 2, 25a_0$ para O_2 e $R = 1, 404a_0$ para H_2 .

Comparando essas SEPs podemos observar que, para o mínimo de energia, o sistema e^+O_2 é menos atrativo que e^+N_2 , e que o sistema e^+H_2 é o mais atrativo de todos. Essa característica será importante para o comportamento das seções de choque.

Para colocar nosso potencial em uma forma analítica, os coeficientes $c_{\lambda\nu\nu'}(r)$ foram ajustados por funções apropriadas que representam corretamente o comportamento radial. Os coeficientes esfericamente simétricos, $c_{0\nu\nu}(r)$, foram ajustados utilizando a função de potencial de Morse (ROY et al., 2009) dada por:

$$c_{0\nu\nu}(r) = D \left[1 - \frac{V_{pol}(r)}{V_{pol}(r_e)} e^{-\beta(r)\xi(r)} \right]^2 - D. \quad (4.4)$$

$V_{pol}(r) = -\alpha_0/2r^4$ é o termo esfericamente simétrico do potencial dipolar de polarização e α_0 é a polarizabilidade do alvo. Os valores usados para cada alvo, bem como suas referências estão na tabela 4.2.

Ainda em 4.4, $\xi(r)$ é dado por:

$$\xi(r) = \frac{r^2 - r_e^2}{r^2 + r_e^2} \quad (4.5)$$

e

$$\beta(r) = [1 - \xi(r)] \sum_{n=0}^4 \beta_n \xi(r)^n + \xi(r) \beta_\infty. \quad (4.6)$$

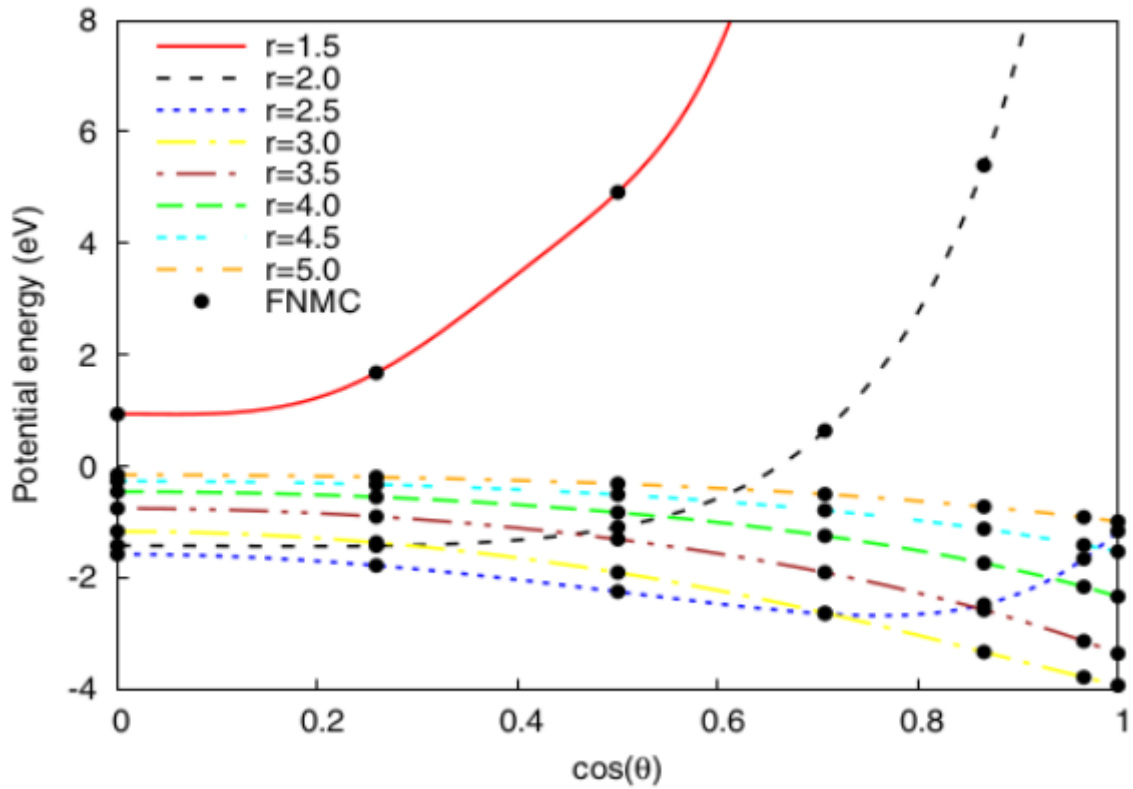


Figura 4.2: SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 2.074a_0$ e r , para o sistema e^+N_2 . A figura foi retirada da referência (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019).

Tabela 4.2: Polarizabilidade dipolar de cada alvo usadas no processo de ajuste dos pontos FNMC ao potencial analítico.

Diatômica	$\alpha_0(a_0^3)$	Ref.
N_2	11,47	(HAYNES, 2014)
O_2	10,67	(NEWELL; BAIRD, 1965)
H_2	5,18	(KOL/OS; WOLNIEWICZ, 1967)

$$\beta_\infty = \ln \left| \frac{2D}{V_{pol}(r_e)} \right|. \quad (4.7)$$

Os parâmetros: $D, r_e, \beta_0, \beta_1, \beta_2, \beta_3$, e β_4 são parâmetros de ajuste que foram obtidos para cada $c_{0vv}(r)$. Os demais coeficientes foram ajustados usando o potencial de Rydberg com forma geral:

$$c_\gamma(r) = \frac{d_\gamma}{r^s} \left[\sum_n a_\gamma^{(n)} (r - r_{e,\gamma})^n \right] e^{-b_\gamma(r - r_{e,\gamma})}. \quad (4.8)$$

γ representa coletivamente $\lambda \nu \nu'$; $d_\gamma, a_\gamma^{(n)}, r_{e,\gamma}, b_\gamma$ são parâmetros ajustáveis, e s pode valer 0 ou 1.

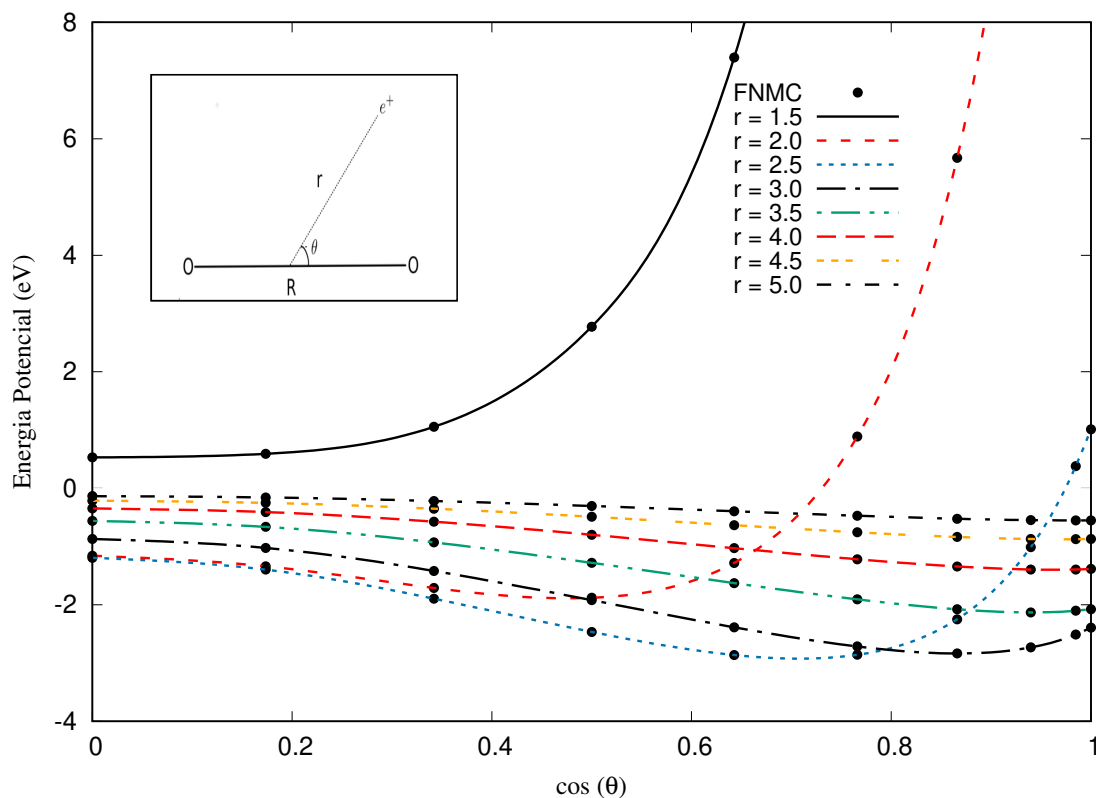


Figura 4.3: SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 2.25a_0$ e r , para o sistema e^+O_2 .

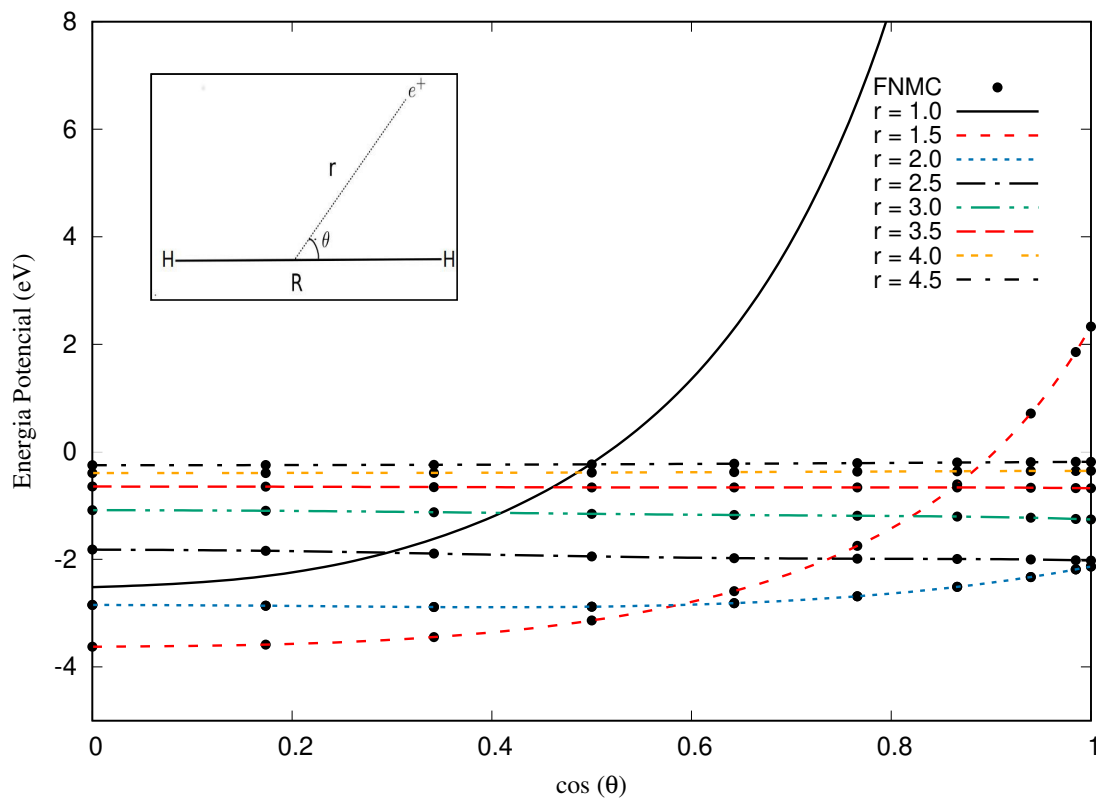


Figura 4.4: SEP em função do ângulo, para valores fixos de $R = 1.40a_0$ e r , para o sistema e^+H_2 .

Na figura 4.5 apresentamos uma comparação entre os coeficientes $c_{000}(r)$ para cada sistema. Este termo é o que mais contribui na forma final da seção de choque elástica. Podemos ver que a curva para e^+O_2 é mais rasa em relação as outras, o que sugere que o e^+ é menos atraído para a molécula de oxigênio do que para as demais. Também mostramos na mesma figura a comparação para o coeficiente $c_{200}(r)$.

Fizemos a mesma comparação entre os sistemas para o coeficiente $c_{001}(r)$. Este coeficiente contribui de maneira significativa para a seção de choque de excitação vibracional 0-1, que será discutida no capítulo 5.

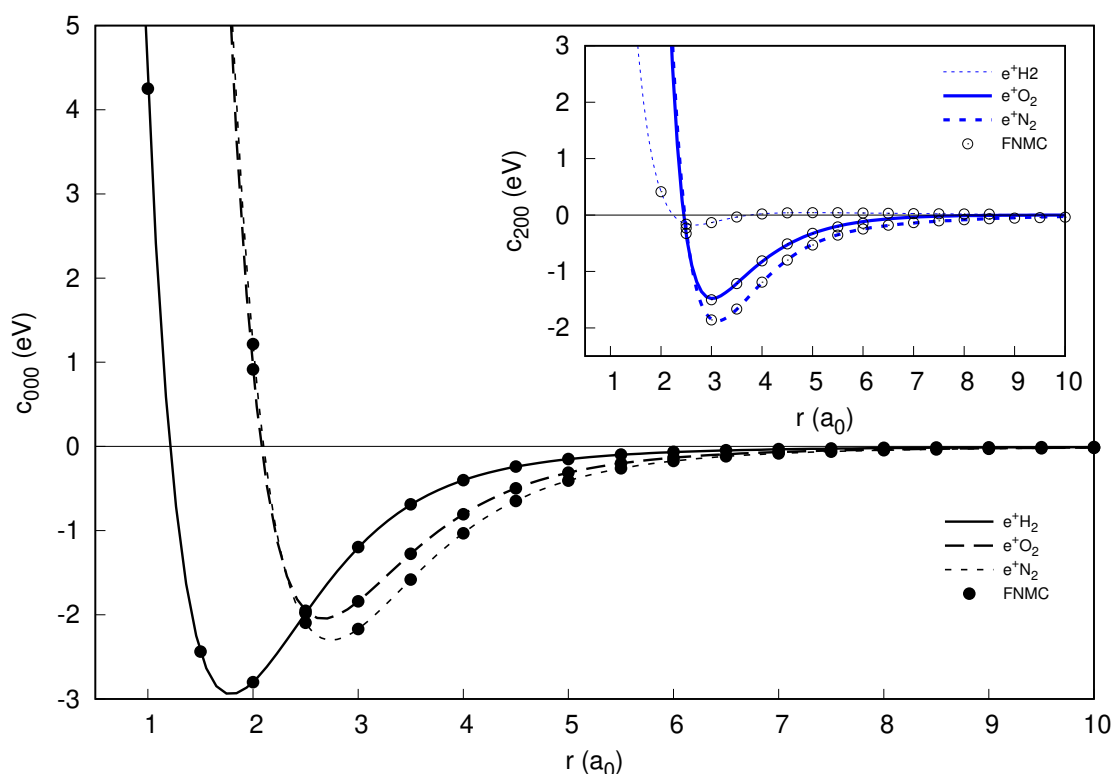


Figura 4.5: Comparação entre os coeficientes $c_{000}(r)$ e $c_{200}(r)$ para e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 . Os pontos representam o potencial FNMC enquanto as linhas representam a forma analítica (equações 4.4 e 4.8) para o potencial.

Ao todo, cerca de 60 coeficientes foram inseridos no MOLSCAT para calcular as seções de choque para o sistema e^+N_2 . Já para os sistemas e^+O_2 e e^+H_2 foram usados 27 coeficientes. Os parâmetros de ajuste de cada $c_{\lambda\nu\nu'}(r)$ foram inseridos no código MOLSCAT como dados de entrada para obtenção das seções de choque de excitação vibracional e rotacional. Estes resultados serão apresentados e discutidos no capítulo 5.

