

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO  
Instituto de Física

Estudo Sistemático do Freamento  
de Íons Pesados em Sólidos no  
Regime de Baixas Velocidades

*Roberto Linares*

Tese apresentada ao Instituto de  
Física da Universidade de São Paulo  
para obtenção do título de Doutor  
em Ciências.

**Orientador:** *Prof. Dr. Roberto Vicençotto Ribas*

**Comissão Examinadora:**

*Prof. Dr. Roberto Vicençotto Ribas (IFUSP)*

*Prof. Dr. Raphael Liguori Neto (IFUSP)*

*Prof. Dr. Vito Roberto Vanin (IFUSP)*

*Prof. Dr. Paulo Roberto Rela (IPEN)*

*Prof. Dr. Eduardo Chaves Montenegro (UFRJ)*

SÃO PAULO

2009

**FICHA CATALOGRÁFICA**  
**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação**  
**do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Linares, Roberto

Estudo sistemático do freamento de íons pesados no regime de baixas velocidades - São Paulo, 2009.

Tese (Doutorado) – Universidade de São Paulo.  
Instituto de Física. Departamento de Física Nuclear.

Orientador: Prof. Dr. Roberto Vicençotto Ribas

Área de Concentração: Física atômica

Unitermos: 1. Física experimental; 2. Detecção de partículas; 3. Estrutura atômica (Física moderna).

USP/IF/SBI-064/2009





# Agradecimentos

Gostaria de agradecer à todas as pessoas que tornaram possível e prazeroso esse trabalho:

ao prof. Dr. Roberto V. Ribas, pela orientação, cordialidade e por ter tornado possível o desenvolvimento desse trabalho,

aos colegas do grupo de Espectroscopia Gama: Medina, Zero, Ewa, Wayne, Shila, Kenia, Dennis e Paula, pela colaboração durante os períodos de máquina,

à toda equipe técnica do Departamento de Física Nuclear, sem os quais nada seria possível,

aos amigos do departamento: Adriana B., Baiano, Chicão, Davi, Didi, Gabriel B., Jessica, Juan Félix, Kelly, Kenia, Maria Carmen, Djalma, Pedro e Suruka, pela alegre convivência,

aos amigos Fábio, Gabriel, Moa, Márcio Hg e Lulu, pelo futebol no CE-PEUSP,

à minha família pela apoio, mesmo à distância,

à Vanessa, pelo seu carinho, amor e compreensão,

à FAPESP pelo apoio financeiro para o desenvolvimento deste trabalho.



# Resumo

A perda de energia de íons na matéria é um tópico importante não apenas devido à sua direta aplicação nas técnicas de análises de materiais mas também na compreensão da interação íon-átomo. O conhecimento preciso do poder de freamento de íons pesados a baixas energias é cada vez mais necessário em ciências dos materiais assim como na física nuclear básica, como por exemplo, no Método da Atenuação do Deslocamento Doppler (DSAM, na sigla em inglês). Nessa técnica, o conhecimento do poder de freamento é utilizado para determinar uma referência temporal para o decaimento nuclear enquanto em recuo em um substrato, tipicamente Au ou Pb. No entanto, o freamento de íons pesados em sólidos é ainda pouco compreendido principalmente com respeito a região de baixas energias devido às dificuldades adicionais que surgem da complicada dependência entre o estado de carga do projétil e sua velocidade instantânea no freador. Como modelos teóricos não são capazes de fornecer previsões quantitativas confiáveis, os principais modelos utilizados atualmente são de natureza semiempírica. O principal objetivo desse trabalho se concentra na obtenção de novos dados experimentais na região de energia de 100-500 keV/u.m.a., para o freamento de Ti, V, Cr, Co, Ni em Au e Ge e de Ti e Cr em Pb. Os dados experimentais com os íons de Ti, V e Cr foram obtidos utilizando a técnica de espalhamento elástico, na qual o feixe primário é espalhado por átomos de um fino alvo ( $\approx 100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ). O feixe primário espalhado produz átomos do alvo com baixas energia em recuo numa determinada direção. Os experimentais com íons de Co e Ni foram obtidos utilizando um arranjo de ToF-E (*Time of Flight - Energy*) que permite a medida do freamento ao longo de uma região contínua de energia. Nesta técnica, para a produção de um feixe com ampla distribuição em energia, o feixe primário monoenergético é espalhado por substrato de Au. Os dados experimentais foram comparados com as previsões da Teoria Binária (TB) e Aproximação de Convolução Unitária (ACU) e dos modelos semiempíricos de Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL) e de Northcliffe e Schilling (NS). Apesar dos modelos descreverem razoavel-

---

mente bem os freamentos de Ti, V e Cr em Au, os dados experimentais para o freamento de Ni em Au, por exemplo, chegam a ser 2 vezes maiores que as previsões de ZBL.



# Abstract

The energy loss of ions in materials is an important issue not only because of its direct applications on material analysis techniques, but also for the understanding of the interactions. Accurate knowledge of heavy ion stopping power at low energies is necessary in materials science as well as in basic physics, e. g. in the Doppler Shift Attenuation Method (DSAM). In this technique the knowledge of stopping power is used to determine the timescale for the decaying nuclei while slowing down in a heavy substrate, usually Au or Pb. Nevertheless, the stopping power of solids for heavy ions is still poorly known. Regarding to low energies, this is especially true due to additional difficulties arising from a complicated dependence of the projectile charge state and its instantaneous velocity in the medium. Since theoretical models are unable to produce reliable quantitative predictions, most models currently in use are of semiempirical nature. The main aim of this work is to present new experimental data in the energy range 100-500 keV/u for Ti, V, Cr, Co and Ni ions slowing down in Au and Ge, and Ti and Cr ions slowing down in Pb. Experimental data for Ti, V, Cr ions were obtained using the elastic recoil technique, where a primary beam is scattered by heavy ions from a thin target ( $\approx 100\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ). The scattered primary beam produces recoiling atoms of the target at low energies and at a given direction, where it is placed the stoppers. Experimental data for Co and Ni ions were obtained using a ToF-E apparatus (Time of Flight - Energy detection system) which allows measuring stopping over a continuous energy range. To produce a beam of Co, for instance, with broad energy range its monoenergetic beam is scattered away by a Au substrate. Our experimental data were compared to TB and UCA theories and ZBL and NS semiempirical models. Although there is an overall agreement between experiment and theory for Ti, V and Cr ions, the experimental stopping power for Ni in Au, for instance, is about 2 times greater than the ZBL prediction.



# Sumário

<b>1</b>	<b>Introdução</b>	<b>23</b>
1.1	Conceitos Iniciais . . . . .	24
1.2	Panorama do freamento de íons pesados . . . . .	27
1.3	Motivação . . . . .	30
1.4	Unidades do Poder de Freamento . . . . .	32
<b>2</b>	<b>Teorias do Freamento</b>	<b>35</b>
2.1	Freamento Eletrônico . . . . .	35
2.1.1	Teorias de Bohr, Bethe e Bloch . . . . .	35
2.1.2	Teoria de LSS . . . . .	38
2.1.3	Teoria da Aproximação de Convolução Unitária . . . . .	40
2.1.4	Teoria Binária . . . . .	42
2.1.5	Modelos Semiempíricos para o Freamento Eletrônico . . . . .	44
2.1.5.1	Tabelas de Northcliffe e Schilling . . . . .	44
2.1.5.2	Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL) . . . . .	45
2.2	Freamento Nuclear . . . . .	47
2.2.1	Lindhard, Scharff e Schiott (LSS) . . . . .	48
2.2.2	Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL) . . . . .	49
2.3	Resumo das teorias e modelos . . . . .	50
<b>3</b>	<b>Os Arranjos Experimentais</b>	<b>53</b>
3.1	Medindo o poder de freamento . . . . .	53
3.2	Técnicas Experimentais . . . . .	55
3.2.1	A Técnica de Espalhamento Elástico . . . . .	57
3.2.2	A técnica TOF-E ( <i>Time of Flight-Energy</i> ) . . . . .	60
3.2.3	Não-linearidade em detectores de B.S. . . . .	62
3.3	Preparação dos Alvos . . . . .	64
3.4	Equipamento experimental para as medidas com Espalhamento Elástico . . . . .	68

3.4.1	Acelerador e Fonte de Íons do LAFN . . . . .	68
3.4.2	Câmara de Espalhamento . . . . .	70
3.4.3	Eletrônica e Aquisição de Dados . . . . .	74
3.5	Equipamento experimental para as medidas com o TOF-E . . . . .	75
3.5.1	O acelerador do EMSL . . . . .	75
3.5.2	O sistema de TOF-E . . . . .	77
3.5.3	Eletrônica e aquisição de dados . . . . .	78
<b>4</b>	<b>Análise dos dados e discussão</b>	<b>81</b>
4.1	Redução dos dados obtidos com a técnica de espalhamento elástico	81
4.1.1	Caracterização dos espectros em energia . . . . .	81
4.1.2	Ajustes dos espectros . . . . .	84
4.1.3	Curvas de calibração em energia . . . . .	86
4.1.4	Poder de freamento experimental . . . . .	89
4.2	Redução dos dados obtidos com a técnica TOF-E . . . . .	89
4.2.1	Caracterização dos espectros obtidos . . . . .	89
4.2.2	Calibração do tempo de voo . . . . .	92
4.2.3	Determinação da perda de energia . . . . .	94
4.2.4	Determinação das espessuras dos freadores . . . . .	94
4.3	Comparação entre as técnicas . . . . .	96
4.4	Discussão . . . . .	98
4.4.1	Comparação com modelos teóricos (LSS, BT e UCA) . . . . .	98
4.4.2	Comparação com modelos semi-empíricos . . . . .	103
<b>5</b>	<b>Conclusões</b>	<b>107</b>
	<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>109</b>

# Lista de Figuras

- 1.1 *Curva característica do freamento de íons na matéria em função da energia do projétil. A abrupta mudança no freamento eletrônico próximo a região de intersecção com a curva do freamento nuclear é consequência do modelo utilizado para gerar a curva. . . . .* 25
- 1.2 *Poder de freamento de diversos íons em Alumínio. Para altas energias, as distintas curvas variam coincidem. Previsões extraídas do código SRIM2008.03 [5]. Também inclusos estão os dados experimentais do freamento de Li em Al, obtidos da ref. [6], para ilustração da validade do código SRIM2008.03 na previsão dos freamentos nessas energias. . . . .* 26
- 1.3 *Ilustração do efeito de channeling (linha tracejada) em materiais com estrutura cristalina. Acima, a trajetória típica numa direção aleatória do material. Nesse último caso, o efeito sucessivo das colisões produz um stragglng na direção do momento do íon. . . . .* 27
- 1.4 *Diagrama qualitativo dos processos revelantes no freamento em função de  $Z_1$  e da energia  $E$  do projétil. A região hachurada representa qualitativamente a região em energia de interesse nessa tese, de onde se verifica a presença de vários processos. Diagrama superior: freador de Au; diagrama inferior: freador de C. Modificado da ref. [1]. . . . .* 28
- 1.5 *Oscilações em  $Z_1$  no poder de freamento de Carbono para íons com  $E = 20$  keV/u.m.a. e em detalhe para  $E = 100$  e  $200$  keV/u.m.a. Compilação de dados experimentais extraídos do banco de dados do prof. Dr. Helmut Paul [6] e da ref. [11]. . . . .* 30
- 1.6 *Espectros gama típicos obtidos com o DSAM para a determinação da vida média de estados nucleares da ordem de ps. Os tempos de vidas determinados pelo métodos são (da esquerda para direita):  $0.392(50)$  ps,  $0.260(22)$  ps e  $0.182(14)$  ps. Modificado da ref. [13]. . . . .* 31

1.7	<i>Tabela periódica com os elementos para os quais existem dados experimentais do seu freamento em Au. Os elementos com uma faixa cinza indicam aqueles cujo freamento em Ge foi medido. Figura elaborada tomando como base os dados experimentais disponíveis na ref. [6]</i>	32
2.1	<i>Geometria para o freamento eletrônico na teoria clássica de Bohr.</i>	36
3.1	<i>Arranjo experimental para medidas de freamento utilizando o feixe espalhado elasticamente por um alvo fino de Ouro (folha espalhadora). A medida com e sem o freador é realizada simultaneamente devido ao suporte parcialmente coberto pelo freador e posicionado à frente do detector. Modificado a partir de [36].</i>	56
3.2	<i>Espectro típico para a determinação da perda de energia através do retroespalhamento Rutherford (RBS). Espectro modificado a partir de [37].</i>	57
3.3	<i>Ilustração da técnica do Deslocamento Doppler para as medidas do freamento de íons pesados em baixas velocidades. O freador de interesse é posicionado a uma distância <math>d</math> do alvo. Para as partículas espalhadas a <math>\approx 180^\circ</math> utiliza-se um detector anular.</i>	58
3.4	<i>Arranjo experimental para as medidas do poder de freamento. O feixe secundário de interesse é composto por átomos do alvo primário em recuo devido a colisão elástica com o feixe primário. No arranjo são ilustrados 2 monitores, fixados à <math>45^\circ</math> e <math>60^\circ</math>. O detector é montado sobre uma plataforma móvel para detectar as partículas ora coincidentes com o monitor a <math>45^\circ</math> ora a <math>60^\circ</math>.</i>	58
3.5	<i>Esquema do algoritmo utilizado no programa de calibração dos detectores (SCATU). A região escura corresponde a fatia selecionada aleatoriamente pelo programa (neste evento em particular) onde ocorrerá a colisão elástica do feixe primário com o átomo do alvo primário.</i>	59
3.6	<i>Diagrama ilustrativo da montagem experimental para medidas do freamento com a técnica TOF-E. A produção do feixe secundário com larga distribuição em energia é obtida a partir do espalhamento do feixe primário num substrato.</i>	61
3.7	<i>Diagrama ilustrativo da metodologia da técnica TOF-E para a determinação da perda de energia no freador.</i>	62
3.8	<i>Curva típica do tempo de voo em função da energia no detector de B.S. para uma medida com o feixe de He e freador de Si.</i>	63

3.9	<i>Fotos dos filmes finos de Au e Ti produzidos para as medidas de perda de energia. Os suportes dos alvos possuem a dimensão de 15 x 30 mm.</i>	65
3.10	<i>Variação da espessura em função da posição de incidência das partículas <math>\alpha</math> para os alvos de Pb.</i>	67
3.11	<i>Ilustração do acelerador eletrostático Tandem 8-UD Pelletron de 8 MV do Laboratório Aberto de Física Nuclear, DFN-USP. Créditos da figura à João Carlos Terassi.</i>	69
3.12	<i>Esquematização do arranjo experimental com as distâncias e ângulo do monitor (aqui para apenas um) e detector.</i>	71
3.13	<i>Foto do porta-freador circular usado para fixação dos freadores de posicionamento dos mesmos à frente do detector. O porta-freador suporta até 4 freadores (uma delas circulado com linha contínua) e possui 2 posições sem freador (uma delas circulado com linha pontilhada).</i>	73
3.14	<i>Esquema da eletrônica de aquisição de dados em coincidência utilizados para as medidas de poder de freamento.</i>	74
3.15	<i>Ilustração das instalações do acelerador eletrostático Tandem 9SDH-2 Pelletron de 3 MV com as 3 canalizações experimentais disponível no Environmental Molecular Science Laboratories (EMSL). A canalização utilizada para as medidas com TOF-E foi a <math>+15^\circ</math>, indicada na figura.</i>	76
3.16	<i>Esquema ilustrativo de um dos detectores de tempo utilizados para a medida do tempo de voo das partículas. Modificado da ref. [48].</i>	78
3.17	<i>Diagrama esquemático da eletrônica de aquisição de dados utilizada para o arranjo TOF-E.</i>	79
4.1	<i>Espectro em modo singles para os monitores fixos à <math>45^\circ</math> e <math>60^\circ</math> e para o detector (móvel). Espectros obtidos para alvo primário de Ti e feixe primário de Si de 46,20 MeV.</i>	82
4.2	<i>Espectro do detector móvel em coincidência com o monitor fixo à <math>60^\circ</math> para o alvo primário de Ti e feixe primário de Si com 46,20 MeV.</i>	83
4.3	<i>Distribuição angular do feixe secundário de Ti em coincidência com o monitor à <math>60^\circ</math>. Medida realizada com feixe primário de Si de 46,2 MeV.</i>	84
4.4	<i>Ajustes dos espectros de coincidências no detector móvel sem e com o freador de Au para íons de Ti a 46,2 MeV.</i>	85

4.5	<i>Reta de calibração para o feixe secundário de Ti obtido com o uso do programa de Monte Carlo. Observa-se uma diferenciação da reta de calibração em virtude da utilização de alvos primários de Ti distintos. As retas indicam os ajustes lineares para cada alvo primário utilizado.</i>	87
4.6	<i>Reta de calibração para o feixe secundário de V obtido com o uso do programa de Monte Carlo.</i>	88
4.7	<i>Reta de calibração para o feixe secundário de Cr obtido com o uso do programa de Monte Carlo.</i>	88
4.8	<i>Espectros típicos de tempo de voo e energia obtido para a medida do freamento de Ni. Espectros obtidos sem o posicionamento de freadores a frente do detector de B.S.. Abaixo o espectro biparamétrico (Energia x TAC) típico.</i>	91
4.9	<i>Projeção do espectro biparamétrico no eixo de tempo para 3 regiões distintas regiões de energia.</i>	92
4.10	<i>Calibração do tempo de voo utilizando íons de He @ 500, 600 e 650 keV's.</i>	93
4.11	<i>Curva de calibração do sistema de tempo de voo.</i>	94
4.12	<i>Curvas médias do espectro biparamétrico de tempo de voo X energia para o feixe de Co sem e com o freador de Au. Em detalhe uma ampliação do espectro.</i>	95
4.13	<i>As curvas da perda de energia para os freamentos de Ni em Au, Ni em Ge, Co em Au e Co em Ge.</i>	95
4.14	<i>Determinação das espessuras dos freadores de Au e Ge utilizando o arranjo TOF-E com íons de He.</i>	97
4.15	<i>Comparação do freamento de Cr em Au medido independentemente com as técnicas de espalhamento elástico (pontos) e a de TOF-E (linha contínua).</i>	97
4.16	<i>Comparação dos dados experimentais com as previsões da teoria LSS. Linha contínua: previsão do modelo LSS; linha pontilhada: ajuste pela eq.(4.5).</i>	99
4.17	<i>Comparação dos dados experimentais com as previsões da teoria LSS em unidades de <math>v/v_0</math>. Linha contínua: previsão do modelo LSS; linha pontilhada: ajuste pela eq. (4.6).</i>	100
4.18	<i>Interpolação dos dados teóricos da teoria binária para o freamento em Au de íons com energias entre 25 e 400 keV/u.m.a..</i>	101



4.19	<i>Comparações do freamento de Ti, V, Cr, Co e Ni em Au com as previsões da UCA e a TB (ver texto). Também foram incluídos os resultados experimentais do freamento de Cr em Au da ref. [54]</i>	102
4.20	<i>Comparação dos dados experimentais com as previsões teóricas da UCA para os freadores de Ge e Pb</i>	103
4.21	<i>Comparação dos dados experimentais dos freamento de Ti e Co em Ge e V e Co em Au com os modelos semi-empíricos NS e ZBL</i>	104
4.22	<i>Ajuste do freamento de C em Au, utilizando as eqs. (4.7) e (4.8)</i>	105
4.23	<i>Poder de freamento eletrônico de Au em função de <math>Z_1</math> para as energias de 100 e 200 keV/u.m.a. (em preto e vermelho, respectivamente). A linha pontilhada corresponde a previsão obtida com o programa SRIM2008.03</i>	105



# Lista de Tabelas

1.1	<i>Tabela de conversão das unidades de poder de freamento a partir da unidade <math>\text{MeV}/\text{mg}/\text{cm}^2</math>. <math>\rho</math> em <math>\text{g}/\text{cm}^3</math>.</i>	33
1.2	<i>Principais parâmetros atômicos, suas expressões e valores numéricos.</i>	33
2.1	<i>Regiões de aplicabilidade dos modelos abordados. Para as teorias de Bohr e Bethe, os limites são aproximados. Em alguns casos, os limites não são bem estabelecidos, como para as teorias LSS e Binária.</i>	51
3.1	<i>Comparação da perda de energia de prótons em Au obtidos através de simulações de Monte Carlo do processo de colisão. Através da eq. (3.3) é calculado o poder de freamento e comparado com o poder de freamento utilizado para a simulação. As mesmas conclusões são obtidas para íons pesados. Os valores do poder de freamento estão em unidades de <math>\text{MeV}/\text{mg}/\text{cm}^2</math>.</i>	55
3.2	<i>Comparativo entre o poder de freamento de Ag em Au medido com as técnicas de espalhamento elástico e Deslocamento Doppler (DD). O poder de freamento é expresso em <math>\text{MeV}/\text{mg}/\text{cm}^2</math>. <math>dE/dx_{\text{fit}}^{\text{DD}}</math> corresponde aos valores obtidos com o ajuste dos dados medidos com a técnica DD. Extraído da referência [38].</i>	60
3.3	<i>Espessuras dos alvos utilizados para as medidas deste trabalho. Os alvos de Ge #5 e Au #9 foram utilizados para as medidas do freamento de V. Os demais foram utilizados para o freamento de Ti e Cr. As incertezas nos alvos de Au, Ge e Pb devem-se, majoritariamente, à incerteza no valor de <math>dE/dx</math> (última coluna) fornecido pela referência [32].</i>	67
3.4	<i>Resumo dos parâmetros de feixe primário, alvo primário e ângulo de detecção para as medidas de freamento de Ti e Cr em Ge, Au e Pb. As espessuras dos alvos primários são apresentados na tabela 3.3.</i>	72

3.5	<i>Resumo dos parâmetros de feixe primário, alvo primário e ângulo de detecção para as medidas de freamento de V em Ge e Au. As espessuras dos alvos primários são apresentados na tabela 3.3. . . . .</i>	73
4.1	<i>Tabela com os ajustes para as distribuições de energias de Ti com e sem freador de Pb. Os valores foram obtidos com ajustes de funções gaussianas assimétricas e gaussianas. Também foi calculado os centróides das distribuições. Na últimas colunas são apresentadas a diferença, em canais, das distribuições com e sem freador. . . . .</i>	86
4.2	<i>Resultados experimentais dos freamentos de Ti e Cr em Au, Ge. <math>\Delta E</math> e <math>\bar{E}</math> em MeV e <math>\frac{dE}{dx}</math> em MeV/mg/cm<sup>2</sup>. . . . .</i>	90
4.3	<i>Resultados experimentais dos freamentos de Pb e V em Au e Ge. <math>\Delta E</math> e <math>\bar{E}</math> em MeV e <math>\frac{dE}{dx}</math> em MeV/mg/cm<sup>2</sup>. . . . .</i>	92
4.4	<i>Parâmetros da eq. (4.4) para os ajustes das perdas de energia. Na última coluna é indicada a região em energia de validade para cada ajuste. . . . .</i>	96
4.5	<i>Parâmetros da eq. (4.5) ajustados para os dados experimentais. . . .</i>	98

# Nomenclaturas

A seguir nomenclaturas utilizadas ao longo dessa tese.

$a$  - raio da blindagem interatômica

$a_0$  - raio de Bohr ( $= 0.05292$  nm)

$A_1$  - massa atômica do íon (projétil)

$A_2$  - massa atômica do átomo (alvo)

$b$  - parâmetro de impacto da colisão

$\Delta E$  - perda de energia do íon no meio freador ( $= E_{sem} - E_{com}$ )

$\Delta x$  - espessura do meio freador

$\frac{dE}{dx}$  - poder de freamento

$e$  - carga elementar ( $= 1.6 \times 10^{-19}$ C)

$E$  - energia do íon (projétil)

$E_{sem}$  - energia do feixe de íons sem o freador

$E_{com}$  - energia do feixe de íons após atravessar o freador

$h$  - constante de Planck ( $\hbar = h/2\pi = \text{J.s}$ )

$\langle I \rangle$  - energia de ionização média do átomo (alvo)

$\mu$  - massa reduzida

$M_1$  - massa do íon

$N$  - densidade atômica

$N_0$  - número de Avogador

$R$  - alcance do íon no meio freador

$R_y$  - energia de Rydberg ( $= 13.606$  eV)

$v_0$  - velocidade de Bohr ( $v_0 = \frac{c}{137}$ )

$v$  - velocidade do íon (projétil)

$v_r$  - velocidade do íon (projétil) relativo aos elétrons do meio freador

$v_{TF}$  - velocidade de Thomas-Fermi ( $v_{TF} = Z_2^{2/3} v_0$ )

$Z_1$  - número atômico do íon (projétil)

$Z_2$  - número atômico do átomo (alvo)

$w_0$  - frequência de oscilação característica do elétron atômico



# Capítulo 1

## Introdução

O estudo dos processos de interação de partículas carregadas com a matéria é de considerável interesse para diversas áreas da ciência, como por exemplo na análise e modificação de materiais por feixe iônico, na ciência espacial e na pesquisa biomédica [1].

Do ponto de vista da física fundamental, a colisão íon-átomo é um fenômeno que engloba diversos processos, o que torna complexa sua descrição teórica. Teorias e modelos semiempíricos desenvolvidos ao longo de várias décadas ainda carecem de medidas experimentais que confirmem suas validades ou que dêem suportes para novas formulações conceituais. Esse desafio é reforçado pela crescente necessidade de previsões confiáveis. A acurácia na previsão do freamento é um elemento importante para o aperfeiçoamento de técnicas tais como implantação iônica, retroespalhamento Rutherford com íons pesados, SIMS (*Secondary Ion Mass Spectrometry*), entre outras [2]. Nestas aplicações, o freamento a baixas energias, i.e.  $E < 25$  keV/u.m.a., é de suma importância e a sua descrição envolve detalhes da estrutura eletrônica do íon e do átomo. A complexa dependência da velocidade de recuo do projétil e seu estados de carga introduz características peculiares que não são observados no regime de altas energias.

Neste capítulo serão discutidos os conceitos básicos relacionados ao freamento de partículas carregadas na matéria. Inicialmente será apresentado o comportamento geral do freamento ao longo dos regimes de energias alta, intermediária e baixa. Em seguida, o freamento de íons pesados será focado, com ênfase nas dificuldades encontradas para descrevê-lo teoricamente. Ao final, uma pequena tabela contendo as unidades de freamento frequentemente utilizadas será apresentada.

## 1.1 Conceitos Iniciais

Uma partícula carregada, ao penetrar um meio material, gradualmente transfere ao meio sua energia cinética em sucessivas colisões com os átomos que compõem este meio<sup>1</sup>. A taxa de energia perdida pelo íon por unidade de comprimento é denominada de **poder de freamento** ( $dE/dx$ ) do meio e também está correlacionada com o alcance (distância percorrida) do íon na matéria. Em primeira análise, o poder de freamento é uma quantidade dependente dos números atômicos do íon ( $Z_1$ ) e do átomo ( $Z_2$ ) e da velocidade do íon ( $v$ ).

De acordo com a sugestão dada por Bohr [3], o freamento de íons na matéria pode ser dividido em duas componentes:

1. **freamento eletrônico**: é a transferência de energia por meio de colisões inelásticas entre os íons e os elétrons dos átomos.
2. **freamento nuclear**: é a transferência de energia por meio de colisões elásticas entre os íons e os átomos.

É interessante observar que o termo *freamento nuclear* é inapropriado no sentido que a colisão elástica ocorre entre o íon e o átomo como um todo, incluindo efeitos de blindagem eletrônica.

Por causa da pequena massa do elétron em comparação com a do íon, o freamento eletrônico não altera significativamente a direção do íon. Por outro lado, o freamento nuclear pode provocar grandes desvios na direção inicial do momento linear do íon, sendo responsável pela produção de defeitos na estrutura de materiais cristalinos.

No freamento eletrônico podem ocorrer os seguintes processos secundários [1]:

1. ionização e/ou excitação eletrônica dos átomos.
2. ionização e/ou excitação eletrônica do íon.
3. captura eletrônica.
4. emissão de radiação eletromagnética.

A curva do poder de freamento em função da energia do projétil é separada em 3 regiões distintas. A Fig. 1.1 ilustra a curva característica dos freamentos

---

<sup>1</sup>Por simplicidade, o projétil e os átomos que compõem o meio serão referidos como *íon* e *átomo* ao longo dessa tese.



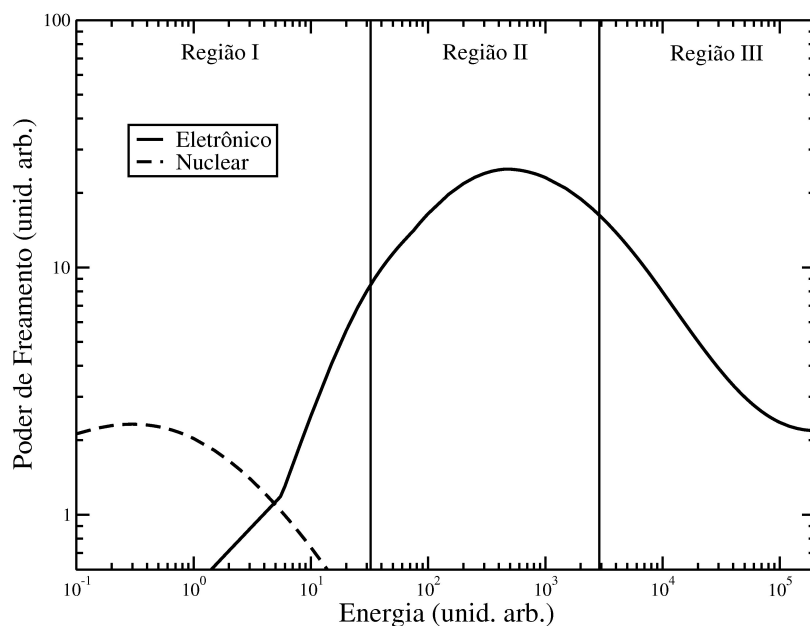


Figura 1.1: Curva característica do freamento de íons na matéria em função da energia do projétil. A abrupta mudança no freamento eletrônico próximo a região de intersecção com a curva do freamento nuclear é consequência do modelo utilizado para gerar a curva.

eletrônico e nuclear em função da energia do íon. A curva é dividida em 3 regimes de energias distintas, indicadas aproximadamente. A partir do gráfico observa-se que o freamento eletrônico é o freamento dominante numa ampla região em energia.

A região III corresponde à região de altas energias do íon ( $E \gtrsim$  alguns MeV/u.m.a. para íons pesados). Tipicamente nessas energias, o íon encontra-se quase totalmente ionizado. Nessa região, a dinâmica de excitação/ionização das colisões com os átomos do meio é bem caracterizada por uma única constante, relacionada com a energia de ionização média  $\langle I \rangle$  dos átomos do meio e é possível normalizar as curvas do poder de freamento de distintos íons para o mesmo meio, como apresentado na Fig. 1.2. Para energias acima de 5 MeV/u.m.a., a razão do poder de freamento pelo número atômico do íon ao quadrado ( $\frac{dE/dx}{Z_1^2}$ ) é praticamente independente do íon. A identificação desta relação para diversos íons é uma das hipóteses-base do modelo semiempírico de Northcliffe & Schilling [4].