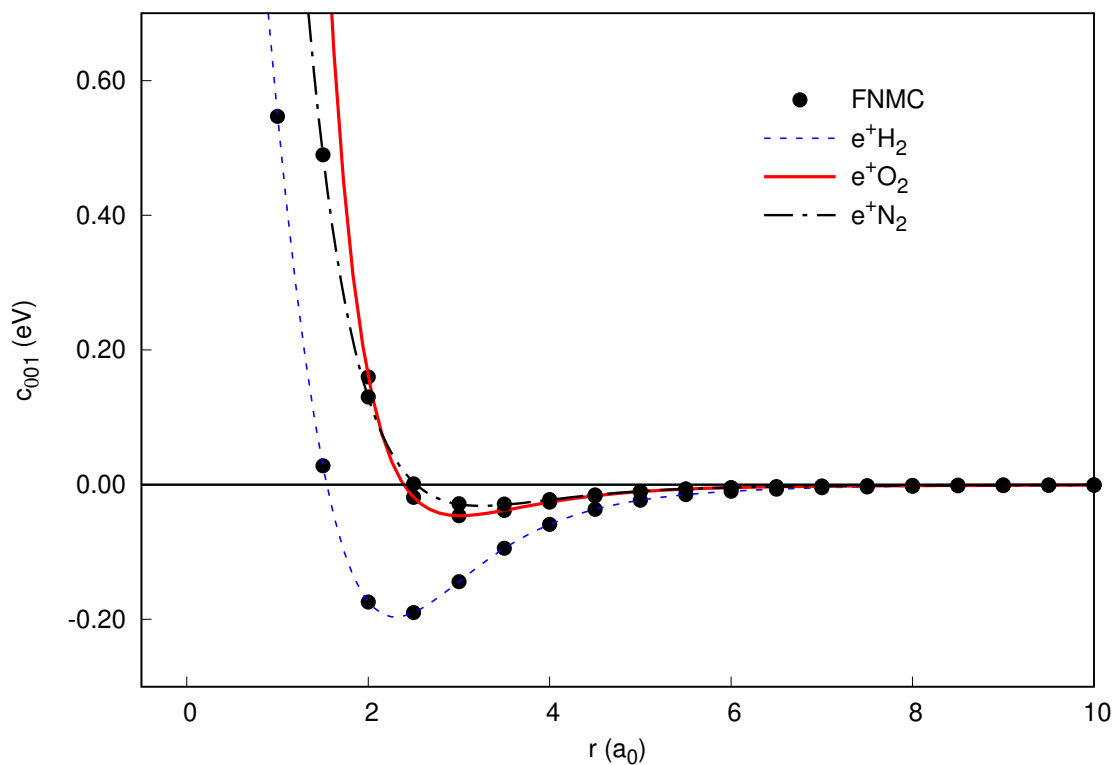


Figura 4.6: Comparação entre os coeficientes $c_{001}(r)$ para e^+N_2 , e^+O_2 e e^+H_2 . Os pontos representam o potencial FNMC enquanto as linhas representam a forma analítica (equações 4.4 e 4.8) para o potencial.

4.2 Seção de choque elástica

Medidas para seção de choque de pósitron- N_2 tem sido reportadas desde a década de 1980 (CHARLTON et al., 1983). As medidas mais recentes são de Zecca et. al. (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; FURSA et al., 2011a), que englobam o intervalo de energia que vai de 0,1eV a 40eV. Em uma comparação com as medidas mais antigas de Hoffman et. al. (HOFFMAN et al., 1982) e de Sueoka et. al. (SUEOKA; HAMADA, 1993), abaixo de 1eV as medidas de Zecca são quase o dobro das medidas de Hoffman, veja a figura 4.7. Para energia de 0,5eV, Hoffman et. al. reportam uma SC em torno de $4,5\text{\AA}^2$, ao passo que Zecca et. al. mede $8,7\text{\AA}^2$.

Essa diferença foi atribuída a resolução angular do aparato de medida. Segundo os autores as medidas de Hoffman et. al. apresentam erros de medidas associados ao efeito denominado *forward angles* (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; FURSA et al., 2011a). Esse efeito, inevitável em medidas de seção de choque total, promove uma subestimação das medidas que está relacionado a resolução angular do aparelho. Por esse motivo é comum observar uma diferença

na magnitude das seções de choque para espalhamento de pósitrons por moléculas, quando compara-se as medidas mais recentes com as mais antigas.

Em trabalhos anteriores que utilizavam a FNMC para simular um potencial entre o e^+ e alvos atômicos, as seções de choque obtidas apresentavam-se muito maiores do que aquelas obtidas por outros trabalhos. Tal superestimação da seção de choque acontece porque a FNMC é uma correção adiabática sobre a SEP Born-Oppenheimer, e existe uma forte correlação entre o pósitron e os elétrons do alvo. O pósitron provoca uma polarização na nuvem eletrônica do alvo que faz com que o potencial FNMC seja mais atrativo em curtas distâncias.

No trabalho de Assafrão et. al. (ASSAFRÃO et al., 2011) foram propostos potenciais empíricos, produzidos a partir de um fator de escalonamento do potencial adiabático, para tratar de espalhamento de pósitrons por átomos como Ne, Ar, Be e Mg. Este fator de escala corrigia a região de curta distância do potencial e promovia uma melhora significativa nos resultados de seção de choque quando comparados com os demais trabalhos experimentais.

Poveda et. al. em 2013 e 2016 (POVEDA; DUTRA et al., 2013; POVEDA; ASSAFRÃO; MOHALLEM, 2016) propuseram um aperfeiçoamento do trabalho de 2011 adicionando ao potencial FNMC potenciais semi-empíricos de curto e longo alcance. Foram estudados nestes trabalhos os gases nobres e os átomos de Be e Mg.

O sistema e^+N_2 foi o primeiro a ser estudado com a metodologia descrita nesta tese. Os resultados para este sistema estão publicados no artigo (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019). Os resultados de seção de choque elástica apresentaram um comportamento qualitativo correto porém o comportamento de superestimação da SC continuou evidente. Este problema foi corrigido adicionando um potencial estático repulsivo de curto alcance aos coeficientes esféricamente simétricos, $c_{0v,v}(r)$. Tal correção foi feita a partir de um parâmetro κ que pode assumir valores entre 0 e 1.

O potencial estático foi obtido como:

$$V_{0,sta}(r) = \frac{1}{2} \int_{-1}^1 V_{st}(r, \cos \theta) d(\cos \theta) \quad (4.9)$$

em que

$$V_{st}(r, \cos \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \chi_0^*(R) V_{st}(r, R, \cos \theta) \chi_0(R) dR. \quad (4.10)$$

A função $\chi_0(R)$ é a função de onda do estado fundamental vibracional do alvo e $V_{st}(r, R, \cos \theta)$ é o potencial eletrostático entre o e^+ e o alvo, calculado em um nível Hartree-Fock, usando o

pacote computacional GAMESS (SCHMIDT et al., 1993). Os termos esfericamente simétricos, após serem acrescidos da correção estática, foram reescritos como:

$$c_{0vv}^{(\kappa)}(r) = c_{0vv} + \kappa V_{0,sta}(r). \quad (4.11)$$

Veja na figura 4.7 o comportamento da seção de choque elástica para cada κ .

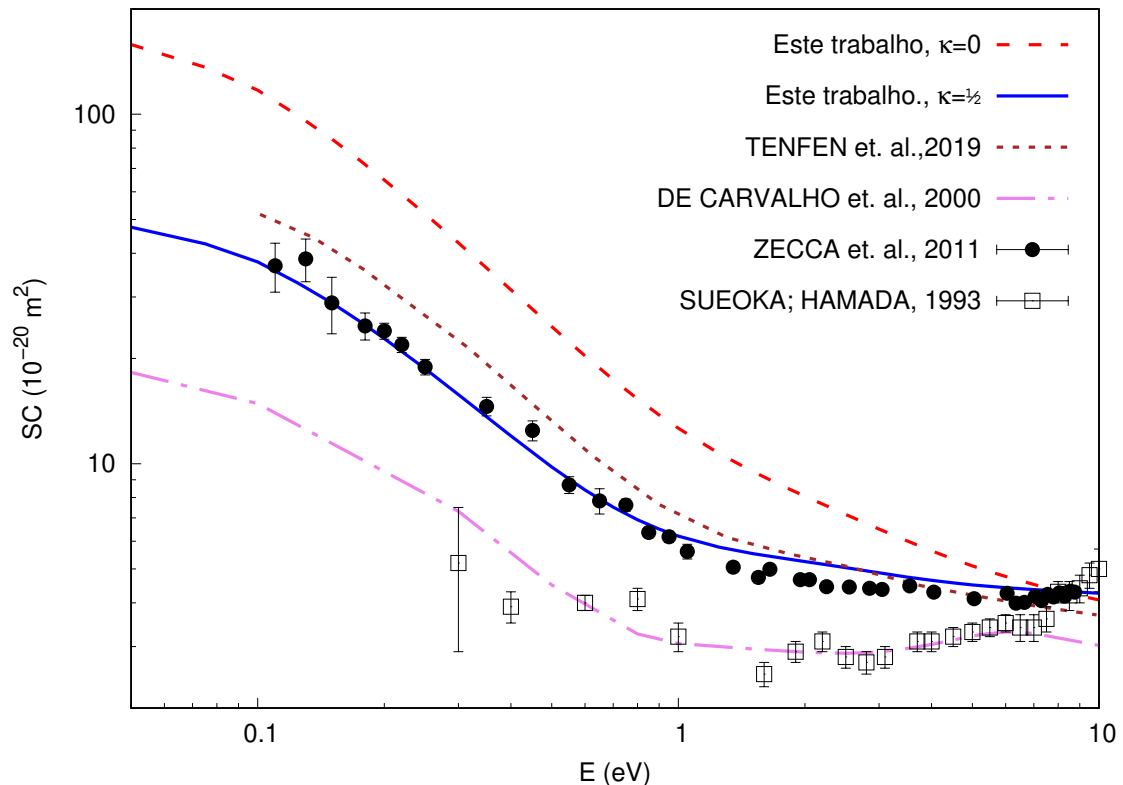


Figura 4.7: Comparação entre as seções de choque elásticas obtidas para e^+N_2 com demais trabalhos da literatura.

O resultado para $\kappa = 0$ representa o resultado da seção de choque referente ao potencial FNMC sem nenhuma correção estática. A inclusão da correção estática produz uma grande variação no tamanho da SC, tornando-a mais baixa a medida que aumenta-se a contribuição do potencial estático. Quando $\kappa = 1$ a SC se torna subestimada, ao passo que quando $\kappa = 1/2$ a SC concorda com os resultados experimentais mais recentes (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019).

4.3 Excitação Rotacional e Vibracional

A figura 4.9 exibe uma comparação do nosso resultado de excitação rotacional, para $\kappa = 0,5$ com estes três cálculos. Nosso resultado apresenta um comportamento muito diferente dos demais trabalhos, apresentando em torno de 1eV um pico com altura máxima de $1,2 \times 10^{-20} m^2$.

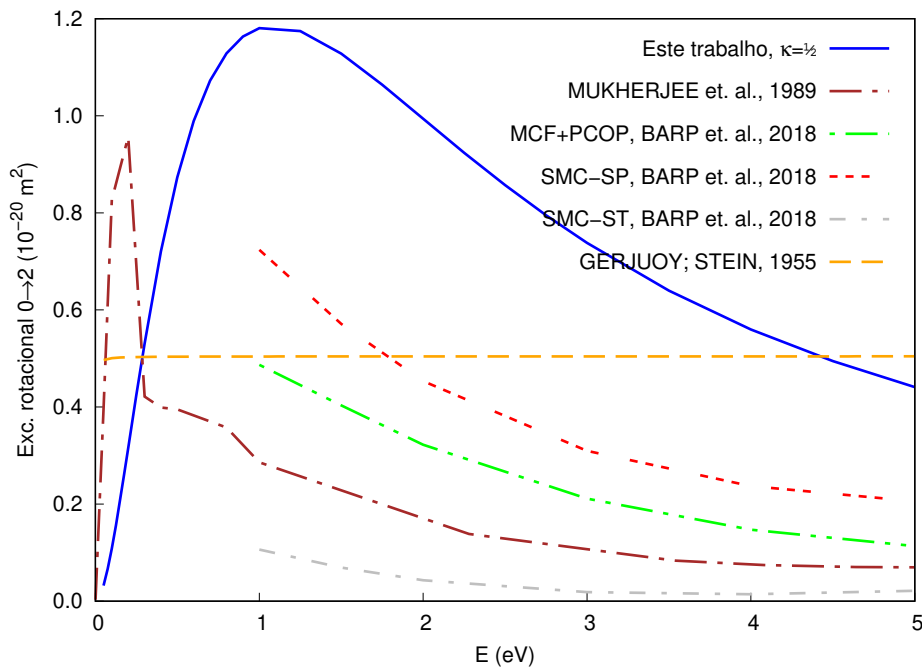


Figura 4.8: Seção de choque de excitação rotacional 0-2 para e^+N_2 , obtida com a mesma metodologia descrita nesta tese, em comparação com outros trabalhos da literatura.

Para excitação vibracional apenas os cálculos de Mukheerjee et. al, Mazon et. al e Gianturco et. al. foram encontrados na literatura. Em uma comparação com nossos resultados para $\kappa = 0,5$, o modelo de potencial descrito aqui apresenta uma SC mais alta que os demais cálculos, e também um pico de valor máximo de $0,02 \times 10^{-20} m^2$. O comportamento de picos em uma SC de excitação vibracional pode estar relacionado à presença de estados virtuais de uma onda. Em relação ao espalhamento de pósitrons, esses estados virtuais também são usados para explicar o forte acoplamento entre um pósitron e o modo vibracional do alvo.

Como uma aplicação dos resultados de seção de choque inelástica para o sistema e^+N_2 , calculamos a taxa de resfriamento do pósitron em função do tempo, para um gás de Nitrogênio. Natisin et. al. (NATISIN; DANIELSON; SURKO, 2014) propuseram um modelo cinético que envolvia as seções de choque de excitação rotacional (GERJUOY; STEIN, 1955) para descrever o comportamento da temperatura do pósitron em função do tempo. Os autores argumentam

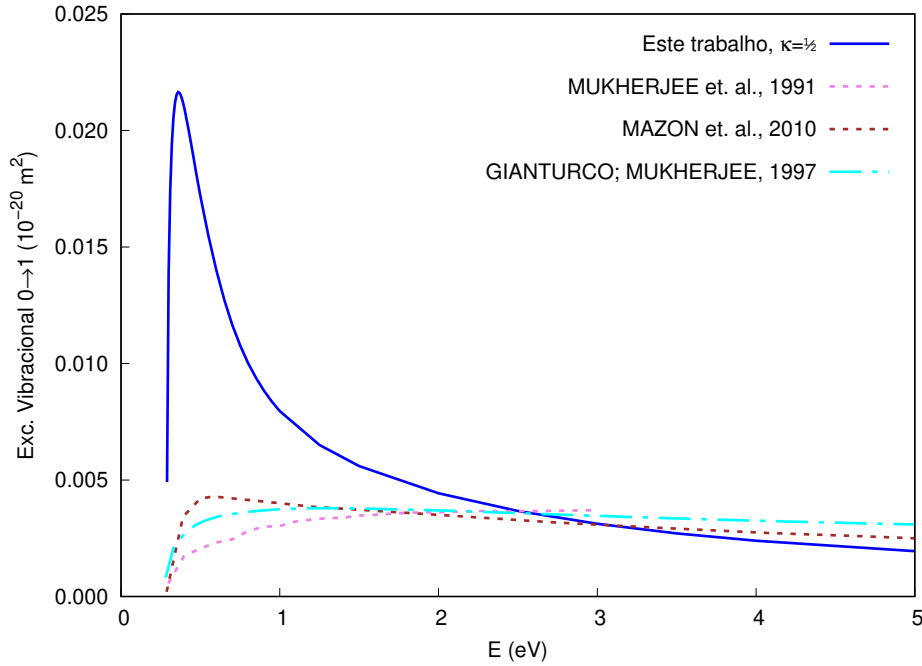


Figura 4.9: Seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+N_2 , obtida com a mesma metodologia descrita nesta tese, em comparação com outros trabalhos da literatura.

que a molécula de N_2 não possui momento de dipolo permanente e por isso a inclusão da excitação vibracional pode ser desconsiderada. Usando o mesmo modelo dos autores (NATISIN; DANIELSON; SURKO, 2014) vamos calcular a taxa de resfriamento do pósitron incluindo a excitação vibracional (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019).

A taxa média na qual uma colisão induz uma transição $i \rightarrow f$ de um gás molecular pode ser escrita como

$$\langle \Gamma_{i,f} \rangle = \rho_i \sqrt{\frac{2}{m}} \langle \sqrt{E} \sigma_{i,f}(E) \rangle, \quad (4.12)$$

em que ρ_i é a densidade populacional do estado i , computada como $\rho_i = \rho p_i$, em que ρ é o número molecular da densidade do gás e p_i pode ser dada pela distribuição de Boltzmann

$$p_j = \frac{g_j e^{-\epsilon_j/k_B T_g}}{\sum_j g_j e^{-\epsilon_j/k_B T_g}}, \quad (4.13)$$

para os níveis rotacionais com energias $\epsilon_j = B j(j+1)$ e fator de degenerescência $g_j = 6(2j+1)$ e $3(2j+1)$ para par e ímpar, respectivamente. Ainda na equação 4.13 $B = 0,25 \text{ meV}$ é a constante rotacional para N_2 , e a soma vai até $j = 30$. A média na equação 4.12 é tomada em toda distribuição do gás de pósitron e considerada como Maxwell-Boltzmann durante todo o processo.

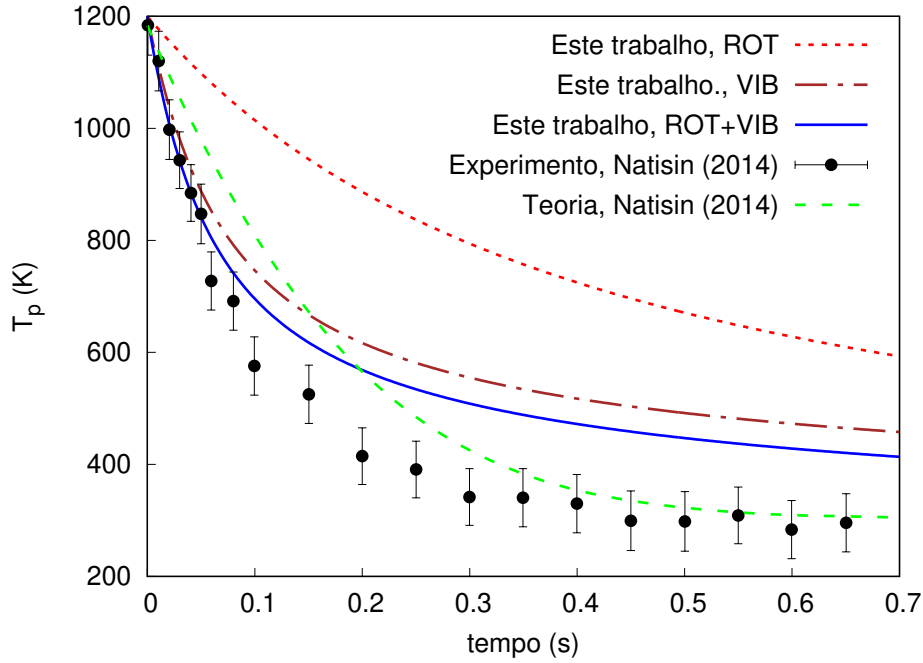


Figura 4.10: Temperatura do pósitron como função do tempo para o gás Nitrogênio em uma pressão de $15\mu\text{Torr}$ e $T_g = 300\text{K}$.

A energia dissipada total de um pósitron será

$$P(T_p) = \sum_i [\Delta\epsilon_{i,f}^{(+)} \langle \Gamma_{i,f}^{(+)} \rangle - \Delta\epsilon_{i,f}^{(-)} \langle \Gamma_{i,f}^{(-)} \rangle], \quad (4.14)$$

em que o sobrescrito + (-) indica uma excitação (deexcitação) das moléculas e $\Delta\epsilon_{i,f}$ é a energia envolvida na transição.

A partir do teorema da equipartição, a temperatura do pósitron (T_p) como função do tempo é obtida a partir da solução da equação diferencial ordinária

$$\frac{dT_p}{dt} = -\frac{2}{3k_B} P(T_p). \quad (4.15)$$

Este modelo foi aplicado usando as seções de choque de excitação rotacional e vibracional. Um total de 30 estados rotacionais e a excitação vibracional $0 \rightarrow 1$ foram usadas na equação 4.12. Seguindo a referência (NATISIN; DANIELSON; SURKO, 2014), a pressão do gás foi fixa em $15\mu\text{Torr}$, que corresponde a uma densidade molecular de $\rho = 4,8 \times 10^7 \text{m}^{-3}$. A equação 4.15 foi integrada numericamente com passo temporal de $0,1 \text{ms}$.

A temperatura do pósitron em função do tempo calculada aqui está apresentada na figura 4.10.

A teoria de Nastini et. al. (NATISIN; DANIELSON; SURKO, 2014) envolve as seções de choque de excitação rotacional $j \rightarrow j \pm 2$ de Gerjuoy e Stein (GERJUOY; STEIN, 1955), prevendo que o resfriamento é dominado pela excitação rotacional do N_2 . Porém, considerando que o nosso modelo de obtenção de seção de choque é mais realístico (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019), podemos dizer que os dados experimentais para o resfriamento de pósitrons não pode ser completamente explicado apenas com a contribuição rotacional. Vemos a partir da figura 4.10 que a inclusão da transição vibracional (linha azul) está em bom acordo com o dado experimental de Nastini et. al. (NATISIN; DANIELSON; SURKO, 2014), o que sugere que a perda de energia dos pósitrons é principalmente devida à excitação vibracional $0 \rightarrow 1$ do gás tampão de nitrogênio.

No próximo capítulo, apresentaremos os resultados obtidos para os sistemas e^+O_2 e e^+H_2 usando a metodologia desenvolvida até aqui.

Capítulo 5

Resultados e Discussões

5.1 Resultados e^+O_2

Para o espalhamento de pósitrons por oxigênio molecular, abaixo do limiar de formação de Ps, as medidas de Charlton et. al. (CHARLTON et al., 1983) e Dababneh et. al. (DABABNEH et al., 1988) cobrem a região a partir de 1 eV. As medidas mais recentes de Chiari et. al. (CHIARI et al., 2012) ampliam a região de baixa energia, com medidas a partir de 0.1eV.

No campo teórico, o trabalho de Mukherjee et. al.(MUKHERJEE; GHOSH, 1996) apresenta resultados de seção de choque total, rotacional elástica e inelástica. Usando o *Correlation Polarization Potential* (PCOP) proposto por Jain et. al. (JAIN, 1990b; JAIN, 1990a), os autores reportam resultados provenientes de dois modelos: o *Adiabatic Nuclear Rotation* (ANR) e o *Rotational Laboratory-Frame Close-Coupling* (LFCC). Gibbings et. al (ELLIS-GIBBINGS; BLANCO; GARCÍA, 2019) utilizam o método *Independent atom model with screening corrected additivity rule plus interference terms* (IAM-SCAR+I) para encontrar resultados de seções de choque elástica, de formação de Ps, de ionização e de excitação para o intervalo de energia que vai de 0.1 até 10000eV. Já o trabalho de Tenfen et. al. (TENFEN; BARP; ARRETCHE, 2019) utiliza o método de frações continuadas em conjunto com o modelo PCOP para obter seções de choque integrais e diferenciais de espalhamento de pósitron por O_2 . O trabalho mais recente é de Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021) que reportam seções de choque de excitação rotacional para a molécula de O_2 .

Apenas um cálculo foi reportado por Gianturco et. al. (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999) para excitação vibracional e os cálculos de Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE,

2021) e Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH, 1996) para seções de choque de excitação rotacional $j = 1 \rightarrow j = 3$.

Na sequência desta seção, apresentaremos nossos resultados de seções de choque elástica e excitação vibracional e rotacional para o sistema e^+O_2 , e apresentaremos uma comparação com os trabalhos disponíveis na literatura.

5.1.1 Seção de choque elástica

Na Figura 5.1 apresentamos nossos resultados de seção de choque elástica comparados com outros trabalhos disponíveis na literatura. Podemos notar que o comportamento de superestimação da SC, observado para o sistema e^+N_2 , não é observado aqui. A SC elástica já concorda qualitativamente bem com os demais trabalhos, o que sugere que a SEP obtida via método FNMC descreve corretamente a energia de interação em todo o espaço de coordenada para o sistema e^+O_2 . Ou seja, para o O_2 a correção estática é desnecessária.

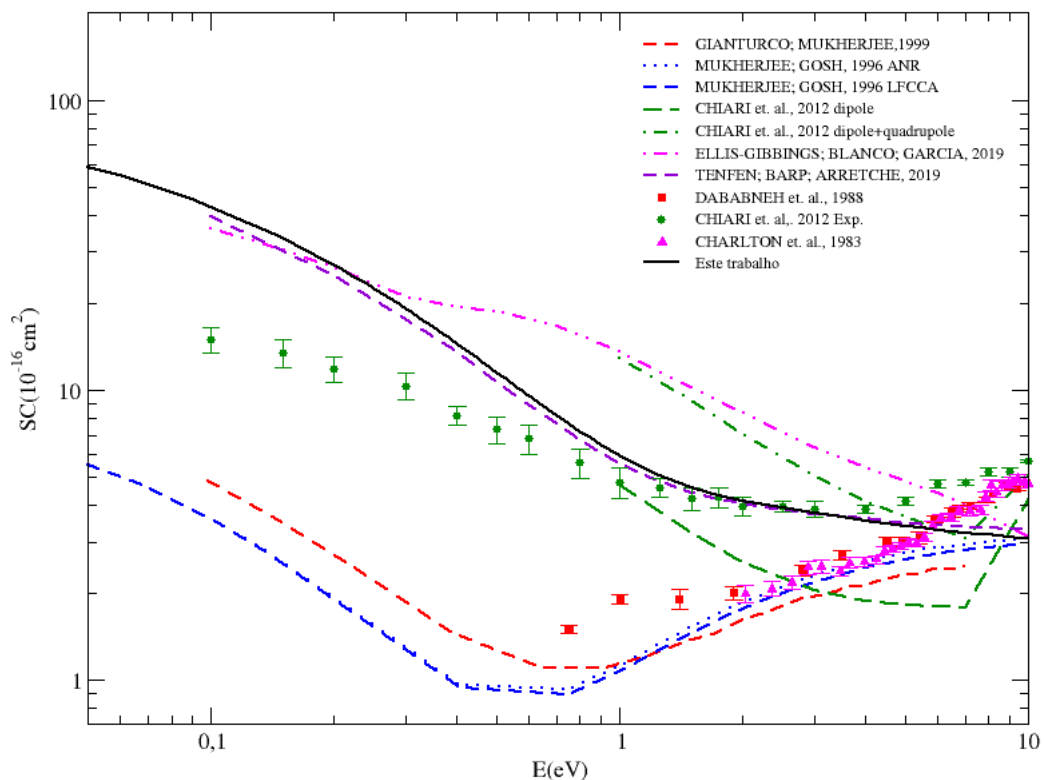


Figura 5.1: Comparação entre nossos resultados de seção de choque de excitação vibracional elástica para e^+O_2 comparados com a literatura.

No trabalho de Chiari et. al. (CHIARI et al., 2012) os autores apresentam uma medida experimental, usando a técnica de transmissão linear, desenvolvida pelo grupo de Trento (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; FURSA et al., 2011a), que engloba energias do e^+ a partir de 0.1eV. No mesmo trabalho, os autores calcularam a TCS usando o método IAM-SCAR (BLANCO; GARCÍA, 2004) e (BLANCO; GARCÍA, 2009) para dois diferentes potenciais de polarização: um descrito apenas pelo termo de dipolo e outro que leva em conta termos de quadrupolo e de dipolo. Todos esses resultados estão apresentados na figura 5.1.

O método IAM-SCAR não é adequado para descrever corretamente a região de baixa energia. Além disso, uma dificuldade experimental relacionada à medidas de seção de choque em pequenos ângulos, o chamado *forward scattering effect*, também está presente. Os detectores não conseguem distinguir, para pequeno ângulos, pósitrons que foram elasticamente espalhados pelo alvo daqueles pertencentes ao feixe incidente ainda não espalhados. Isso leva a um resultado final de seção de choque muito mais baixo do que deveria ser, para a região de baixa energia (CHIARI et al., 2012). Este problema pode ser corrigido ao adicionar um valor computado teoricamente ao ponto medido. Isso foi feito recentemente por Tenfen et. al. em 2022 (TENFEN; SEIDEL et al., 2022) com objetivo de corrigir a SC experimental de Chiari et. al. de 2012.

Entretanto, essas medidas de Chiari et. al. parecem estar suscetíveis a outras fontes de erros além do *forward scattering effect* (PINHEIRO et al., 2023). Chiari et. al. relatam que o aparato usado para realizar as medidas de SC estava menos estável para as medidas de O_2 do que para outros alvos. Uma vez que N_2 e O_2 possuem valores próximos de polarizabilidade dipolar, a SC de ambos alvos deve ser afetada em uma mesma quantidade devido a esse problema de medida. Porém, as medidas para N_2 parecem sofrer muito menos os efeitos de *forward scattering effect*. Na figura 5.2 temos uma comparação de SC elástica para três alvos: Ar, N_2 e O_2 , com medidas experimentais de Zecca et. al. de 2011 (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; FURSA et al., 2011a), (ZECCA; CHIARI; SARKAR, A.; BRUNGER, 2011) e de Chiari et. al. de 2012 (CHIARI et al., 2012); e teóricos de Poveda et. al. de 2013 (POVEDA; DUTRA et al., 2013) e Tenfen et. al. de 2022 (TENFEN; SEIDEL et al., 2022).

Todos esses alvos apresentam polarizabilidade dipolar próximas. Verificamos que apenas as medidas de Chiari et. al. de 2012 para O_2 apresentam um comportamento mais baixo quando comparadas com outros trabalhos teóricos. A similaridade de comportamento desses resulta-

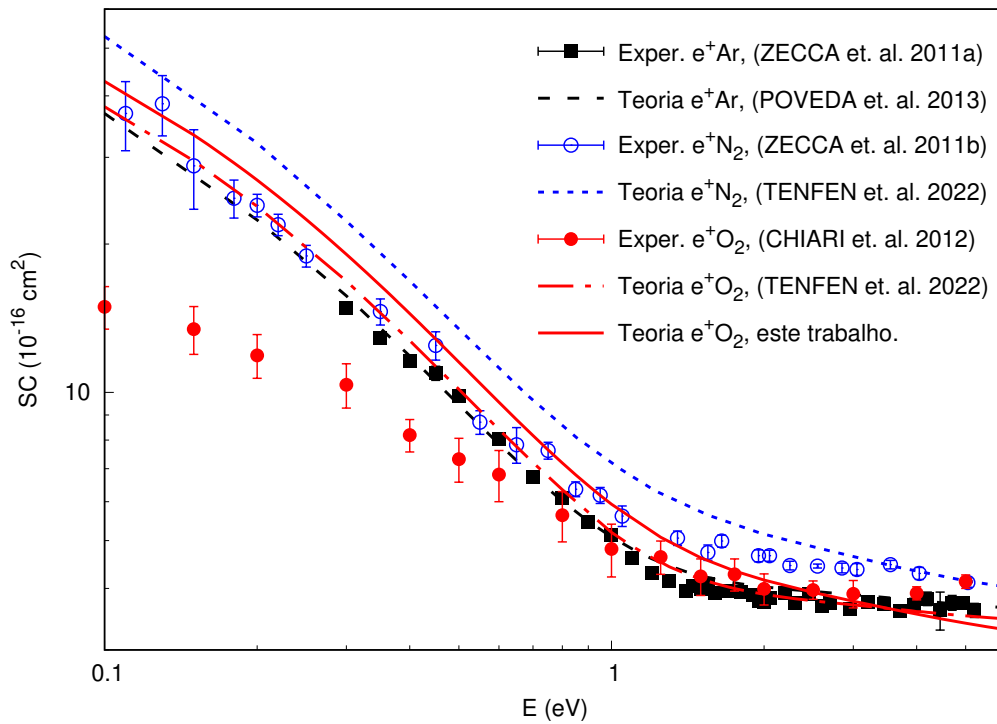


Figura 5.2: Comparação entre resultados experimentais e teóricos de seção de choque elástica para espalhamento de e^+ por Ar, O_2 e N_2 . Veja o texto para mais detalhes.

dos indica que a SC para energias mais baixas é dominada por forças de polarização de longo alcance, independentemente dos detalhes específicos de cada alvo (PINHEIRO et al., 2023).

5.1.2 Excitação Rotacional e Vibracional

Para obter as seções de choque de excitação rotacional (gráfico superior à direita da figura 5.3) usamos o potencial FNMC com a diatômica fixa na posição de equilíbrio de $2.25a_0$. Para cada λ o coeficiente $c_\lambda(r)$ foi ajustado analiticamente pelas funções apropriadas (conforme descrito no capítulo 4) e em seguida usamos o código MOLSCAT para obter as seções de choque de excitação rotacional via modelo de rotor rígido. A ordem λ dos polinômios de Legendre utilizada foi até $\lambda = 12$.

Para o caso do e^+O_2 a excitação rotacional $j = 1 \rightarrow j' = 3$ já foi reportada nos trabalhos de Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021) e de Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH, 1996). Na figura 5.3 fizemos uma comparação desses trabalhos com nosso resultado.

Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH, 1996) usaram o modelo de potencial PCOP de Jain et. al. (JAIN, 1990b; JAIN, 1990a) para reportar seções de choque para dois métodos teóri-

cos distintos: O ANR e o LFCC. Para o caso da excitação rotacional os resultados apresentados são indistinguíveis.

Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021) usaram o método *Adiabatic Rotational Approximation* (ARA) e, além do modelo PCOP, uma versão modificada, que inclui as contribuições de quadrupolo e hiperpolarizabilidades para descrever o potencial de polarização (TENFEN; BARP; ARRETCHE, 2019).