À medida que a velocidade do íon no material diminui, o íon gradativamente passa a capturar elétrons do meio no sentido de se neutralizar eletricamente. Durante o processo de captura, o projétil assume uma carga efetiva que depende da sua velocidade instantânea. Esse processo de captura eletrô-

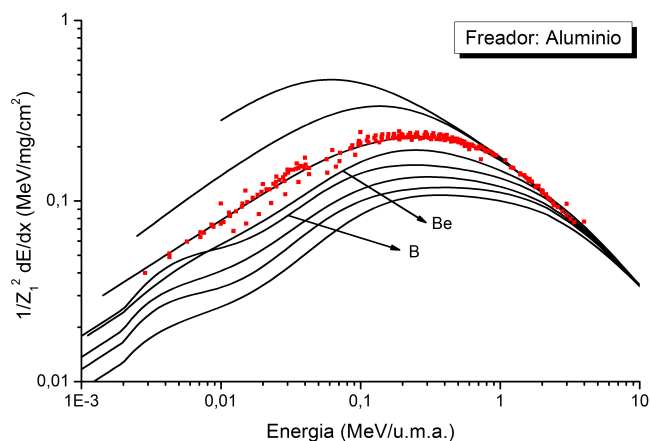


Figura 1.2: Poder de freamento de diversos íons em Alumínio. Para altas energias, as distintas curvas variam coincidindo. Previsões extraídas do código SRIM2008.03 [5]. Também inclusos estão os dados experimentais do freamento de Li em Al, obtidos da ref. [6], para ilustração da validade do código SRIM2008.03 na previsão dos freamentos nessas energias.

nica ocorre principalmente ao longo das regiões I e II (ver Fig. 1.1), sendo esta última caracterizada pela presença de um máximo na curva de freamento, conhecido como *pico de Bragg*. A região I corresponde ao regime de baixas energias, em que  $v \leq v_0 Z_1^{2/3}$ , com  $v_0$  sendo a velocidade de Bohr. Modelos teóricos [7, 8] sugerem que, nessa região, o freamento é proporcional à velocidade do íon. Na Fig. 1.2 é possível observar que a energia do pico de Bragg aumenta para  $Z_1$  maiores. Nas energias abaixo do pico de Bragg, o processo de freamento passa a depender dos detalhes das estruturas eletrônicas, tanto do íon como do átomo, e as curvas do freamento de íons distintos passam a apresentar comportamentos diferentes. Apesar do modelo semiempírico utilizado para a elaboração da Fig. 1.2 ser pouco preciso nessas energias, a figura ao menos ilustra as diferenças de comportamento do freamento em baixas energias em comparação com o freamento em altas energias. Assim, essa região de baixas velocidades é a mais difícil de se descrever teoricamente.

O freamento nuclear é o processo dominante apenas para  $E < 25\text{keV/u.m.a.}$  (Fig. 1.1), quando passa a ser superior ao freamento eletrônico. Nessas energias, o estado de ionização do íon é praticamente nulo. Enquanto a componente eletrônica diminui com a velocidade do projétil, o freamento nuclear começa a aumentar rapidamente, chegando a um máximo e então decaindo a zero.

O efeito sucessivo e a natureza estatística das colisões íon-átomo produzem dispersões na direção inicial do íon e na energia. Efeitos dessa natureza são denominados de *straggling angular* (dispersão da direção) e *straggling de*

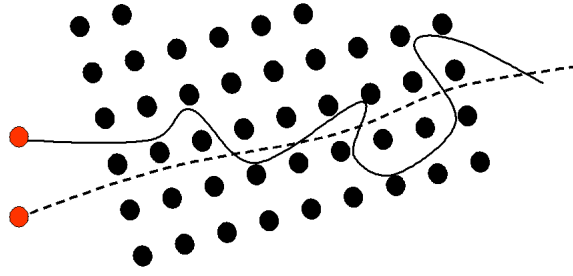


Figura 1.3: Ilustração do efeito de *channeling* (linha tracejada) em materiais com estrutura cristalina. Acima, a trajetória típica numa direção aleatória do material. Nesse último caso, o efeito sucessivo das colisões produz um *straggling* na direção do momento do íon.

*energia* (dispersão na energia).

Em materiais cristalinos, o número de colisões pode ser significativamente reduzido se o projétil seguir uma trajetória entre os planos cristalinos do material. Esse tipo de efeito é conhecido como *channeling* e reflete-se num aumento do alcance do íon no material (ver Fig.1.3). O freamento em condições de *channeling* é um aspecto interessante para a compreensão do freamento pois, em termos do parâmetro de impacto numa colisão, apenas uma região de parâmetros de impacto é sondada nesse caso.

## 1.2 Panorama do freamento de íons pesados

Em comparação com íons leves, íons pesados não podem ser aproximados por partículas pontuais. Sua estrutura interna deve ser levada em consideração. Outros aspectos a serem considerados para a descrição teórica realística do freamento eletrônico de íons pesados são: i) o movimento relativo dos elétrons em torno do átomo e ii) a blindagem eletrônica tanto do íon como do átomo.

A Fig. 1.4 apresenta uma análise qualitativa do freamento para os freadores de Au e C em função de  $Z_1$  e da energia  $E$  do íon. As linhas indicam os limites aproximados entre os distintos processos. Pode-se notar que em baixas velocidades e, principalmente, para íons pesados, vários processos estão presentes.

Para íons que incidem com altas velocidades é razoável considerar, em primeira aproximação, o elétron (do átomo-alvo) em repouso durante o tempo de interação. A linha horizontal *Correção de Camadas* (Fig. 1.4) demarca a situação em que a velocidade do íon é igual à velocidade de Thomas-Fermi ( $v_{TF} = Z_2^{2/3} v_0$ ). Abaixo dessa linha, o movimento dos elétrons mais lentos deve ser levado em conta para descrever a colisão. A linha horizontal rotulada de

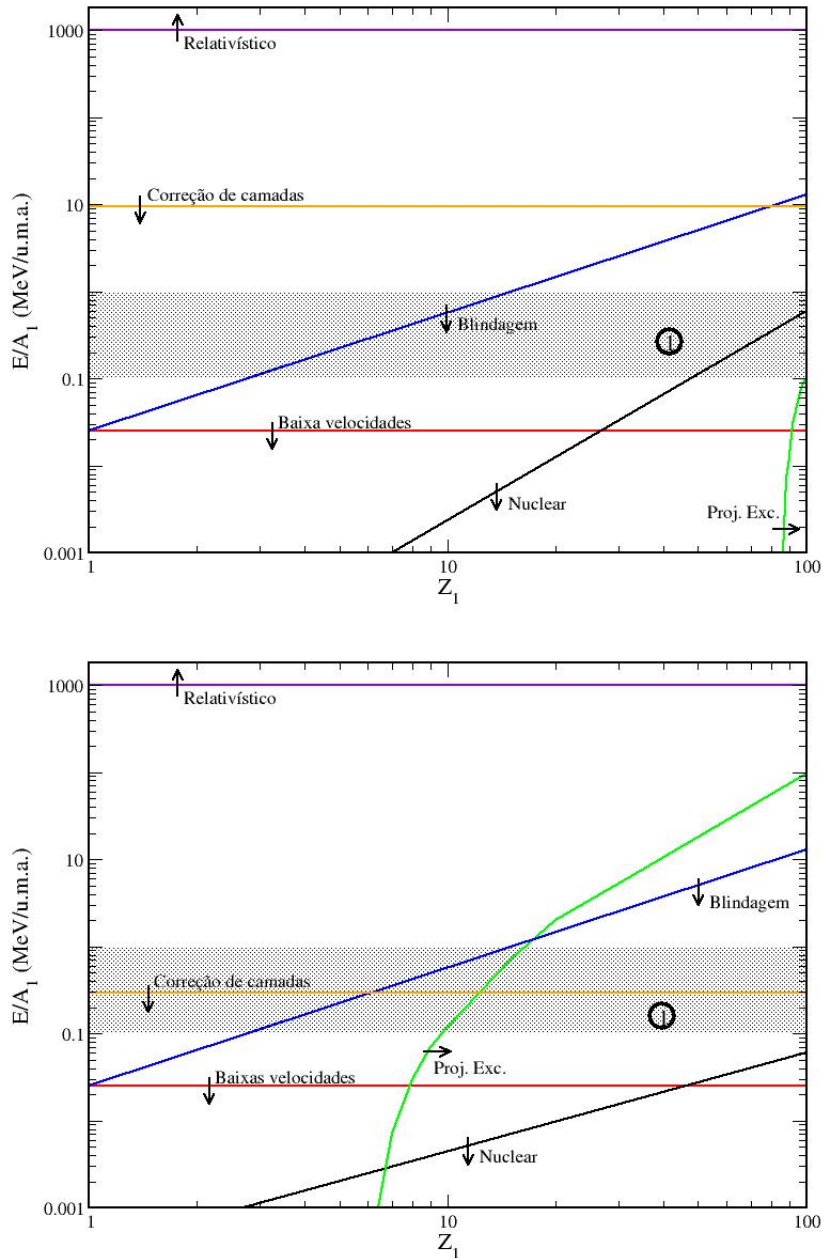


Figura 1.4: Diagrama qualitativo dos processos revelantes no freamento em função de  $Z_1$  e da energia  $E$  do projétil. A região hachurada representa qualitativamente a região em energia de interesse nessa tese, de onde se verifica a presença de vários processos. Diagrama superior: freador de Au; diagrama inferior: freador de C. Modificado da ref. [1].

*Baixa Velocidade* corresponde à energia em que  $v = v_0$ . Abaixo dessa energia, a velocidade do íon é menor que a velocidade orbital de todos os elétrons, exceto os da camada mais externa. O freamento nuclear passa a ser dominante a partir da linha rotulada por *Nuclear*. A linha rotulada por *Blindagem* delimita a região acima da qual os íons estão (ou podem ser considerados) sem seus elétrons, e pode ser aproximado por uma partícula pontual. Por outro lado, abaixo dessa linha, o íon tende a capturar elétrons do meio e a blindagem exercida pelos elétrons deve ser levada em conta para a descrição da colisão. A excitação e ionização do projétil tendem a se tornarem significantes quando  $Z_1 \gtrsim Z_2$ . A linha rotulada *Exc. Projétil* indica a borda a partir da qual espera-se que esse processo seja significativo. Assim, esse efeito é desprezível para o freador de Au, exceto para os íons mais pesados. Para o carbono esse efeito é significativo para todos os íons, exceto os leves.

Tanto o efeito de blindagem como o de excitação do projétil são processos dependentes do estado de carga do íon. Para meios sólidos, o conceito de estado de carga requer uma clara distinção entre os elétrons do meio e os elétrons que de fato acompanham o movimento do íon. Como ponto de partida geralmente recorre-se à hipótese de Bohr [3], na qual os elétrons que acompanham o íon em sua trajetória são aqueles cujas velocidades orbitais são superiores à velocidade do íon. De acordo com esse critério, um íon pode ser considerado totalmente ionizado se sua velocidade (no meio freador) é superior à velocidade dos elétrons-alvos da camada K,

$$v > Z_1 v_0 \quad \text{ou} \quad E > Z_1^2 \times 25 \text{ keV/u.m.a.} \quad (1.1)$$

Em baixas energias, o freamento de íons pesados possui um efeito peculiar. A Fig. 1.5 mostra os dados experimentais de vários íons, com energias de 25, 100 e 200 keV/u.m.a., incidindo em carbono. Dados experimentais similares para freadores de Al, Si e Au são apresentados na ref. [6]. O poder de freamento de um dado meio em função de  $Z_1$  (íons distintos incidindo com a mesma velocidade  $v$ ) apresentam oscilações referenciadas como oscilações- $Z_1$  (Fig. 1.5). A amplitude dessas oscilações tende a ser menor à medida que a velocidade dos íons aumenta, e com  $v \approx 2v_0$  ( $E \approx 50$  keV/u.m.a.), as oscilações praticamente desaparecem. As posições de máximos e mínimos, quando identificadas, situam-se aproximadamente nos mesmos valores de  $Z_1$  independentemente do meio freador, sugerindo que esse seja um efeito da estrutura eletrônica do íon. Efeitos de oscilação em  $Z_1$  foram observados no freamento de íons em condições de *channeling* e mesmo nesses casos as oscilações são

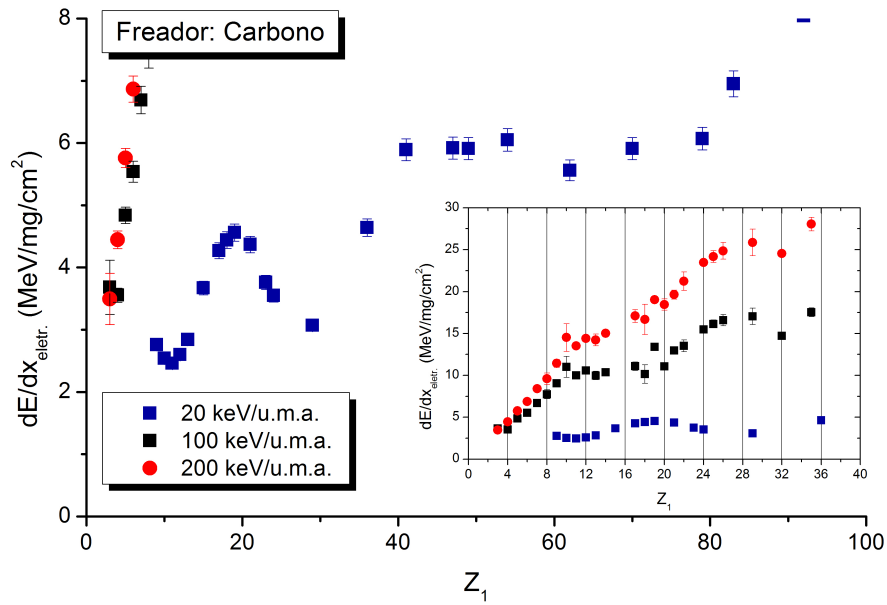


Figura 1.5: Oscilações em  $Z_1$  no poder de freamento de Carbono para íons com  $E = 20 \text{ keV/u.m.a.}$  e em detalhe para  $E = 100$  e  $200 \text{ keV/u.m.a.}$ . Compilação de dados experimentais extraídos do banco de dados do prof. Dr. Helmut Paul [6] e da ref. [11].

mais pronunciadas [9, 10]. Oscilações no freamento também são encontrados em função de  $Z_2$ , i.e., o freamento de um íon com uma mesma velocidade incidindo em diversos meios.

### 1.3 Motivação

O grupo de Espectroscopia Gama, do DFN-IFUSP, está ativamente envolvido no estudo de estruturas nucleares. Com a capacidade de computadores pessoais modernos, atualmente é possível calcular, em detalhes, a estrutura de núcleos até a camada  $pf$ , i.e., núcleos com  $A \approx 50$ . A medida experimental das propriedades nucleares desses núcleos representa um bom teste para a validade de modelos nucleares.

Um dos testes mais sensíveis corresponde à comparação entre os cálculos teóricos e medidas experimentais dos tempos de vida de estados nucleares excitados. Um método bastante utilizado para medidas da vida média de estados nucleares da ordem de picossegundos é o da Atenuação do Efeito Doppler (DSAM - *Doppler Shift Attenuation Method*) [12]. Um dado núcleo excitado em recuo, com velocidade  $v$ , emite radiação  $\gamma$  com energia ligeiramente deslocada devido ao efeito Doppler. Considerando agora que esse mesmo núcleo

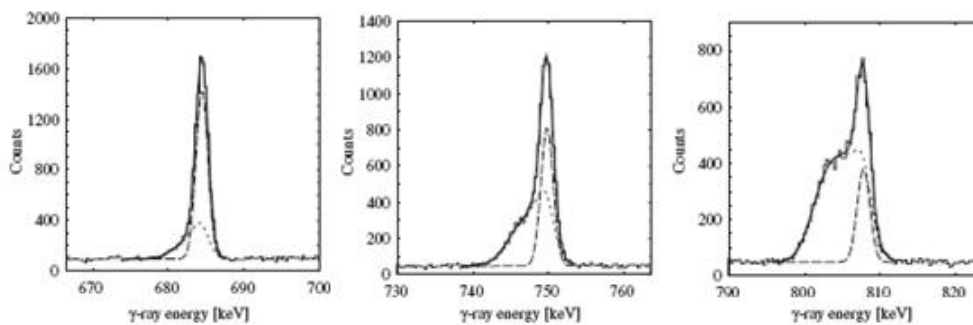


Figura 1.6: *Espectros gama típicos obtidos com o DSAM para a determinação da vida média de estados nucleares da ordem de ps. Os tempos de vidas determinados pelo métodos são (da esquerda para direita): 0.392(50) ps, 0.260(22) ps e 0.182(14) ps. Modificado da ref. [13].*

excitado recue em um meio material (tipicamente um substrato de Au ou Pb), a energia do raio- $\gamma$  emitido dependerá da velocidade instantânea do núcleo,  $v(t)$ , que é correlacionada com o freamento desse núcleo no substrato. Um exemplo de espectro obtido por esse método é apresentado na Fig. 1.6. Sendo bem conhecido o poder de freamento do núcleo em recuo no substrato, a análise da forma do espectro gama permite determinar com boa precisão a vida média do estado nuclear. Em outras palavras, o conhecimento da dinâmica de freamento do núcleo excitado em recuo no material absorvedor permite definir uma referência temporal, na faixa de pico-segundos, necessária para as medidas.

Tipicamente as velocidades iniciais desses núcleos excitados são da ordem de alguns porcentos da velocidade da luz,  $c$ . Nessas energias, as previsões quantitativas são pouco precisas e isso acaba refletindo nas incertezas finais das vidas médias. Portanto são indispensáveis medidas experimentais desses freamentos para aumentar a acurácia nas medidas com DSAM.

Em acréscimo, modelos teóricos para o freamento de íons pesados carecem de dados experimentais que os fundamentem ou que direcionem para novos conceitos teóricos. Um aspecto interessante previsto por alguns modelos é a dependência entre o freamento à baixas energias e a velocidade para íon pesado prevista por alguns modelos[7, 8]. Dados experimentais em alguns meios dão suporte à essa dependência. A validade dessa linearidade é contestada na ref. [14]. Para meios semicondutores (como Si e Ge), essa dependência é claramente distinta. Supostamente, a energia de *gap* entre as bandas de valência e condução deve afetar o freamento.

Na Fig. (1.7) são indicados os dados experimentais disponíveis para os

1	<b>H</b> 1 1.008 Hydrogen	2											<b>He</b> 2 4.00 Helium					
2	<b>Li</b> 3 6.94 Lithium	<b>Be</b> 4 9.01 Beryllium											<b>B</b> 5 10.81 Boron	<b>C</b> 6 12.01 Carbon	<b>N</b> 7 14.01 Nitrogen	<b>O</b> 8 16.00 Oxygen	<b>F</b> 9 19.00 Fluorine	<b>Ne</b> 10 20.18 Neon
3		<b>Mg</b> 12 24.31 Magnesium	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	<b>Al</b> 13 26.98 Aluminum	<b>Si</b> 14 28.09 Silicon		<b>S</b> 16 32.07 Sulfur	<b>Cl</b> 17 35.45 Chlorine	<b>Ar</b> 18 39.95 Argon
4		<b>Ca</b> 20 40.08 Calcium		<b>Ti</b> 22 47.88 Titanium		<b>Cr</b> 24 52.00 Chromium					<b>Cu</b> 29 63.55 Copper						<b>Br</b> 35 79.90 Bromine	
5											<b>Ag</b> 47 107.87 Silver						<b>I</b> 53 126.90 Iodine	
6																		
7																		

Figura 1.7: Tabela periódica com os elementos para os quais existem dados experimentais do seu freamento em Au. Os elementos com uma faixa cinza indicam aqueles cujo freamento em Ge foi medido. Figura elaborada tomando como base os dados experimentais disponíveis na ref. [6]

freamentos em Au e Ge, com base na coletânea de dados da ref. [6]. É imediato observar que poucas medidas experimentais foram realizadas em Ge.

## 1.4 Unidades do Poder de Freamento

O poder de freamento é definido como a taxa de energia perdida pelo íon para o meio por unidade de comprimento atravessado, portanto possui unidade de força<sup>2</sup>. Existem várias unidades adotadas para o poder de freamento e uma dessas unidades é eV/Å.

Na física nuclear, é comum expressar a espessura de um alvo em função de sua densidade superficial (em g/cm<sup>2</sup>) que é diretamente relacionada com sua espessura, em unidades de comprimento  $\Delta x$  (cm), por sua densidade  $\rho$  (em g/cm<sup>3</sup>)

$$(g/cm^2) = \rho \times \Delta x \quad (1.2)$$

Como em geral as energias dos íons são medidas em MeV, o poder de freamento pode ser expresso em MeV/mg/cm<sup>2</sup>. Uma terceira unidade é obtida expressando-se a densidade superficial do freador como o número de átomos

<sup>2</sup>A essa força freadora (média) associa-se um vetor no sentido contrário ao momento linear do íon.



Fator de Conversão	Poder de Freamento em
$\rho \times 10^1$	eV/Å
$\rho \times 10^2$	keV/ $\mu\text{m}$
$\rho \times 10^2$	MeV/mm
1	keV/ $\mu/\text{cm}^2$
$10^3$	keV/mg/ $\text{cm}^2$
$A_2 \times 1,6606$	eV/ $10^{15}$ átomos/ $\text{cm}^2$

Tabela 1.1: Tabela de conversão das unidades de poder de freamento a partir da unidade MeV/mg/ $\text{cm}^2$ .  $\rho$  em g/ $\text{cm}^3$ .

por unidade de superfície (em átomos/ $\text{cm}^2$ ).

$$(\text{átomos}/\text{cm}^2) = (\text{g}/\text{cm}^2) \times \frac{N_0}{A_2} \quad (1.3)$$

em que  $N_0$  é o número de Avogadro. Nessa forma, o poder de freamento é geralmente expresso como eV/ $10^{15}$ átomos/ $\text{cm}^2$ . Outra unidade utilizada é a *unidade reduzida LSS* que será definida na seção 2.1.2.

Os parâmetros experimentais que serão abordados ao longo dessa tese estão frequentemente relacionados com a carga elementar  $e$ , com a massa do elétron,  $m_e$ , com a velocidade da luz,  $c$ , e com a constante de Planck,  $\hbar = h/2\pi$ . O cálculo de expressões que envolvam esses parâmetros torna-se relativamente simples quando unidades atômicas são adotadas. A tabela 1.2 apresenta algumas expressões para os parâmetros mais frequentes em unidades do S.I. (Sistema Internacional) e em unidades gaussianas juntamente com os seus respectivos valores.

Parâmetro (símbolo)	Expressão (unidades S.I.)	Expressão (unidades gaussianas)	Valor
raio de Bohr ( $a_0$ )	$4\pi\epsilon_0\hbar^2/m_e e^2$	$\hbar^2/m_e e^2$	0.05292 nm
energia de Rydberg ( $R$ )	$e^2/8\pi\epsilon_0 a_0$	$e^2/2a_0$	13.6057 eV
velocidade de Bohr ( $v_0$ )	$e^2/4\pi\epsilon_0\hbar$	$e^2/\hbar$	$2.1877 \times 10^6$ m/s $= \frac{c}{137.04}$ m/s

Tabela 1.2: Principais parâmetros atômicos, suas expressões e valores numéricos.

Uma expressão muito recorrente nas teorias de freamento (em unidades gaussianas) é apresentada a seguir com o seu respectivo valor:

$$\frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v^2} = \frac{8\pi a_0^2 R Z_1^2 Z_2}{(v/v_0)^2} = 0.96 \frac{Z_1^2 Z_2}{(v/v_0)^2} \text{ eV} \cdot \text{nm}^2 \quad (1.4)$$



# Capítulo 2

## Teorias do Freamento

Neste capítulo serão abordados os conceitos das principais teorias e modelos semiempíricos existentes para o freamento eletrônico e nuclear.

### 2.1 Freamento Eletrônico

As teorias de Bohr [15] e Bethe [16] formam a base teórica para os diversos modelos existentes e por esse motivo serão brevemente abordadas. Essas teorias analisam individualmente a colisão do íon com os elétrons do átomo. O tratamento da colisão do ponto de vista coletivo é apresentado pela teoria de Lindhard, Scharff e Schiott (LSS) [17, 18], que parte do estudo da interação de uma partícula com um gás de elétrons livres. A teoria LSS prevê o comportamento do freamento para baixas velocidades, e também será brevemente abordada nesta seção.

Nas últimas décadas, diversos modelos teóricos têm sido desenvolvidos e dessas 2 se destacam: i) o da Aproximação de Convolução Unitária (UCA - *Unitary Convolution Approximation*) [19, 20], que tem como conceito base a formulação da teoria de Bloch dependente do parâmetro de impacto; e ii) a Teoria Binária (BT - *Binary Theory*) [21, 22], cuja formulação geral é muito próxima à do modelo de Bohr. Estas teorias também serão descritas.

#### 2.1.1 Teorias de Bohr, Bethe e Bloch

Em 1913, N. Bohr desenvolveu a primeira teoria para o freamento eletrônico calculando o poder de freamento da matéria por meio da mecânica clássica não relativística [15]. Bohr considerou um projétil de carga  $Z_1e$  e massa  $M_1 \gg m_e$ , sendo  $m_e$  a massa do elétron, colidindo com o elétron atômico do meio. O

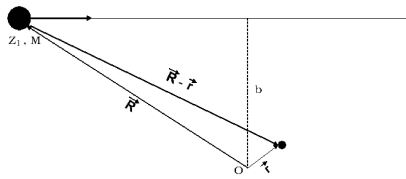


Figura 2.1: Geometria para o freamento eletrônico na teoria clássica de Bohr.

projétil se desloca com velocidade  $\vec{v}$  e com parâmetro de impacto  $b$  com relação ao elétron, conforme ilustrado na Fig. 2.1. Nesse modelo, o projétil é descrito como uma partícula de carga pontual.

A perda de energia do íon equivale à quantidade de energia absorvida pelo elétron devido à interação com o campo eletromagnético do íon em movimento. São consideradas separadamente interações próximas e distantes, definidas a partir de um parâmetro de impacto crítico  $b_0$ . Para valores de  $b < b_0$  (colisão próxima) o elétron é tratado como livre e para  $b > b_0$  (colisões distantes) é levada em conta a energia de ligação do elétron.

A teoria de Bohr é limitada para os casos em que a velocidade do íon é muito maior que a velocidade orbital do elétron. Nesse contexto, o elétron é considerado em repouso durante o tempo de interação. Os detalhes matemáticos da teoria podem ser encontrados na referência [23]. A expressão final derivada por Bohr é dada por:

$$\frac{dE}{dx}_{Bohr} = \frac{4\pi N Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \ln \left( \frac{1,123 m_e v^3}{Z_1 e^2 w_0} \right) \quad (2.1)$$

com  $w_0$  correspondendo a frequência de oscilação característica do elétron atômico.

A primeira formulação quântica do problema foi desenvolvida por H. A. Bethe em 1930 [16]. Inicialmente, Bethe considerou a partícula incidente com velocidade alta o suficiente, se comparada à velocidade orbital do elétron atômico, contudo não-relativística. Nessa situação, o problema pode ser tratado pela primeira ordem de aproximação de Born para a teoria de espalhamento quântico. Em oposição à teoria de Bohr, a teoria de Bethe classifica a colisão em termos da quantidade de momento transferido durante a colisão, que é um observável, e mais diretamente relacionado com a energia transferida aos elétrons. Assim, colisões distantes correspondem à baixa transferência de momento e vice-versa. Os detalhes matemáticos da teoria podem ser encontrados nas refs. [24, 25]. A expressão do poder de freamento derivado por Bethe é

dada por:

$$\frac{dE}{dx}_{Bethe} = \frac{4\pi N Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \ln \left( \frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) \quad (2.2)$$

sendo  $\langle I \rangle$  é a energia de ionização média por elétron. A energia de ionização média está relacionada com  $w_0$  pela equação  $\langle I \rangle = \hbar w_0$ .

Os resultados da teoria de Bohr e da de Bethe são sutilmente diferentes nos argumentos dos logaritmos (veja as eqs. 2.1 e 2.2). Uma característica comum destas teorias é a competição entre as contribuições de colisões próximas e distantes ao freamento. A conexão entre os resultados das descrições clássicas e quânticas foi obtida por Bloch [26]. A teoria de Bloch leva em conta a perturbação na função de onda dos elétrons atômicos, causada pela presença do íon, e desconsidera o efeito de ligação dos elétrons em colisões próximas. Para íons não-relativísticos, o resultado obtido é conhecido como equação de Bethe-Bloch:

$$\frac{dE}{dx}_{Bloch} = \frac{4\pi N Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) + \psi \{1\} - \text{Re} \psi \left\{ 1 + i \left( \frac{Z_1 c}{137v} \right) \right\} \right] \quad (2.3)$$

com  $\psi$  sendo a derivada logarítmica da função gama e  $\text{Re} \psi$ , a parte real de  $\psi$ . A equação acima se reduz ao limite clássico (Bohr) para  $Z_1 c / 137v \gg 1$  e ao limite quântico (Bethe) para  $Z_1 c / 137v \ll 1$  [4]. Da similaridade das equações (2.1)-(2.3) pode-se observar que o poder de freamento é o produto de dois fatores: i) um de caráter Coulombiano, que decresce suavemente em função da velocidade do íon; ii) e o outro é um termo logarítmico associado com a estrutura do material freador, que cresce suavemente em função da velocidade.

Posteriormente, vários trabalhos surgiram implementando correções à expressão de Bethe-Bloch. O excelente artigo de U. Fano [27] sumariza os trabalhos teóricos desenvolvidos nestas extensões. Em sua abordagem, Fano considera o momento transferido a um elétron ligado, analisando-o em 3 regiões distintas da energia transferida. Fano obteve uma versão relativística da expressão de Bethe-Bloch onde dois termos adicionais foram incluídos.

$$\frac{dE}{dx}_{Fano} = \frac{4\pi N Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} \left[ \ln \left( \frac{2m_e v^2}{\langle I \rangle} \right) - \frac{C(v)}{Z_2} + \frac{v^2}{c^2} - \ln \left( 1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{\delta}{2} \right] \quad (2.4)$$

Entre os colchetes, o primeiro termo é simplesmente a expressão originalmente obtida por Bethe. O segundo termo é denominado *correção de camadas*, que simula o efeito devido ao movimento relativo dos elétrons atômicos. O último

termo corresponde a uma correção relacionada à densidade do meio, em que efeitos de polarização dos átomos reduzem o poder de freamento. Os demais termos são meramente correções relativísticas.

Existem várias correções propostas para aprimorar a expressão obtida por Fano. Tradicionalmente, isto é realizado expandindo-se o *stopping number*<sup>1</sup>  $B$  em potências de  $Z_1$ , que pode ser feito para incrementar correções adicionais. Assim, o *stopping number* na expressão de Bethe-Bloch é expandido como

$$B = [L_0(\beta) + Z_1 L_1(\beta) + Z_1^2 L_2(\beta) + \dots] \quad (2.5)$$

com o termo  $L_0$  contendo todos os fatores de correção da expressão (2.4) obtida por Fano. O segundo termo na expansão,  $L_1$ , é denominado de correção *Barkas* ou correção  $Z_1^3$ . Por conter um termo de potência ímpar do número atômico do íon, e portanto sensível ao sinal da carga (+, -), essa correção é, por exemplo, responsável pelo reduzido poder de freamento para o antipróton em relação ao freamento do próton num mesmo meio. O termo  $L_2$  é conhecido como *correção de Bloch* e corresponde a uma pequena correção na força de ligação atômica do elétron. Maiores detalhes podem ser encontrados no artigo de revisão de Ziegler sobre o tema [28].

### 2.1.2 Teoria de LSS

Ao longo das décadas de 50 e 60, Lindhard e colaboradores desenvolveram uma teoria unificada para o freamento nuclear e eletrônico conhecida como teoria-LSS (Lindhard, Scharff e Schiott) [8, 17, 29]. A abordagem da teoria-LSS é baseada na análise do freamento de partículas por um gás de elétrons livres, na qual a partícula incidente é tratada como uma perturbação no estado do gás de elétrons livres [30, 18]. Dentro destas considerações, Lindhard *et al.* calcularam o freamento de um íon em um gás de elétrons livres. Para um gás de densidade uniforme  $\rho_0$ , o poder de freamento pode ser escrito como

$$\frac{dE}{dx} = \frac{Z_1^* e^4}{m_e v^2} \rho_0 L(\rho_0, v) \quad (2.6)$$

---

<sup>1</sup> termo entre colchetes na eq.(2.4).

com  $L(\rho_0, v)$ , função de interação, é dada por

$$L(\rho_0, v) = \frac{i}{\pi\omega_0^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_{-kv}^{kv} \omega d\omega \left[ \frac{1}{\epsilon^l(k, \omega)} - 1 \right] \quad (2.7)$$

sendo  $\omega_0^2 = 4\pi e^2 \rho_0 / m_e$  a frequência do plasma, e  $\epsilon^l(k, \omega)$ , a constante dielétrica longitudinal do gás eletrônico.

O modelo do gás de elétrons pode ser aplicado, por meio da aproximação de densidade local, ao freamento de partículas na matéria. Em essência, a aproximação de densidade local supõe, em cada elemento de volume do sólido, um plasma independente com densidade igual à densidade eletrônica local. O freamento eletrônico é calculado somando-se a contribuição sobre todo o volume do átomo do meio freador:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi N Z_1^{*2} Z_2 e^4}{m_e v^2} \int_0^\infty \rho(r) L(\rho, v) 4\pi r^2 dr \quad (2.8)$$

Para estimar a densidade eletrônica do átomo ( $\rho(r)$ ), Lindhard e colaboradores utilizaram o modelo de Thomas-Fermi para o átomo [24]. Verifica-se que a integral acima se reduz ao termo correspondente da expressão de Bethe para o freamento em altas velocidades, incluindo as correções de camadas. Posteriormente Lindhard [8] obteve uma expressão para o freamento em baixas velocidades. Em sua expressão final para o freamento a baixas velocidades, os autores utilizaram unidades reduzidas para a energia e distância ( $\epsilon$  e  $\rho$  respectivamente *energia reduzida de LSS* e *distância reduzida de LSS*):

$$\epsilon = \frac{4\pi\epsilon_0 M_1 M_2 v^2 a}{2Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} \quad (2.9)$$

$$\rho = 4\pi a^2 \frac{A_1 A_2}{(A_1 + A_2)^2} N x \quad (2.10)$$

Nestas unidades, a expressão para o freamento da teoria LSS em baixas energias torna-se extremamente simples:

$$\frac{d\epsilon}{d\rho} = k_e \epsilon^{1/2} \quad (2.11)$$

com

$$k_e = 0,0793 \frac{Z_1^{2/3} Z_2^{1/2} (A_1 + A_2)^{3/2}}{A_1^{3/2} A_2^{1/2} (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4}} \quad (2.12)$$

Nessas unidades de MeV/mg/cm<sup>2</sup>, a expressão da teoria de LSS pode ser

reescrita como:

$$\frac{dE}{dx}_{\text{LSS}} = \frac{73,9 Z_1^{7/6} Z_2 E^{1/2}}{A_1^{1/2} A_2 \left( Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3} \right)^{3/2}} \quad (2.13)$$

A eq. (2.11) deixa de ser válida para  $v > Z_1^{2/3} v_0$ . A dependência teórica do freamento com a velocidade de recuo do íon torna-se clara nesta expressão.

### 2.1.3 Teoria da Aproximação de Convolução Unitária

A Aproximação de Convolução Unitária (ACU) é um modelo para a descrição do freamento eletrônico em termos do parâmetro de impacto, sendo útil para situações de *channeling* do projétil. Para íons pesados com energias superiores a 1 keV, a característica ondulatória das partículas pode ser ignorada e uma descrição em termos do parâmetro de impacto pode ser aplicada ao estudo do freamento de íons pesados na matéria. Além disso, desvios na trajetória inicial destas partículas são insignificantes na região de parâmetros de impacto relevantes para o freamento eletrônico.

Para calcular a perda de energia provocada pela excitação e/ou ionização do átomo do meio deve-se considerar as amplitudes de transição,  $a_f(\vec{b})$ , entre o estado inicial  $|0\rangle$ , com energia  $E_0$ , e os possíveis estados finais  $|f\rangle$ , com energias  $E_f$ . A perda de energia  $\Delta E$  é dada pela soma de todos os estados finais do átomo do meio.

$$\Delta E = \sum_f \left| a_f(\vec{b}) \right|^2 (E_f - E_0) \quad (2.14)$$

Nos últimos anos esses cálculos têm sido realizados utilizando métodos já tradicionais da física atômica como, por exemplo, cálculos baseados na Aproximação de Onda Plana de Born (PWBA - Plane Wave Born Approximation), Continuum Distorted Wave (CDW-EIS), Classical Trajectory Monte Carlo (CTMC) e Atomic Orbital Coupled-Channel (AOCC). Todos esses métodos produzem resultados quantitativos satisfatórios, dentro dos seus limites de aplicabilidade, para o freamento dependente do parâmetro de impacto da colisão. No entanto, estes cálculos demandam um grande esforço computacional devido à soma em todos os estados finais relevantes. Torna-se interessante obter uma solução aproximada dependente do parâmetro de impacto de modo a tirar peso computacional exigido nestas simulações. É dentro desse contexto que o modelo para a ACU está inserido.

Para colisões distantes (altos parâmetros de impacto) utiliza-se a aproxi-



mação de dipolo e a expressão analítica para o freamento é dada por:

$$\frac{dE}{dx}(b) = \frac{2Z_1^2}{v^2b^2} \sum_i f_i g \left[ \frac{(E_f - E_i) b}{v} \right] \quad (2.15)$$

em que  $g(x)$  é uma função que envolve funções de Bessel modificadas e  $f_i$  são as amplitudes de oscilação do dipolo.

Para os parâmetros de impacto mais próximos ao elétron e para íon a altas velocidades, é possível desconsiderar o movimento relativo do elétron e escrever o freamento como:

$$\frac{dE}{dx}(b) = \int d^2r_{\perp} T(\vec{b} - \vec{r}_{\perp}) \int dz \rho(\vec{r}_{\perp}, Z_1) \quad (2.16)$$

em que  $T(\vec{b})$  é um função que descreve a energia transferida na colisão e que envolve funções de Bessel.  $\vec{r}_{\perp}$  é um vetor perpendicular à direção de incidência do íon.

Numa aproximação perturbativa, os autores propuseram descrever o freamento para todos os impactos de parâmetro utilizando a equação:

$$\frac{dE}{dx}(b) = \int d^2r_{\perp} \mathcal{F}(\vec{b} - \vec{r}_{\perp}) \int dz \rho(\vec{r}_{\perp}, z) \quad (2.17)$$

com  $\mathcal{F}(\vec{b})$  dado por:

$$\mathcal{F}(\vec{b}) = \frac{2Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 m_e v^2 b^2} \times h(2m_e v b / \hbar) \times \sum_i f_i g \left[ \frac{(E_f - E_i) b}{v} \right] \quad (2.18)$$

Os parâmetros principais são a densidade eletrônica e as amplitudes de oscilações do elétrons. Os valores obtidos pelo tratamento perturbativo são consistentes com as previsões da teoria de Bethe-Bloch para íons leves e energéticos.

A ACU é uma extensão da aproximação perturbativa, na qual é incorporado um tratamento não perturbativo, baseado no modelo de Bloch, para colisões próximas. O principal inconveniente no tratamento perturbativo é a introdução de uma probabilidade de ionização que, para determinados parâmetros de impacto, pode exceder a 100% (criação de elétrons). Esse efeito, aparentemente recorrente para íons pesados, é contornado no tratamento não-perturbativo da teoria de Bloch, pois as probabilidades são normalizadas nesse caso.

Os detalhes dos modelo ACU são apresentados na ref. [19], em que a

equação obtida é similar a eq. (2.18), exceto pela inclusão de um termo de escala na função  $h$ :

$$\mathcal{F}(\vec{b}) = \frac{2Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 v^2 b^2} \times h\left(\frac{2vb}{\eta}\right) \times \sum_i f_i g\left[\frac{(E_f - E_i)b}{v}\right] \quad (2.19)$$

com  $\eta = \exp[\text{Re}\psi(1 + i\gamma) - \psi(1)]$ , sendo  $\gamma = Z_1 e^2 / (4\pi\epsilon_0 \hbar v)$ .

Os dois primeiros termos na eq. (2.19) levam em conta a colisão com parâmetros de impacto baixo e para  $\eta = 1$  corresponde a energia transferida obtida em primeira aproximação perturbativa.

O efeito de blindagem do projétil é levado em conta, tanto para colisões próximas como distantes, através por meio de um parâmetro de impacto dependente da carga efetiva do projétil. No entanto, vale ressaltar que o modelo considera os elétrons do projétil apenas como "observadores" da colisão, i.e., não são considerados excitações eletrônicas dos projétil.

### 2.1.4 Teoria Binária

A Teoria Binária (TB) é um modelo para o freamento eletrônico desenvolvido por P. Sigmund e A. Schinner cujos fundamentos teóricos são muito próximos aos da teoria clássica de Bohr. De fato, a abordagem diferenciada para colisões próximas e distantes é um sério problema para a incorporação do efeito Barkas dentro de uma abordagem clássica. Similarmente, mas não tão crítico, é a incorporação de correções de camadas. Esses são apenas alguns indicadores para a necessidade de um modelo clássico alternativo não-perturbativo.

A Teoria Binária fornece uma abordagem clássica não-perturbativa em que os principais pontos que a diferenciam da teoria de Bohr são: i) a utilização de um potencial de interação íon-elétron que evita o uso de métodos perturbativos e ii) a ausência de uma distinção explícita entre colisões distantes e próximas. A teoria leva em consideração a blindagem eletrônica do projétil e o movimento intrínseco dos elétrons do átomo do alvo.

Em termos qualitativos, a teoria de Bohr é caracterizada pela representação da interação íon-elétron por meio do potencial Coulombiano. A TB considera essa interação por um potencial do tipo

$$V_{eff}(r) = -\frac{Z_1 e^2}{(4\pi\epsilon_0) r} \exp\left(-\frac{r}{a_{ad}}\right), \quad \text{com } a_{ad} = \frac{v}{\omega_0} \quad (2.20)$$

A partir do potencial de interação numa colisão binária é possível determinar a energia transferida,  $T(b, v)$ , por meio de uma equação de movimento.

Na energia transferida ao elétron é também necessário incluir a energia que é transferida na forma potencial. Esse efeito é simulado pela inclusão de um termo harmônico na expressão para  $T(b, v)$  [21].

A seção de choque de freamento para um elétron na camada  $l$ ,  $S_l$ , é determinada por:

$$S_l = \int_0^\infty T_l(b, v) 2\pi b db \quad (2.21)$$

e a seção de choque de freamento,  $S$ , dada por:

$$S = Z_2 \sum_l f_l S_l \quad (2.22)$$

em que  $f_l$  são as amplitudes de oscilação dipolar para o elétron na camada  $l$ . O poder de freamento é dado, então, por:

$$\frac{dE}{dx} = NS = NZ_2 \sum_l f_l S_l \quad (2.23)$$

Os cálculos do freamento são realizados numericamente resolvendo as integrais de trajetória e as equações (2.21-2.23). Na ref. [21] é demonstrado que os resultados numéricos obtidos com o potencial na forma da eq. (2.20) equivalem aos da teoria de Bohr. O mais importante é que o tratamento evita o uso de métodos perturbativos. Com isso, efeitos de ordens superiores em  $Z_1$ , como o efeito Barkas por exemplo, estão implícitos no modelo.

Para íons pesados, o efeito de blindagem do projétil é incorporado ao modelo via um potencial de interação, a seguir:

$$V_{eff}(r) = -\frac{q_1 e^2}{(4\pi\epsilon_0) r} e^{-r/a_{ad}} - \frac{(Z_1 - q_1) e^2}{(4\pi\epsilon_0) r} e^{-r/a} \quad (2.24)$$

com

$$\frac{1}{a^2} = \frac{1}{a_{ad}^2} + \frac{1}{a_s^2}$$

sendo  $q_1$  a carga, e  $(Z_1 - q_1)$ , o número de elétrons do projétil.

A teoria Binária tem sido implementada no programa PASS, que inclui também correções relativísticas e efeitos de excitação/ionização do projétil. Extensivas comparações do modelo com dados experimentais demonstram relativo sucesso na descrição do freamento inclusive para o regime de baixas velocidades do íon.

### 2.1.5 Modelos Semiempíricos para o Freamento Eletrônico

Modelos semi-empíricos baseiam-se no comportamento esperado para o freamento e na interpolação de dados experimentais existentes. Um modelo muito utilizado durante os anos 70 foi o de Northcliffe e Schilling [31]. A partir dos anos 80, Ziegler, Biersack e Littmark desenvolveram um método bem estabelecido e de ampla aplicabilidade para obtenção do freamento de diversos íons em inúmeros meios sólidos e gasosos [32].

#### 2.1.5.1 Tabelas de Northcliffe e Schilling

Northcliffe e Schilling, em 1970, desenvolveram um método semiempírico de interpolação e extrapolação para o freamento de vários íons ( $1 \leq Z_1 \leq 103$ ) em 24 meios distintos, inclusos meios sólidos e gasosos, e para energias de recuo na região  $0,0125 \leq E/A_1 \leq 12\text{MeV/u.m.a.}$ , distribuídas logaritmicamente [31].

A hipótese fundamental desse modelo estabelece que o poder de freamento relativo entre dois materiais, em uma dada velocidade, independe do íon incidente [4]. Explicitamente, sejam dois freadores distintos,  $F_1$  e  $F_2$ , e dois projéteis distintos,  $P_1$  e  $P_2$ . Supõe-se que para a mesma velocidade de recuo dos íons temos

$$\left[ \frac{(dE/dx)_{P_1, F_1}}{(dE/dx)_{P_1, F_2}} \right] = \left[ \frac{(dE/dx)_{P_2, F_1}}{(dE/dx)_{P_2, F_2}} \right] \quad (2.25)$$

em que  $(dE/dx)_{P_1, Z_1}$  denota o poder de freamento do freador  $F_1$  para o projétil  $P_1$ , e assim correspondentemente.

Em acréscimo, considera-se que o poder de freamento relativo varia suavemente como função de  $Z_2$  e  $v$ . A forma dessa variação é determinada a partir de medidas experimentais e amparado por teorias nas regiões onde acredita-se ser válida.

Levando em conta as hipóteses do modelo, os autores construíram um conjunto de curvas do poder de freamento de vários íons em alumínio (Al), frequentemente considerado como meio freador padrão [33]. Assim, o freamento de qualquer íon em Al é determinado por interpolação desse conjunto de curvas. Em seguida, construíram um conjunto de curvas do poder de freamento de vários meios em relação ao freamento em Al. Os valores dos freamentos com base nestas hipóteses são tabelados na ref. [31].

### 2.1.5.2 Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL)

No início da década de 80, Ziegler, Biersack e Littmark desenvolveram um modelo semiempírico para a previsão do freamento de íons com  $Z_1 \leq 92$  em qualquer meio (sólido ou gasoso), numa ampla região de energia do projétil (de 1 keV/u.m.a. a 2 GeV/u.m.a.) [32]. O modelo se baseia em determinar o freamento de um determinado íon em relação ao freamento de próton e hélio.

Para o freamento de prótons, os autores elaboraram curvas empíricas de ajuste dos dados experimentais disponíveis. Esses ajustes foram interpolados e extrapolados para cobrir meios e/ou energias para os quais não se dispunha de medidas experimentais. O freamento de íons de He é determinado com base nas curvas de ajuste do freamento de prótons com a aplicação de uma carga efetiva conveniente. Para baixa energias o modelo leva em conta a linearidade do freamento em função da velocidade de recuo do projétil, uma expectativa teórica apresentada dentro do modelo de LSS para o freamento eletrônico.

Para o freamento de íons pesados, os autores consideraram 3 regiões distintas da energia do íon para serem consideradas: i)  $E > 200$  keV/u.m.a.; ii)  $E < 25$  keV/u.m.a. e iii)  $25 < E < 200$  keV/u.m.a.

Na primeira região, ( $E > 200$  keV/u.m.a.) o poder de freamento de íons pesado ( $dE/dx_{Z_1}$ ) é relacionado com o equivalente poder de freamento para prótons ( $dE/dx_{Z_1=1}$ ) utilizando a carga efetiva do íon pesado ( $Z_1^*$ ):

$$dE/dx_{HI} = dE/dx_H Z_{HI}^{*2} = dE/dx_H Z_{HI}^2 \gamma^2 \quad (2.26)$$

sendo  $\gamma = Z_1^*/Z_1$  a carga efetiva fracionada, com valor entre 0 e 1. Os valores de  $dE/dx_{Z_1}$  e  $dE/dx_{Z_1=1}$  são tomados para o mesmo meio e velocidade do íon.

Na região de baixas energias ( $E < 25$  keV/u.m.a.), as velocidades dos elétrons do meio são, em geral, maiores que a velocidade de deslocamento do íon. Diversos trabalhos voltados para o freamento em baixas velocidades, por exemplo a teoria LSS, sugerem que o freamento apresenta uma dependência linear com a velocidade. Essa dependência foi confirmada experimentalmente para várias combinações íon-meio, mas existem casos em que a proporcionalidade não é válida. Particularmente, para meios semicondutores, como Si e Ge, dados experimentais indicam que nesses meios o freamento é proporcional a  $v^{0.7}$ . Por conta das peculiaridades, o modelo de ZBL supõe a dependência linear válida para todas as possíveis combinações, exceto para combinações envolvendo íons com  $Z_1 \leq 19$  em meios de C, Si e Ge, para os quais a dependência  $v^{0.75}$  é empregada.

A região de energias intermediárias ( $25 < E < 200$  keV/u.m.a.), é de extrema importância para a construção de curvas de freamento que sejam suaves ao longo de toda região de energias. Uma análise cuidadosa foi desenvolvida pelos autores baseada na teoria de Brandt e Kitagawa (BK) [34]. A hipótese básica diz respeito ao estado de carga do íon. A teoria BK supõe que os elétrons a serem arrancados do íon são aqueles cujas velocidades orbitais são menores que a velocidade do íon relativo os elétrons do meio. Utilizando-se o modelo de Thomas-Fermi, a velocidade relativa do íon ( $v_r$ ) é

$$\begin{aligned} v_r &= v(1 + 0,2v_{TF}^2/v^2) & \text{para } v > v_{TF} \\ v_r &= 0,75v_{TF}(1 + 2v^2/3v_{TF}^2 - v^4/15v_{TF}^4) & \text{para } v < v_{TF} \end{aligned} \quad (2.27)$$

Ziegler *et. al.* relacionaram o grau de ionização ( $q$ ) do íon incidente em função de sua velocidade relativa. A expressão semiempírica obtida foi

$$q = 1 - \exp\left(0,803v_r^{*0,3} - 1,317v_r^{*0,6} - 0,382v_r^* - 0,009v_r^{*2}\right) \quad (2.28)$$

sendo  $v_r^* = v_r/v_0Z_1^{2/3}$ . Uma vez determinado o estado de carga do íon, a teoria de BK estabelece a distribuição eletrônica do íon em função do grau de ionização. Essa distribuição é relacionada com o comprimento de blindagem do projétil ( $\Lambda$ ), expresso em função do número atômico do íon e de seu grau de ionização,

$$\Lambda = \frac{2a_0(1-q)^{2/3}}{Z_1^{1/3}\left(1 - \frac{1-q}{7}\right)} \quad (2.29)$$

em que  $a_0$  é o raio de Bohr. Por fim, considerando colisões próximas e distantes, a teoria BK fornece uma expressão simples para a carga efetiva do íon na matéria:

$$\gamma = q + C(1-q)\ln\left[1 + (2\Lambda v_F/a_0v)^2\right] \quad (2.30)$$

na qual  $C$  é uma quantidade próxima a  $1/2$ . Ziegler, Biersack e Littmark analisaram expressão com base nos dados experimentais verificando que o melhor ajuste obtido correspondia a  $C \approx (v/v_{TF})^2/2$ . A partir da carga efetiva, o poder de freamento de ZBL é dado por (2.26).

Para o cálculo do poder de freamento no modelo ZBL, os autores disponibilizam o programa SRIM [5] cujo banco de dados é continuamente atualizado. O modelo ZBL consegue reproduzir razoavelmente bem as oscilações do freamento em função de  $Z_1$  e  $Z_2$ .

## 2.2 Freamento Nuclear

O freamento nuclear é modelizado com base numa colisão binária entre o íon e o átomo, considerando: i) a independência entre as componentes eletrônica e nuclear do freamento e ii) a colisão elástica sendo regida por um potencial esfericamente simétrico. O desacoplamento das componentes nuclear e eletrônica é justificado pelo fato de que, para colisões próximas, a quantidade de energia transferida numa colisão íon-átomo é significativamente maior que na colisão íon-elétron. Isso implica uma separação aproximada entre os freamentos nuclear e eletrônico em função do parâmetro de impacto da colisão. A teoria clássica do espalhamento binário apóia-se na conservação do momento angular durante a colisão, para tanto é necessária a existência e para isso a hipótese de uma força central.

De modo geral, os potenciais interatômicos são descritos como um termo Coulombiano (entre os núcleos participantes da colisão) multiplicado por uma função de blindagem  $\Psi(r)$ ,

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \Psi(r) \quad (2.31)$$

em que  $r$  é a distância entre os núcleos interagentes. A função de blindagem leva em consideração a distribuição de carga tanto do íon como do átomo. A estimativa da distribuição de cargas eletrônica é obtida por meio de modelo atômicos como o de Thomas-Fermi, Lenz-Jensen e Moliere [32]. Um potencial mais realista, com a inclusão de estruturas de camadas dos átomos, é obtido utilizando o método de Hartree-Fock para essas distribuições [32].

Da mecânica clássica de espalhamento por um potencial central, o ângulo de espalhamento do íon (no referencial do centro de massa,  $\theta_{cm}$ ) é uma função de 5 variáveis,  $\theta_{cm} = \theta_{cm}(Z_1, Z_2, v, \mu, b)$ , onde  $\mu$  é a massa reduzida do sistema e  $b$  é o parâmetro de impacto da colisão. Sendo o potencial interatômico estático, que dependa apenas de  $Z_1$ ,  $Z_2$  e da distância  $r$  entre as partículas, a dependência de  $\theta_{cm}$  se reduz a 4 variáveis, em que  $v$  e  $\mu$  são combinados em uma única variável,  $\mu v^2$ .

Uma redução a mais na equação em  $\theta_{cm}$  é obtida aplicando um tratamento ao potencial de Thomas-Fermi, em que é introduzida uma constante apropriada (distância de blindagem  $a_{TF}$ ).

$$a_{TF} = \frac{0.8853a_0}{\left(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}\right)^{1/2}} \quad (2.32)$$

Em termos dessa nova coordenada,  $\frac{r}{a_{TF}}$ , o potencial interatômico, eq. (2.31), baseado em Thomas-Fermi praticamente independe dos números atômicos do íon e do átomo. O mesmo ocorre, com boa aproximação, para os potenciais calculados com os demais modelos atômicos. Assim, a dependência de  $\theta_{cm}$  se reduz a apenas duas variáveis, que são suficientes para descrever a colisão. A partir do ângulo de espalhamento do projétil é possível deduzir sua energia após a colisão e, conseqüentemente, determinar a perda de energia [32].

### 2.2.1 Lindhard, Scharff e Schiott (LSS)

Lindhard e colaboradores [29] procuraram descrever as colisões entre íons e átomos em termos das similaridades no freamento de diversos pares íon-átomo. Uma análise detalhada destas similaridades sugere descrever o ângulo de espalhamento como função de apenas duas variáveis,  $\theta_{cm} = \theta_{cm}(\epsilon, \frac{b}{a_{TF}})$ , em que  $\epsilon$  foi definido na equação (2.9).

Na tentativa de obter uma expressão com o menor número possível de variáveis independentes, Lindhard *et. al.* analisaram o problema com base num tratamento perturbativo no qual, o ângulo de espalhamento do íon é função de um único parâmetro, denominado pelos autores de parâmetro  $t$ , suficiente para descrever o processo de colisão para qualquer caso de íon-átomo. Esse parâmetro  $t$  é dado por

$$t^{1/2} = \epsilon \operatorname{sen} \left( \frac{\theta_{cm}}{2} \right)$$

Da forma como é elaborada a teoria de LSS, as expressões descritas em termos das unidades reduzidas possui um caráter geral que independe dos tipos de íon e átomo envolvido na colisão. A seção de choque diferencial do freamento nuclear é dada por

$$d\sigma = \frac{\pi a_I^2 f(t^{1/2})}{2t^{3/2}} dt \quad (2.33)$$

em que a função  $f(t^{1/2})$  é determinada por meio de métodos numéricos a partir do potencial interatômico aplicado na colisão. Lindhard utilizou o potencial de Thomas-Fermi, obtendo a  $f(t^{1/2})$  correspondente<sup>2</sup>. A seção de choque diferencial relaciona-se com a seção de choque de freamento nuclear  $S_n$  por uma

---

<sup>2</sup>Para interesses computacionais, esta função pode ser aproximada por uma função analítica apresentada na ref. [35]



integral em  $d\sigma$  ponderado pela energia transferida na colisão,  $T$ :

$$S_n = \int T d\sigma \quad (2.34)$$

Lindhard introduziu a seção de choque reduzida do freamento nuclear  $s_n(\epsilon)$ , na qual as energias e distâncias são descritas em unidades reduzidas. Nestas unidades,  $s_n$  é dada por:

$$s_n(\epsilon) = \frac{1}{\epsilon} \int \frac{dt}{2t^{\frac{1}{2}}} f(t^{\frac{1}{2}}) \quad (2.35)$$

Expressões analíticas do poder de freamento nuclear nas unidades reduzidas de LSS pode ser obtida na ref. [35], e são reproduzidas a seguir:

$$\frac{d\epsilon}{d\rho} = N s_n(\epsilon) = \begin{cases} 0,611e^{(-\epsilon^{-1/2}/1,919)} \left[ 1 - e^{(-\epsilon^{-1/2}/0,2406)} \right] & \epsilon \leq 2,4 \\ 0,5\epsilon \left[ 0,3 + \ln \left( \frac{0,6+\epsilon^2}{\epsilon} \right) \right] & \epsilon > 2,4 \end{cases} \quad (2.36)$$

### 2.2.2 Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL)

Ziegler, Biersack e Littmark [32] desenvolveram um potencial interatômico mais realista, gerado a partir de uma sistemática envolvendo o cálculo numérico do potencial interatômico para várias combinações íon-átomo. O potencial utilizado nos cálculos foi o de Thomas-Fermi em que a informação da distribuição de carga, tanto do íon como do átomo, foi obtida com base no método de Hartree-Fock.

A utilização do parâmetro de blindagem  $a$ , eq. (2.32), faz com que as diferentes funções de blindagem calculadas se ajustem próximas uma das outras. Ziegler *et. al.* obtiveram empiricamente um parâmetro de blindagem  $a_u$  que produz um efeito mais eficiente, com dispersão em torno de 5% para os diferentes potenciais interatômicos calculados. O fator de escala  $a_u$ , denominado pelos autores de *comprimento de blindagem universal*, é dado por:

$$a_u = \frac{0,8854a_0}{(Z_1^{0,23} + Z_2^{0,23})} \quad (2.37)$$

Utilizando o parâmetro acima os potenciais interatômicos calculados numericamente foram ajustados por uma única função de blindagem média, denominado pelos autores de *Potencial Universal*, dada por:

$$\Phi_u(x) = 0,1818e^{-3,20x} + 0,5099e^{-0,94x} + 0,2802e^{-0,40x} + 0,0282e^{-0,20x} \quad (2.38)$$

com  $x = r/a_u$ .

Um vez determinado o potencial universal, baseado em distribuições atômicas calculadas a partir de métodos de Hartree-Fock e ajustada por um único potencial, a determinação da perda de energia se dá pelo cálculo do ângulo de espalhamento e da energia da partícula espalhada. No que segue, o procedimento é similar ao desenvolvido na teoria LSS, derivando-se a função  $f(t^{\frac{1}{2}})$  para o potencial universal de ZBL.

A partir do potencial universal e com auxílio das unidades reduzidas de LSS, a seção de choque reduzida do freamento nuclear de ZBL pode ser calculada por

$$s_n(\epsilon) = \begin{cases} \frac{\ln(1+1,1383\epsilon)}{2(\epsilon+0,013\epsilon^{0,212}+0,196\epsilon^{0,5})} & \text{para } \epsilon \leq 30 \\ \frac{\ln(\epsilon)}{2\epsilon} & \text{para } \epsilon > 30 \end{cases} \quad (2.39)$$

## 2.3 Resumo das teorias e modelos

Os trabalhos pioneiros de Bohr e Bethe ainda formam a base da maioria das teorias atuais. Esses trabalhos originais se utilizaram de aproximações para extrair uma expressão analítica para o poder de freamento, as quais, com o advento dos computadores, podem ser contornadas. Ainda assim, os cálculos de primeiros princípios exigem enorme esforço computacional, principalmente, devido à quantidade de estados excitados relevantes. Isso ainda torna conveniente formulações analíticas, inclusive de caráter semiempírico para as aplicações mais recorrentes.

Quanto à aplicabilidade de cada modelo, poucos apresentam um caráter geral, dadas as aproximações utilizadas em cada um. As seções anteriores procuraram realçar aqueles que são aplicáveis aos íons pesados em velocidades baixas e intermediárias. Na tabela 2.1 são apresentados as regiões do espaço  $v$ ,  $Z_1$ ,  $Z_2$  nas quais, em princípio, cada um é válido. Com exceção das teorias de Bohr e Bethe, os demais são de aplicabilidade geral, varrendo um amplo espaço em energia, íons e meios possíveis.

Conforme apresentado em seções anteriores, é bem conhecido o efeito de oscilações, denominados de oscilações em  $Z_1$  e em  $Z_2$ , no freamento de diversos íons em baixas velocidades. Esses efeitos, devidos às considerações utilizadas por Northcliffe e Schilling não são reproduzidos em suas tabelas do poder de freamento. A teoria Binária também não apresenta oscilações em  $Z_1$  no poder de freamento calculado. Já o programa SRIM consegue reproduzir razoavelmente bem as oscilações observadas experimentalmente.

Teoria/Modelo	Energia (MeV/uma)	$Z_1$	$Z_2$
Bohr, Bethe	$\gtrsim 0,5$	p, He	$\lesssim 17$
LSS	Ampla região	todos	todos
ACU	0,001-200	$\geq 1$	1-92
Binária	Ampla região	todos	todos
NS	0,0125-12	1-103	24 meios
SRIM	1,1 eV - 2 GeV	1-92	todos

Tabela 2.1: *Regiões de aplicabilidade dos modelos abordados. Para as teorias de Bohr e Bethe, os limites são aproximados. Em alguns casos, os limites não são bem estabelecidos, como para as teorias LSS e Binária.*



# Capítulo 3

## Os Arranjos Experimentais

O propósito deste capítulo é descrever o arranjo experimental e a eletrônica de aquisição utilizados para as medidas experimentais realizadas nesta tese. Antes, porém, será apresentado um panorama geral dos métodos típicos para medidas do poder de freamento. Em seguida serão descritos as duas técnicas experimentais utilizadas: i) técnica de recuo elástico e ii) TOF-E (*Time of Flight-Energy*).

### 3.1 Medindo o poder de freamento

As técnicas tradicionais para medidas do freamento consistem, basicamente, na determinação da energia do projétil após atravessar o meio freador. É possível utilizar um filme espesso do freador de interesse para que o íon seja significativamente ou totalmente freado. No último caso, a distância de penetração do íon no freador corresponde ao *alcance* ( $R$ ) da partícula incidente e que é relacionado com o poder de freamento do íon na matéria por:

$$R = \int_{E_i}^0 \frac{dE}{\left. \frac{dE}{dx} \right|_{elet.} + \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nuc.}} \quad (3.1)$$

A determinação experimental do alcance de íons no material freador, através da técnica de RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) por exemplo, indiretamente fornece o poder de freamento do material freador para o íon implantado.

No caso em que a espessura do freador não é suficiente para frear totalmente

o íon incidente, a eq.(3.1) é ligeiramente modificada para

$$\Delta x = \int_{E_i}^{E_f} \frac{dE}{\left. \frac{dE}{dx} \right|_{elet.} + \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nuc.}} \quad (3.2)$$

onde  $\Delta x$  é a espessura do freador. Conhecendo-se um conjunto de dados de energias inicial e final e a espessura do freador é possível determinar o poder de freamento para o íon em questão.

Seja por meio da eq. (3.1) ou da eq. (3.2), as principais fontes de incerteza associadas surgem devido ao *stragglings* do íon, principalmente quando o íon está próximo de ser freado pelo meio. O efeito é responsável por diferenças na distância percorrida pelo íon e a distância projetada na direção inicial do momento do íon. No entanto é uma alternativa válida para medidas em meios cuja confecção de seus filmes finos seja impraticável.