Na figura 5.3 apresentamos uma comparação dos nossos resultados com os de Mukherjee e Ghosh e de Barp, Tenfen e Arretche. Os trabalhos de Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021) e Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH, 1996) apresentam comportamentos distintos. A explicação para isso está relacionada a dois pontos: ao raio de corte usado para combinar o termo de energia de correlação com o potencial assintótico; e também que a seção de choque é muito sensível à descrição do potencial de interação. A medida que há uma inclusão progressiva das contribuições de dipolo, de quadrupolo e de hiperpolarizabilidade, a seção de choque converge e aumenta globalmente (TENFEN; BARP; ARRETCHE, 2019; TENFEN; SEIDEL et al., 2022; BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021).

A boa concordância dos nossos resultados com o trabalho de Barp et. al. sugere que a FNMC fornece uma descrição confiável da interação do pósitron com o alvo, além de permitir a construção de uma função de energia potencial.

Na figura 5.4 apresentamos nosso resultado de seção de choque de excitação vibracional 0-1. Até o momento, o único trabalho disponível na literatura para comparação é o cálculo de Gianturco et. al. (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999). Os autores utilizam um modelo de potencial que equilibra as forças estáticas de correlação-polarização, juntamente com o método *close coupling* para obter as seções de choque de excitação vibracional 0-1 e seções de choque totais para O₂ e NO. O termo de polarização envolve apenas o termo de dipolo, $\alpha/2r^4$.

Assim como no resultado reportado para e^+N_2 (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019), a seção de choque de excitação vibracional 0-1 apresenta o mesmo comportamento de pico seguido por rápido decaimento, a medida que a energia aumenta. Esse resultado diverge significativamente do trabalho de (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999). Vale destacar que os trabalhos mais antigos de seções de choque de excitação vibracional (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999) e rotacional (MUKHERJEE; GHOSH, 1996) utilizavam o PCOP para ajustar os resultados teóricos a fim de reproduzir os resultados experimentais da época, que por sua vez eram mais afetados pelo efeito de forward angles do que os experimentos atuais. Os trabalhos

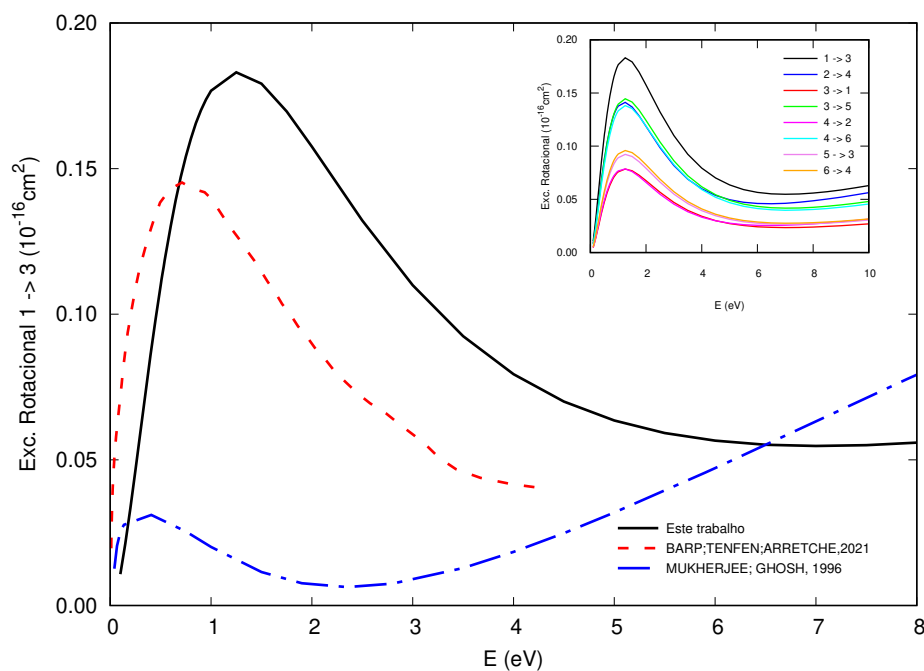


Figura 5.3: Seção de choque de excitação rotacional ($1 \rightarrow 3$) para e^+O_2 . Nosso resultado comparados com outros trabalhos da literatura. Acima, a direita, estão apresentadas todas as excitações rotacionais $j \rightarrow j \pm 2$ obtidas em nosso cálculo.

mais recentes que utilizam a PCOP (TENFEN; BARP; ARRETCHE, 2019) mostraram que para atingir a convergência, é necessário incluir no potencial termos de ordem mais alta para o potencial de polarização.

O comportamento de outras seções de choque de excitação vibracional obtidas neste trabalho estão apresentadas na figura 5.5.

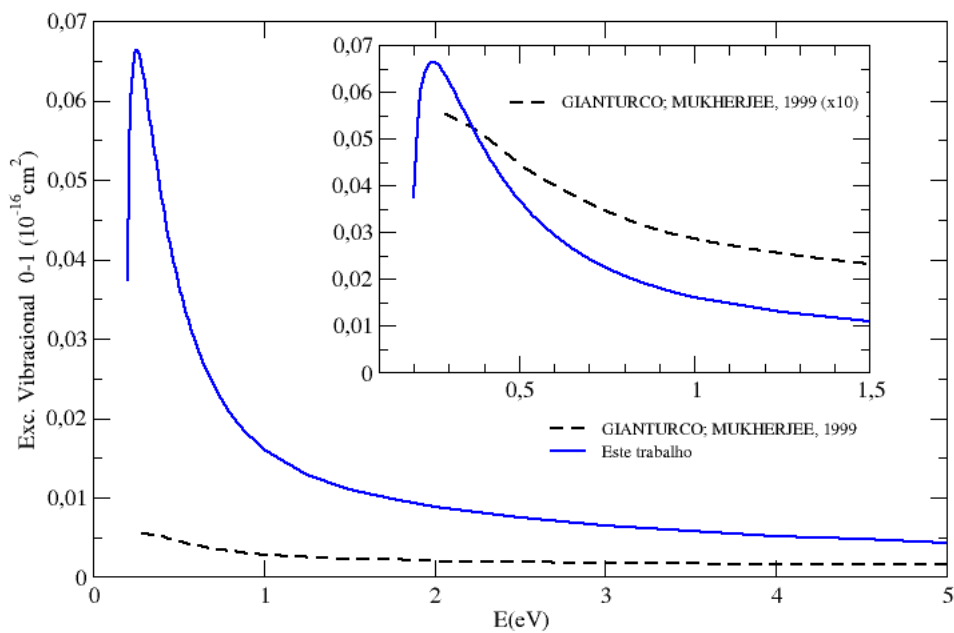


Figura 5.4: Comparação entre nossos resultados de seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+O_2 com os dados de (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999).

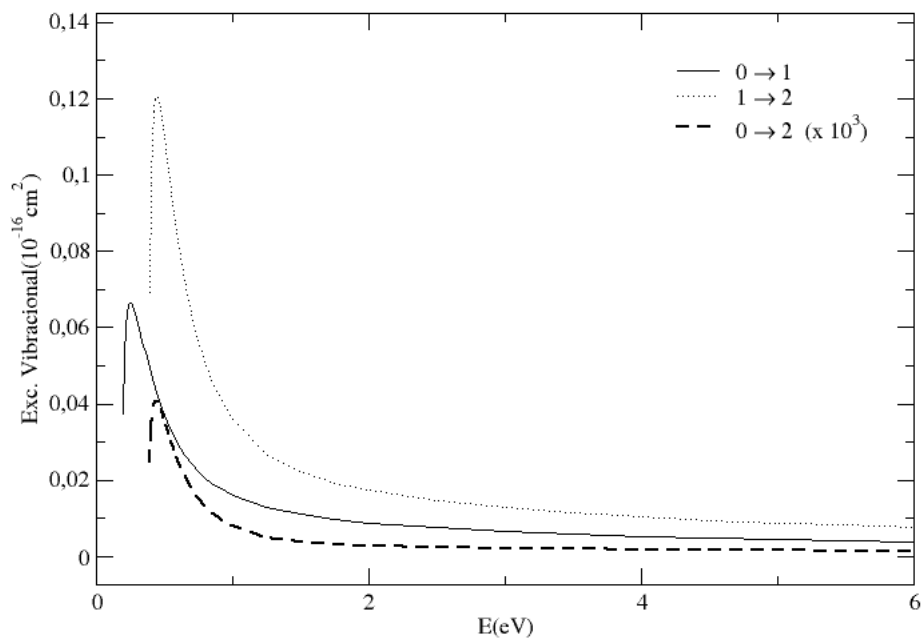


Figura 5.5: Seção de choque de excitação vibracional 0-1, 1-2 e 0-2 para e^+O_2 .

5.2 Sistema e^+H_2

Até 1979 as medidas para espalhamento de pósitrons por H_2 e O_2 foram reportadas por Coleman et. al. (COLEMAN; GRIFFITH; HEYLAND, 1974). Nos anos 80 podemos citar as medidas de Hoffman et. al. (HOFFMAN et al., 1982), Charlton et. al. (CHARLTON et al., 1983) e Dababneh et. al. (DABABNEH et al., 1988) para H_2 , O_2 e também para outras moléculas diatômicas. Nos anos 90, Zhou et. al. (ZHOU et al., 1997) apresentaram seções de choque para e^+H e e^+H_2 . As medidas mais recentes para seção de choque total para e^+H_2 foram reportadas por Karwazs et. al. (KARWASZ; PLISZKA; BRUSA, 2006), Zecca et. al. (ZECCA; CHIARI; SARKAR, A.; NIXON et al., 2009) e Machacek et. al. (MACHACEK et al., 2013). Para excitação vibracional temos apenas as medidas de Sullivan et. al. (SULLIVAN et al., 2002).

No campo teórico uma gama de trabalhos tem sido desenvolvidos para o espalhamento de pósitrons por H_2 . Mukherjee e Sarkar em 2008 (MUKHERJEE; SARKAR, N. K., 2008) apresentaram cálculos *ro-vibrational laboratory frame close coupling* (LFCC) para e^+H_2 . Os autores reportaram seções de choque total e de excitação rotacional e vibracional até 10eV. O potencial utilizado foi o *positron correlation polarization potential* (PCOP).

Tenfen et. al. (TENFEN; MAZON et al., 2012) reportaram seções de choque para o espalhamento em baixa energia para e^+H_2 e e^+N_2 . Os autores utilizam um potencial de interação composto por dois termos: um associado a interação estática (definido pelo potencial Colombiano) e outro associado a interação correlação-polarização. Para grandes distâncias, o potencial de polarização inclui contribuições até o termo de dipolo. Já na região de curta distância, esse potencial deve estar associado aos *efeitos de resposta* das partículas da molécula alvo devido a presença do e^+ . Para obter o potencial de correlação, os autores usaram a metodologia de Assafrão et. al. (ASSAFRÃO et al., 2011).

Em 2016 Zanin, Tenfen e Arretche (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016) reportaram cálculos de seção de choque de excitação rotacional do H_2 usando o método Multicanal de Schwinger (GERMANO; LIMA, 1993b) O potencial de interação usado contém termos de momento de quadrupolo e termos isotrópicos e anisotrópicos da polarizabilidade do alvo. Em uma comparação com outros modelos de potenciais que levam em conta apenas contribuição estática, os autores verificaram que a inclusão de termos de correlação polarização faz com que a SC de excitação rotacional de H_2 abaixe significativamente.

No ano seguinte, Zammit et. al. (ZAMMIT et al., 2017) reportaram cálculos para seções de choque elástica, excitação vibracional, ionização total e *grand-total cross sections* (GTCS). Para isso os autores utilizaram o método single-center *adiabatic nuclei convergent close coupling*.

Para excitação vibracional, os trabalhos mais recentes são os de Poveda, Varella e Mohallem de 2021 (POVEDA; VARELLA; MOHALLEM, 2021) e de Poveda e Mohallem de 2022 (POVEDA; MOHALLEM, 2022). No primeiro trabalho os autores calcularam a seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+H_2 usando técnicas de propagação de pacote de onda. O potencial bi-dimensional de interação utilizado acopla o hidrogênio e o pósitron como um oscilador harmônico. Os resultados sugerem que a polarizabilidade molecular do alvo, como função da separação internuclear é uma propriedade chave na descrição do modo fundamental do oscilador (POVEDA; VARELLA; MOHALLEM, 2021). Porém, esse efeito não foi considerado para os resultados apresentados nesta tese.

No segundo trabalho, o modelo de potencial é estendido para incluir as três coordenadas do complexo pósitron-diátomo, e o problema de espalhamento é resolvido dentro do formalismo CC. Além do sistema e^+H_2 , os autores também calcularam as seções de choque elástica e de excitação vibracional para e^+N_2 (POVEDA; MOHALLEM, 2022).

Na sequência desta seção, apresentaremos nossos resultados de seções de choque elástica, de excitação vibracional e rotacional para o sistema e^+H_2 . Faremos uma comparação de nossos resultados com os trabalhos disponíveis na literatura.

5.2.1 Seção de choque elástica

Na figura 5.6 apresentamos nossos resultados de seção de choque elástica comparados com outros trabalhos disponíveis na literatura. A curva preta representa a seção de choque obtida via potencial FNMC sem a inclusão da correção estática, que foi usada para o sistema e^+N_2 .

A partir de 1eV a SC apresenta um comportamento aplainado. Esse comportamento plano da SC também é observado para outros alvos atômicos como Ar (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; FURSA et al., 2011b) Kr (ZECCA, A. et al., 2011) e moleculares H_2 (MACHACEK et al., 2013) e CH_4 (ZECCA; CHIARI; TRAINOTTI; SARKAR, A. et al., 2012). De acordo com Franz et. al. (FRANZ, JAN; FEDUS, KAMIL; KARWASZ, GRZEGORZ P., 2016) nesta região a o potencial de correlação forte impede a queda da seção de choque, tornando-a quase constante em relação à energia. Por isso é preciso incluir termos no potencial de polarização de ordem mais alta que r^4 para que a teoria seja capaz de reproduzir as medidas de SC elástica.

Assim como observado para o sistema e^+O_2 nossos resultados concordam qualitativamente muito bem com os trabalhos mais recentes para espalhamento de pósitron-hidrogênio, principalmente na região aplainada da seção de choque. Isso indica que a FNMC descreve bem o balanço entre as forças de atração e repulsão para e^+H_2 .

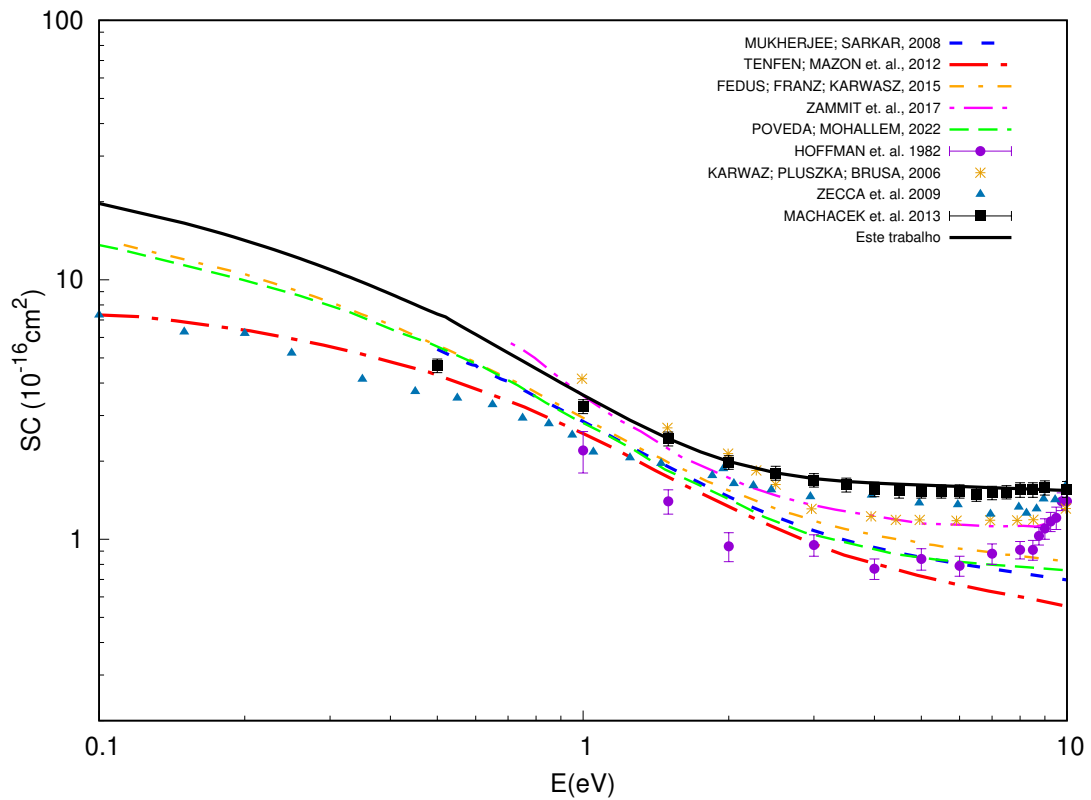


Figura 5.6: Nosso resultado de seção de choque elástica para e^+H_2 , comparado com outros trabalhos da literatura.