As medidas diferenciais passam a ser aplicáveis quando a espessura do alvo freador é suficientemente fina tal que a eq.(3.2) possa ser aproximada por

$$\frac{dE(\bar{E})}{dx} \approx \frac{\Delta E}{\Delta x} = \frac{E_{sem} - E_{com}}{\Delta x} \quad (3.3)$$

onde  $E_{sem}$  e  $E_{com}$  são as energias do feixe de íons medidas sem e com o freador a frente do detector. A razão é tomada como o poder de freamento no valor médio das energias.

Faz-se necessário argumentar o quão fino deve ser a espessura para que a eq. (3.3) ainda seja, dentro das incertezas experimentais, uma boa aproximação para o poder de freamento. Como senso comum limita-se essa espessura tal que a perda de energia seja de, no máximo, 10% da energia incidente. Esse critério traz inconvenientes para medidas em baixas energias, onde as energias sem e com o freador situam-se muito próximas, aumentando a incerteza relativa na determinação de  $\Delta E$ .

Tendo em mente o comportamento suave do freamento para energias abaixo do pico de Bragg (ver Fig. 1.1), a validade da eq. (3.3) pode ser estendida para freadores mais espessos. Para fundamentar essa argumentação é apresentado na tabela 3.1 o freamento de prótons em Au de  $350\mu\text{g}/\text{cm}^2$  de espessura. Os dados da tabela foram gerados a partir do programa TRIM (ref. [32]). A interação do projétil com o freador é simulado através de uma rotina de Monte Carlo tendo como base o poder de freamento do código SRIM (ref. [5]). Para cada energia inicial foram gerados  $10^4$  eventos e as energias finais foram histogramados para a determinação da energia média final por meio de uma

Energia Inicial (keV)	Energia Perdida (%)	Energia Média (keV)	dE/dx - eq.(3.3)	Energia (keV)	dE/dx
200	20	180,2	0,113	180,0	0,112
180	22	160,0	0,114	160,0	0,113
160	25	139,9	0,115	140,0	0,113
140	29	120,0	0,114	120,0	0,112
120	33	100,4	0,112	100,0	0,109
100	38	81,1	0,108	80,0	0,105
80	45	62,1	0,103	62,5	0,096
60	54	43,7	0,093	45,0	0,086

Tabela 3.1: *Comparação da perda de energia de prótons em Au obtidos através de simulações de Monte Carlo do processo de colisão. Através da eq. (3.3) é calculado o poder de freamento e comparado com o poder de freamento utilizado para a simulação. As mesmas conclusões são obtidas para íons pesados. Os valores do poder de freamento estão em unidades de MeV/mg/cm<sup>2</sup>.*

ajuste gaussiano da distribuição final de energias. Em todos os casos a perda de energia foi superior à 20% da energia inicial das partículas. O poder de freamento médio das simulações foi calculado a partir da eq. (3.3) e comparado com o valor da curva de freamento utilizado para a simulação. Para o freamento de prótons em Au o pico de Bragg situa-se  $\approx 180$  keV. Da tabela é possível observar que mesmo para energias próximas ao pico de Bragg os valores calculados são, dentro de uma flutuação média de 2%, consistentes com os valores utilizados na simulação. Para energias iniciais menores que 80 keV (perda de energia superior à 40%) a eq. (3.3) tende a sobrestimar o freamento. Chega-se as mesmas conclusões para íons pesados de modo que, para energias maiores que 100 keV/u.m.a., pode-se estender a aplicabilidade da eq. (3.3) para perdas de energias que cheguem à 30% da energia inicial.

## 3.2 Técnicas Experimentais

Uma técnica bastante eficiente para medidas do freamento é ilustrada na Fig. 3.1. Nesse arranjo, o feixe de íons é espalhado por um alvo fino ( $\lesssim 50\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) de Au. Após o espalhador de Au vários detectores estão dispostos em ângulos bem determinados de modo que a energia do feixe espalhado na direção dos detectores é calculada em função do ângulo. A montagem de cada detector é apresentado em detalhe na Fig. 3.1, onde o material freador é posicionado cobrindo a metade do suporte. Num espectro típico é observado duas distribuições de energia devido à parcela do feixe que passa pelas regiões

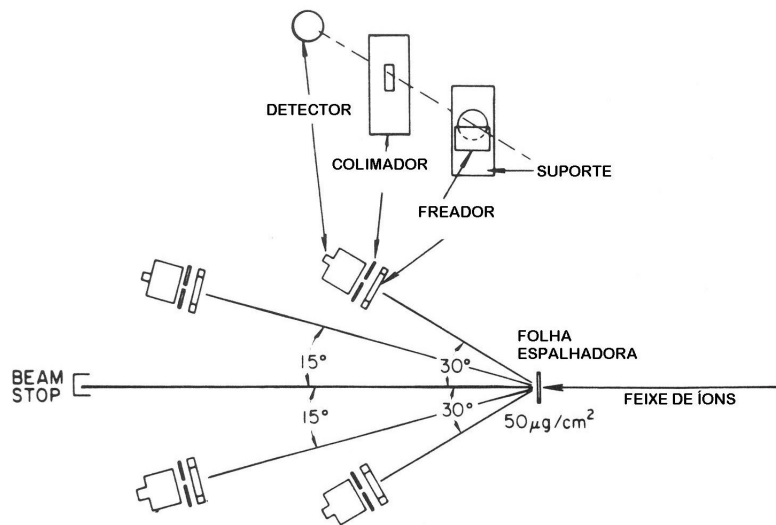


Figura 3.1: *Arranjo experimental para medidas de freamento utilizando o feixe espalhado elasticamente por um alvo fino de Ouro (folha espalhadora). A medida com e sem o freador é realizada simultaneamente devido ao suporte parcialmente coberto pelo freador e posicionado à frente do detector. Modificado a partir de [36].*

sem e com o freador. Deve-se notar, portanto, que a empregabilidade da técnica está vinculada aos casos em que é possível uma distinção clara dessas distribuições. A principal vantagem desta técnica é a medida em vários meios simultaneamente, sendo frequentemente utilizada para íons com energias acima de 1 MeV/u.m.a.. Incertezas típicas são da ordem de 4% na determinação da perda de energia.

Técnicas alternativas baseadas no retroespalhamento de íons por um substrato também são usuais para medidas de freamento. Um esquema ilustrativo da técnica e um espectro típico obtido são ilustrados na Fig. 3.2. A perda de energia é determinada a partir das bordas das distribuições de energia do íon retro-espalhado na superfície do substrato sem e com o filme freador. Dessa forma o íon deve ter energia suficiente para atravessar a camada do filme freador e, após ser retro-espalhado pelo substrato, atravessar novamente essa camada. As incertezas típicas são da ordem de 5% principalmente devido a determinação da borda.

Uma técnica voltada para baixas energias é a do Deslocamento Doppler (DD) e baseia-se na determinação da velocidade de recuo de um átomo através da observação do efeito Doppler na energia do raio  $\gamma$  emitido no decaimento nuclear. Núcleos excitados recuando com velocidade  $v$  são produzidos por excitação Coulombiana, bombardeando-se o alvo com feixe de íons, como visto no detalhe da Fig. 3.3. Um sistema de coincidências entre partículas espalhadas



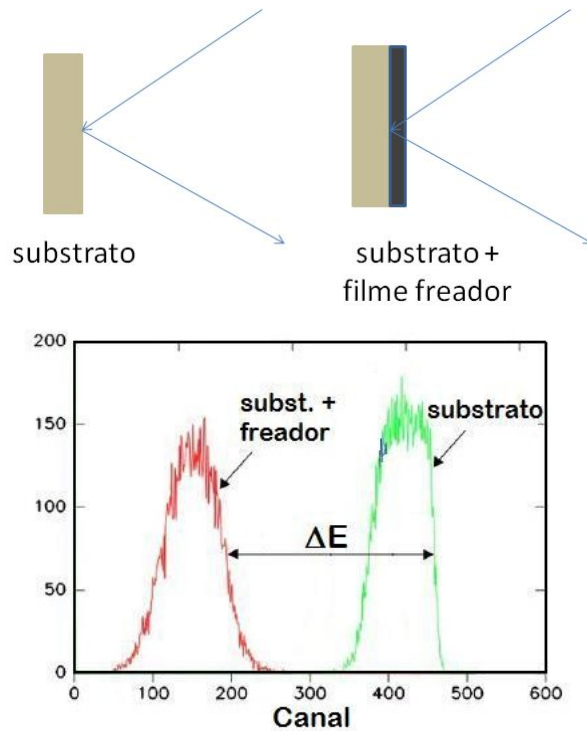


Figura 3.2: Espectro típico para a determinação da perda de energia através do retroespalhamento Rutherford (RBS). Espectro modificado a partir de [37].

próximo a  $180^\circ$  e a emissão de radiação  $\gamma$  permite selecionar átomos do alvo recuando em torno da direção  $0^\circ$ . Após o alvo é posicionado o freador de interesse à uma distância convenientemente (dependendo da vida-média do estado nuclear excitado) de modo que aproximadamente metade dos núcleos decaiam antes e a outra metade decaiam após atravessar o freador. No espectro de coincidência dos raios  $\gamma$  são observados dois picos correspondendo a mesma transição nuclear. Um deles relacionado ao raio  $\gamma$  emitido pelo núcleo com velocidade de recuo inicial  $v$  e o outro relacionado ao núcleo com velocidade  $v' < v$  devido a perda de energia do íons após o freador. Essa diferença de energia nos picos é proporcional à variação de velocidade do núcleo excitado no freador. As incertezas típicas no poder de freamento obtido com a técnica são em torno de 5% muito em razão de correções geométricas para a determinação da perda de energia.

### 3.2.1 A Técnica de Espalhamento Elástico

O grupo de pesquisa Espectroscopia Gama do DFN-IFUSP desenvolveu uma técnica para medidas do freamento de íons pesados em baixas velocidades onde íons pesados em baixas energias são obtidos por espalhamento elástico do

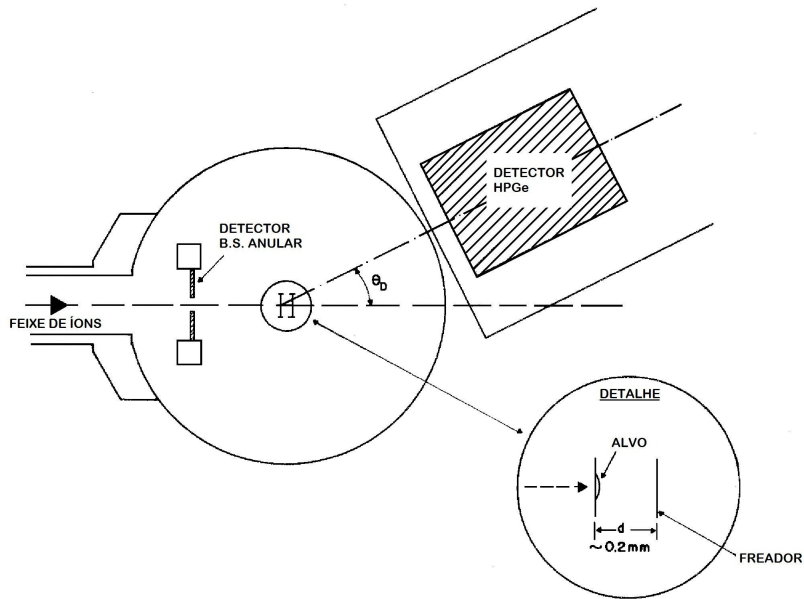


Figura 3.3: Ilustração da técnica do Deslocamento Doppler para as medidas do freamento de íons pesados em baixas velocidades. O freador de interesse é posicionado a uma distância  $d$  do alvo. Para as partículas espalhadas a  $\approx 180^\circ$  utiliza-se um detector anular.

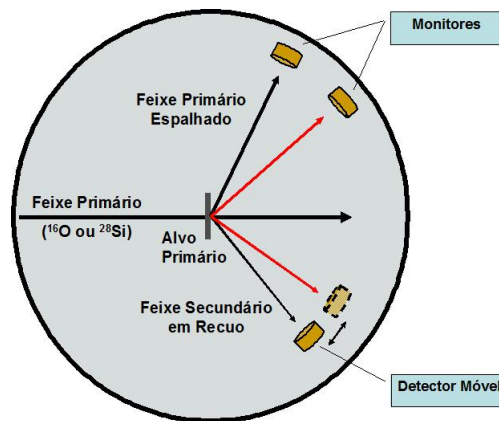


Figura 3.4: Arranjo experimental para as medidas do poder de freamento. O feixe secundário de interesse é composto por átomos do alvo primário em recuo devido a colisão elástica com o feixe primário. No arranjo são ilustrados 2 monitores, fixados à  $45^\circ$  e  $60^\circ$ . O detector é montado sobre uma plataforma móvel para detectar as partículas ora coincidentes com o monitor a  $45^\circ$  ora a  $60^\circ$ .

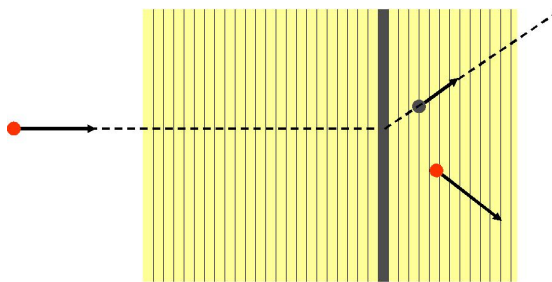


Figura 3.5: Esquema do algoritmo utilizado no programa de calibração dos detectores (SCATU). A região escura corresponde a fatia selecionada aleatoriamente pelo programa (neste evento em particular) onde ocorrerá a colisão elástica do feixe primário com o átomo do alvo primário.

feixe primário com um alvo primário de interesse [38]. O esquema experimental utilizado nessa técnica é apresentado na Fig. 3.4. Perpendicular à direção de incidência do feixe primário (tipicamente  $^{16}\text{O}$  ou  $^{28}\text{Si}$ ), é posicionado um alvo fino (alvo primário) do elemento a partir do qual será produzido o seu feixe secundário em baixas velocidades. Por espalhamento elástico, íons do feixe primário produzem átomos do alvo primário em recuo numa direção  $\theta_{recuo}$ , com os correspondentes íons primários espalhados na direção  $\theta_{esp}$ . Os átomos em recuo na direção  $\theta_{recuo}$  e em coincidência temporal com íons espalhados em  $\theta_{esp}$  compõem o feixe secundário de interesse.

Para a detecção das partículas são utilizados dois detectores de Barreira de Superfície (B.S.): um para o feixe secundário (detector) e o segundo para o feixe primário espalhado (monitor). Um sistema de coincidências temporal entre os dois detectores permite selecionar os átomos do alvo primário em recuo. No esquema experimental da Fig. 3.4 são ilustrados dois monitores, à  $45^\circ$  e  $60^\circ$ , e com o detector montado sobre uma plataforma móvel. A mobilidade do detector permite que ora seja observada a coincidência com o monitor à  $45^\circ$  e ora com o monitor à  $60^\circ$ . Assim para uma mesma energia do feixe primário pode-se obter duas energias distintas do feixe secundário dependendo do ângulo de espalhamento do feixe primário. É interessante notar que  $\theta_{recuo}$  independe da energia inicial do feixe primário.

Para calibração em energia do detector é utilizado um programa de Monte Carlo que simula a geometria do arranjo experimental. No algoritmo do programa a espessura do alvo primário é dividido em várias fatias (ver Fig. 3.5). Aleatoriamente o programa sorteia a fatia do alvo onde ocorre a colisão do íon (do feixe primário) com o átomo do alvo. A perda de energia devido ao freamento eletrônico do feixe primário, desde a superfície até o ponto da colisão, é calculada. Da mesma forma, o ângulo de espalhamento do íon (do feixe primário)

$\bar{E}$ (MeV)	$dE/dx_{exp}$	$dE/dx_{fit}^{DD}$
7,20	3,10 (12)	2,95 (14)
9,14	3,67 (15)	3,54 (17)
10,3	4,05 (16)	3,92 (18)
10,6	4,07 (16)	4,01 (20)
11,9	4,40 (18)	4,45 (22)
12,2	4,52 (18)	4,54 (23)
14,0	5,11 (20)	5,12 (25)

Tabela 3.2: Comparativo entre o poder de freamento de Ag em Au medido com as técnicas de espalhamento elástico e Deslocamento Doppler (DD). O poder de freamento é expresso em  $MeV/mg/cm^2$ .  $dE/dx_{fit}^{DD}$  corresponde aos valores obtidos com o ajuste dos dados medidos com a técnica DD. Extraído da referência [38].

rio) é sorteado dentro do ângulo sólido de observação do monitor de interesse. Os correspondentes ângulo de recuo e velocidade inicial do átomo do alvo são determinados pela cinemática da colisão elástica. É considerada a dinâmica de colisão do átomo em recuo no próprio alvo de acordo com o formalismo apresentado em [39]. Para estes cálculos o poder de freamento eletrônico utilizado é o da referência [40] e o freamento nuclear é do modelo ZBL (seção 2.1.5.2). É importante ressaltar que o átomo recua em baixas velocidades e a previsão do poder de freamento pode apresentar grandes incertezas. Para minimizar essa fonte de incerteza na energia de calibração é desejável que o alvo primário seja suficientemente fino.

Em [38] o freamento de Ag em Au em baixas energias medido com a técnica de Espalhamento Elástico é comparado com a técnica de Deslocamento Doppler. A reprodução da comparação dos valores obtidos é apresentada na tabela (3.2). Os dados da técnica de Espalhamento Elástico são compatíveis com a função ajustada a partir dos dados obtidos na técnica Deslocamento Doppler, demonstrando a consistência da técnica.

Essa técnica foi utilizada para obter os dados dos freamentos de Ti, V e Cr em Ge, Au e Pb.

### 3.2.2 A técnica TOF-E (*Time of Flight-Energy*)

Técnicas baseadas em arranjos de tempo de voo de partículas (TOF - *Time of Flight*) tipicamente são empregadas para medir a perda de energia para uma dada energia inicial. É vantajoso ter um técnica confiável que permita a medida ao longo em várias energias simultaneamente. Alternativamente existem técnicas que permitem a medida do freamento ao longo de uma região contínua

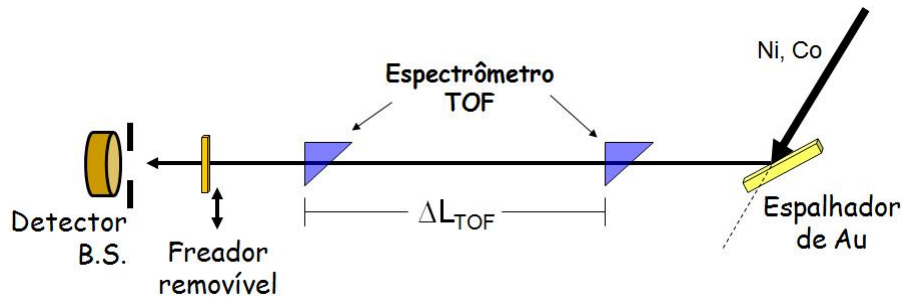


Figura 3.6: Diagrama ilustrativo da montagem experimental para medidas do freamento com a técnica TOF-E. A produção do feixe secundário com larga distribuição em energia é obtida a partir do espalhamento do feixe primário num substrato.

de energia. Para tal são utilizados feixes secundários com larga distribuição em energia, obtidos a partir de um feixe retro-espalhado por um substrato ou a partir de átomos do próprio substrato em recuo.

Em 2002, Y. Zhang [41] reportou o desenvolvimento de uma nova técnica para medidas precisas do freamento de íons pesados ao longo de uma região contínua em energia baseada num arranjo de TOF. O diagrama experimental da técnica é apresentada na Fig. 3.6. Um feixe primário monoenergético incide num substrato de Au produzindo, por espalhamento, o feixe secundário com larga distribuição em energia. O substrato é necessário não somente para a produção do feixe com larga distribuição em energia mas também para atenuar a corrente do feixe primário e evitar a saturação dos detectores. Em um determinado ângulo com relação a superfície do substrato é montado o arranjo de tempo de voo e energia (TOF-E), que consiste de dois detectores de tempo, separados a uma distância  $\Delta L_{TOF}$ , e um detector de B.S. A diferença temporal entre os sinais dos detectores de tempo fornece a informação do tempo de voo da partícula. O filme freador é montado sobre um suporte móvel entre o segundo detector de tempo e o detector de B.S..

A metodologia para a determinação da perda de energia no freador é ilustrada na Fig. 3.7. Para as medidas realizadas sem o freador, a energia detectada no detector de B.S. corresponde à mesma energia determinada a partir do seu tempo de voo. Ao introduzir o freador, para que o detector de B.S. detecte uma partícula com a mesma energia  $E_{sem}$ , como no caso anterior, essa mesma partícula tem que possuir uma energia  $E_{com} = E_{sem} + \Delta E$ . Utilizando o detector de B.S. pode-se rotular as partículas que chegam com as mesmas energias e, assim, utilizar o sistema de tempo de voo para determinar as energias  $E_{sem}$  e  $E_{com}$ . Energia e tempo estão correlacionados através da massa do

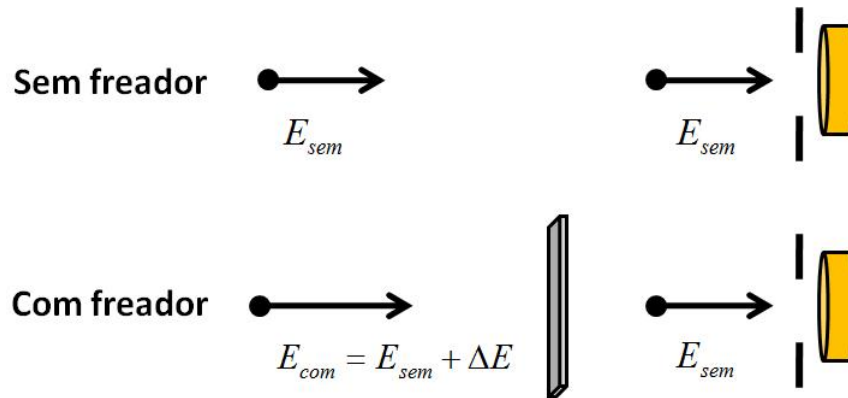


Figura 3.7: Diagrama ilustrativo da metodologia da técnica TOF-E para a determinação da perda de energia no freador.

projétil, de acordo com a equação:

$$E = 0,5M_1 \left( \frac{L_{\text{TOF}}}{t} \right)^2 \quad (3.4)$$

Uma curva típica do tempo de voo em função da energia para o feixe de He sem e com um freador de Si é ilustrado na Fig. 3.8. Do espectro biparamétrico é possível verificar a correlação entre o tempo de voo e a energia da partícula: baixas energias estão correlacionadas com um tempo de voo maior. Para um dado canal de energia são identificados os tempos médios sem e com o freador e com auxílio da eq. (3.4) é determinada a perda de energia da partícula no freador. Essa metodologia de análise evita correções devido à não linearidade dos detectores de B.S..

Essa técnica foi utilizada para obter os dados dos freamentos de Co e Ni em Ge e Au.

### 3.2.3 Não-linearidade em detectores de B.S.

O uso de detectores de B.S. é bastante difundido na espectroscopia de partículas carregadas. O funcionamento de detectores à base de semicondutores depende da formação de uma junção p-n e da criação de uma região de depleção através de uma tensão reversa. Devido a região de depleção, as cargas produzidas no detector pela passagem da radiação ionizante são coletadas para a geração do pulso de corrente. Maiores detalhes sobre detectores semicondutores são encontrados na referência [42].

Assumindo que a região de depleção é suficientemente espessa para frear completamente os íons incidentes, o pulso gerado pelo detector é, em princí-

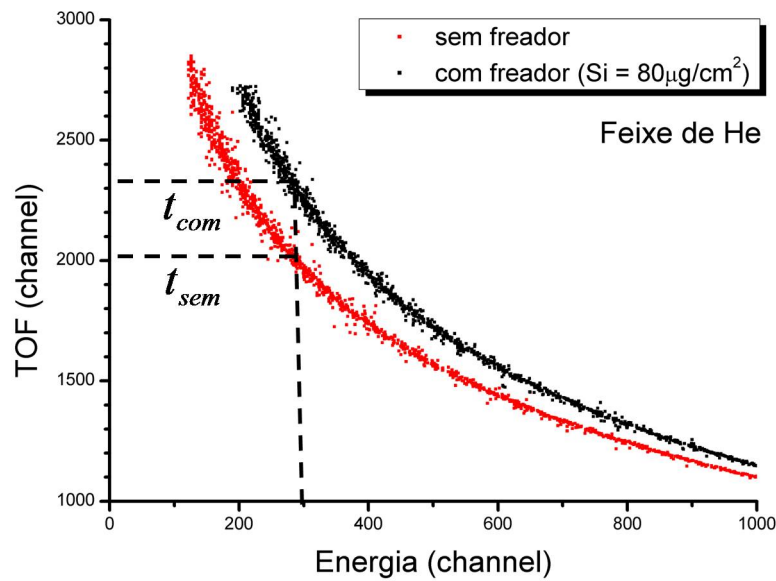


Figura 3.8: Curva típica do tempo de voo em função da energia no detector de B.S. para uma medida com o feixe de He e freador de Si.

pio, proporcional à energia da partícula e independente do tipo de partícula. A linearidade da calibração em energia dos detectores de B.S. deixa de ser verificada especialmente válida para íons pesados. Para estes projéteis, a alta densidade de cargas produzida afeta o tempo de coleção de cargas nos detectores permitindo a ocorrência de processos de recombinação de cargas. Consequentemente, a amplitude do pulso produzido passa a ser não-linear com a energia e dependente da massa da partícula detectada. Esse efeito é conhecido como *Pulse Height Defect* (PHD) [43] e o seu conhecimento é essencial para obter uma calibração precisa com o detectores de B.S.. Por definição, PHD é a diferença entre a energia verdadeira do íon pesado e a energia da partícula alfa necessária para produzir a mesma altura de pulso do íon pesado. Outros efeitos que contribuem para o PHD é a perda de energia da partícula na zona morta do detector e o freamento nuclear entre o projétil e os átomos de Si do detector, que não produz ionização.

Nas medidas realizadas com a técnica do espalhamento elástico, a calibração em energia do detector é realizada com o próprio feixe secundário, sem o freador, e ao longo de uma região limitada em energia, tipicamente 6-25 MeV. Com isso, todos os efeitos (perda de energia na zona morta, recombinação de cargas e o freamento nuclear) são considerados intrinsecamente e, dentro dessa faixa de energias, a calibração é linear. Na técnica TOF-E, o detector de Si é utilizado como rotulador para partículas com as mesmas energias e,

novamente, todos os efeitos estão incluídos.

Além do problema com a não-linearidade, o efeito acumulativo do freamento nuclear tende a provocar a degradação na resolução em energia e reduzir drasticamente a vida útil do detector.

Com relação a resolução dos detectores é esperada que a forma das distribuições de energia sejam similares para íons com diferentes energias incidentes; para íons distintos é esperada que a forma da distribuição seja distinta [44].

## 3.3 Preparação dos Alvos

Todos os filmes finos utilizados nessa tese (Ti, V, Cr, Ge, Au e Pb) foram confeccionados no Laboratório de Alvos Nucleares do LAFN utilizando a evaporadora Edwards E12 E3 [45]. Os filmes foram produzidos através do processo de deposição por evaporação (*Physical Vapour Deposition*) onde o material é aquecido acima da sua temperatura de evaporação do material. Esse aquecimento pode ser realizado de duas formas: por passagem de corrente ou por bombardeamento eletrônico. A escolha do mecanismo de aquecimento depende do ponto de evaporação de cada material. Dos filmes utilizados neste trabalho, Ge, Au e Pb foram evaporados por passagem de corrente e Ti, V e Cr foram evaporados por bombardeamento eletrônico.

Lâminas previamente tratadas com agente solúvel em água são fixadas na evaporadora a uma distância conveniente com relação a fonte de evaporação. Ao longo do processo, o material evaporado vai gradativamente recobrir a superfície tratada da lâmina. Após a evaporação, já com a lâmina fora da evaporadora, a camada solúvel é dissolvida em água destilada onde o filme fino se desprende da lâmina.

Em cada lâmina foram produzidos de 3 a 4 filmes finos com dimensões  $\approx 1.5 \times 2$  cm. Os filmes foram montados em suportes de  $1.5 \times 3$  cm, com furo central de 10 mm de diâmetro, ilustrado na Fig. 3.9. Todos os filmes finos produzidos são auto-portantes.

Os filmes de Ti, V, Cr e Ge foram armazenados numa câmara própria e mantida em pressão da ordem de  $10^{-1}$  Torr para evitar efeitos de oxidação das superfícies. Os filmes de Pb foram armazenados numa câmara em vácuo individual e os de Au foram acomodados numa caixinha com umidade controlada pelo uso de secantes.





Figura 3.9: Fotos dos filmes finos de Au e Ti produzidos para as medidas de perda de energia. Os suportes dos alvos possuem a dimensão de 15 x 30 mm.

### Critérios para as espessuras dos filmes

As espessuras dos filmes utilizados para as medidas de perda de energia foram escolhidas de modo a minimizar as incertezas. No tocante a esses critérios, temos dois casos a serem considerados: as espessuras dos alvos primários (Ti, V e Cr) e as dos freadores (Ge, Au e Pb).

Para os alvos primários, devido a metodologia de calibração do detector (ver seção 3.2.1) onde é considerado o freamento do átomo em recuo no próprio meio, os filmes de Ti, V e Cr devem ser finos o suficiente para minimizar a incerteza na energia final de recuo do feixe secundário. Por outro lado um alvo que seja extremamente fino reduziria a taxa de átomos em recuo produzidos por espalhamento elástico e proporcionalmente aumentaria o tempo necessário para cada energia de recuo. Quantitativamente é conveniente que os alvos primários tenham espessuras entre 50 - 150  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Como teste para a validação dessa margem de espessuras será simulado a energia de recuo de Ti produzido por íons de  $^{16}\text{O}$  considerando que o modelo de freamento usado no programa de Monte Carlo para calibração do detector possa apresentar desvios de até 40%, o que é um valor superestimado. Dentro dessas considerações, para a produção de íons de Ti recuando com energia de 10 MeV a incerteza é de  $\approx 200$  keV ( $\approx 2\%$ ) no caso de espessuras limites de 150  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Essa é uma incerteza razoável para a precisão das medidas.

Com relação aos freadores, as espessuras devem ser tais que a eq. (3.3) ainda seja uma boa aproximação. Conforme abordado na seção 3.1, devido ao comportamento suave do freamento para baixas energias, as espessuras devem ser tais que a perda de energia do íon não ultrapasse de 30% da sua energia inicial. Assim é desejável que o freador tenha espessuras nem muito finas, de modo a minimizar a incerteza na determinação da perda de energia, e nem

muito delgada, para que seja válida a eq. (3.3). Para estimar essas espessuras foi utilizado estimativas semi-empíricas.

#### Medidas das espessuras

As espessuras dos filmes foram determinadas através da perda de energia de partículas  $\alpha$  emitidas por uma fonte de  $^{241}\text{Am}$ . Esse núcleo emite partículas  $\alpha$ 's com três energias características sendo a de maior intensidade a de 5.483 MeV. Os alvos foram montados num suporte móvel, permitindo o posicionamento dos mesmos a frente do detector de B.S.. A eletrônica associada ao detector consiste de um pré-amplificador e amplificador espectroscópico. A aquisição de dados é obtida através de uma placa ADC Trump de 8K canais e controlada pelo programa DAMM [46]. A calibração em energia do detector é realizada com o pico de energia das partículas  $\alpha$  medido sem o alvo e com auxílio de um pulsador de precisão. As energias das partículas antes e após o alvo são medidas e para a determinação da espessura utiliza-se a eq. (3.3). O freamento de partículas  $\alpha$  é bem conhecido para essa região de energias, permitindo a utilização dos valores fornecidos pela referência [32]. A incerteza estimada para o poder de freamento é de 4%.

As espessuras médias dos filmes utilizados para as medidas do freamento em baixas velocidades são apresentados na tabela (3.3). As incertezas relativas entre os picos  $E_{sem}$  e  $E_{com}$  são próximas de 2%, exceto para os alvos de Ti #5 e Cr #1 e #2, sendo próximas de 6%. Para os freadores (Pb, Ge e Au), as incertezas finais nas espessuras dos alvos devem-se majoritariamente à incerteza estimada em 4% para os valores do poder de freamento para as partículas alfas.

Utilizando um colimador de 1 mm na fonte  $\alpha$  foi medido a uniformidade dos freadores ao longo de um diâmetro. A varredura foi feita em passos de 1 mm, desconsiderando as extremidades e, assim, totalizando 8 pontos medidos ao longo da direção horizontal de cada alvo. Os resultados obtidos para os freadores de Pb são ilustrados na Fig. 3.10. No caso dos freadores de Au e Ge, a uniformidade foi medida acoplando-se um colimador de 2,0 mm à fonte alfa e medindo-se a espessura ao longo de uma direção na folha. A varredura foi feita em passos de 2 mm na extensão do diâmetro horizontal. De modo geral, a variação máxima na espessura dos freadores foi em torno de 3%.

Alvo	Espessura ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )	$dE/dx_{\text{alvo}}$ para $\alpha$
Ti #5	98 (9)	0,50
Ti #7	193 (11)	0,51
V #1	48 (10)	0,49
Cr #1	108 (5)	0,47
Cr #2	108 (5)	0,47
Ge #4	259 (11)	0,39
Ge #5	108 (8)	0,39
Au	609 (27)	0,23
Au #9	471 (20)	0,22
Pb #2	300 (30)	0,23
Pb #3	370 (40)	0,23

Tabela 3.3: Espessuras dos alvos utilizados para as medidas deste trabalho. Os alvos de Ge #5 e Au #9 foram utilizados para as medidas do freamento de V. Os demais foram utilizados para o freamento de Ti e Cr. As incertezas nos alvos de Au, Ge e Pb devem-se, majoritariamente, à incerteza no valor de  $dE/dx$  (última coluna) fornecido pela referência [32].

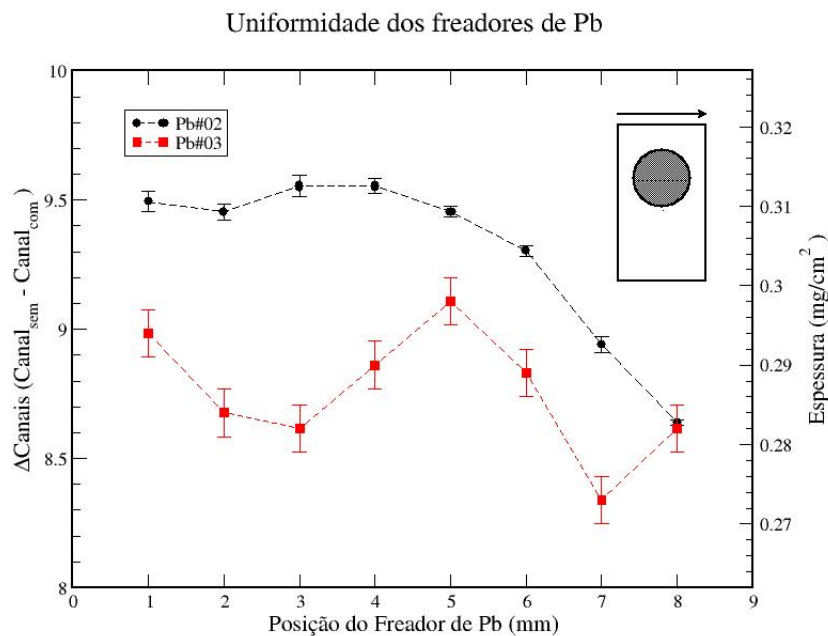


Figura 3.10: Variação da espessura em função da posição de incidência das partículas  $\alpha$  para os alvos de Pb.

## 3.4 Equipamento experimental para as medidas com Espalhamento Elástico

### 3.4.1 Acelerador e Fonte de Íons do LAFN

A tomada de dados foi realizada no *Laboratório Aberto de Física Nuclear* (LAFN) utilizando o acelerador eletrostático Tandem 8-UD Pelletron de 8 MV. O diagrama esquemático do acelerador é apresentado na Fig. 3.11.

Aceleradores do tipo Tandem realizam a aceleração do feixe em 2 estágios, sendo necessário a injeção de íons negativos no primeiro estágio. A fonte de íons utilizada no acelerador é a MC-SNICS (*Multi-Cathode Source of Negative Ions by Cesium Sputtering*) da NEC. A extração do feixe baseia-se na técnica de *sputtering* do cátodo por átomos de Césio (Cs). Um recipiente aquecido introduz vapor de Cs, ocupando todo o volume da fonte de íons. Parte deste vapor se condensa no cátodo formando uma fina película em sua superfície. Outra parte é ionizada positivamente por contato com a superfície de tungstênio (ionizador) aquecida por passagem de corrente elétrica. O Cs ionizado é acelerado por uma diferença potencial na direção do cátodo que, por *sputtering*, arranca átomos do cátodo. Os átomos arrancados por *sputtering*, em geral, possuem carga positiva. Devido a alta eletronegatividade do átomo de Cs, a película condensada na superfície do cátodo tem a importante função de doador de elétrons para as partículas arrancadas do cátodo. Os íons negativos são extraídos da fonte por um potencial de 20 kV. O conjunto está montado numa estrutura isolada eletricamente a qual é aplicada uma tensão adicional de 70 kV como pré-aceleração para em seguida ser injetado no acelerador.

O feixe de íons recém-extraído da fonte passa primeiramente por um eletroímã (ME-20)<sup>1</sup> que deflete em 90° sua direção sem alterar a sua energia. Nessa deflexão o ME-20 seleciona a massa atômica do íon de interesse para aceleração.

Na primeira etapa de aceleração os íons, com carga negativa, são atraídos pelo potencial positivo do terminal instalado no meio do tubo de aceleração. No terminal os íons atravessam uma fina folha de carbono, com espessura em torno de 10 $\mu$ g/cm<sup>2</sup>, denominado de *stripper*. A finalidade do stripper é a de arrancar elétrons dos íons que compõem o feixe que, agora com cargas positivas, são repelidos pelo potencial positivo do terminal. Essa repulsão corresponde ao segundo estágio da aceleração. A quantidade de elétrons arrancada pelo

---

<sup>1</sup>A sigla do eletroímã indica a maior relação entre a massa (em u.m.a.) e a energia (MeV) que um íon pode ter para que possa ser defletido a 90°.

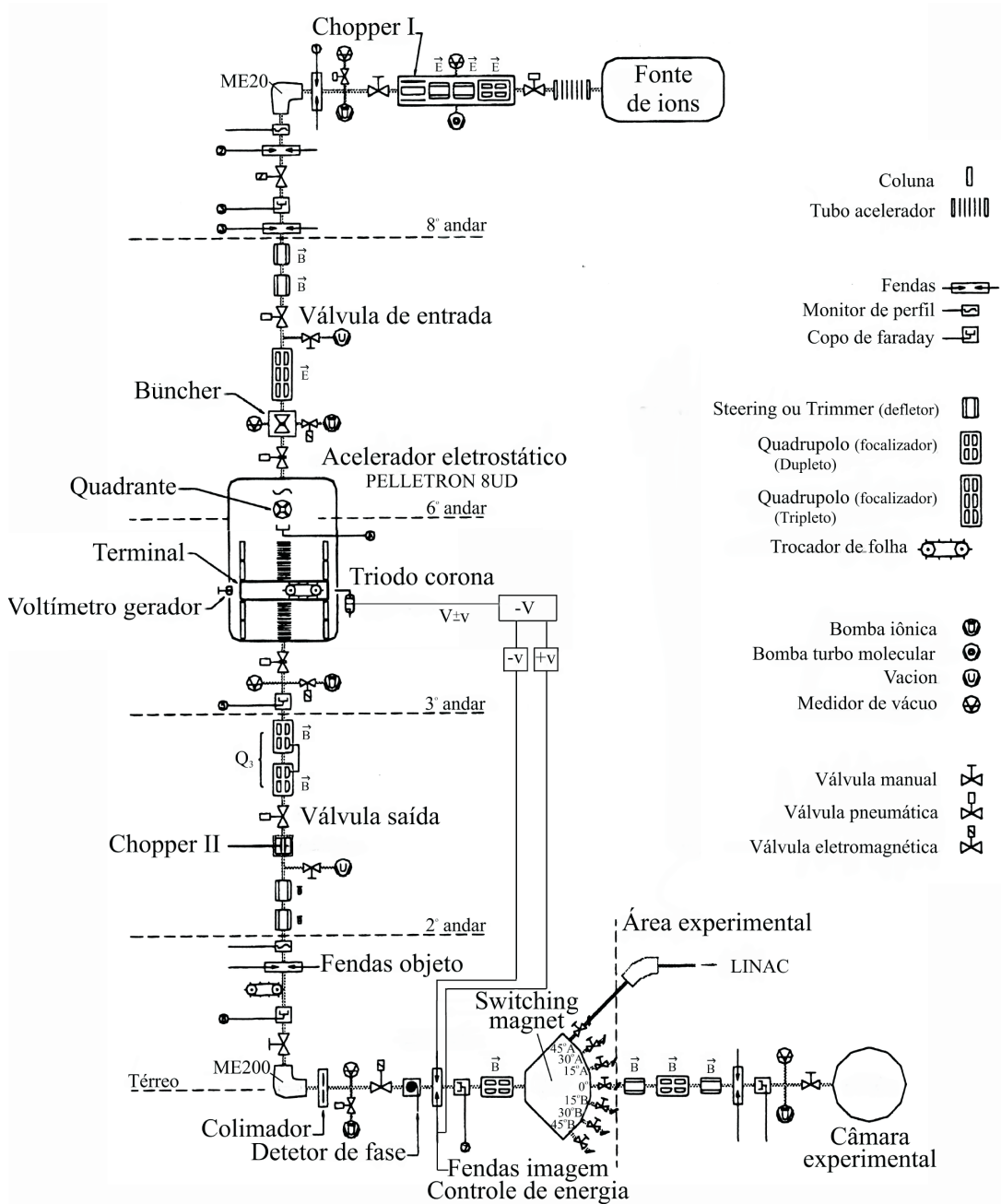


Figura 3.11: Ilustração do acelerador eletrostático Tandem 8-UD Pelletron de 8 MV do Laboratório Aberto de Física Nuclear, DFN-USP. Créditos da figura à João Carlos Terassi.

*stripper* segue uma distribuição de probabilidades dependente do número atômico e da energia do íon. Para o  $^{16}\text{O}$ , por exemplo, e com 7 MV no terminal, cerca de 30% saem com estado de carga 4+, outros 35% saem com 5+.

A energia final do feixe é a soma das energias obtidas nos estágios de aceleração. No primeiro, a energia ganha pelo feixe é igual à  $eV_t$ , uma vez que o estado de carga é predominantemente -1. O ganho de energia no segundo estágio da aceleração depende do estado de carga ( $Q$ ) do íon após o *stripper*. A energia ( $E$ ) final é dada pela expressão abaixo.

$$E(\text{MeV}) = (1 + Q)V_t + V_{pre} \quad (3.5)$$

onde  $V_t$  é a tensão aplicada no terminal,  $V_{pre}$  a tensão de pré-aceleração, ambos em MV.

Como existe uma distribuição de estados de carga do feixe após o *stripper*, a seleção de energia do feixe é realizada por um segundo eletroímã, o ME-200. A calibração do ME-200 foi realizada medindo-se a seção de choque de reações nucleares conhecidas, como por exemplo a reação  $^{19}\text{F}(p,n)^{19}\text{Ne}$  que ocorre numa energia bem conhecida. A incerteza na energia final do feixe selecionado é de alguns keV's.

Um terceiro eletroímã, o Seletor Magnético, possui a função exclusiva de desviar o feixe para uma das linhas de experimento. Ao longo da trajetória do feixe, desde a fonte de íons até a canalização onde é montado o arranjo experimental, estão posicionados equipamentos que controlam a direção e a forma do feixe através de campos elétricos ou magnéticos.

### 3.4.2 Câmara de Espalhamento

As montagens experimentais para as medidas de freamento de Ti, V e Cr foram realizadas na câmara de espalhamento da canalização 30B do acelerador do LAFN. No centro da câmara, os alvos primários (Ti, V e Cr) foram fixados no porta-alvos próprio da câmara. O porta-alvos permite a seleção vertical do alvo de interesse na direção do feixe primário. Durante o manuseio do porta-alvos foi tomado a precaução de manter perpendicular à direção do feixe primário.

As medidas realizadas neste trabalho foram realizadas em dois períodos de uso do acelerador. No primeiro foram utilizados 4 dias do acelerador nos quais foram medidos o freamento de Ti (em 11 energias) e Cr (em 9 energias) em Ge, Au e Pb, com energias entre 7 e 23 MeV e utilizando dois monitores, fixos

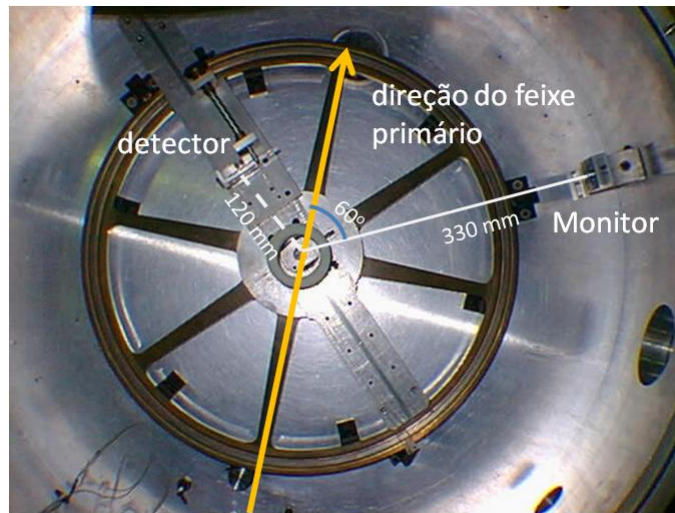


Figura 3.12: Esquematização do arranjo experimental com as distâncias e ângulo do monitor (aqui para apenas um) e detector.

à  $45^\circ$  e  $60^\circ$ . No segundo período foram utilizados 2 dias do acelerador para as medidas do freamento  $V$  em 6 (para Au) e em 7 (para Ge) em Ge e Au, com energias distintas entre 7 e 25 MeV utilizando apenas um monitor, à  $60^\circ$ .

A montagem do arranjo experimental é esquematizado na Fig. 3.12. Foram utilizados detectores de Barreira de Superfície ORTEC, de  $100 \text{ mm}^2$  e  $300 \mu\text{m}$  de espessura. O detector para o feixe secundário foi montado sobre a plataforma móvel da câmara de espalhamento, a uma distância de 120(1) mm do alvo primário e com o uso de um colimador de 3 mm. A plataforma se desloca angularmente permitindo o correto posicionamento do ângulo de coincidência cinemática com um dos monitores. A superfície da plataforma é demarcada com precisão de 5 centésimos do grau cujo valor é lido diretamente através da luneta posicionada na tampa da câmara. Os monitores foram fixados a uma distância de  $\approx 330 \text{ mm}$  do alvo primário e sem o uso de colimadores. Para o monitor à  $60^\circ$  o ângulo sólido de detecção é de  $\Delta\theta = 1,7^\circ$ . O uso do segundo monitor à  $45^\circ$  fornece as vantagens de obter feixes secundários com energias menores e com maior taxa de eventos devido a maior seção de choque para o espalhamento elástico no alvo primário. Fica implícito que, para os objetivos desse trabalho, a utilização de monitores à ângulos menores permite a obtenção de energias de recuo menores e com altas taxas de contagens. Mas a elevada taxa de eventos é prejudicial ao detector de B.S. e deve ser evitada.

Os parâmetros (energias do feixe primário, alvo primário, monitor para coincidência e a energia de recuo do feixe secundário) para o primeiro e segundo período de medidas são resumidos nas tabelas 3.4 e 3.5, respectivamente. No

### 3.4. EQUIPAMENTO EXPERIMENTAL PARA AS MEDIDAS COM ESPALHAMENTO ELÁSTICO

Feixe primário		Alvo primário	Monitor	Feixe secundário
tipo	energia (MeV)	tipo	ângulo	energia (MeV)
Si <sup>+7</sup>	46,20	Ti#5	60°	20,05
Si <sup>+8</sup>	49,50	Ti#5	60°	21,57
Si <sup>+8</sup>	49,50	Ti#5	45°	13,32
Si <sup>+7</sup>	44,00	Ti#5	45°	11,71
Si <sup>+6</sup>	38,50	Ti#5	45°	10,11
Si <sup>+6</sup>	38,50	Ti#7	60°	15,24
Si <sup>+6</sup>	36,50	Ti#7	60°	14,33
Si <sup>+7</sup>	41,60	Ti#7	60°	16,65
Si <sup>+7</sup>	41,60	Ti#7	45°	9,71
O <sup>+5</sup>	33,00	Ti#7	60°	7,35
O <sup>+5</sup>	34,75	Ti#7	60°	7,81
Si <sup>+7</sup>	41,60	Cr	45°	10,88
Si <sup>+8</sup>	46,80	Cr	45°	12,40
Si <sup>+8</sup>	52,20	Cr	45°	13,98
Si <sup>+6</sup>	40,60	Cr	60°	17,38
Si <sup>+6</sup>	38,50	Cr	60°	16,42
O <sup>+5</sup>	33,85	Cr	60°	8,48
O <sup>+5</sup>	35,00	Cr	60°	8,80
O <sup>+5</sup>	31,00	Cr	60°	7,70
O <sup>+6</sup>	38,50	Cr	60°	9,77

Tabela 3.4: *Resumo dos parâmetros de feixe primário, alvo primário e ângulo de detecção para as medidas de freamento de Ti e Cr em Ge, Au e Pb. As espessuras dos alvos primários são apresentados na tabela 3.3.*

primeiro houve a necessidade de trocar o alvo primário de Ti (passando a utilizar o Ti#7). Em média, as correntes dos feixes primários foram em torno de 300 nA e o diâmetro do feixe em torno de 3 mm.

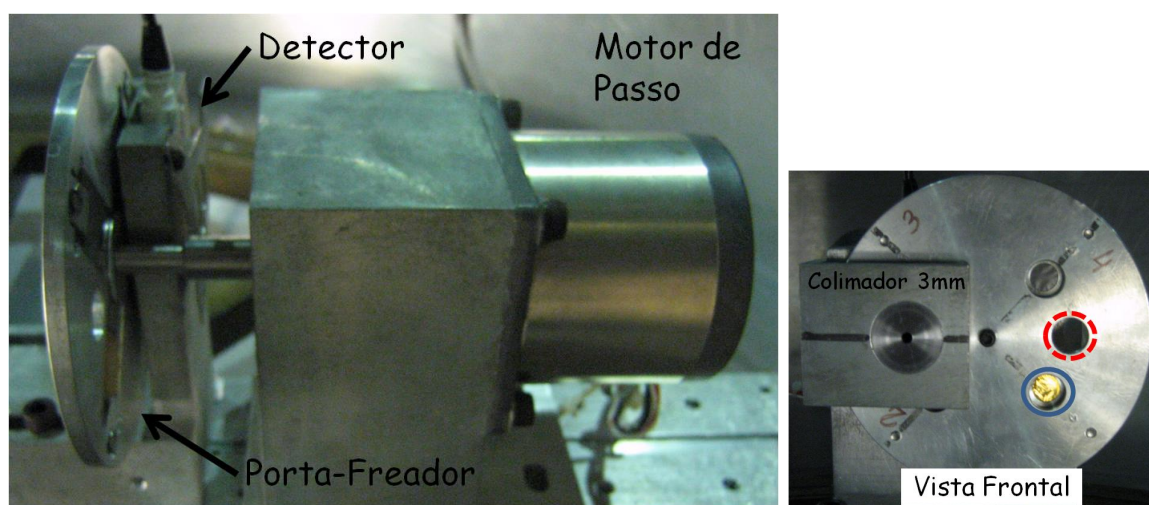
Os freadores de Ge, Pb e Au foram montados num porta-freador circular (ver Fig. 3.13) onde é possível fixar até 4 freadores além de possuir duas posições para as medidas sem freador. O eixo do porta-freador é acoplado à um motor de passo controlado externamente. O conjunto porta-freador, detector e motor de passo é montado como ilustrado na Fig. 3.13. Para as medidas de perda de energia, a posição "sem freador" é ajustada na direção do detector e inicia-se a aquisição de dados. Em seguida, ajusta-se para a posição do freador de interesse, onde é feita uma nova aquisição de dados.

Durante as medidas, a câmara foi mantida a uma pressão da ordem de  $10^{-6}$  torr com uso de 2 bombas turbo-molecular, acopladas a 2 bombas rotativas.



Feixe primário		Alvo primário	Monitor	Feixe secundário
tipo	energia (MeV)	tipo	ângulo	energia (MeV)
Si <sup>+6</sup>	46,00	V#1	60°	19,61
Si <sup>+7</sup>	52,00	V#1	60°	22,26
Si <sup>+8</sup>	58,00	V#1	60°	24,91
O <sup>+5</sup>	38,00	V#1	60°	9,74
O <sup>+6</sup>	44,00	V#1	60°	11,35
O <sup>+5</sup>	35,00	V#1	60°	8,94
O <sup>+6</sup>	46,50	V#1	60°	12,02

Tabela 3.5: *Resumo dos parâmetros de feixe primário, alvo primário e ângulo de detecção para as medidas de freamento de V em Ge e Au. As espessuras dos alvos primários são apresentados na tabela 3.3.*



(a) *Vista fronta do sistema de porta-freadores. Em destaque, uma das posições com freador (linha contínua) e sem freador (linha pontilhada).*

Figura 3.13: *Foto do porta-freador circular usado para fixação dos freadores de posicionamento dos mesmos à frente do detector. O porta-freador suporta até 4 freadores (uma delas circulado com linha contínua) e possui 2 posições sem freador (uma delas circulado com linha pontilhada).*

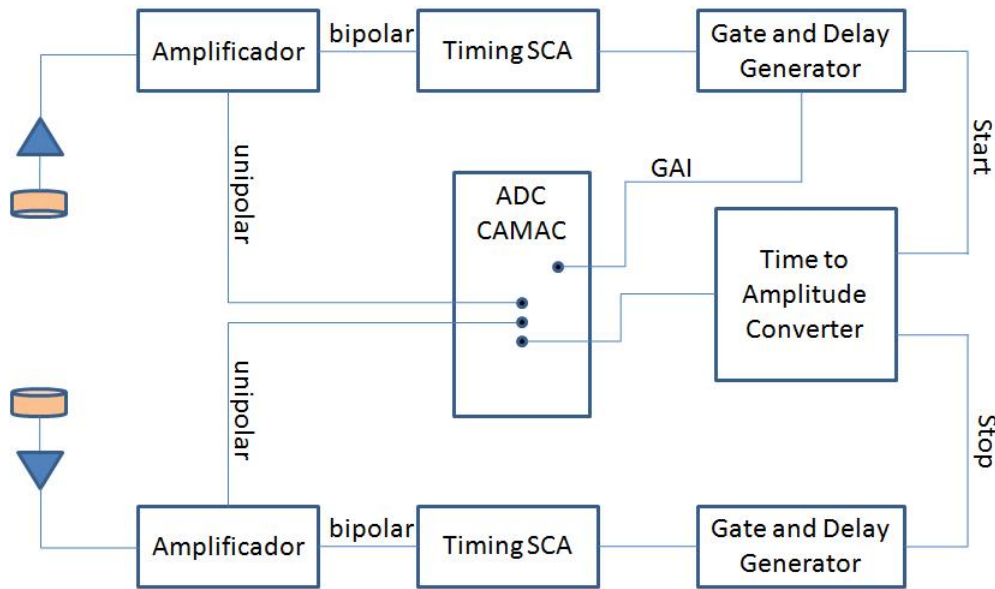


Figura 3.14: Esquema da eletrônica de aquisição de dados em coincidência utilizados para as medidas de poder de freamento.

### 3.4.3 Eletrônica e Aquisição de Dados

Para aquisição dos dados experimentais foi montado um sistema eletrônico de coincidência temporal entre os pulsos dos detectores utilizando módulos do sistema NIM [42]. A Fig. 3.14 ilustra a eletrônica utilizada para as medidas com apenas 1 monitor. A extensão para a montagem com 2 monitores é análoga. Cada detector é conectado a um pré-amplificador e este a um amplificador espectroscópico. A saída bipolar de cada amplificador é conectada a um *Timing Single Channel Analyser* (Timing-SCA) que gera um pulso lógico no instante que o sinal bipolar cruza o zero, determinando o momento em que o pulso foi produzido. O pulso lógico do Timing SCA é conectado a um *Gate and Delay Generator* (GDG) que permite ajustar o atraso e gerar pulsos rápidos negativos ao final do tempo de atraso. Cada pulso rápido é conectado em um *Time to Amplitude Converter* (TAC). O atraso nos GDG's são ajustados de modo que o pulso do monitor dê o sinal de *Start* e o do detector dê o sinal de *Stop* no TAC. O TAC gera um pulso analógico lento com amplitude proporcional à diferença de tempo entre o sinal de *Start* e de *Stop*. Na histogramação da saída do TAC, eventos simultâneos produzem a mesma amplitude na saída do TAC, enquanto eventos aleatórios produzem pulso de quaisquer amplitude, com igual probabilidade.

A aquisição de dados do LAFN utiliza a norma de interface CAMAC (*Computer Automated Measurement and Control*). O sinal de cada amplificador e

o do TAC são conectados a um módulo ADC *Silena* modelo 4418 (que possui 8 entradas). Um módulo, o CAMAC FERA (*Fast Encoding and Readout ADC*) fabricado pela Lecroy modelo 4301, executa as funções de controle do ADC tais como emissão do sinal de *trigger* e reinicialização (*clear*). O sinal de *trigger* é dado pelo monitor e o sinal de reinicialização é enviado por um computador. Numa sequência típica de aquisição de dados pelos ADC, após o sinal de *clear* o ADC permanece no estado de “espera”, pronto para receber o sinal de *trigger*, indicativo de um novo evento. Assim que o FERA sinaliza um novo evento para o ADC, esse entra em estado de “ocupado”. O tempo de conversão do ADC é de 40  $\mu\text{s}$  e qualquer outro evento que ocorra durante esse tempo é inibido. O ADC é habilitado a enviar um sinal de LAM (*Look at Me*) ao módulo controlador do CAMAC, o *Crate Controller* - modelo CAEN C111A, logo após a conversão dos pulsos de entrada, retornando ao estado de espera.

A aquisição e histogramação de eventos é controlada em um computador pelo sistema SPM-Linux que utiliza o CAEN e uma interface A151 turbo no barramento ISA do computador. O drive para esse dispositivo emula o módulo Event Handler, anteriormente utilizado como Crate Controller [47]. O sistema possui um protocolo de aquisição programável, utilizando-se do compilador do pacote UPAK [46] para implementar as instruções em um nível superior à linguagem de máquina, que é executado cada vez que o sinal de LAM é enviado para o Crate Controller. No algoritmo de aquisição, o seguinte roteiro é realizado: i) lê as entradas do ADC, referentes aos detector 1 e 2 e ao sinal do TAC, e armazena os dados em sua memória; ii) as entradas do ADC são zerados, retornando ao modo de espera. A histogramação dos eventos, em histogramas 1D para os 3 parâmetros do ADC, nos quais as propriedades de cada histograma são programadas seguindo a linguagem Upak [46].

## 3.5 Equipamento experimental para as medidas com o TOF-E

### 3.5.1 O acelerador do EMSL

A tomada de dados foi realizada no *Environmental Molecular Science Laboratories* do *Pacific Northwest National Laboratories* (EMSL-PNNL), Richland - EUA, utilizando o acelerador eletrostático Tandem 9SDH-2 Pelletron de 3 MV, similar ao acelerador do LAFN. O diagrama esquemático do acelerador é

### 3.5. EQUIPAMENTO EXPERIMENTAL PARA AS MEDIDAS COM O TOF-E

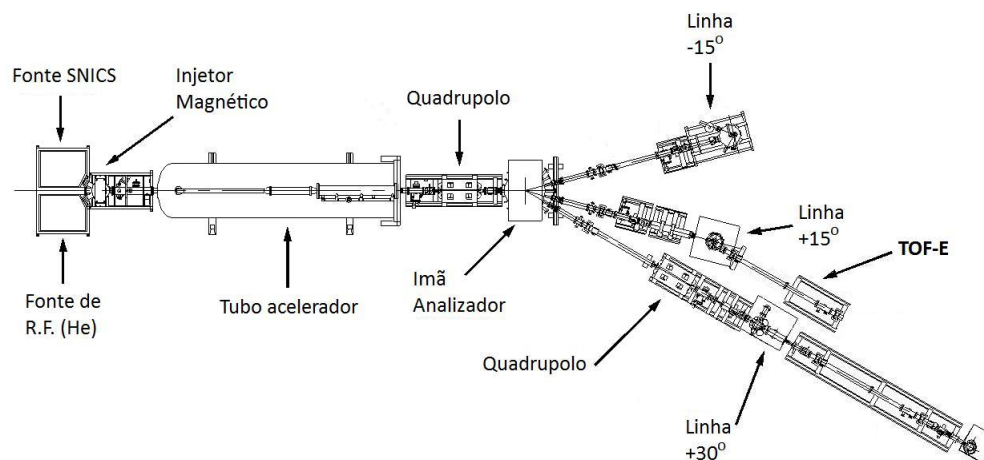


Figura 3.15: Ilustração das instalações do acelerador eletrostático Tandem 9SDH-2 Pelletron de 3 MV com as 3 canalizações experimentais disponíveis no Environmental Molecular Science Laboratories (EMSL). A canalização utilizada para as medidas com TOF-E foi a +15°, indicada na figura.

apresentado na Fig. 3.15.

O acelerador possui duas fontes distintas de íons: i) uma fonte mono-cátodica SNICS, para a extração de diversas espécies de feixe de acordo com o cátodo utilizado, e ii) uma fonte de radio-frequência (R.F.), para a extração de íons de He e outros gases. A fonte SNICS funciona de modo similar à MC-SNICS do LAFN descrito na subseção 3.4.1 com a diferença que a fonte possui posição para apenas um cátodo por vez.

Uma vez que o feixe negativo é extraído, seja pela SNICS ou pela fonte de radio-frequência, a seleção de massa é realizada pelo eletroímã denominado *injetor magnético* (Fig. 3.15)

O princípio de aceleração dos íons, assim como no 8-UD do LAFN, também é realizada em 2 estágios, sendo que a troca do estado de carga do feixe negativo é realizado por um fluxo gás de  $N_2$  próximo ao terminal, ao invés das folhas de carbono usuais do acelerador do LAFN. O *stripper* gasoso é muito utilizado quando a transmissão do feixe ao longo do tubo de aceleração e a produção de feixe com baixas energias (i.e. estados de cargas baixas) são as principais prioridades. As folhas de carbono são indicadas quando deseja-se estados de cargas mais elevados.

A seleção de energia do feixe é realizada pelo ímã analisador que, inclusive, desvia o feixe para a canalização experimental a ser utilizada. Ao longo da

trajetória do feixe, desde a fonte de íons até a canalização onde é montado o arranjo experimental, estão posicionadas lentes eletromagnéticas para controle da intensidade, focalização e forma do feixe.

### 3.5.2 O sistema de TOF-E

A montagem experimental para as medidas de freamento de Ni e Co em Au e Ge foi realizada na canalização  $+15^\circ$  do EMSL (Fig. 3.15). Essa linha é dedicada principalmente a experimentos com implantação iônica e medidas de RBS (Rutherford Backscattering). A câmara principal possui um manipulador de amostra de 5 eixos: 3 nas direções ortogonais e mais 2 eixos de rotação.