5.2.2 Excitação Rotacional e vibracional

Assim como fizemos para o caso e^+O_2 , calculamos as seções de choque de excitação rotacional para o caso do e^+H_2 . Nossos resultados estão na figura 5.7. Os cálculos disponíveis na literatura para esta seção de choque, são poucos e apresentam uma grande diferença na forma e na magnitude. O cálculo mais recente é o de Zanin et. al. (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016), que apesar de possuir uma formato invertido ao nosso, a magnitude das seções de choque são comparáveis.

Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH; JAIN, 1991), (MUKHERJEE; SARKAR, N. K., 2008) e Sabin del Valle et. al. (SABIN DEL VALLE; GIANTURCO, F. A., 2005) usam o modelo PCOP para descrever o potencial de espalhamento. Mesmo assim, os resultados obtidos são bem diferentes entre si. Essas diferenças podem ser explicadas pela escolha dos diferentes parâmetros de raio de corte, presente no modelo PCOP (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016).

Zanin et. al. (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016) obtiveram seções de choque de excitação rotacional para diferentes conjuntos de funções gaussianas cartesianas, computadas usando o método Multicanal de Schwinger. Neste trabalho os autores compararam os resultados obtidos com os modelos de Gerjuoy-Stein (GS)(GERJUOY; STEIN, 1955) e Dalgarno-Moffet(DM)(A.DALGARNO; MOFFET, 1963). Segundo (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016) a função de onda usada por GS e DM considera o pósitron como uma onda plana, e que esta é uma descrição pobre. Um resultado mais realístico seria trabalhar com funções de onda obtidas via método variacional (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016). Outro ponto levantado pelos autores é que a inclusão dos efeitos de correlação-polarização faz com que a seção de choque 0-2 diminua drasticamente, mantendo ainda o caráter plano.

Nosso resultado é comparável com o resultado mais recente de Zanin et. al. (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016). Isso é um indicativo que nosso modelo de potencial está descrevendo bem o balanço entre correlação-polarização.

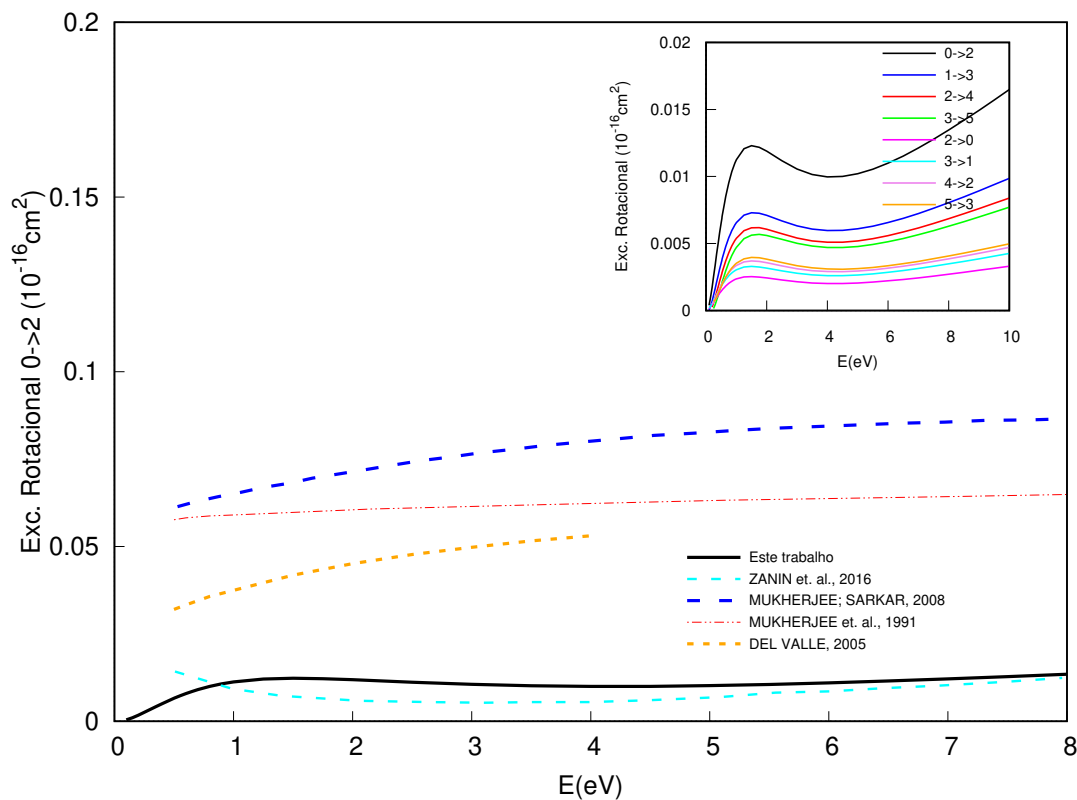


Figura 5.7: Seção de choque de excitação rotacional ($0 \rightarrow 2$) para e^+H_2 . Nosso resultado comparados com outros trabalhos da literatura. Acima, a direita, estão apresentadas todas as excitações rotacionais $j \rightarrow j \pm 2$ obtidas em nosso cálculo.

Nosso resultado de seção de choque de excitação vibracional, figura 5.8, apresenta um comportamento qualitativo com o um pico em torno de 0,7eV porém, é quase 3 vezes mais alto que o valor reportado por (SULLIVAN et al., 2002). Essa característica também foi observada para o caso do e^+N_2 em (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019).

No trabalho de (POVEDA; MOHALLEM, 2022) os autores buscaram compreender como a polarizabilidade do alvo afeta a seção de choque de excitação vibracional. Para isso, a interação do pósitron-alvo é modelada usando uma SEP composta por três termos: uma que descreve a diatômica (via potencial de um oscilador harmônico), um termo estático, e o termo correlação-polarização. Neste último, uma função polarizabilidade do alvo é inclusa, junto com um parâmetro *ad-hoc* que pode variar a fim de ajustar o cálculo de seção de choque elástica mais atual. A ideia é usar um mesmo potencial para obter boas SCs elástica e vibracionais. Porém o resultado encontrado pelos autores é que o potencial que descreve bem a SC elástica superestima em quase 3 vezes o pico da SC de excitação vibracional (POVEDA; MOHALLEM, 2022). Para corrigir isso, os autores modificaram apenas o parâmetro relacionado à polarizabilidade

da molécula alvo e obtiveram assim uma boa comparação para SC de excitação vibracional com as medidas experimentais recentes. Segundo os autores, esse parâmetro modificado não altera a SC elástica, apontando para uma dependência direta da SC de excitação vibracional ao potencial de correlação-polarização. Essa dependência pode ser usada para explicar nossos resultados de seção de choque de excitação vibracional para e^+H_2 . Como nosso potencial não leva em conta com detalhes a variação da polarizabilidade da molécula, não é possível uma boa comparação com o experimento para a SC de excitação vibracional.

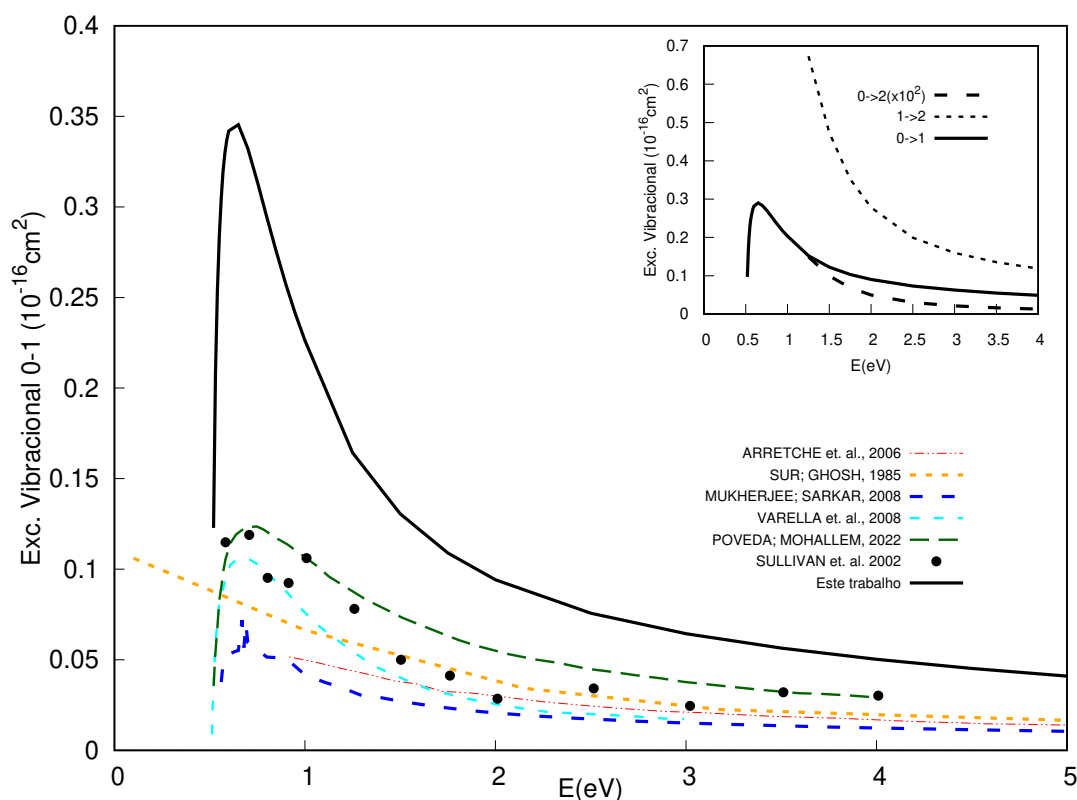


Figura 5.8: Comparação do nosso resultado de seção de choque de excitação vibracional 0-1 para e^+H_2 com outros trabalhos disponíveis na literatura.

Capítulo 6

Conclusões

Apresentamos nesta tese resultados de seções de choque de espalhamento inelástico de pósitrons por moléculas de nitrogênio (N_2), hidrogênio (H_2) e oxigênio (O_2). Para isso, usamos a abordagem FNMC afim de obter um potencial modelo para descrever a interação de pósitrons com as moléculas alvo.

Utilizamos o método não perturbativo *Close Coupling*, implementado ao pacote computacional MOLSCAT, para obter as seções de choque de espalhamento elástico e inelástico. Para descrever os estados do alvo, levamos em conta os graus de liberdade vibracional e rotacional das moléculas separadamente.

Para os três sistemas, comparamos nossos resultados de seção de choque elástica com demais trabalhos disponíveis na literatura. Em particular para o sistema e^+N_2 , a seção de choque obtida apresentava valores superestimados na comparação com a literatura. Para corrigir isso, foi acrescentado ao potencial FNMC um potencial estático e de curto alcance, mediado a partir de um parâmetro que pode assumir valores entre 0 e 1 (POVEDA; ASSAFRÃO; PINHEIRO et al., 2019). Na sequência os resultados de seção de choque inelástica foram usados em um modelo cinético que descrevia o modelo de resfriamento de gás nitrogênio, a partir do choque com pósitrons. Os resultados obtidos mostraram-se em bom acordo com experimentais, quando incluídas as seções de choque de excitação vibracionais.

Para as demais moléculas não houve a necessidade de correção estática uma vez que, os resultados obtidos apenas com o modelo de potencial FNMC já eram suficientes para descrever bem a seção de choque elástica, em uma comparação com outros trabalhos da literatura. A tendência da FNMC em superestimar a atração em curtas distâncias foi compensada pela habilidade do método em descrever os detalhes da estrutura eletrônica do O_2 e do H_2 .

Obtemos com o mesmo potencial as seções de choque de excitação vibracional inelástica 0-1 para cada alvo estudado. Em particular, no sistema e^+O_2 apenas um cálculo foi reportado na literatura (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999), o qual usamos para comparação com nosso resultado. Verificamos que as seções de choque possuem a mesma forma porém magnitudes bem distintas. Nossa seção de choque é muito maior que aquela apresentada por (GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, 1999). Entretanto, vale destacar uma tendência observada em comparações entre trabalhos experimentais e teóricos de uma mesma época: os cálculos tendem sempre a fixar os resultados experimentais. Vale destacar ainda que no trabalho para e^+N_2 a inclusão das SC de excitação vibracional na descrição do resfriamento de pósitrons trouxe um bom acordo com experimentais. Isso indica, indiretamente, que nossas seções de choque estão em conformidade para e^+O_2 , uma vez que o mesmo método foi utilizado.

Para o sistema e^+H_2 , apenas uma medida experimental foi reportada para excitação vibracional 0-1. Verificamos, ao comparar nossas seções de choque com outros cálculos e as medidas de (SULLIVAN et al., 2002), que novamente nossos resultados não se comparam quantitativamente bem com os demais trabalhos. Em uma recente publicação (POVEDA; MOHALLEM, 2022) os autores mostraram que existe uma forte dependência da SC de excitação vibracional com o potencial de correlação-polarização. Indicando assim que nossos resultados podem ser melhorados a partir da inclusão ao potencial FNMC uma correção de longo alcance.

Nossos resultados de seção de choque de excitação rotacional foram obtidos usando um potencial que modelava as moléculas alvo como um rotor rígido, fixas em suas posições de equilíbrio. Obtemos todas as excitações rotacionais do tipo $j^- \rightarrow j \pm 2$. Para o sistema e^+O_2 comparamos nosso resultado de excitação rotacional 1-3 com outros trabalhos disponíveis na literatura. Nossos resultados se comparam qualitativamente bem com os cálculos mais recentes de Barp et. al. (BARP; TENFEN; ARRETCHE, 2021), porém apresentam formato invertido àquele encontrado por Mukherjee et. al. (MUKHERJEE; GHOSH; JAIN, 1991).

Para o caso do e^+H_2 a seção de choque de excitação rotacional 0-2 foi comparada com a literatura e o cálculo que mais se aproxima, em magnitude, dos nossos resultados é aquele de Zanin et. al. (ZANIN; TENFEN; ARRETCHE, 2016).

A FNMC apresenta um modelo alternativo para tratar do problema de espalhamento de pósitrons. Obtemos resultados compatíveis na forma e no tamanho para seção de choque elástica e inelástica com outros trabalhos da literatura, desde os mais antigos até os mais recentes. Além da correção estática ao potencial FNMC é possível que correções na região de longo al-

cance do potencial necessitem ser incluídas para melhores resultados de seções de choque de excitação vibracional.

Referências bibliográficas

A.DALGARNO; MOFFET, R. J. **Proc. Natl. Acad. Sci. Índia**, v. 33, 511 1963.

AMORETTI, M. et al. Production and detection of cold antihydrogen atoms. en. **Nature**, Springer Science e Business Media LLC, v. 419, n. 6906, p. 456–459, out. 2002.

ANDERSON, C. D. The Positive Electron. **Phys. Rev.**, American Physical Society, v. 43, p. 491–494, 6 mar. 1933. DOI: 10.1103/PhysRev.43.491. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.43.491>>.

ARTHURS, A.; DALGARNO, A. The theory os scattering by a rigid rotator. **Proceedings of the royal society A**, v. 256, p. 540–551, 1960. DOI: <https://doi.org/10.1098/rspa.1960.0125>.

ASSAFRÃO, D. et al. Semiempirical potentials for positron scattering by atoms. **Physical Review A**, v. 84, n. 022713, p. 1–8, 2011. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.022713>.

BARP, M. V.; TENFEN, W.; ARRETCHE, F. Rotational excitation of O₂ by positron impact. **Radiation Physics and Chemistry**, v. 179, p. 109140, 2021. ISSN 0969-806X. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.radphyschem.2020.109140>. Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0969806X20300359>>.

BARTSCHAT, K. **Computational Atomic Physics: Electron and Positrons Collisions with Atoms and Ions**. 1. ed. Berlim: Spring, 1996. p. 249. ISBN 978-3-642-64655-3.

BLANCO, F.; GARCÍA, G. Screening corrections for calculation of electron scattering differential cross sections from polyatomic molecules. **Physics Letters A**, v. 330, n. 3, p. 230–237, 2004. ISSN 0375-9601. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.physleta.2004.07.027>. Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S037596010401014X>>.

BLANCO, F.; GARCÍA, G. A screening-corrected additivity rule for the calculation of electron scattering from macro-molecules. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 42, n. 14, p. 145203, jun. 2009. DOI: 10.1088/0953-4075/42/14/145203. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/42/14/145203>>.