Posicionado a  $30^\circ$  com relação a direção da canalização foi montado um arranjo TOF-E. Os medidores de tempo tem o seu princípio baseados na emissão de elétrons secundários por folha de carbono devido a passagem de partículas carregadas. O esquema de um desses detectores é apresentado na Fig. 3.16. A produção de elétrons secundários na folha de carbono depende do íon e de sua energia, sendo maior para íons pesados. Assim, a eficiência de detecção vai depender desses parâmetros. Porém, para partículas mais pesadas que Li, a eficiência de detecção é melhor que 94%. Após serem emitidos pela folha de carbono, de espessura de  $\approx 7\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , esses elétrons são defletidos por espelhos eletrostáticos na direção dos *Micro Channel Plates* (MCP's). Para ser considerado um "bom" evento, a partícula deve passar por entre as grades de Ni e produzir um número suficiente de elétrons secundários para gerar um pulso cuja amplitude exceda um pré-determinado limite. A tensão aplicada a grade foi de -3.5 kV. Para as medidas com íons de Co e Ni foi utilizado -1.8 kV de tensão nos MCP's. Para medidas preliminares com He foi utilizado -1.9 kV. A distância de voo entre os detectores de tempo foi de  $\Delta L_{TOF} = 1068(2)$  mm. Para a determinação da energia foi utilizado um detector de B.S. ORTEC, de  $100\text{ mm}^2$  e  $300\text{ }\mu\text{m}$  de espessura.

A resolução temporal dos sistema de tempo de voo é a soma de duas contribuições. O primeiro é a resolução temporal intrínseca do detector que inclui: o tempo de voo dos elétrons secundários, a resposta temporal dos MCP's e o ruído da eletrônica associada. O segundo corresponde às incertezas associadas ao arranjo experimental como a resolução em energia do feixe, fatores geométricos como tamanho finito e divergência do feixe, a dispersão em energia no primeiro detector e a não-uniformidade das folhas de carbono. Levando em conta esses fatores a resolução temporal típica estimada para o sistema de tempo de voo é de 0.4 ns.

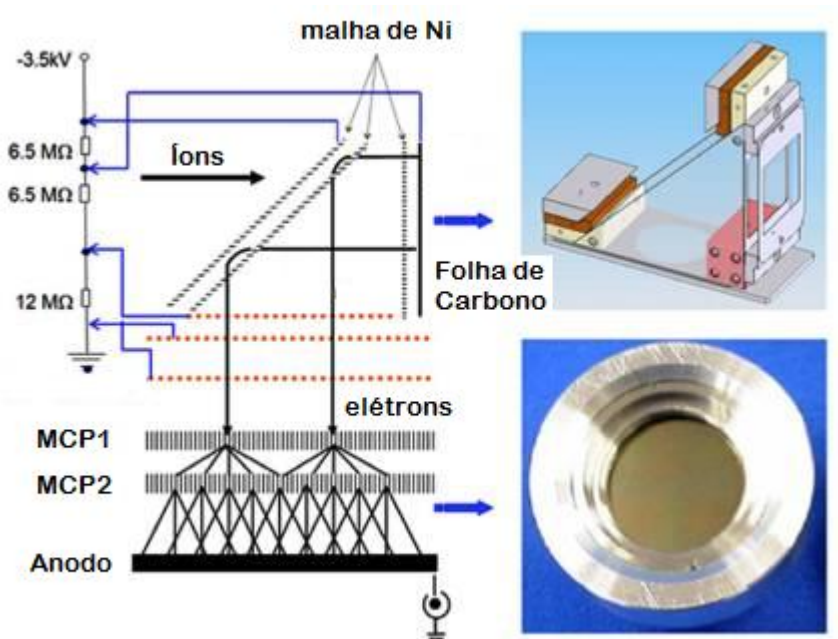


Figura 3.16: Esquema ilustrativo de um dos detectores de tempo utilizados para a medida do tempo de voo das partículas. Modificado da ref. [48].

Como feixe primário foram utilizados íons de  $\text{Ni}^{+7}$  e  $\text{Co}^{+7}$  ambos de 20 MeV. No porta-amostra do manipulador da câmara principal foi montado um substrato de Au para o espalhamento dos feixes primários. A amostra foi posicionada a  $15^\circ$  com relação a direção de incidência do feixe primário. Os freamentos foram determinados ao longo de uma região contínua de energia entre  $\sim 3\text{--}14$  MeV. Os freadores de Au e Ge foram montados sobre um suporte móvel entre o segundo detector de tempo e o detector de B.S..

Durante as medidas, a câmara foi mantida a uma pressão da ordem de  $10^{-8}$  torr com uso de 1 bomba turbo-molecular acoplada a 1 bomba rotativa e iônica.

### 3.5.3 Eletrônica e aquisição de dados

A eletrônica de aquisição dos dados é ilustrada na Fig. 3.17 e consiste de um sistema de coincidência entre os pulsos dos 3 detectores. Associado a cada detector de tempo existe um pré-amplificador Phillips modelo 6954 e um *Constant Fraction Discriminator* (CFD) Phillips modelo 6915. O atraso ( $\approx 2\text{ns}$ ) necessário para a formação do pulso lógico temporal é fornecido por um cabo coaxial de comprimento conveniente para as características do pulso analógico dos detectores temporais. O pulso lógico de cada um dos CFD's é conectado a um TAC numa lógica inversa de *Start-Stop*, i.e., o detector  $t_2$

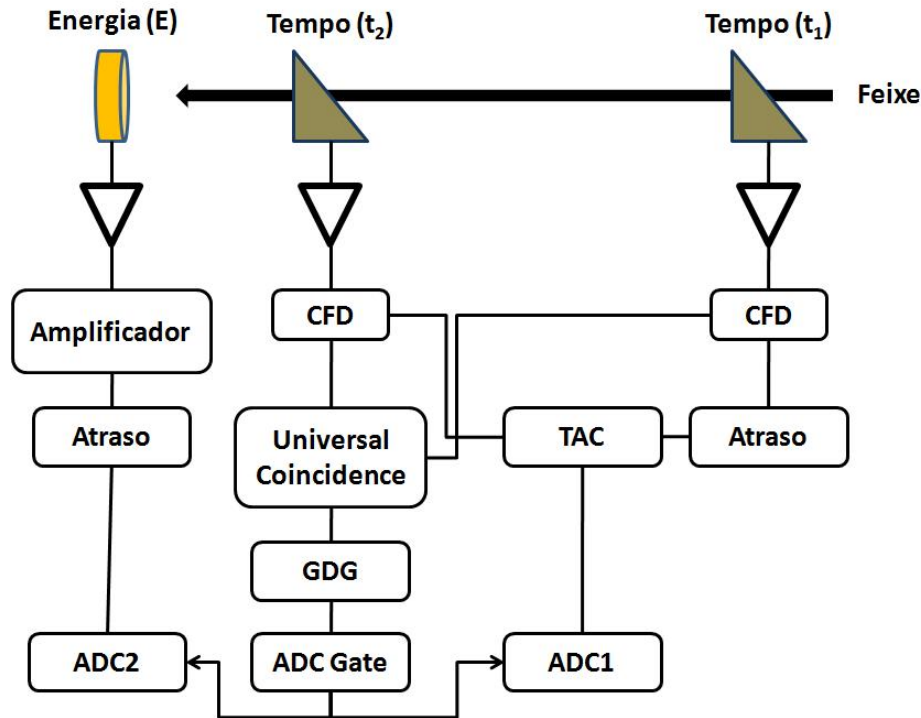


Figura 3.17: Diagrama esquemático da eletrônica de aquisição de dados utilizada para o arranjo TOF-E.

fornece o sinal de *start* e o detector  $t_1$  o de *stop*. Essa lógica inversa é obtida através de um atraso adicional, gerado por um módulo NIM Gate Generator 8010, entre o seu CFD e o TAC na eletrônica associada ao detector  $t_1$ . Esse procedimento reduz significativamente o tempo morto do sistema de tempo de voo durante a aquisição de dados. O pulso gerado pelo TAC, com rampa de 500 ns e cuja amplitude é proporcional a diferença de tempo entre os pulso de *Start-Stop*, é conectado ao ADC1. A saída TTL (*transistor-transistor logic*) dos CFD's são conectados em um módulo de coincidência (módulo NIM Universal Coincidence 418A) que gera um pulso lógico quando os pulsos na entrada estão dentro de uma janela temporal de  $2\mu s$ . A saída do módulo de coincidência passa pelo Gate and Delay Generator (GDG) para gerar um pulso de largura apropriada para o sinal de Gate dos ADC's.

A eletrônica associada ao detector de B.S. é mais simples e consiste basicamente de um pré-amplificador, um amplificador e um Delay Amplifier para gerar o atraso conveniente do pulso analógico. O pulso é conectado ao ADC2. As informações dos ADC's são carregadas em computador através de uma placa de aquisição ORTEC e salvos em arquivos do tipo evento-por-evento para análise posterior.

### 3.5. EQUIPAMENTO EXPERIMENTAL PARA AS MEDIDAS COM O TOF-E

---



# Capítulo 4

## Análise dos dados e discussão

Com a técnica de espalhamento elástico foram realizadas as medidas experimentais da perda de energia de íons de Ti em Ge, Au e Pb, de V em Ge e Au e Cr em Ge, Au e Pb, todos dentro de uma faixa de energia de  $\approx 7 - 25$  MeV ( $\approx 150 - 450$  keV/u.m.a.). Com a técnica de TOF-E foram realizadas as medidas experimentais do freamento de Ni (e Co) em Ge e Au ao longo de uma região contínua em energia de  $\approx 3 - 15$  MeV ( $\approx 50 - 250$  keV/u.m.a.).

Neste capítulo serão apresentados a redução dos dados brutos e os resultados em comparação com as previsões teóricas e semi-empíricas.

### 4.1 Redução dos dados obtidos com a técnica de espalhamento elástico

#### 4.1.1 Caracterização dos espectros em energia

Na figura 4.1 são vistos os espectros obtidos em modo *singles*<sup>1</sup> dos monitores e do detector, numa aquisição típica com o alvo primário de Ti. Durante as medidas não foi possível eliminar um ruído de alta frequência presente na eletrônica, presente nos espectros como um pico. Desconsiderando esse ruído, nos espectros dos 3 detectores (detector fixo 45 graus, detector fixo 60 graus e detector móvel) são observados as distribuições de energia devidos aos feixes secundário em recuo e o primário espalhado. No espectro do detector fixo a 45° pode-se verificar mais claramente a presença de uma terceira distribuição, proveniente de algum contaminante presente na superfície do alvo primário. Simulações do espectro foram realizadas utilizando o programa de Monte Carlo SIMNRA [49], elaborado para simulações e análises de espectros

---

<sup>1</sup>modo sem coincidência com o sinal do TAC

#### 4.1. REDUÇÃO DOS DADOS OBTIDOS COM A TÉCNICA DE ESPALHAMENTO ELÁSTICO

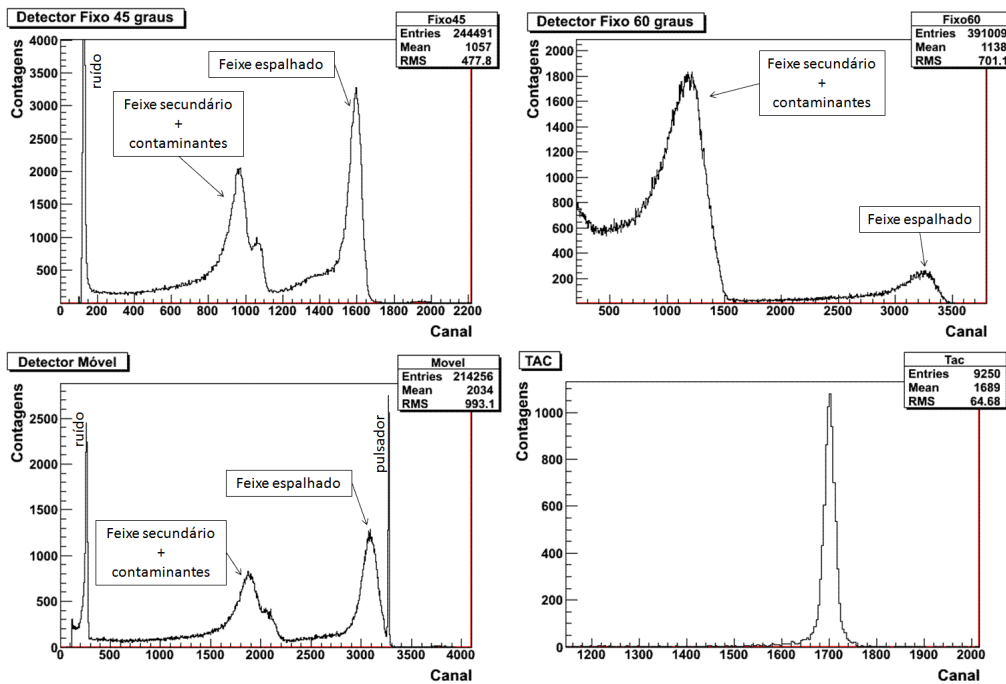


Figura 4.1: Espectro em modo singles para os monitores fixos à  $45^\circ$  e  $60^\circ$  e para o detector (móvel). Espectros obtidos para alvo primário de Ti e feixe primário de Si de 46,20 MeV.

RBS, NRA e ERDA [49]. A geometria do arranjo experimental foi simulado no SIMNRA acrescentando uma camada de contaminação no alvo primário. Com base nos espectros, não foi possível determinar unicamente o tipo de contaminante. O titânio, em particular, possui grande afinidade química com oxigênio e flúor. As simulações com a inclusão desses contaminantes são consistentes com o perfil da distribuição de energia observada experimentalmente, apesar de não ser possível reproduzir quantitativamente. De acordo com simulações no SIMNRA, para o alvo de vanádio foi observado a presença de oxigênio como elemento contaminante. Para o alvo de Cr, não foi observado a presença de contaminantes.

Conforme apresentado na seção 3.4.3, os sinais de *start* e *stop* no módulo de conversão de tempo para amplitude (TAC) são fornecidos, respectivamente, por um dos monitores (detector fixo a  $45^\circ$  ou  $60^\circ$ ) e pelo detector móvel. Na histogramação dos pulsos do TAC, os eventos correlacionados produzem uma distribuição bem concentrada em torno de um valor médio, como apresentado no espectro TAC da Fig. 4.1.

O espectro de coincidência do detector móvel com o TAC é a histogramação dos pulsos de energia do detector móvel apenas nos eventos para os quais também houve a emissão do pulso pelo TAC. Um espectro típico de coinci-

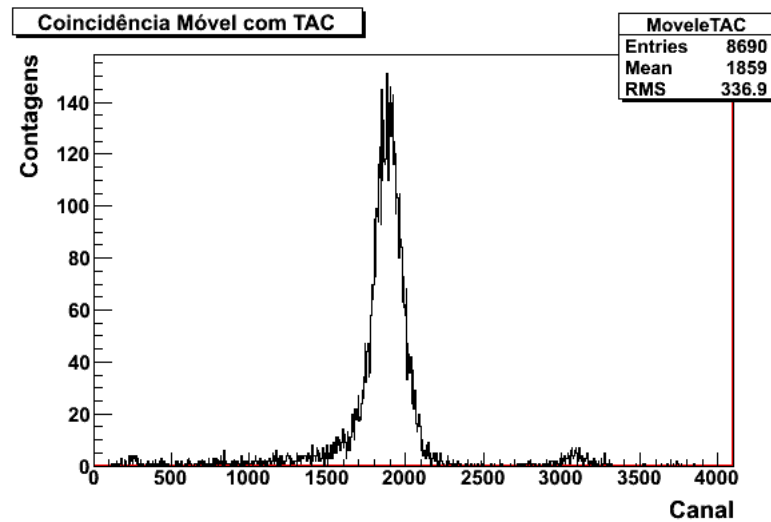


Figura 4.2: Espectro do detector móvel em coincidência com o monitor fixo à  $60^\circ$  para o alvo primário de Ti e feixe primário de Si com 46,20 MeV.

dência é apresentado na Fig. 4.2. A coincidência filtra a presença de ruídos e contaminantes, evidenciando apenas a distribuição do feixe secundário. Nos casos em que o ângulo de espalhamento do feixe primário é próximo do ângulo de recuo do feixe secundário, é possível observar um segundo pico no espectro de coincidência devido à cinemática inversa (o feixe primário detectado no detector móvel e o feixe secundário no monitor).

O ângulo de recuo do feixe secundário tende a ser ligeiramente diferente da previsão pelo espalhamento elástico devido à efeitos da espessura finita do alvo primário e da incerteza na posição dos monitores (estimado em  $\approx 1^\circ$ ). A posição angular correta do detector móvel é determinada pela medida da distribuição angular do feixe secundário. Essa medida é realizada variando-se o ângulo de observação do detector, mantendo uma dada energia de incidência do feixe primário. A cada posição angular, foi calculado a taxa de coincidências, definida como a razão entre o número de eventos coincidentes, no espectro em coincidência ou do TAC, e o número de partículas do feixe espalhado no espectro em modo *singles* do monitor. Note que, para uma dada combinação de feixe e alvo primários, o ângulo de recuo do feixe secundário independe da energia inicial do feixe primário. O procedimento foi realizado para os feixes primários de  $^{28}\text{Si}$  e  $^{16}\text{O}$  independentemente. Uma distribuição típica, obtida para o feixe secundário de Ti em coincidência com o monitor à  $60^\circ$ , é apresentado na Fig. 4.3.

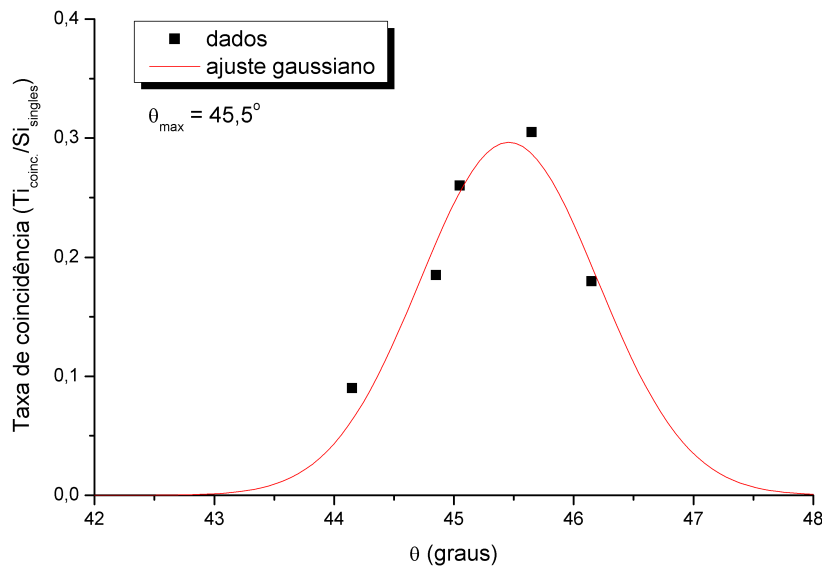


Figura 4.3: Distribuição angular do feixe secundário de  $Ti$  em coincidência com o monitor à  $60^\circ$ . Medida realizada com feixe primário de  $Si$  de  $46,2$  MeV.

#### 4.1.2 Ajustes dos espectros

A forma da distribuição de energia (gaussiana ou gaussiana assimétrica, Fig. 4.2) é relevante para a determinação da perda de energia de íons pesados. Considerações estatísticas para o processo de freamento tem sido enfatizada desde o trabalho pioneiro de Bohr em 1948 [3]. Modelos na literatura científica que detalham a variância, a curtose e momentos de ordem superiores do espectro de perda de energia [1]. Para uma breve discussão, a forma da distribuição de perda de energia depende do número de colisões que o projétil sofre no freador. Para um freador extremamente fino o número de colisões é pequeno e o espectro da perda de energia se aproxima da distribuição definida pela seção de choque diferencial de uma colisão, com um pico pronunciado e uma longa cauda. Para freadores grossos a perda de energia é relativamente grande, a seção de choque varia significativamente ao longo da trajetória da partícula e o espectro da perda de energia tende a um perfil gaussiano assimétrico. No caso de espessuras intermediárias, as flutuações na perda de energia são baixas e o espectro tende a uma gaussiana.

Numa distribuição não-gaussiana, o valor da energia média pode ser diferente da energia mais provável. O reflexo dessa diferença na determinação do poder de freamento foi estudada para prótons recuando em alvos finos de Al, Au e Bi [50]. Verificou-se que as diferenças observadas são pequenas e meno-

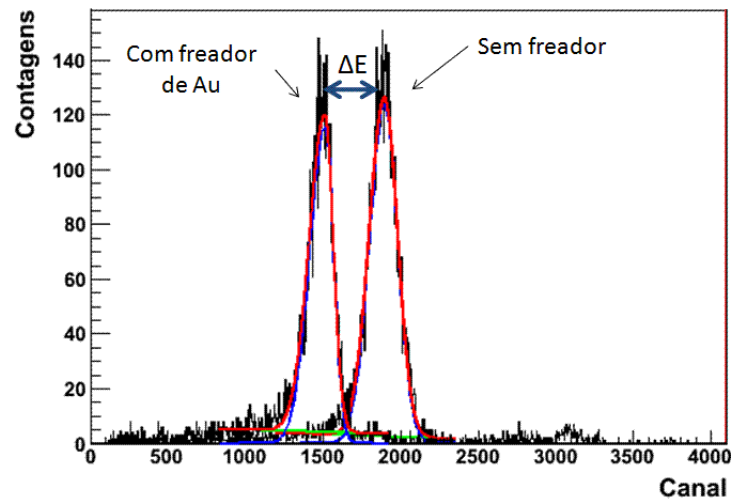


Figura 4.4: Ajustes dos espectros de coincidências no detector móvel sem e com o freador de Au para íons de Ti a 46,2 MeV.

res que as incertezas experimentais de forma que os resultados obtidos com análises das distribuições de energias pelo ajustes gaussianos ou gaussianos assimétricos são compatíveis.

Para uma análise da influência do tipo de ajuste (gaussiano ou gaussiano assimétrico) no valor final da perda de energia foram utilizados os dados experimentais do freamento de Ti em Pb, considerando 3 tipos de ajustes: ajuste gaussiano assimétrico (definida como a soma de curvas gaussiana e decaimento exponencial), ajuste gaussiano e cálculo do centróide da distribuição. As diferenças em canais ( $\Delta_{\text{canal}}$ ) obtidas em cada caso são apresentadas nas 3 últimas colunas da tabela 4.1. Verifica-se que o ajuste assimétrico fornece valores de  $\Delta_{\text{canal}}$  sistematicamente menores que os outros 2 ajustes. Para o ajuste gaussiano e o cálculo do centróide, os valores finais obtidos são compatíveis entre si. Como critério para a escolha do ajuste a ser utilizado foi ponderado 2 fatores: i) os modelos teóricos para o freamento são considerados para os valores médios da perda de energia; e ii) os ajustes assimétricos são sensíveis às extremidades da distribuição, que podem estar afetados pelo ruído eletrônico. As conclusões obtidas aqui são válidas para as análises dos freamentos dos íons de V e Cr e toda a redução de dados foi realizada com base em ajustes gaussianos dos espectros. Na Fig. 4.4 são apresentados dois ajustes aos espectros de coincidência do detector móvel com e sem o freador de Au, para uma dada energia de recuo dos íons de Ti. A diferença em canais é proporcional à perda de energia no freador de Au.

Energia inicial MeV	$\Delta$ canal		
	assimétrico	gaussiano	centróide
21,57	200(5)	223(5)	225(2)
20,05	190(4)	217(4)	219(3)
16,65	171(5)	177(5)	176(2)
15,24	139(4)	158(5)	160(2)
14,33	177(4)	199(5)	199(2)
13,32	167(5)	169(5)	169(2)
11,71	177(4)	182(5)	184(2)
10,11	140(5)	155(5)	159(2)
9,71	137(4)	149(5)	149,9(17)
7,81	129(4)	139(4)	140,0(16)
7,35	136(3)	145(4)	146,7(13)

Tabela 4.1: Tabela com os ajustes para as distribuições de energias de Ti com e sem freador de Pb. Os valores foram obtidos com ajustes de funções gaussianas assimétricas e gaussianas. Também foi calculado os centróides das distribuições. Na últimas colunas são apresentadas a diferença, em canais, das distribuições com e sem freador.

### 4.1.3 Curvas de calibração em energia

O método de calibração em energia do detector de Si é descrito na seção 3.2.1. No programa de Monte Carlo, o alvo primário é caracterizado pelo elemento e a espessura, medida através da perda de energia de partículas  $\alpha$  de uma fonte de  $^{241}\text{Am}$  (ver tabela 3.3). Eventuais camadas de contaminantes nas superfícies do alvos primários não foram considerados.

**Íons de Ti** Durante as medidas, o alvo primário inicial de Ti (de  $99 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) quebrou e foi necessário a utilização de um alvo reserva, de  $195 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  (ver tabela 3.3). Essa troca foi realizada sem a quebra de vácuo na câmara e, portanto, sem alteração nos parâmetros de tensão e ganho na eletrônica associada ao detector de Si. Para o cálculo das energias de recuo do feixe secundário foi considerada, para cada ponto de calibração, a espessura apropriada do alvo de Ti. A reta de calibração obtida é apresentada na Fig. 4.5, de onde é possível notar a diferença entre nas calibrações com o primeiro ou com o segundo alvo primário de Ti.

A estabilidade da eletrônica associada ao detector foi monitorada através de um gerador de pulsos, mantido ao longo das aquisições. Não foi observado desvio significativo nos picos após a troca do alvo primário. Por outro lado, o ponto frágil no cálculo da energia de recuo do feixe secundário é a estimativa do freamento do íon pesado no próprio alvo. Para o alvo mais fino essa estimativa

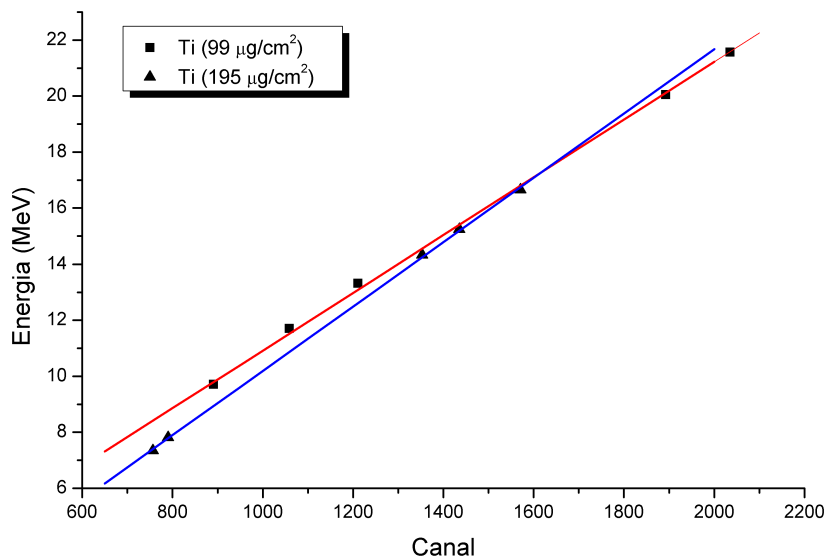


Figura 4.5: *Reta de calibração para o feixe secundário de Ti obtido com o uso do programa de Monte Carlo. Observa-se uma diferenciação da reta de calibração em virtude da utilização de alvos primários de Ti distintos. As retas indicam os ajustes lineares para cada alvo primário utilizado.*

contribui como uma pequena incerteza na energia de recuo que, para o alvo mais grosso, tende a ser significativa. Assim assume-se que a discrepância observada na calibração é oriunda da incerteza na determinação da energia de recuo e, portanto, foi utilizada a curva de calibração obtida com o alvo mais fino ( $99 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ).

**Íons de V** As medidas do freamento de V foram realizadas ao longo de 2 dias de uso do acelerador, utilizando o mesmo alvo primário. A reta de calibração obtida é apresentada na Fig. 4.6 da qual é verificada a linearidade da curva de calibração ao longo da região de energias medidas.

**Íons de Cr** As medidas do freamento de Cr foram realizadas em 2 dias distintos de uso do acelerador e, portanto, houve a necessidade de duas retas de calibração. As retas de calibração obtidas são apresentadas na Fig. 4.7. Em ambas as calibrações nota-se a linearidade das calibrações.

#### 4.1. REDUÇÃO DOS DADOS OBTIDOS COM A TÉCNICA DE ESPALHAMENTO ELÁSTICO

---

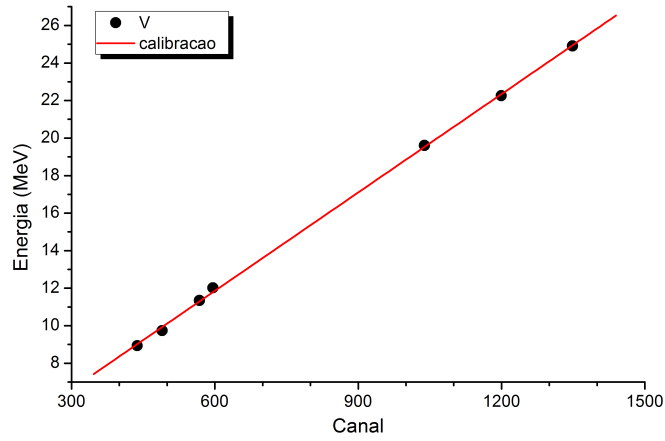


Figura 4.6: *Reta de calibração para o feixe secundário de V obtido com o uso do programa de Monte Carlo.*

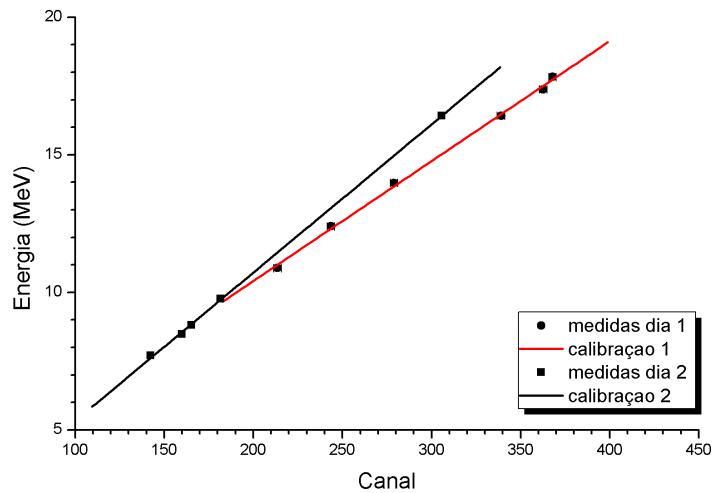


Figura 4.7: *Reta de calibração para o feixe secundário de Cr obtido com o uso do programa de Monte Carlo.*



#### 4.1.4 Poder de freamento experimental

Para o cálculo do poder de freamento experimental foi utilizado a aproximação diferencial, eq. (3.3). As incertezas finais foram obtidas propagando-se as incertezas das retas de calibração e dos ajustes das distribuições. No valor do poder de freamento, a incerteza obtida corresponde às incertezas devido as retas de calibração ( $< 3\%$ ) e as espessuras dos freadores ( $4\%$ ), dando uma incerteza final média de aproximadamente  $5\%$ . Os resultados experimentais dos freamento de Ti e Cr em Au, Ge e Pb e V em Au e Ge são apresentados nas tabelas 4.2 e 4.3.

## 4.2 Redução dos dados obtidos com a técnica TOF-E

### 4.2.1 Caracterização dos espectros obtidos

A Fig. 4.8 ilustra os espectros de tempo, energia e biparamétrico típicos obtidos durante as medidas para íons de Ni. O espectro de tempo de voo (TAC) apresenta uma borda (aproximadamente no canal 500) correspondente às partículas mais rápidas, aquelas espalhadas nas primeiras camadas do substrato de Au. O espectro de energia segue a forma característica definida pela seção de choque do espalhamento Rutherford, que é inversamente proporcional à energia do projétil. O número de contagens é maior para as energias mais baixas, mas a distribuição apresenta um máximo a partir do qual o número de contagens diminui devido aos efeitos combinados de múltiplos espalhamentos do projétil no substrato e do *straggling* do feixe de Ni nas folhas de carbono dos detectores de tempo. Os espectros obtidos com o posicionamento de freadores a frente do detector de B.S. são similares com a distinção que a presença do freador modifica a relação de energia e tempo de voo observada no espectro biparamétrico.