CHARLTON, M.; GRIFFITH, T. C.; HEYLAND, G. R.; WRIGHT, G. L. Total scattering cross sections for low-energy positrons in the molecular gases H₂, N₂, CO₂, O₂ and CH₄. **J. Phys. B: At. Mol. Phys.**, v. 16, n. 2, p. 323–341, 1983. DOI: 10.1088/0022-3700/16/2/019.

CHIARI, L. et al. Positron scattering from Osub2/sub. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, IOP Publishing, v. 45, n. 21, p. 215206, out. 2012. DOI: 10.1088/

0953-4075/45/21/215206. Disponível em: <<https://doi.org/10.1088/0953-4075/45/21/215206>>.

CHILD, M. S. **Molecular Collision Theory**. 2. ed. Londres: Academic Press, 1984. p. 300. ISBN 0 12 172650 9.

COLEMAN, P. G.; GRIFFITH, T. C.; HEYLAND, G. R. Measurement of Total Scattering Cross-Sections for Positrons of Energies 2-400 eV on Molecular Gases H₂, D₂, N₂, CO. **Appl. Phys.**, v. 4, p. 89–90, 1974.

CURTISS, C. F.; ADLER, F. T. The scattering of atoms from Diatomic Molecules. **The journal of chemical physics**, v. 20, n. 2, p. 249–256, 1952. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.1700387>.

DABABNEH, M. S. et al. Total-cross-section measurements for positron and electron scattering by O₂, CH₄, and SF₆. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 38, p. 1207–1216, 3 ago. 1988. DOI: 10.1103/PhysRevA.38.1207. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.38.1207>>.

DEUTSCH, M. Evidence for the Formation of Positronium in Gases. **Phys. Rev.**, American Physical Society, v. 82, p. 455–456, 3 mai. 1951. DOI: 10.1103/PhysRev.82.455. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.82.455>>.

DEUTSCH, M. Three-Quantum Decay of Positronium. **Phys. Rev.**, American Physical Society, v. 83, p. 866–867, 4 ago. 1951. DOI: 10.1103/PhysRev.83.866. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.83.866>>.

DIRAC, P. A. M. A theory of electrons and protons. **Proc. R. Soc. Lond. A**, American Physical Society, v. 126, p. 360–365, 1930. DOI: <https://doi.org/10.1098/rspa.1930.0013>.

ELLIS-GIBBINGS, L.; BLANCO, F.; GARCÍA, G. Positron interactions with nitrogen and oxygen molecules: elastic, inelastic and total cross sections. **The European Physical Journal D**, v. 73, n. 266, 2019. DOI: 10.1140/epjd/e2019-100459-x.

FRANZ, JAN; FEDUS, KAMIL; KARWASZ, GRZEGORZ P. Do positrons measure atomic and molecular diameters?*. **Eur. Phys. J. D**, v. 70, n. 7, p. 155, 2016. DOI: 10.1140/epjd/e2016-70100-3. Disponível em: <<https://doi.org/10.1140/epjd/e2016-70100-3>>.

GERJUOY, E.; STEIN, S. Rotational Excitation by Slow Electrons. **Phys. Rev.**, American Physical Society, v. 97, p. 1671–1679, 6 mar. 1955. DOI: 10.1103/PhysRev.97.1671. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.97.1671>>.

GERMANO, J. S. E.; LIMA, M. A. P. Schwinger multichannel method for positron-molecule scattering. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 47, p. 3976–3982, 5 mai. 1993. DOI: 10.1103/PhysRevA.47.3976. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.47.3976>>.

GERMANO, J. S. E.; LIMA, M. A. P. Schwinger multichannel method for positron-molecule scattering. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 47, p. 3976–3982, 5 mai. 1993. DOI: 10.1103/PhysRevA.47.3976. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.47.3976>>.

GIANTURCO, F.; MUKHERJEE, T. Vibrational excitation by positron collisions with molecular gases: a study of O_2 and NO targets. **The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics**, v. 7, n. 2, p. 211–218, 1999. DOI: <https://doi.org/10.1007/s100530050367>.

GONÇALVES, C. P.; MOHALLEM, J. R. A New Algorithm to Handle Finite Nuclear Mass Effects in Electronic Calculations: The ISOTOPE Program. **Journal of Computational Chemistry**, v. 25, p. 1736–1739, 2004. DOI: <https://doi.org/10.1002/jcc.20093>.

GONÇALVES, C. P.; MOHALLEM, J. R. Point group symmetries of the molecular orbitals of HD⁺ beyond the Born–Oppenheimer approximation. **Chemical Physics Letters**, v. 367, n. 5, p. 533–536, 2003. ISSN 0009-2614. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0009-2614\(02\)01734-7](https://doi.org/10.1016/S0009-2614(02)01734-7). Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0009261402017347>>.

HAYNES, W. M. **CRC handbook of chemistry and physics, 95th Edition**. 95th ed. [S.l.]: CRC Press, 2014.

HOFFMAN, K. R. et al. Total-cross-section measurements for positrons and electrons colliding with H_2 , N_2 , and CO_2 . **Physical Review A**, v. 25, n. 3, p. 1393–1403, 1982. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.25.1393>.

HUTSON, J. M.; SUEUR, C. R. L. **molscat: a program for non-reactive quantum scattering calculation on atomic and molecular collisions Version 2020.0**. [S.l.: s.n.], 2020. Disponível em: <<https://github.com/molscat/molscat>>. Acesso em: 18 jun. 2020.

HUTSON, J. M.; SUEUR, C. R. L. molscat: a program for non-reactive quantumscattering calculations on atomic and molecular collisions. **Computer Physics Communications** 2, v. 241, p. 9–18, 2019. ISSN 0010-4655. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.cpc.2019.02.014>.

JAIN, A. A treatment of low-energy positron-CO collisions using a new parameter-free positron correlation polarisation (PCOP) potential. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 23, n. 5, p. 863, mar. 1990. DOI: [10.1088/0953-4075/23/5/011](https://doi.org/10.1088/0953-4075/23/5/011). Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/23/5/011>>.

JAIN, A. Low-energy positron-argon collisions by using parameter-free positron correlation polarization potentials. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 41, p. 2437–2444, 5 mar. 1990. DOI: [10.1103/PhysRevA.41.2437](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.41.2437). Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.41.2437>>.

JEAN, Y. et al. Applications of slow positrons to cancer research: Search for selectivity of positron annihilation to skin cancer. **Applied Surface Science**, v. 252, n. 9, p. 3166–3171, 2006. Proceedings of the Tenth International Workshop on Slow Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces. ISSN 0169-4332. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2005.08.101>. Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169433205012341>>.

KARWASZ, G.; PLISZKA, D.; BRUSA, R. Total cross sections for positron scattering in argon, nitrogen and hydrogen below 20 eV. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, v. 247, p. 68–74, 2006. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2006.01.065>.

KOL/OS, W.; WOLNIEWICZ, L. Polarizability of the Hydrogen Molecule. **The Journal of Chemical Physics**, v. 46, n. 4, p. 1426–1432, mai. 1967. ISSN 0021-9606. DOI: 10.1063/1.1840870. eprint: https://pubs.aip.org/aip/jcp/article-pdf/46/4/1426/8128481/1426_1_online.pdf. Disponível em: <<https://doi.org/10.1063/1.1840870>>.

M.CHARLTON; HUMBERSTON, J. W. **Positron Physics**. 1. ed. [S.l.]: Cambridge University Press, 2001. p. 466.

MACHACEK, J. R. et al. Positron scattering from molecular hydrogen. **Physical Review A**, v. 88, n. 042715, p. 1–8, 2013. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.88.042715>.

MACMANUS, M. e. a. Use of PET and PET/CT for radiation therapy planning: IAEA expert report 2006-2007. **Radiotherapy and oncology : journal of the European Society for Therapeutic Radiology and Oncology**, v. 91, p. 85–94, 2009. DOI: doi:10.1016/j.radonc.2008.11.008.

MARSTON, C. C.; BALINT-KURTI, G. G. The Fourier grid Hamiltonian method for bound state eigenvalues and eigenfunctions. **The Journal of Chemical Physics**, v. 91, p. 3571–3576, 1989. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.456888>.

MOHALLEM, J. R. Evidences of molecular structure beyond the Born–Oppenheimer approximation: the model hamiltonian. **Journal of Molecular Structure: THEOCHEM**, v. 709, n. 1-3, p. 11–13, 2004. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.theochem.2003.12.055>.

MOHALLEM, J. R.; PRUDENTE, F. V. Métodos Além da Aproximação Born-Oppenheimer. In: MORGON, N. H.; COUTINHO, K. (Ed.). **Métodos de Química Teórica e Modelagem Molecular**. 1. ed. São Paulo: Livraria da Física, 2007. cap. 8, p. 285–320. ISBN 978-85-88325-87-6.

MORGON, N. H.; (EDS), K. C. **Métodos de Química Teórica e Modelagem Molecular**. 1. ed. São Paulo: Livraria da Física, 2007. p. 539. ISBN 978-85-88325-87-6.

MORRISON, M. A.; SUN, W. How to calculate rotational and vibrational cross section for low-energy electron scattering from diatomic molecules using close coupling techniques. In: HUO, W. M.; GIANTURCO, F. A. (Ed.). **Computational Methods for Electron-Molecule Collisions**. 1. ed. [S.l.]: Springer Science+Business Media, 1995. cap. 6, p. 131–185. ISBN 978-1-4757-9797-8.

MUKHERJEE, T.; GHOSH, A. S.; JAIN, A. Low-energy positron collisions with H₂ and N₂ molecules by using a parameter-free positron-correlation-polarization potential. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 43, p. 2538–2541, 5 mar. 1991. DOI: 10.1103/PhysRevA.43.2538. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.43.2538>>.

MUKHERJEE, T.; GHOSH, A. S. Total and rotational cross sections in - scattering. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, IOP Publishing, v. 29, n. 11, p. 2347–2353, jun. 1996. DOI: 10.1088/0953-4075/29/11/022. Disponível em: <<https://doi.org/10.1088/0953-4075/29/11/022>>.

MUKHERJEE, T.; SARKAR, N. K. Ro-vibrational close coupling study of positron–hydrogen molecule scattering using the parameter-free model correlation polarization potential. **JOURNAL OF PHYSICS B: ATOMIC, MOLECULAR AND OPTICAL PHYSICS**, v. 41, n. 125201, p. 1–6, 2008. DOI: doi:10.1088/0953-4075/41/12/125201.

NATISIN, M. R.; DANIELSON, J. R.; SURKO, C. M. Positron cooling by vibrational and rotational excitation of molecular gases. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, IOP Publishing, v. 47, n. 22, p. 225209, nov. 2014. DOI: 10 . 1088 / 0953 - 4075 / 47 / 22 / 225209. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/47/22/225209>>.

NEWELL, A. C.; BAIRD, R. C. Absolute Determination of Refractive Indices of Gases at 47.7 Gigahertz. **Journal of Applied Physics**, v. 36, n. 12, p. 3751–3759, jul. 1965. ISSN 0021-8979. DOI: 10 . 1063 / 1 . 1713942. eprint: https://pubs.aip.org/aip/jap/article-pdf/36/12/3751/7246676/3751_1_online.pdf. Disponível em: <<https://doi.org/10.1063/1.1713942>>.

NORO, T.; KOGA, M. S. andd. Segmented contracted basis sets for atoms H through Xe: Sapporo-(DK)-nZP sets (n = D, T, Q). **Theoretical Chemistry Accounts**, v. 131, n. 1124, 2012. DOI: <https://doi.org/10.1007/s00214-012-1124-z>.

NORO, T.; SEKIYA, M.; KOGA, T. Correlating basis sets for the H atom and the alkali-metal atoms from Li to Rb. **Theoretical Chemistry Accounts**, v. 109, p. 85–90, 2003. DOI: <https://doi.org/10.1007/s00214-002-0425-z>.

PACK, R. T. Space-fixed vs Body-fixed axes in atom-diatomic molecule scattering. Sudden approximations. **The Journal of Chemical Physics**, v. 60, n. 2, p. 633–639, 1974. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.1681085>.

PERCIVAL, I. C.; SEATON, M. J. The partial wave theory of electron-hydrogen atom collisions. **Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society**, v. 53, p. 654–662, 1957. DOI: 10 . 1017 / S0305004100032722.

PINHEIRO, J. G.; ASSAFRÃO, D.; POVEDA, L. A.; MOHALLEM, J. R. Elastic and inelastic cross sections for positron scattering from molecular oxygen. **The European Physical Journal D**, v. 77, n. 10, p. 184, out. 2023. ISSN 1434-6079. DOI: 10 . 1140 / epjd / s10053 - 023 - 00764 - 9. Disponível em: <<https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-023-00764-9>>.

POVEDA, L. A.; ASSAFRÃO, D.; MOHALLEM, J. R. Positron elastic scattering from alkaline earth targets. **THE EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D**, v. 70, n. 152, p. 1–7, 2016. DOI: <https://doi.org/10.1140/epjd/e2016-70120-y>.

POVEDA, L. A.; ASSAFRÃO, D.; PINHEIRO, J. G.; MOHALLEM, J. R. Close-coupling scattering cross sections and a model for positron cooling in a buffer gas of molecular nitrogen. **Physical Review A**, v. 100, n. 062706, p. 1–10, 2019. DOI: 10 . 1103 / PhysRevA . 100 . 062706.

POVEDA, L. A.; DUTRA, A.; MOHALLEM, J. R.; ASSAFRÃO, D. Model-potential approach to positron elastic scattering from noble gases. **Physical Review A**, v. 87, n. 052702, p. 1–8, 2013. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.87.052702>.

POVEDA, L. A.; MOHALLEM, J. R. On the Role of Molecular Polarizability in Positron Coupling to Vibrations in Homonuclear Diatomics. **Front. Phys.**, v. 10, mai. 2022. DOI: <https://doi.org/10.3389/fphy.2022.890426>.

POVEDA, L. A.; VARELLA, M. T. d. N.; MOHALLEM, J. R. Vibrational Excitation Cross-Section by Positron Impact: A Wave-Packet Dynamics Study. **Atoms**, v. 9, n. 3, 2021. ISSN 2218-2004.

DOI: 10 . 3390 / atoms9030064. Disponível em: <<https://www.mdpi.com/2218-2004/9/3/64>>.

ROY, R. J. L. et al. Accurate analytic potentials for $Li_2(X^1 \Sigma_g^+)$ and $Li_2(A^1 \Sigma_u^+)$ from 2 to 90 Å, and the radiative lifetime of Li(2p). **The Journal of Chemical Physics**, v. 131, n. 204309, p. 1–17, 2009. DOI: <https://doi.org/10.1063/1.3264688>.

SABIN DEL VALLE, J. A.; GIANTURCO, F. A. Collisional ‘heating’ of molecular rotations by positron impact: a computational analysis of the quantum dynamics. **Phys. Chem. Chem. Phys.**, The Royal Society of Chemistry, v. 7, p. 318–325, 2 2005. DOI: 10 . 1039/B411035H. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1039/B411035H>>.

SCHMIDT, M. W. et al. General atomic and molecular electronic structure system. **Journal of Computational Chemistry**, v. 14, n. 11, p. 1347–1363, 1993. DOI: <https://doi.org/10.1002/jcc.540141112>.

SIEMEK, K. et al. Investigation of surface defects in BaTiO₃ nanopowders studied by XPS and positron annihilation lifetime spectroscopy. **Applied Surface Science**, v. 578, p. 151807, 2022. ISSN 0169-4332. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.151807>. Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169433221028506>>.

SUEOKA, O.; HAMADA, A. Total Cross Section Measurements for 0.3-10.0eV Positron Scattering on N₂, CO and CO₂ Molecule. **Journal of the Physical Society of Japan**, v. 62, p. 2669–2674, ago. 1993.

SULLIVAN, J. et al. Low energy positron scattering and annihilation studies using a high resolution trap-based beam. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, v. 192, p. 3–16, 2002. DOI: [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(02\)00700-0](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(02)00700-0).

SURKO, C. M.; GRIBAKIN, G. F.; BUCKMAN, S. J. Low-energy positron interactions with atoms and molecules. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 38, n. 6, r57, mar. 2005. DOI: 10 . 1088/0953 - 4075/38/6/R01. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/38/6/R01>>.

TAKATSUKA, K.; MCKOY, V. Theory of electronically inelastic scattering of electrons by molecules. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 30, p. 1734–1740, 4 out. 1984. DOI: 10 . 1103/PhysRevA.30.1734. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.30.1734>>.

TENFEN, W.; MAZON, K. T.; MICHELIN, S. E.; ARRETICHE, F. Low-energy elastic positron cross sections for H₂ and N₂ using an ab initio target polarization. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 86, p. 042706, 4 out. 2012. DOI: 10 . 1103/PhysRevA.86.042706. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.86.042706>>.

TENFEN, W.; BARP, M. V.; ARRETICHE, F. Low-energy elastic scattering of positrons by O₂. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 99, p. 022703, 2 fev. 2019. DOI: 10 . 1103/PhysRevA.99.022703. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.99.022703>>.

TENFEN, W.; SEIDEL, E. P.; BARP, M. V.; ARRETICHE, F. Higher order polarizabilities and the positron forward scattering problem: Convergence between calculated and measured cross

sections in the very low energy regime. **Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena**, v. 255, p. 147160, 2022. ISSN 0368-2048. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2022.147160>. Disponível em: <<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0368204822000032>>.

VALLABHAJOSULA, S.; SOLNES, L.; VALLABHAJOSULA., B. A Broad Overview of Positron Emission Tomography Radiopharmaceuticals and Clinical Applications: What Is New?. **Seminars in Nuclear Medicine**, v. 41, p. 247–269, 2011. DOI: 10.1053/j.semnuclmed.2011.02.001.

ZAMMIT, M. C. et al. Adiabatic-nuclei calculations of positron scattering from molecular hydrogen. **PHYSICAL REVIEW A**, v. 95, n. 022707, p. 1–15, 2017. DOI: 10.1103/PhysRevA.95.022707.

ZANIN, G.; TENFEN, W.; ARRETCHE, F. Rotational excitation of H₂ by positron impact in adiabatic rotational approximation. **Eur. Phys. J. D.**, v. 70, p. 179, 2016.

ZECCA, A. et al. Experimental determination of the scattering length for positron scattering from krypton. **Eur. Phys. J. D.**, v. 64, p. 317–321, 2011. DOI: 10.1140/epjd/e2011-20333-7. Disponível em: <<https://doi.org/10.1140/epjd/e2011-20333-7>>.

ZECCA, A.; CHIARI, L.; TRAINOTTI, E.; SARKAR, A. et al. Positron scattering from methane. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 85, p. 012707, 1 jan. 2012. DOI: 10.1103/PhysRevA.85.012707. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.85.012707>>.

ZECCA, A.; CHIARI, L.; SARKAR, A.; BRUNGER, M. J. Positron scattering from the isoelectronic molecules N₂, CO and C₂H₂. **New Journal of Physics**, v. 13, n. 11, p. 115001, nov. 2011. DOI: 10.1088/1367-2630/13/11/115001. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/13/11/115001>>.

ZECCA, A.; CHIARI, L.; TRAINOTTI, E.; FURSA, D. V. et al. Positron scattering from argon: total cross sections and the scattering length. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 45, n. 1, p. 015203, dez. 2011. DOI: 10.1088/0953-4075/45/1/015203. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/45/1/015203>>.

ZECCA, A.; CHIARI, L.; TRAINOTTI, E.; FURSA, D. V. et al. Positron scattering from argon: total cross sections and the scattering length. **Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics**, v. 45, n. 1, p. 015203, dez. 2011. DOI: 10.1088/0953-4075/45/1/015203. Disponível em: <<https://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/45/1/015203>>.

ZECCA, A.; CHIARI, L.; SARKAR, A.; NIXON, K. L. et al. Total cross sections for positron scattering from H₂ at low energies. **Physical Review A**, v. 80, n. 032702, p. 1–5, 2009. DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.80.032702>.

ZHOU, S. et al. Measurements of total and positronium formation cross sections for positrons and electrons scattered by hydrogen atoms and molecules. **Phys. Rev. A**, American Physical Society, v. 55, p. 361–368, 1 jan. 1997. DOI: 10.1103/PhysRevA.55.361. Disponível em: <<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.55.361>>.

Apêndice A

Potencial sistema pósitron-oxigênio

As figuras A.1 a A.6 representam os melhores ajustes para cada $c_{\lambda\nu}(r)$ utilizado no sistema $e + O_2$.

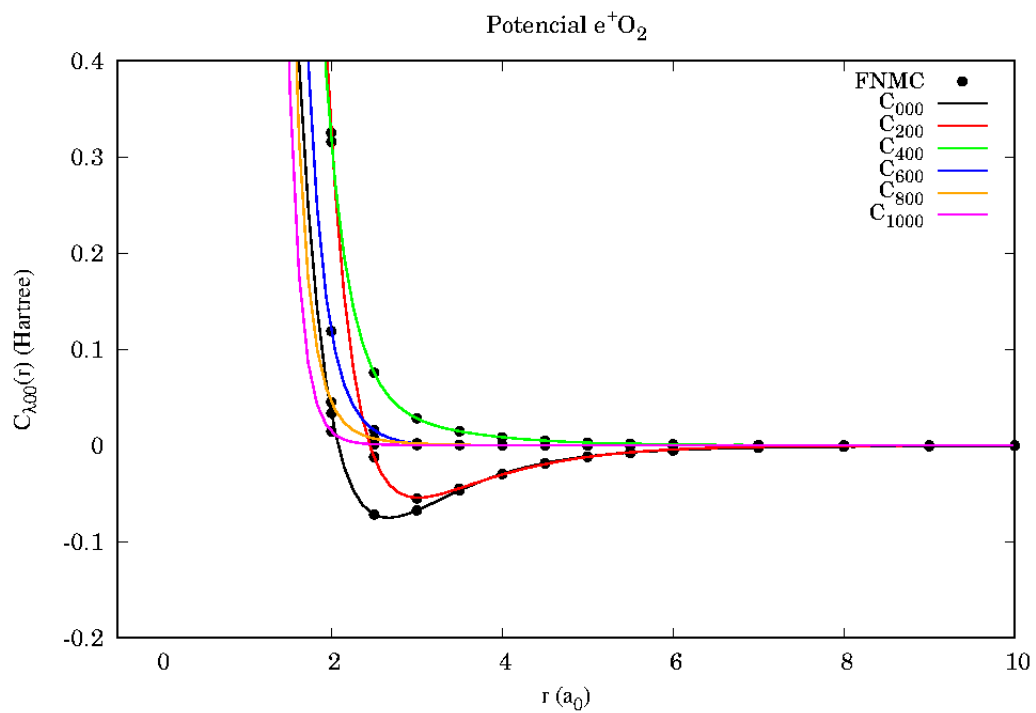


Figura A.1: Termos $c_{\lambda 00}(r)$ do potencial e^+O_2 .

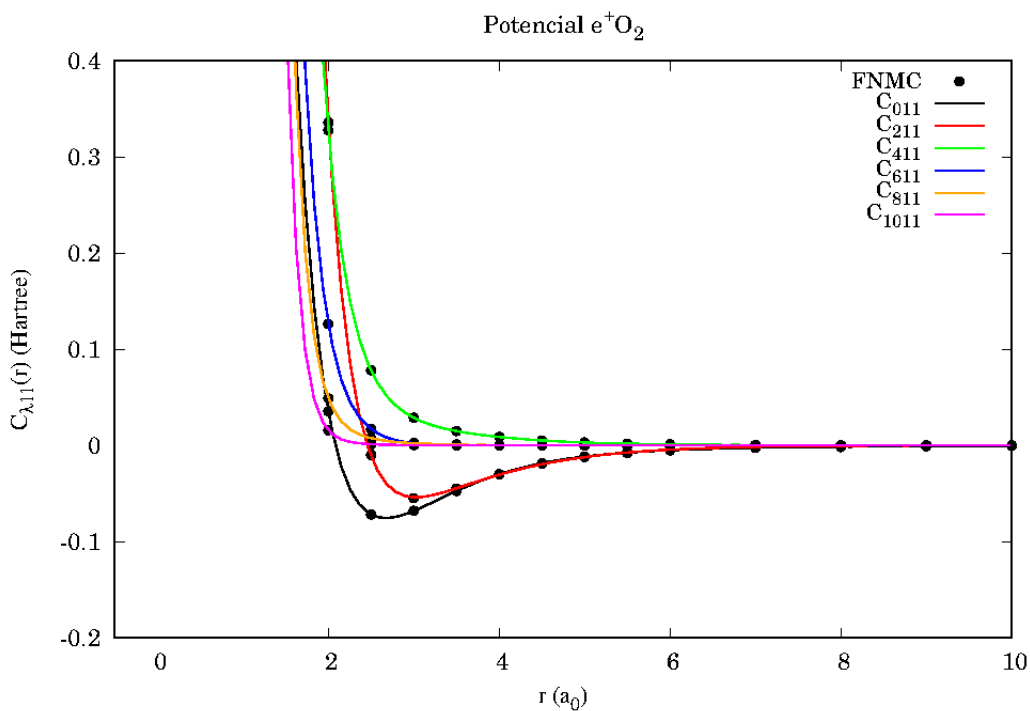


Figura A.2: Termos $c_{\lambda 11}(r)$ do potencial e^+O_2 .

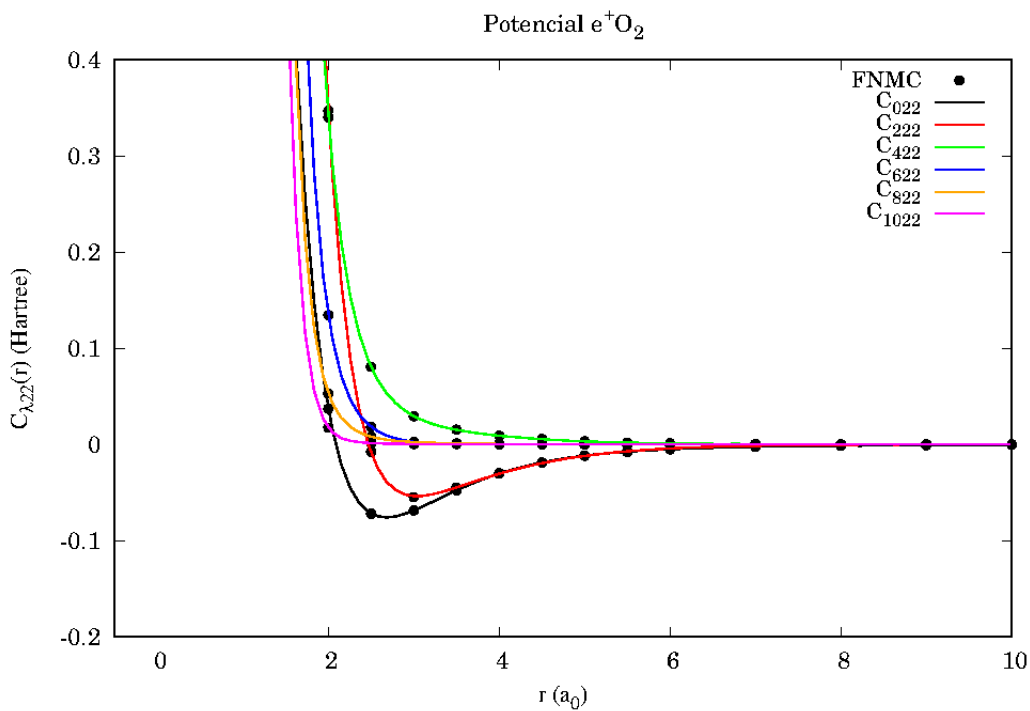


Figura A.3: Termos $c_{\lambda 22}(r)$ do potencial e^+O_2 .

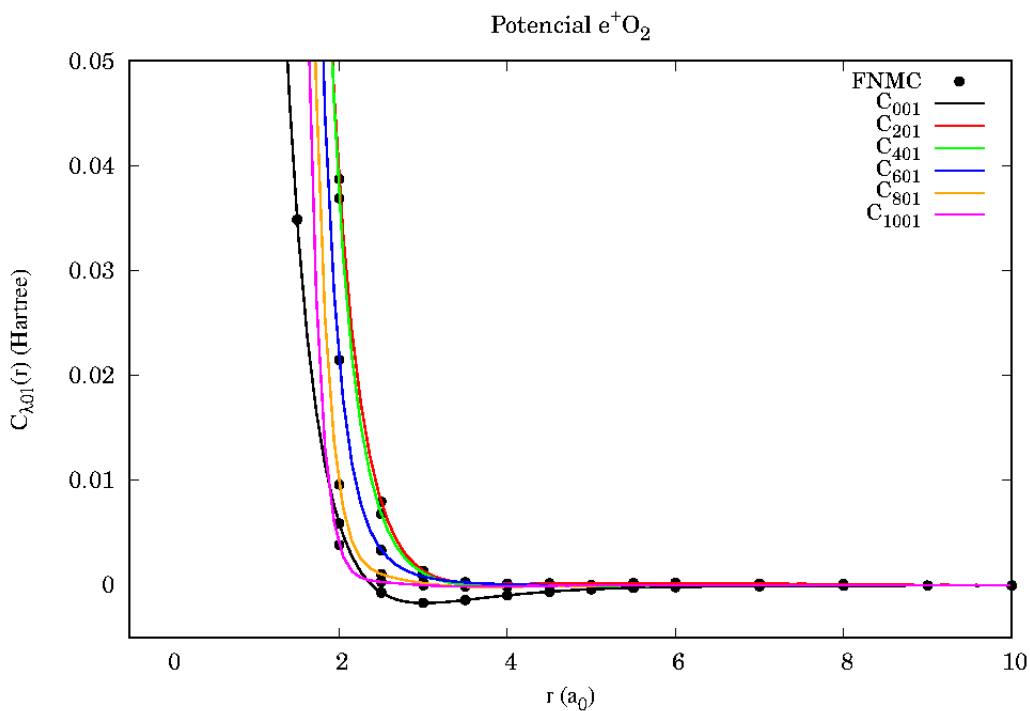


Figura A.4: Termos $c_{\lambda 01}(r)$ do potencial e^+O_2 .

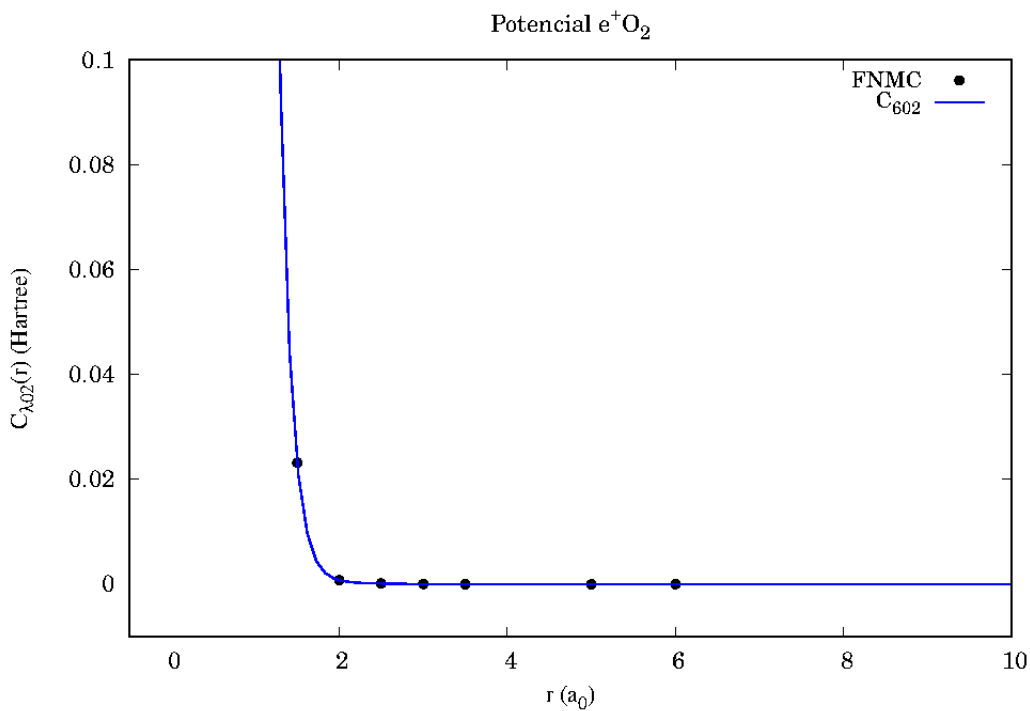
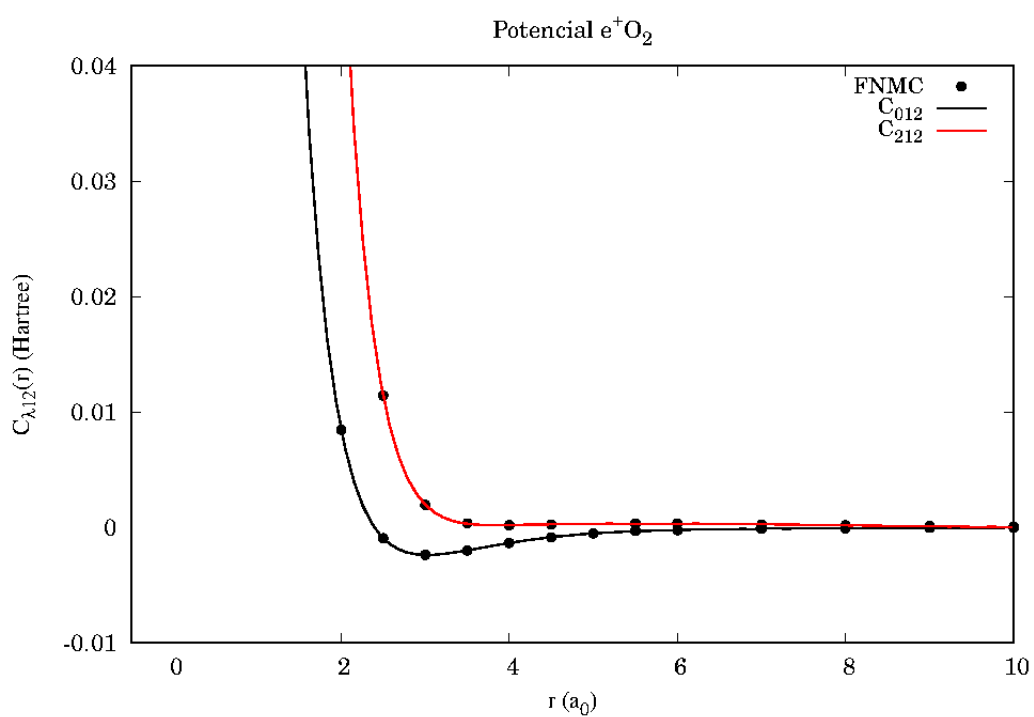


Figura A.5: Termos $c_{\lambda 02}(r)$ do potencial e^+O_2 .