Para a determinação da curva média dos espectros biparamétricos foi analisada a energia projetada no eixo de tempo. Essa projeção consiste na histogramação do tempo de voo apenas para os eventos cuja energia situa-se entre uma determinada região pré-estabelecida. O processo é ilustrada pelas setas no espectro biparamétrico da Fig. 4.8. O número de bins no canal de energia para a sua projeção no canal de tempo foi avaliada em 3 casos. A Fig. 4.9 ilustra a histogramação da projeção de energia no eixo de tempo para 3 regiões de energia centrada no canal 1500. Então, por exemplo, o histograma à esquerda

Freador	íons de Ti			íons de V			íons de Cr		
	$\Delta E$	$E$	$\frac{dE}{dx}$	$\Delta E$	$E$	$\frac{dE}{dx}$	$\Delta E$	$E$	$\frac{dE}{dx}$
Au	3,86	18,12	6,34(30)	3,56	23,16	7,55(25)	3,92	15,77	6,44(31)
	3,71	13,06	6,10(23)	3,70	20,49	7,86(23)	4,17	15,42	6,85(32)
	3,05	8,99	5,01(21)	3,06	18,00	6,50(21)	3,72	14,62	6,10(30)
	2,69	7,89	4,42(18)	2,05	10,27	4,34(18)	3,40	12,15	5,59(29)
	2,76	7,46	4,53(18)	1,81	9,03	3,84(17)	3,07	10,78	5,05(27)
				1,73	8,16	3,66(17)	2,86	9,57	4,70(27)
							2,52	8,35	4,14(25)
							2,31	7,74	3,80(25)
							2,27	7,54	3,72(25)
							2,15	6,82	3,53(24)
Ge	3,13	19,95	12,09(23)	1,61	24,14	14,9(8)	2,91	16,06	11,25(62)
	3,11	18,54	12,00(23)	1,92	21,38	17,8(7)	2,34	15,13	9,03(59)
	2,84	15,49	10,98(26)	1,58	18,74	14,6(7)	2,41	12,46	9,32(59)
	2,56	14,28	9,88(22)	0,91	11,33	8,4(7)	2,35	11,23	9,08(58)
	2,58	13,45	9,95(22)	0,95	10,82	8,8(7)	2,19	9,99	8,47(57)
	2,59	12,03	10,01(22)	0,88	9,49	8,1(7)	1,89	9,01	7,30(55)
	2,53	10,55	9,75(22)	0,89	8,57	8,2(7)	1,77	8,43	6,84(54)
	2,41	8,81	9,31(25)				1,94	8,13	7,47(55)
	2,22	9,30	8,56(21)				1,61	7,46	6,23(53)
	2,03	8,13	7,84(20)						

Tabela 4.2: Resultados experimentais dos freamentos de Ti e Cr em Au, Ge.  $\Delta E$  e  $\bar{E}$  em MeV e  $\frac{dE}{dx}$  em MeV/mg/cm<sup>2</sup>.

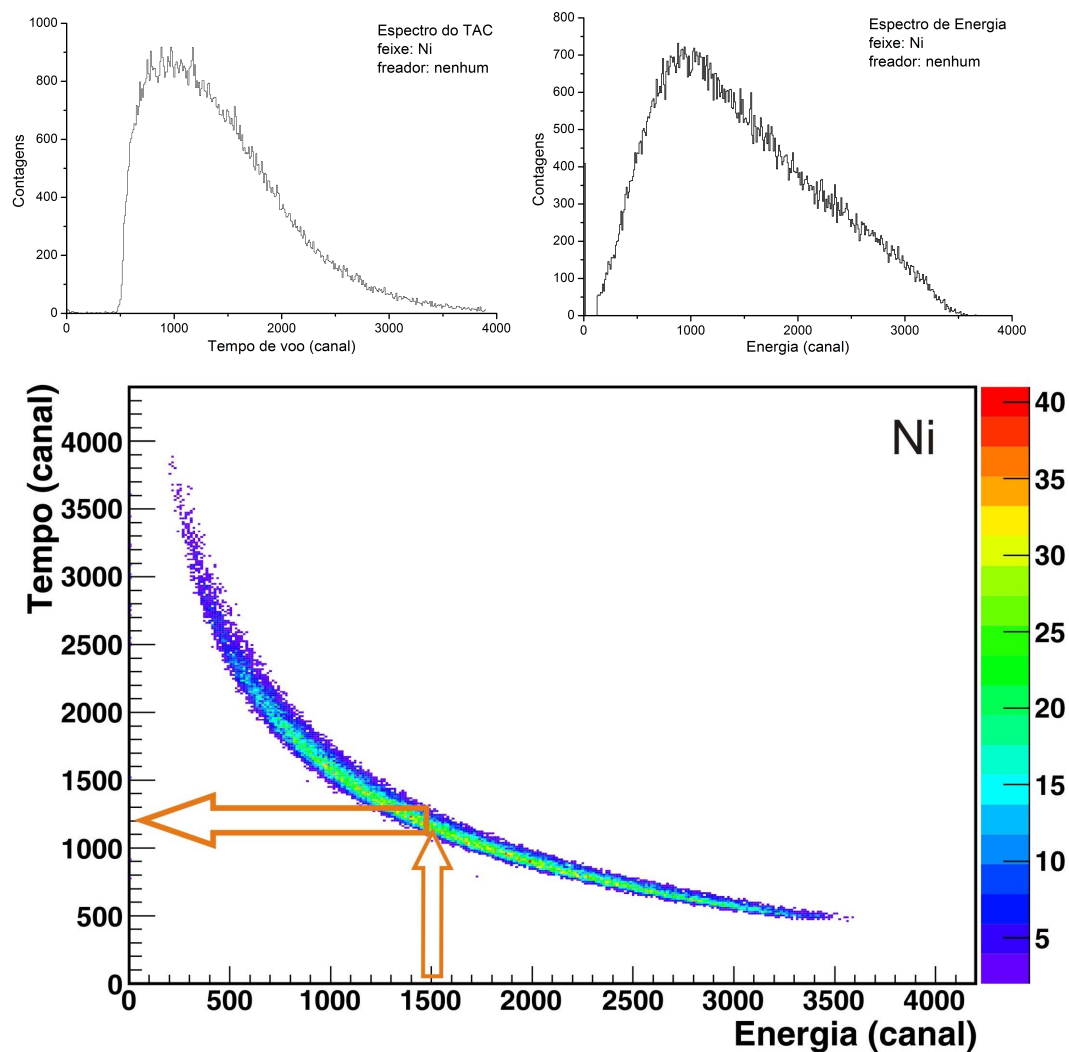


Figura 4.8: Espectros típicos de tempo de voo e energia obtido para a medida do freamento de Ni. Espectros obtidos sem o posicionamento de freadores a frente do detector de B.S..Abaixo o espectro biparamétrico (Energia x TAC) típico.

## 4.2. REDUÇÃO DOS DADOS OBTIDOS COM A TÉCNICA TOF-E

Freador	íons de Ti			íons de Cr		
	$\Delta E$	$\bar{E}$	$\frac{dE}{dx}$	$\Delta E$	$\bar{E}$	$\frac{dE}{dx}$
Pb	2,22	20,40	7,27(27)	2,20	16,42	7,35(50)
	2,16	19,02	7,06(26)	1,67	15,47	5,55(47)
	1,76	16,03	5,75(24)	1,65	12,83	5,54(47)
	1,57	14,78	5,12(22)	1,72	11,55	5,74(47)
	1,98	13,75	6,47(25)	1,68	10,24	5,60(46)
	1,67	12,48	5,47(22)	1,63	9,14	5,43(46)
	1,81	10,91	5,90(24)	1,55	8,54	5,16(45)
	1,54	9,25	5,02(24)			
	1,48	9,67	4,83(21)			
	1,38	8,45	4,52(20)			
	1,44	8,09	4,72(21)			

Tabela 4.3: Resultados experimentais dos freamentos de Pb e V em Au e Ge.  $\Delta E$  e  $\bar{E}$  em MeV e  $\frac{dE}{dx}$  em MeV/mg/cm<sup>2</sup>.

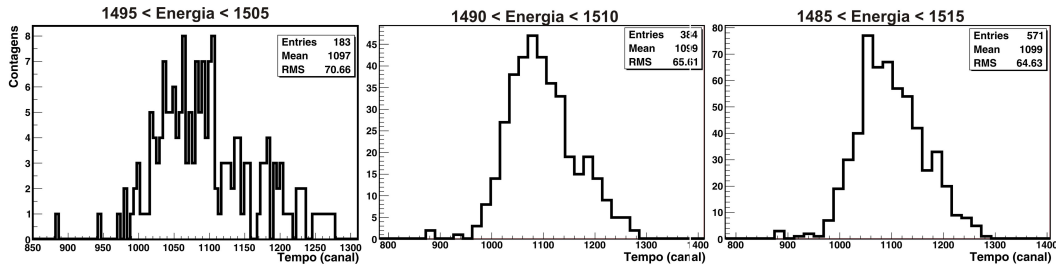


Figura 4.9: Projeção do espectro biparamétrico no eixo de tempo para 3 regiões distintas regiões de energia.

corresponde apenas aos eventos para os quais o pulso de energia situa-se na região de canais [1495,1505]. Os demais histogramas foram obtidos ampliando-se as faixas de energia. Nos 3 casos os valores médios são consistentes entre si e, daqui para frente, as reduções de dados foram conduzidas utilizando-se a projeção da região de energia compreendida em 10 canais. O valor médio do histograma é tomado como o valor do tempo de voo médio para a energia média, no caso energia média 1500 e tempo de voo médio 1097.

### 4.2.2 Calibração do tempo de voo

A calibração do sistema de tempo de voo é realizada *a priori*, utilizando íons de He com energias iniciais distintas (a 500, 600 e 650 keV) e espalhados pelo substrato de Au. A energia da borda de espalhamento, devido ao espalhamento na superfície do substrato, é utilizada como ponto de calibração. Os detalhes das bordas do espectro de tempo de voo para cada energia é apresentado na Fig. 4.10. Para a determinação do canal da borda ( $t_{\text{borda}}$ ) foi ajustado uma

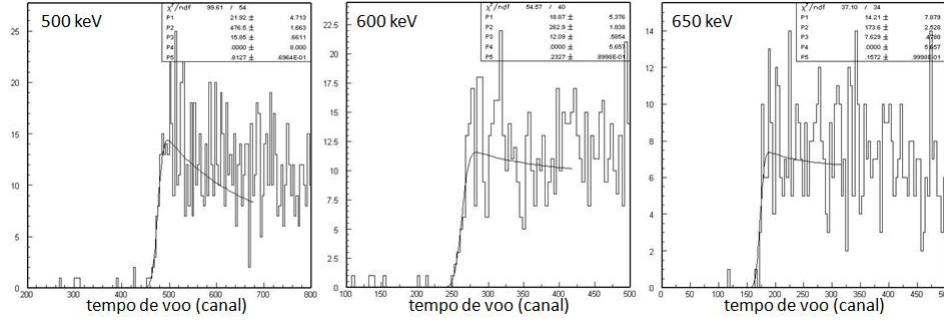


Figura 4.10: Calibração do tempo de voo utilizando íons de He @ 500, 600 e 650 keV's.

curva do tipo função erro.

Foi utilizada um ajuste linear para a calibração da escala de tempo, de acordo com a equação abaixo:

$$t_{\text{borda}}(\text{ns}) = A + B \times t_{\text{borda}}(\text{canal}) \quad (4.1)$$

onde

$$t_{\text{borda}}(\text{ns}) = L_{\text{TOF}} \times \sqrt{\frac{M_1}{2(E_{\text{borda}} - \Delta E_{\text{corr}})}} \quad (4.2)$$

$\Delta E_{\text{corr}}$ . é um termo de correção na energia devido a perda de energia do projétil na folha de carbono do segundo detector de tempo. Essa correção é estimada a partir da espessura da folha de carbono e do poder de freamento de He em carbono, estimado a partir do código SRIM2008.03 [5]. A energia da borda, necessária na eq. (4.2), foi calculada através da equação [49]:

$$E_{\text{borda}} = E_0 \frac{A_1^2}{(A_1 + A_2)^2} \times \left[ \cos \theta + \sqrt{\frac{A_2^2}{A_1^2} - \sin^2 \theta} \right]^2 \quad (4.3)$$

onde  $\theta$  é o ângulo de espalhamento (do feixe de He no substrato de Au) e  $E_0$  a energia inicial do feixe.

A reta de calibração obtida é apresentada da Fig. 4.11. Os valores dos parâmetros ajustados são:  $A = 93,0(2)$  e  $B = 0,0944(5)$ . O valor da inclinação da reta de calibração foi estimado independentemente da calibração com He, utilizando um módulo eletrônico (*Time calibrator 462*, da ORTEC) acoplado ao módulo TAC (*Time to Amplitude Converter*). A calibração com este módulo também é apresentada na Fig. 4.11 e o valor obtido foi  $B = 0,09438(2)$ , consistente com o valor obtido na calibração com íons de He. Essa calibração com o módulo da ORTEC foi realizada durante as medidas com íons de Ni e

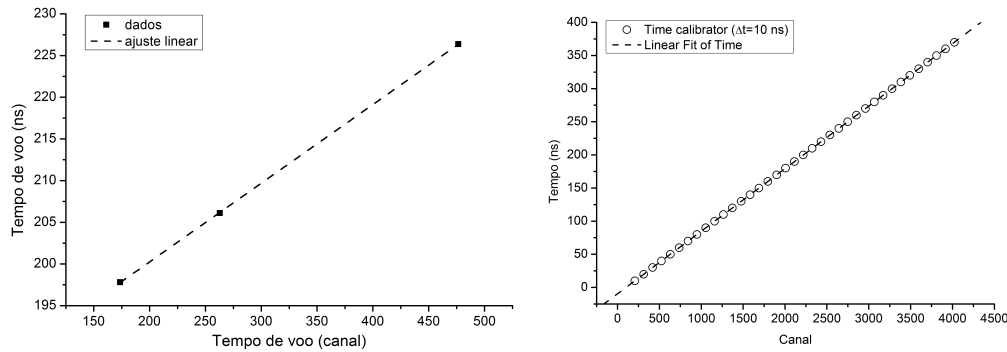


Figura 4.11: Curva de calibração do sistema de tempo de voo.

Co para verificação da estabilidade do módulo TAC.

### 4.2.3 Determinação da perda de energia

A determinação da perda de energia é baseada na metodologia descrita na seção 3.2.2. As curvas médias do espectro biparamétrico para o feixe de Co com e sem o freador de Au é apresentado na Fig. 4.12. Existem duas regiões, circuladas em azul, para as quais a baixa estatística e as resoluções do tempo de voo e do detector de Si comprometem a distinção entre as curvas com e sem freador. Essas regiões foram excluídas das análises para a determinação da perda de energia.

Para cada canal em energia foi determinada a diferença entre o tempo de voo do íon com e sem o freador (ver detalhe da Fig. 4.12). O tempo de voo é convertido em energia através da eq. (4.2). Em seguida, são calculadas a energia média e a perda de energia. Os pontos experimentais obtidos são apresentados na Fig. 4.13 aos quais foram ajustadas, pelo método de mínimos quadrados, as curvas dadas pela equação:

$$\Delta E = a_1 + a_2 \times E + a_3 \times E^2 \quad (4.4)$$

com as energias sendo dadas em keV. Os parâmetros obtidos nos ajustes para cada combinação íon-freador são apresentados na tabela 4.4. Note que as regiões de mais alta energia foram excluídas dos ajustes.

### 4.2.4 Determinação das espessuras dos freadores

As espessuras dos freadores foram determinadas pela perda de energia de He no mesmo ponto de incidência dos íons de Ni e Co, utilizando o mesmo

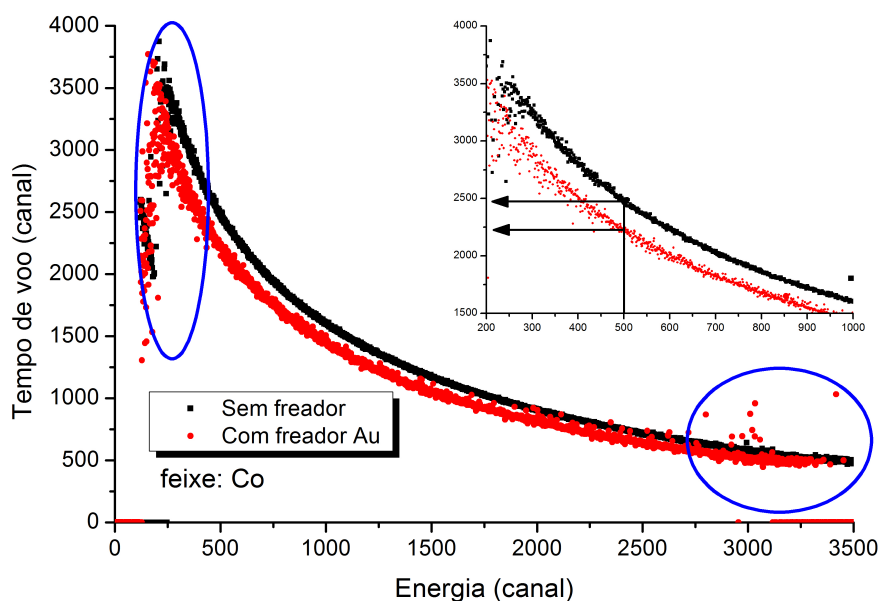


Figura 4.12: Curvas médias do espectro biparamétrico de tempo de voo  $X$  energia para o feixe de Co sem e com o freador de Au. Em detalhe uma ampliação do espectro.

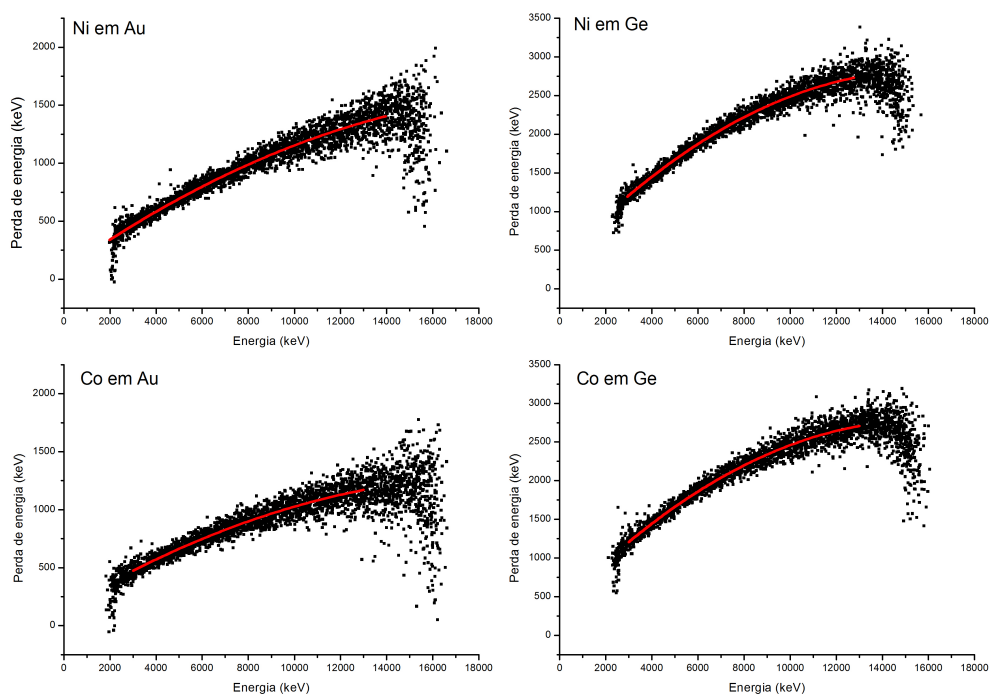


Figura 4.13: As curvas da perda de energia para os freamentos de Ni em Au, Ni em Ge, Co em Au e Co em Ge.

### 4.3. COMPARAÇÃO ENTRE AS TÉCNICAS

íon-átomo	$a_1$	$a_2$	$a_3$	energias (MeV)
Ni em Au	74(9)	0,140(2)	$-3,2(2) \times 10^{-6}$	3-14
Ni em Ge	370(16)	0,309(4)	$-9,7(3) \times 10^{-6}$	3-13
Co em Au	144(19)	0,119(5)	$-3,1(3) \times 10^{-6}$	3-13
Co em Ge	382(15)	0,304(4)	$-9,6(3) \times 10^{-6}$	3-13

Tabela 4.4: Parâmetros da eq. (4.4) para os ajustes das perdas de energia. Na última coluna é indicada a região em energia de validade para cada ajuste.

arranjo experimental TOF-E. Foi utilizado feixe de He a 2 MeV e o substrato de Au como espalhador.

A redução de dados para a obtenção da curva de perda de energia foi realizada de acordo com a descrição realizada na seção anterior. Uma vez obtida a curva de perda de energia, esta foi comparada com o poder de freamento de He, previsto pelo código SRIM 2008.03 [5], na qual a espessura do freador é o parâmetro de ajuste (ver Fig. 4.14). As espessuras obtidas foram: 190(4) e 270(7) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  para os freadores de Au e Ge respectivamente. Anteriormente esses freadores também tiveram as suas espessuras determinadas pela perda de energia de He através de uma fonte de  $^{241}\text{Am}$ , conforme descrito na seção 3.3. As espessuras obtidas na ocasião foram: 197(10) e 258(12) $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  respectivamente, compatíveis com as espessuras determinadas pela técnica TOF-E. O freador foi mantido em câmaras seladas à vácuo e durante o transporte foi utilizada uma caixa plástica, minimizando a sua exposição direta ao ar. O tempo de permanência máximo do Ge fora da câmara de vácuo seja de 7 dias.

Os freadores "estouraram" durante o transporte de volta, impossibilitando uma segunda medida da espessura dos freadores com a fonte de  $^{241}\text{Am}$ .

O poder de freamento foi calculado a partir da eq. (3.3), utilizando as espessuras determinadas com o feixe de He no arranjo TOF-E e as curvas de perda de energia definidas pelos parâmetros da tabela 4.4.

### 4.3 Comparação entre as técnicas

Para verificar a consistência dos dados experimentais obtidos com as técnicas utilizadas foi comparado o freamento de Cr em Au medido com as distintas técnicas. O freamento de Cr em Au medido com a técnica de espalhamento elástico compõe os dados experimentais medidos nesse trabalho. As medidas com a técnica de TOF-E foram realizados independentemente e são reportados na ref. [41]. A comparação experimental é apresentada na Fig. 4.15 a partir da qual fica evidente o excelente acordo entre os dados.



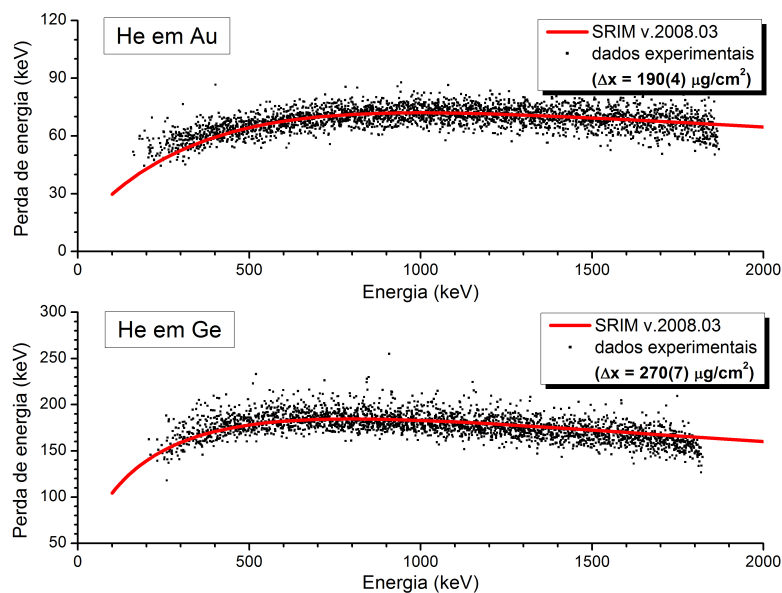


Figura 4.14: Determinação das espessuras dos freadores de Au e Ge utilizando o arranjo TOF-E com íons de He.

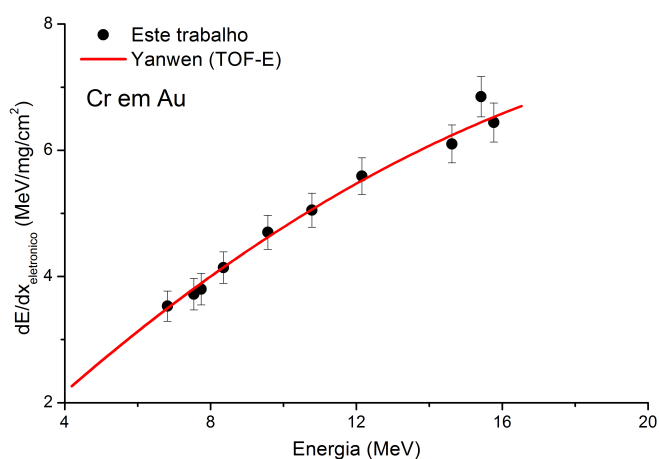


Figura 4.15: Comparação do freamento de Cr em Au medido independentemente com as técnicas de espalhamento elástico (pontos) e a de TOF-E (linha contínua).

## 4.4 Discussão

Nesta seção, os dados experimentais para o freamento de Ti, V, Cr, Co e Ni em Au e Ge e do freamento de Ti e Cr em Pb serão discutidos e comparados com modelos teóricos e semi-empíricos. Nos casos em que for possível também serão incluídos dados experimentais obtidos da literatura científica.

### 4.4.1 Comparação com modelos teóricos (LSS, BT e UCA)

Durante muitos anos a teoria LSS foi amplamente utilizada como instrumento de previsão do freamento principalmente na região de baixas velocidades. Nessa região de energias o modelo indica um freamento proporcional a velocidade do íon  $v$  - eq. (2.11). Experimentalmente, em determinadas combinações íon-átomo a linearidade em  $v$  não é verificada como por exemplo, no freamento de Ag em alguns meios, ref. [14].

A partir dos dados experimentais foi investigado a linearidade do freamento à baixas velocidades, ajustando por uma função do tipo:

$$\frac{dE}{dx} = aE^b \quad (4.5)$$

onde  $a$  e  $b$  são parâmetros livres. Pela teoria LSS, o parâmetro  $b \approx 0.5$ . Na Fig. 4.16 são apresentados as comparações dos dados experimentais e os ajustes obtidos. Também são incluídos as curvas teóricas do modelo LSS. Os parâmetros dos ajustes são apresentados na tabela 4.5. Os ajustes não favorecem a ideia de um comportamento linear do freamento com a velocidade do íon. Para íons de Ti e Co os valores do parâmetro  $b$  ajustados são, de modo aproximado, independentes dos freadores. No entanto a mesma observação não é verificada para os demais íons assim como não é possível verificar o comportamento similar dos distintos íons em um mesmo freador.

Freador	Ge		Au		Pb	
Íon	$a$	$b$	$a$	$b$	$a$	$b$
Ti	3,5(4)	0,41(4)	1,8(4)	0,45(10)	1,8(4)	0,44(9)
V	1,2(3)	0,85(11)	0,74(12)	0,76(6)	-	-
Cr	2,0(5)	0,59(9)	0,82(7)	0,76(3)	2,5(9)	0,33(15)
Co	2,48(7)	0,60(2)	1,28(2)	0,622(10)	-	-
Ni	2,47(8)	0,57(2)	1,12(2)	0,732(10)	-	-

Tabela 4.5: Parâmetros da eq. (4.5) ajustados para os dados experimentais.

Na Fig. os dados experimentais são apresentados em  $v/v_0$ . Neste cenário,

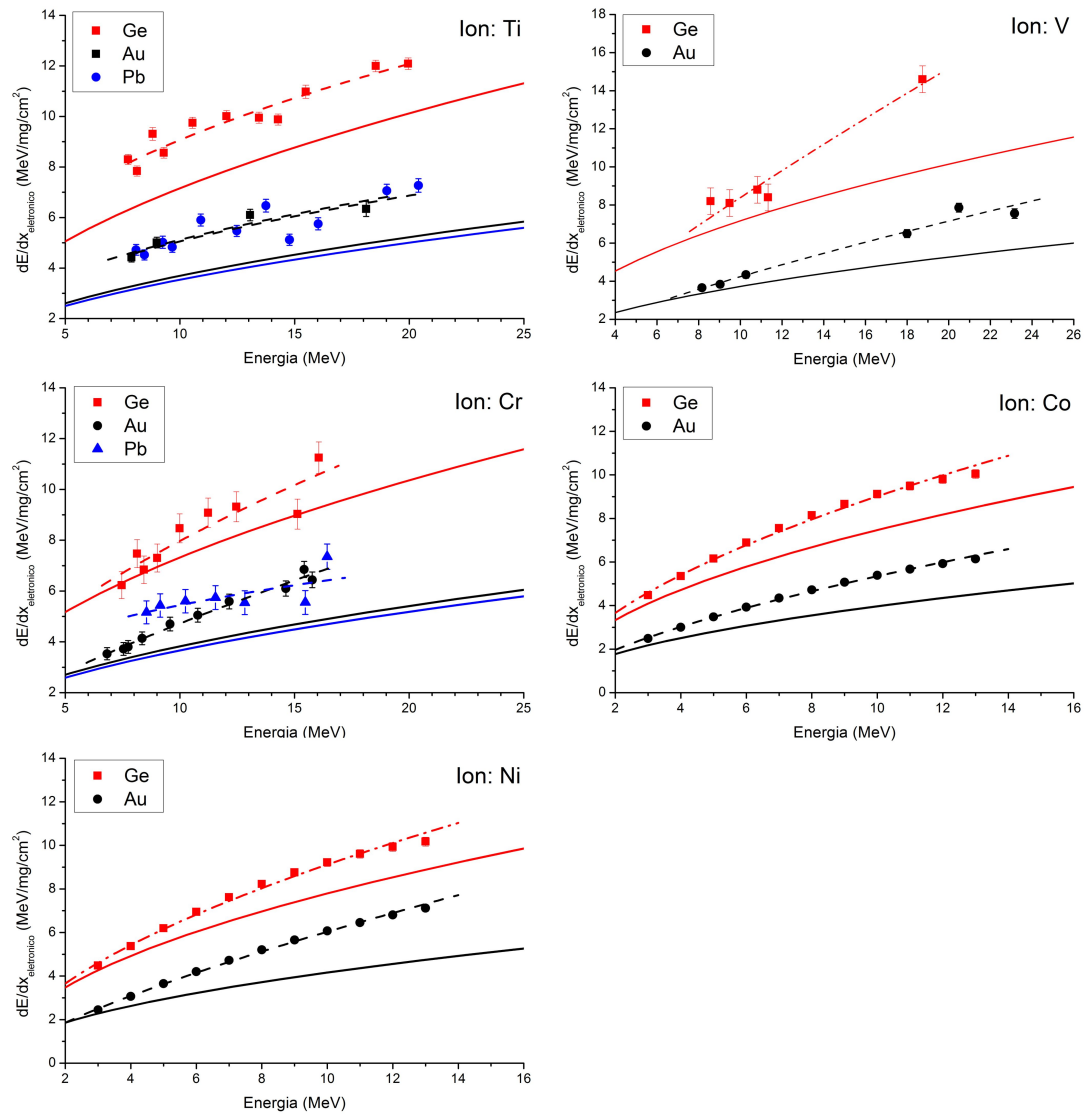


Figura 4.16: Comparação dos dados experimentais com as previsões da teoria LSS. Linha contínua: previsão do modelo LSS; linha pontilhada: ajuste pela eq.(4.5).

#### 4.4. DISCUSSÃO

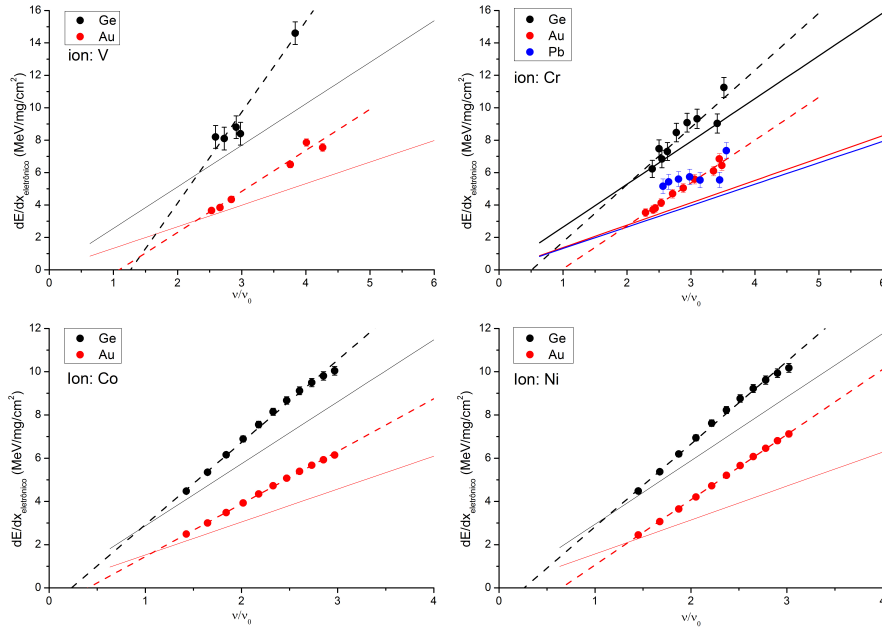


Figura 4.17: Comparação dos dados experimentais com as previsões da teoria LSS em unidades de  $v/v_0$ . Linha contínua: previsão do modelo LSS; linha pontilhada: ajuste pela eq. (4.6).

os dados experimentais são ajustados por uma curva do tipo:

$$\frac{dE(\bar{E})}{dx} = A + B \times \frac{v}{v_0} \quad (4.6)$$

Para os cálculos dentro do modelo UCA foi utilizado o programa CASP versão 4.0 [51] com as seguintes opções habilitadas: *mean-charge state*, *shell corrections* e *Barkas binary*. Com a opção *mean-charge state* utiliza-se um potencial de blindagem do projétil na qual a distribuição eletrônica é estimada com a teoria de Brandt e Kitagawa [34]. O potencial de blindagem obtido é uma média e que inclui apenas uma constante para a blindagem. Dessa forma os efeitos de estrutura, devido às camadas eletrônicas, tendem a se misturarem dentro dessa aproximação. Com a opção *shell corrections* são levados em conta os movimentos relativos dos elétrons. Com essa correção, a validade dos resultados com o modelo UCA podem ser estendidos para energias da ordem de 20 keV/u.m.a. A opção *Barkas binary* inclui efeitos de polarização e de ligação dos elétrons.

Para as previsões da Teoria Binária (TB) não há disponível um programa próprio para os cálculos. O desenvolvimento de um algoritmo para o cálculo da TB é demasiadamente longo e fora do escopo desta tese. No entanto, para uma comparação preliminar do freamento em Au foi utilizado um procedimento

de interpolação a partir de dados calculados com a teoria e disponíveis na literatura. Na referência [52] são apresentados diversas tabelas com a previsão do freamento de íons de  $3 \leq Z_1 \leq 18$  em diversos meios, entre eles o Au. Na ref. [53] foi medido o freamento de Cu em Au e comparado com a previsão teórica da teoria TB<sup>2</sup>. A teoria não reproduz as oscilações, tanto em  $Z_1$  como em  $Z_2$ , do freamento em baixas velocidades. Essa característica será explorada para, a partir da interpolação de dados teóricos, construir as curvas dos freamentos de Ti, V, Cr, Ni e Co em Au. Essa interpolação é apresentada na Fig. 4.18 para várias energias, sendo possível notar que a curva torna-se mais suave para íons mais energéticos. A validade dessa interpolação pode ser falha para energias menores que 50 keV/u.m.a..

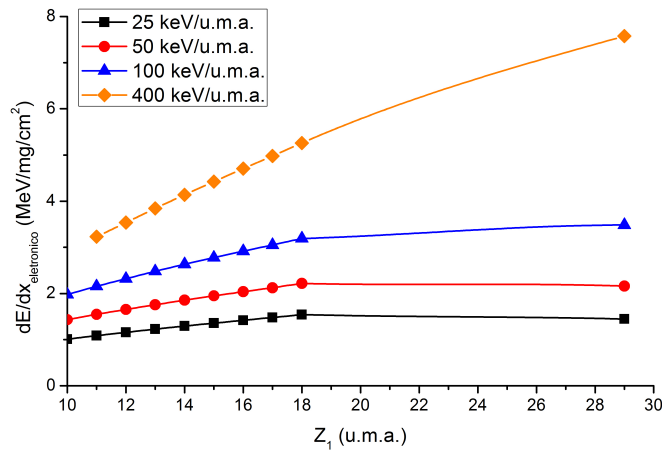


Figura 4.18: *Interpolação dos dados teóricos da teoria binária para o freamento em Au de íons com energias entre 25 e 400 keV/u.m.a..*

<sup>2</sup>cálculo teórico gentilmente cedido por P. Sigmund

#### 4.4. DISCUSSÃO

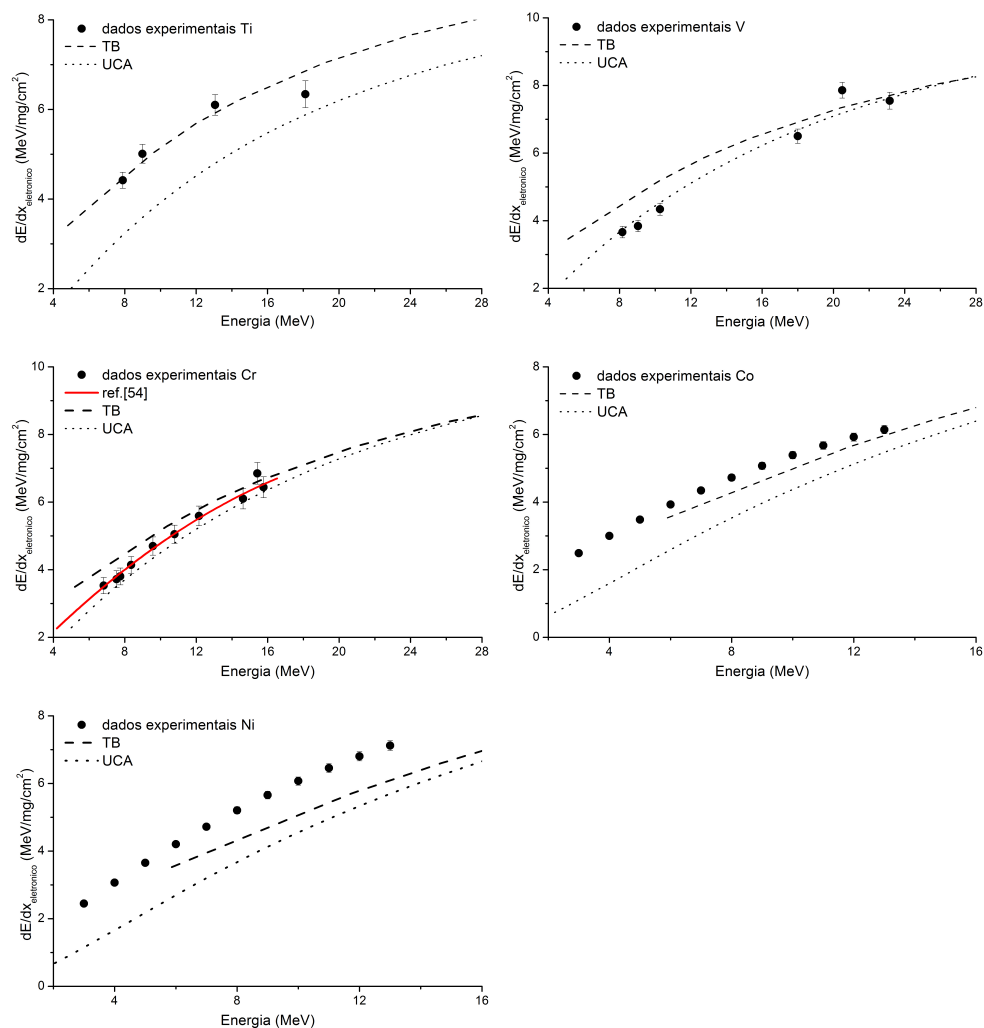


Figura 4.19: Comparações do freamento de *Ti*, *V*, *Cr*, *Co* e *Ni* em *Au* com as previsões da UCA e a TB (ver texto). Também foram incluídos os resultados experimentais do freamento de *Cr* em *Au* da ref. [54]

As comparações com as previsões teóricas são apresentadas na Fig. 4.19. O modelo UCA consegue reproduzir bem os dados experimentais com os íons de *V* e *Cr*, enquanto a TB reproduz bem os dados para os íons de *Ti*, enquanto situa-se sistematicamente abaixo para íons de *Co*. Ambos os modelos não descrevem o freamento de *Ni* em *Au*, situação a qual os dados experimentais chegam a ser quase 2 vezes maiores que as previsões teóricas. A seguir, na Fig. 4.20 são apresentadas as comparações do modelo UCA com os dados experimentais dos freamentos em *Ge* e *Pb*. Em nenhum dos casos os cálculos de UCA conseguiram reproduzir os dados experimentais.

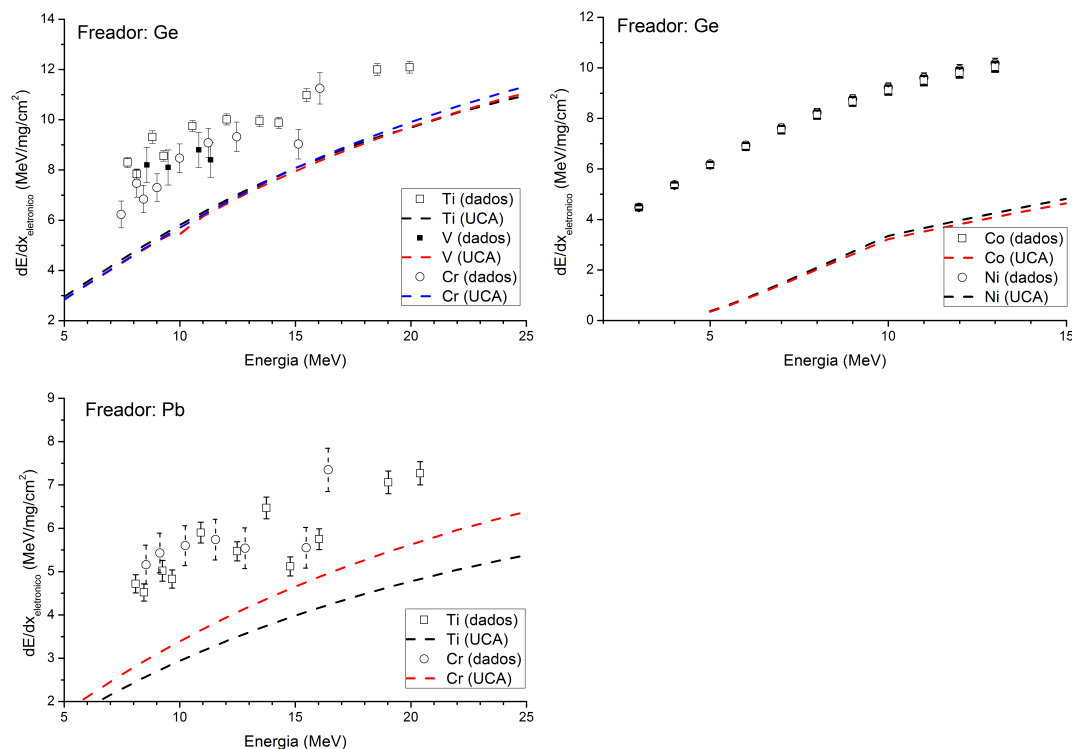


Figura 4.20: Comparação dos dados experimentais com as previsões teóricas da UCA para os freadores de Ge e Pb.

#### 4.4.2 Comparação com modelos semi-empíricos

Na Fig. 4.21 é apresentada a comparação dos dados experimentais com os modelos semi-empíricos de Northcliffe & Schilling (NS) [31] e de Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL) [32] para algumas combinações íons-freador medidas nessa tese. Para as previsões com o modelo ZBL foi utilizado o programa SRIM v.2008.03 [5]. Para o freador de Ge, as previsões do código SRIM reproduzem razoavelmente bem os dados experimentais, para o freamento de Co em Ge, por exemplo, em energias menores que  $\approx 10$  MeV, o modelo subestima os dados. Para o freamento de Ni em Au, os dados experimentais situam-se quase 80% acima da previsão do código SRIM. O mesmo ocorre para o freamento de Co em Au, apesar da discrepância não ser observada para os freamentos de Ti, V e Cr em Au.

A surpreendente discrepância do freamento de Co e Ni em Au também é evidente quando comparado com as previsões teóricas, ver Fig. 4.19. Para observar em maior detalhe esse efeito foi elaborado uma curva do freamento de diversos íons em Au com base nos dados experimentais disponíveis na ref. [6]. Para a elaboração de uma curva experimental fidedigna, os dados para

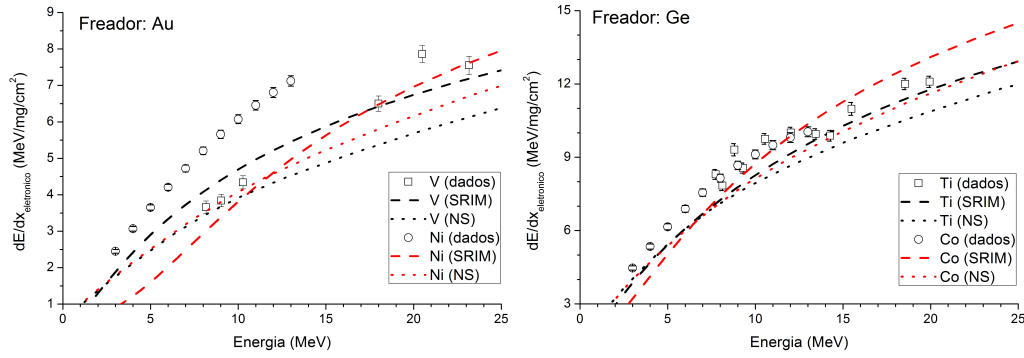


Figura 4.21: Comparação dos dados experimentais dos freamento de Ti e Co em Ge e V e Co em Au com os modelos semi-empíricos NS e ZBL.

o freamento de cada íon em Au (dentro da região em energia de 0,1 - 1,0 MeV/u.m.a.), foram ajustados por uma função similar a expressão para o freamento no modelo de Bohr - eq. (2.1), dado por [55]:

$$\frac{dE}{dx_{fit}} = \frac{4\pi N Z_2 Z_1^2 e^4}{m_e v^2} L_{fit}(\xi) \quad (4.7)$$

onde  $\xi$  é o parâmetro de Bohr, dado por  $\xi = \frac{m_e v_1^3}{Z_1 e^2 w}$ . Na expressão de Bohr,  $L(\xi) = \ln(1,123 \times \xi)$ . Para os ajustes,

$$L_{fit}(\xi) = a [\ln(\xi + 1)]^b \quad (4.8)$$

onde  $a$  e  $b$  são parâmetros livres. A fig. 4.22 ilustra o ajuste obtido para o freamento de C em Au, por exemplo. A partir dos ajustes de diversos íons em Au foi construído uma curva de freamento em função de  $Z_1$  para as energias de 100 e 200 keV/u.m.a., apresentada na Fig. 4.23. Juntamente com os dados experimentais é apresentado a previsão do modelo de ZBL. Nos dados correspondentes a energia de 100 keV/u.m.a. (em preto) o modelo ZBL prevê uma vale na região de  $Z_1 \sim 28$ , o que é contraditório com os dados experimentais. Esse efeito persiste para a energia de 200 keV/u.m.a., sendo que nesta última o modelo ZBL não prevê nenhum vale nessa região de massas. Não foi possível elaborar o mesmo gráfico para o freador de Ge e nem para o Pb em virtude da pouca quantidade de dados experimentais na literatura.



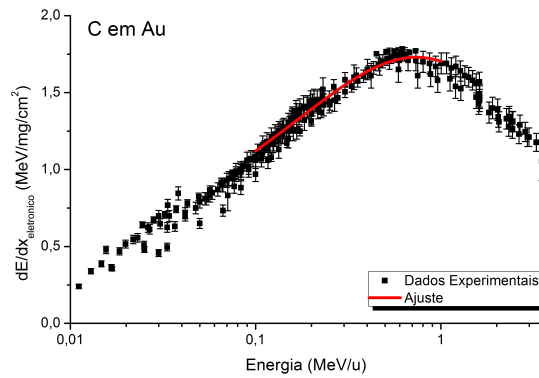


Figura 4.22: Ajuste do freamento de C em Au, utilizando as eqs. (4.7) e (4.8).

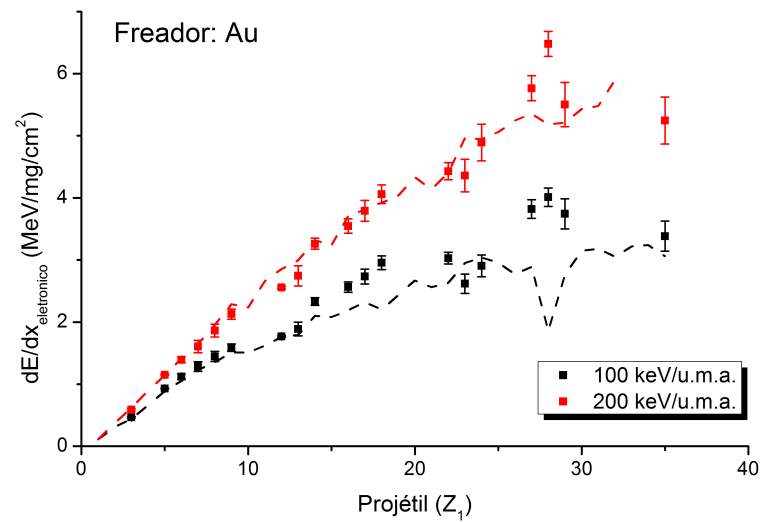


Figura 4.23: Poder de freamento eletrônico de Au em função de  $Z_1$  para as energias de 100 e 200 keV/u.m.a. (em preto e vermelho, respectivamente). A linha pontilhada corresponde a previsão obtida com o programa SRIM2008.03.



# Capítulo 5

## Conclusões

O freamento de íons pesados na matéria ainda é um tópico pouco compreendido e nesse sentido fazem-se necessários novos dados experimentais para o aperfeiçoamento de modelos teóricos. Neste trabalho foram medidos os freamentos de Ti, V, Cr, Co e Ni em Au e Ge e os freamentos de Ti e Cr em Pb em energias entre 100-500 keV/u.m.a.. Exceto os freamentos de Ti e Cr em Au, as demais consistem medidas experimentais inéditas. Os dados obtidos foram comparados com teorias e modelos semiempíricos frequentemente utilizadas na literatura científica.

A teoria LSS, que toma como base a interação da partícula carregada com um gás de elétrons livres, prevê um freamento proporcional à velocidade do projétil, eq. (4.5). Os freamentos de Ti em Ge, Au e Pb são compatíveis com essa proporcionalidade - ver tabela 4.5. O freamento de Cr em Ge também é compatível com uma descrição proporcional à velocidade, porém essa regra não é válida para os freamento de Cr em Au e Pb, demonstrando a fragilidade da regra. Para as demais combinações íon-meio medidas nesta tese, os dados experimentais não são bem descritos por essa proporcionalidade.

A Aproximação de Convolução Unitária é um modelo baseado na descrição dependente do parâmetro de impacto da colisão e toma como ponto de partida a teoria de Bohr. O modelo leva em conta o efeito de blindagem do projétil, mas não são considerados excitações eletrônicas dos projétil. Para os cálculos da UCA foi utilizado o programa Casp v.4.0 [51], em que também foram incluídos os efeitos de correção de camadas e Barkas, significantes para freamento à baixas energias. No freamento em Au é interessante notar que o modelo subestima os dados experimentais para Ti, Ni e Co, e prevê satisfatoriamente bem para os íons de V e Cr - ver Fig. (4.19). A inclusão da excitação do projétil pode justificar essas diferenças observadas. Para os freadores de Ge e

---

Pb, o modelo subestima os freamentos de todos os íons. Em particular, para Co em Ge, os dados experimentais chegam a ser 2,5 vezes maior que a previsão teórica - ver Fig. (4.20). Não parece muito provável que a diferença observada para o freamento de todos os íons em Ge seja unicamente devido ao processo de excitação do projétil, que não é incluída no cálculo. Possivelmente outros mecanismos, relacionados mais diretamente com a natureza do freador de Ge, estão subestimados.

Outra teoria de relativo sucesso é a Teoria Binária, que resgata os princípios da teoria de Bohr com a vantagem de não incluir métodos perturbativos ao incluir intrinsecamente o movimento relativos dos elétrons do meio. A teoria também inclui separadamente correções relativísticas e efeitos de excitação/ionização do projétil. Para o seu cálculo teórico ainda não há disponível nenhum programa computacional. P. Sigmund, um dos autores da teoria, pretende disponibilizar uma versão inicial para os cálculos em breve. Assim, estimativas da teoria binária para o freamento em Au foram obtidos com base num procedimento de interpolação de cálculos prévios, obtidos da literatura científica. Dentro dessa limitação, a teoria consegue descrever bem o freamento de Ti em Au e situa-se ligeiramente abaixo para o freamento de Co em Au - Fig. (4.19).

Nas comparações com os modelos semiempíricos observa-se que os métodos de interpolação e extrapolação não são amplamente satisfatórios. Para o freamento de Ni em Au, chegam a subestimar o freamento em até 80% a menos. Observando a curva de oscilação do freamento em função de  $Z_1$  - Fig. (4.23) - verifica-se que o modelo de ZBL prevê uma região de mínimo para números atômicos próximos à 28 enquanto os dados experimentais indicam um ponto de máximo.

# Referências Bibliográficas

- [1] P. SIGMUND. *Stopping of heavy ions - a theoretical approach*, volume 1. Springer, (2004).
- [2] J. R. Tesmer e M. A. Nastasi, editores. *Handbook of modern ion beam materials analysis*. Materials Research Society, Julho (1995).
- [3] N. BOHR. The penetration of atomic particles through matter. *Matematisk-fysiske Meddelelser Det K. Danske Videnskabernes Selskab.* **18**(8), 1–144 (1948).
- [4] L. C. NORTHCLIFFE. Passage of heavy ions through matter. *Annual Reviews of Nuclear Science* **13**, 67–102 (1963).
- [5] J. F. ZIEGLER, M. D. ZIEGLER e J. P. BIERSACK. SRIM - The Stopping and Range of Ions in Matter, version 2008.03, (2008).
- [6] H. PAUL. Stopping power for light ions. <http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>, Janeiro (2009).
- [7] O. B. FIRSOV. A qualitative interpretation of the mean electron excitation energy in atomic collisions. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **36**, 1517–1523 (1959).
- [8] J. LINDHARD e M. SCHARFF. Energy dissipation by ions in the keV region. *Physical Review* **124**, 128–130 (1961).
- [9] L. ERIKSSON, J. A. DAVIES e P. JESPERSGAARD. Range measurements in oriented Tungsten single crystal (0.1-1.0 MeV). I. Electronic and nuclear stopping powers. *Physical Review* **161**, 219–234 (1967).
- [10] A. P. PATHAK. Systematic study of channeling stopping-power oscillation for low-velocities heavy-ions. *Physical Review B* **22**, 96–98 (1980).

- [11] W. N. LENNARD, H. GEISSEL, D. P. JACKSON e D. PHILLIPS. Electronic stopping values for low velocity ions ( $9 \leq Z_1 \leq 92$ ) in Carbon targets. *Nuclear Instruments and Methods B* **13**, 127–132 (1986).
- [12] T. K. ALEXANDER e J. S. FORSTER. *Advances Nuclear Physics*, volume 10. (1978).
- [13] P. PETKOV, A. DEWALD e P. VON BRENTANO. A new procedure for lifetime determination using the Doppler-shift attenuation method. *Nuclear Instruments and Methods A* **560**, 564–570 (2006).
- [14] R. V. RIBAS, W. A. SEALE e M. N. RAO. Stopping of silver ions in solids. *Physical Review A* **28**(6), 3234–3237 (1983).
- [15] N. BOHR. On the theory of decrease of velocity of moving electrified particles on passing through matter. *Philos. Mag.* **25**, 10–31 (1913).
- [16] H. A. BETHE. The theory of the passage of rapid neutron radiation through matter. *Annalen der Physik* **5**, 325–400 (1930).
- [17] J. LINDHARD, M. SCHARFF e H. E. SCHIOTT. Range concepts and heavy ions ranges. *Matematisk-fysiske Meddelelser Det K. Danske Videnskabernes Selskab.* **33**(14) (1963).
- [18] J. LINDHARD e A. WINTER. Stopping power of electron gas and equipartition rule. *Matematisk-fysiske Meddelelser Det K. Danske Videnskabernes Selskab.* **34**(4) (1964).
- [19] G. SCHIWIEZ e P. L. GRANDE. Unitary convolution approximation for impact-parameter dependent electronic energy loss. *Nuclear Instruments and Methods B* **153**, 1–9 (1999).
- [20] P. L. GRANDE e G. SCHIWIEZ. Impact-parameter dependence of the electronic energy loss of fast ions. *Physical Review A* **58**, 3796–3801 (1998).
- [21] P. SIGMUND e A. SCHINNER. Binary stopping theory for swift heavy ions. *European Physics Journal D* **12**, 425–434 (2000).
- [22] P. SIGMUND e A. SCHINNER. Binary theory of electronic stopping. *Nuclear Instruments and Methods B* **195**, 64–90 (2002).
- [23] J. D. JACKSON. *Classical Electrodynamics*. Wiley, 2a. ed., (1975).

- [24] H. A. BETHE. *Intermediate Quantum Mechanics*. W. A. Benjamin, 1a. ed., (1964).
- [25] P. SIGMUND. *Particle penetration and radiation effects: general aspects and stopping of swift point charges*, volume 1 of *Solid-State Science*. Springer-Verlag, Germany, (2006).
- [26] F. BLOCH. The slow down of rapidly moving particles in the their passing through solid matter. *Annalen der Physik* **16**(3), 285–320 (1933).
- [27] U. FANO. Penetration of protons, alpha particles and mesons. *Annual Reviews of Nuclei Science* **13**, 1–66 (1963).
- [28] J. F. ZIEGLER. Stopping of energetic light ions in elemental matter. *Journal of Applied Physics* **85**(3), 1249–1272 (1999).
- [29] J. LINDHARD, V. NIELSEN e M. SCHARFF. Approximation method in classical scattering by screened coulomb fields. *Matematisk-fysiske meddelelser udgivet af det kongelige danske videnskabernes selskab* **36**(10), 3 (1968).
- [30] J. LINDHARD. On the properties of a gas of charged particles. *Matematisk-fysiske meddelelser kongelige danske videnskabernes selskab* **28**(8), 1–57 (1954).
- [31] L. C. NORTHCLIFFE e R. F. SCHILLING. Range and stopping power tables for heavy ions. *Nuclear Data Tables* **A7**, 233–463 (1970).
- [32] J. F. ZIEGLER, J. P. BIRSACK e U. LITTMARK. *The stopping and ranges of ions in matter*, volume 1. Pergamon Press, 1a. ed., (1985).
- [33] N. C. NORTHCLIFFE. Energy loss and effective charge of heavy ions in Aluminium. *Physical Reviews* **120**, 1744–1757 (1961).
- [34] W. BRANDT e M. KITAGAWA. Effective stopping-power charges of swift ions in condensed matter. *Physical Review B* **25**, 5631–5637 (1982).
- [35] L. G. GLAZOV e P. SIGMUND. Nuclear stopping in transmission experiments. *Nuclear Instruments and Methods B* **207**, 240–256 (2003).
- [36] D. WARD, R. L. GRAHAM e J. S. GEISER. Measurements of stopping powers for 4He, 16O and 35Cl ions at 1 to 3 MeV per nucleon in Ni, Ge, Ag and Au. *Canadian Journal of Physics* **50**, 2302–2312 (1972).

- [37] S. AMADON e W.A. LANFORD. He stopping power and straggle in Al, Ti, Co, Cu, Ag, Ta and Au from 1.5 to 4 MeV. *Nuclear Instruments and Methods B* **249**, 34–37 (2006).
- [38] R. V. RIBAS, N. H. MEDINA, N. ADDED, J. R. B. OLIVEIRA, E. W. CYBULSKA, M. N. RAO, W. A. SEALE, F. BRANDOLINI, M. A. RIZZUTTO e J. A. ALCÁNTARA-NUNEZ. Stopping power of Au for silver ions at low velocities. *Nuclear Instruments and Methods B* **211**, 453–459 (2003).
- [39] W. M. CURIE. A Monte Carlo programme for Doppler shift analysis. *Nuclear Instruments and Methods* **73**, 173–185 (1969).
- [40] D. WARD. Stopping for Heavy Ions. (1973).
- [41] Y. ZHANG. High-precision measurements of electronic stopping powers for heavy ions using high-resolution time-of-flight spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods B* **196**, 1–15 (2002).
- [42] W. R. LEO. *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Springer-Verlag, 2a. ed., (1994).
- [43] L. CLICHE, S. C. GUJRATHI e L. A. HAMEL. Pulse height defects for  $^{16}\text{O}$ ,  $^{35}\text{Cl}$  and  $^{85}\text{Br}$  ions in silicon surface barrier detectors. *Nuclear Instruments and Methods B* **45**, 270–274 (1990).
- [44] P.F. HINRICHSEN, D. W. HETHERINGTON, S. C. GUJRATHI e L. CLICHE. Heavy-ion energy resolution of SSB detectors. *Nuclear Instruments and Methods B* **45**, 275–280 (1990).
- [45] W. ENGEL, J. JESUS e N. UETA. Confecção de alvos nucleares. Technical report, Instituto de Física USP - IFUSP, (2003).
- [46] W. T. MILNER. Upak documentation. *Oak Ridge National Laboratory* .
- [47] R. V. RIBAS. A camac data acquisition system based on PC-Linux. *Nuclear Instruments and Methods A* **483**, 830–832 (2002).
- [48] Y. ZHANG, M. ELFMAN, B. D. MILBRATH e W. J. WEBER. Evaluate scintillation response over a continuous energy region. *IEEE Transactions on Nuclear Science* **55**(3), 1097–1101 June (2008).
- [49] MATEJ MAYER. SIMNRA v.6.04, (2008).



- [50] E.A. FIGUEROA, N.R. ARISTA, J.C. ECKARDT e G.H. LANTSCHNER. Determination of the difference between the mean and the most probable energy loss of low-energy proton beams traversing thin solid foils. *Nuclear Instruments and Methods B* **256**, 126–130 (2007).
- [51] G. SCHIWETZ e P.L. GRANDE. Casp - Convolution Approximation for Swift Particles v. 4.0, (2008).
- [52] R. BIMBOT, H. GEISSEL, H. PAUL, A. SCHINNER e P. SIGMUND. Stopping of ions heavier than helium. In *Journal of the ICRU*, P. Sigmund, editor(a), volume 5 of *Report 73*. Oxford University Press (2005).
- [53] R. LINARES. *Estudo do freamento de íons de Cu natural em Au em baixas velocidades*. Novembro, Universidade de São Paulo, (2005).
- [54] Y. ZHANG, G. POSSNERT e W. J. WEBER. Measurements of electronic stopping power of swift heavy ions using high-resolution time-of-flight spectrometer. *Applied Physics Letters* **80**(24), 4662–4664 (2002).
- [55] T.D.M. WEIJERS, B.C. DUCK e D.J. O’CONNOR. The development of a stopping power predictor for ions with energies of 0.1-1.0 MeV/u in elemental targets. *Nuclear Instruments and Methods B* **215**, 35–47 (2004).