Figura A.6: Termos $c_{\lambda 12}(r)$ do potencial e^+O_2 .

Apêndice B

Potencial sistema pósitron-hidrogênio

A seqüência de figuras que vai de B.1 a B.6 representam nossos melhores ajustes obtidos para os coeficientes $c_{\lambda\nu\nu'}(r)$.

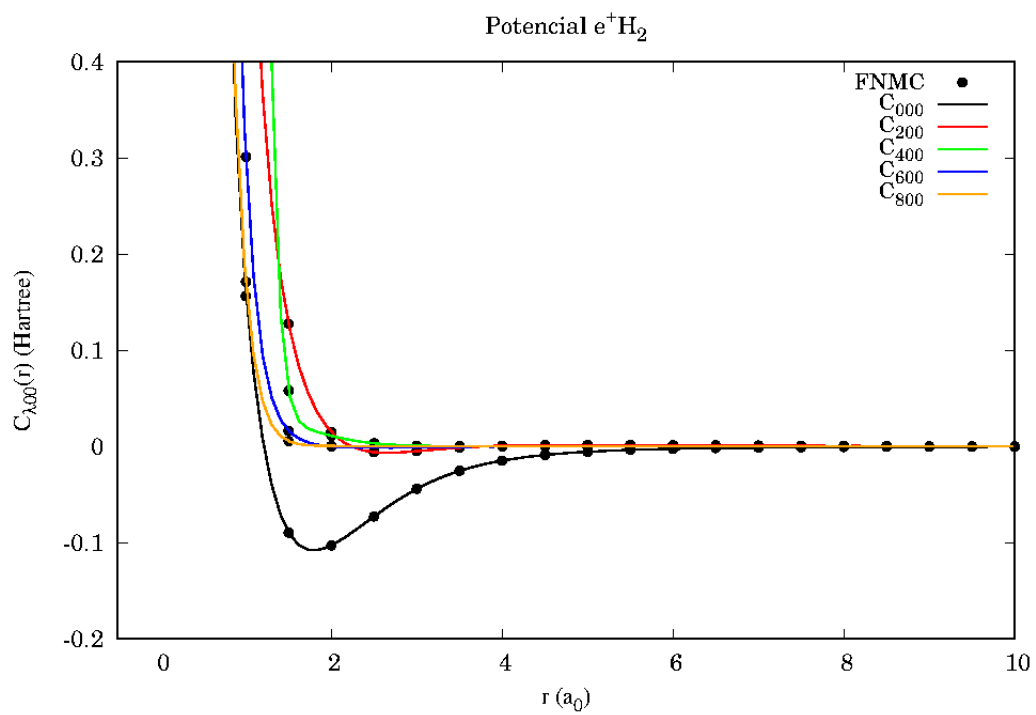
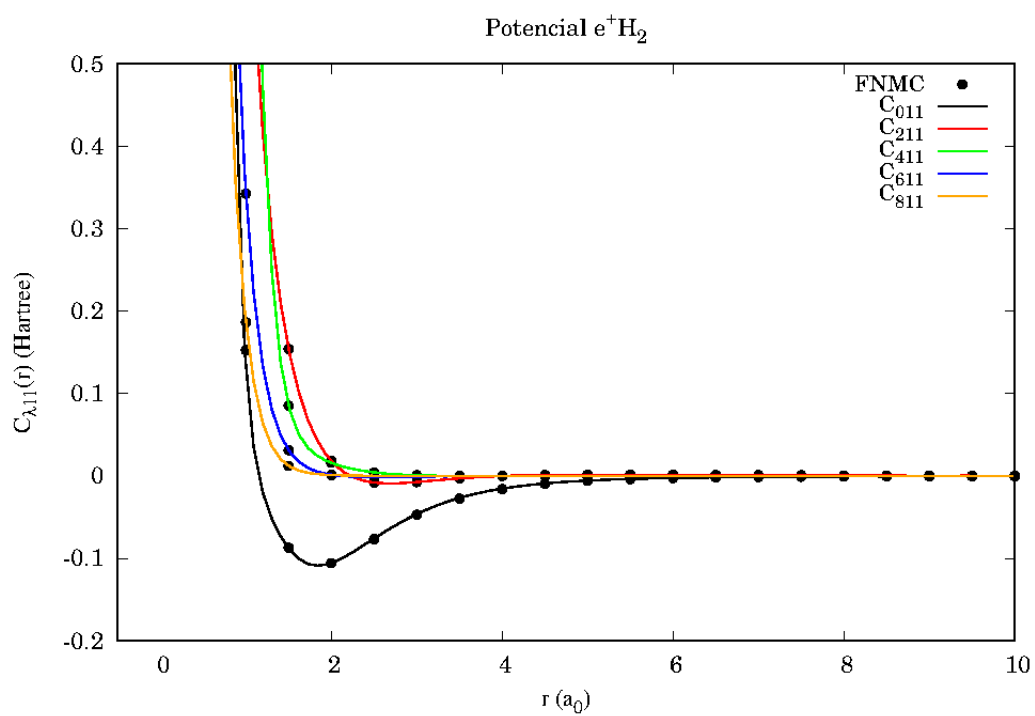


Figura B.1: Termo $c_{\lambda 00}(r)$ do potencial e^+H_2 .

Figura B.2: Termo $c_{\lambda 11}(r)$ do potencial e^+H_2 .

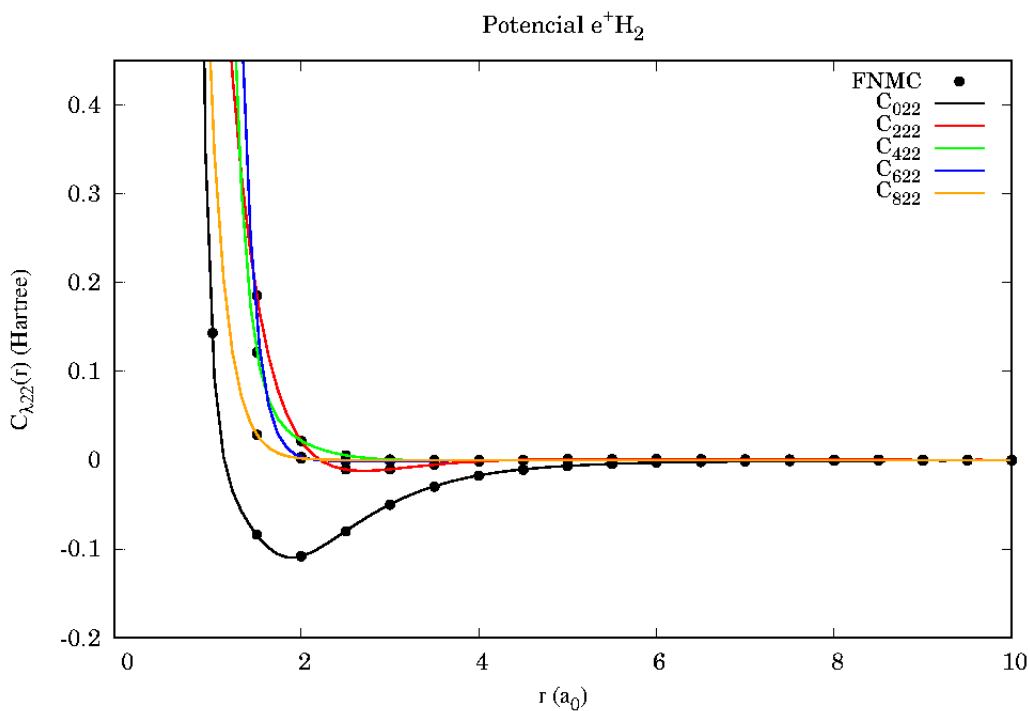


Figura B.3: Termos $c_{\lambda 22}(r)$ do potencial e^+H_2 .

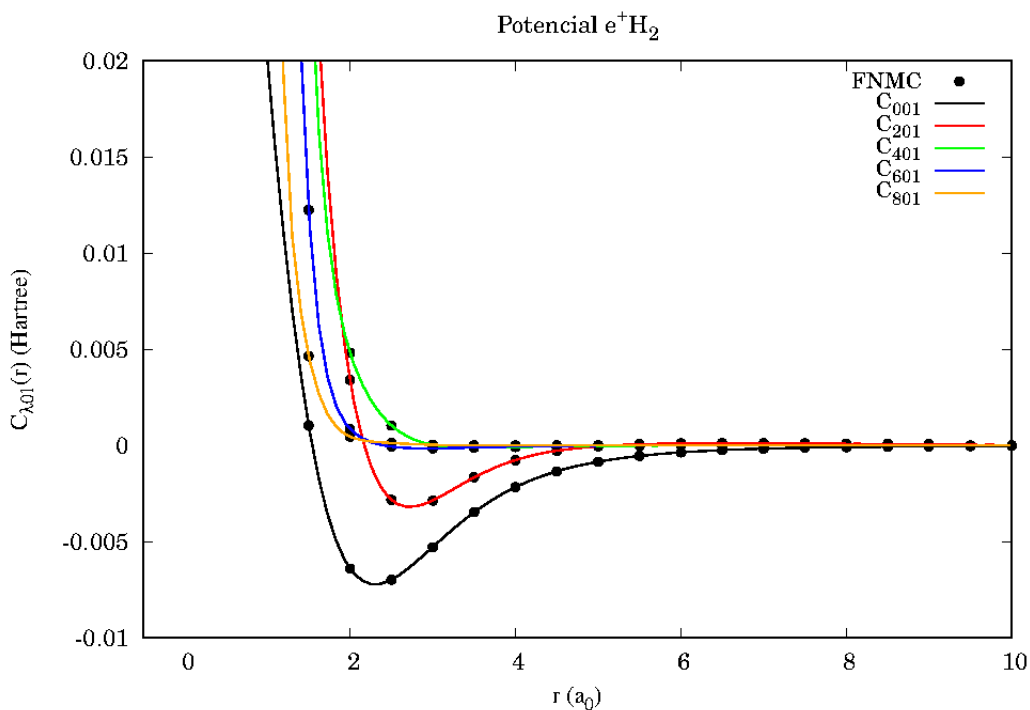


Figura B.4: Termos $c_{\lambda 01}(r)$ do potencial e^+H_2 .

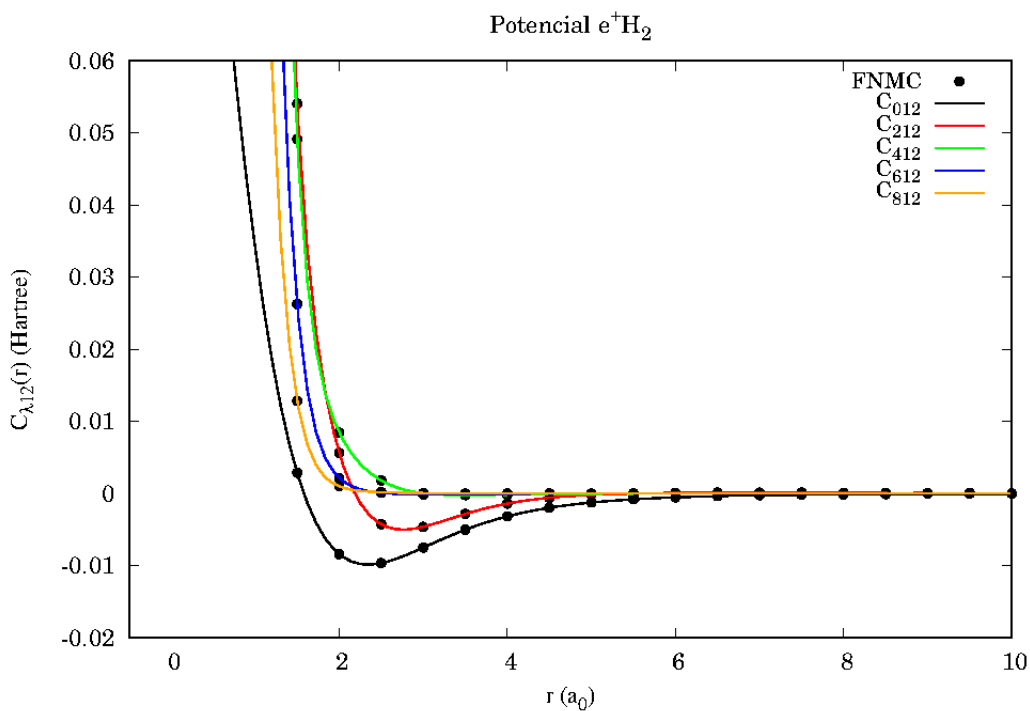


Figura B.5: Termos $c_{\lambda 12}(r)$ do potencial e^+H_2 .

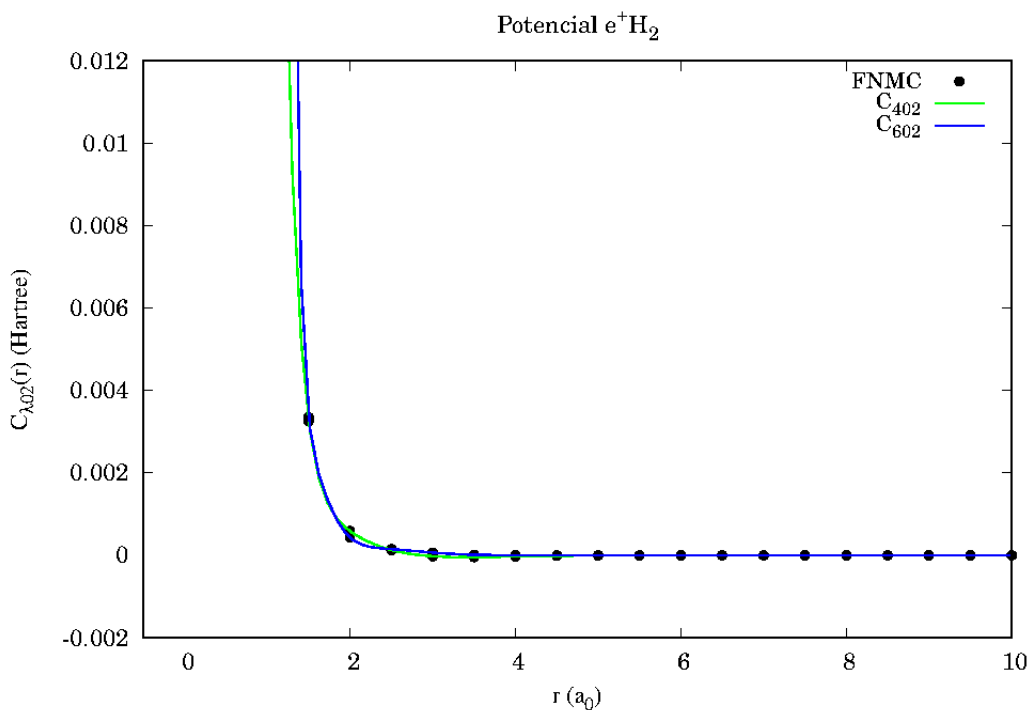


Figura B.6: Termos $c_{\lambda 02}(r)$ do potencial e^+H_2 .