Universidade de São Paulo

Instituto de Física

Ionização atômica da camada *L* de Au e Ta por impacto de elétrons com o acelerador Microtron de São Paulo

Suelen Fernandes de Barros

Dissertação de mestrado apresentada ao Instituto de Física da

Universidade de São Paulo para obtenção do título

de mestre em ciências

Orientador:

Prof. Dr. Vito Roberto Vanin

Comissão Examinadora:

Prof. Dr. Vito Roberto Vanin - IFUSP

Prof. Dr. Paulo Roberto Costa – IFUSP

Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni - UEL

São Paulo

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, por qualquer meio convencional ou eletrônico, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte.

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

Barros, Suelen Fernandes

Ionização atômica da cama L de Au e Ta por impacto de elétrons com o acelerador Microtron de São Paulo. São Paulo, 2014.

Dissertação (Mestrado) – Universidade de São Paulo. Instituto de Física. Depto. de Física Experimental

Orientador: Prof. Dr. Vito Roberto Vanin

Área de Concentração: Física

Unitermos: 1. Física experimental; 2. Interação da radiação com a matéria; 3. Espectrometria de raio X; 4. Microtron.

USP/IF/SBI-020/2014

Resumo

Foram realizadas medidas das seções de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} bem como medidas das seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 para os elementos Au e Ta com o Acelerador de elétrons Microtron de São Paulo, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo. Os alvos foram produzidos no Laboratório de Alvos do Pelletron por evaporação desses elementos sobre substratos finos de carbono. Eles foram posicionados no centro da câmara de irradiação, de modo que o feixe incidia perpendicularmente à sua superfície. Os raios X decorrentes da ionização do alvo de tântalo foram observados com um detetor de Si(Li), enquanto que para o alvo de ouro usou-se um detetor HPGe, ambos posicionados a 120 graus em relação ao feixe. As curvas de eficiência de ambos os detetores foram levantadas usando as fontes de calibração e ajustando os pontos obtidos com um modelo analítico. Para cada energia de feixe, a seção de choque foi determinada a partir das áreas dos picos dos raios X característicos, da corrente incidente no alvo, da eficiência de deteção no pico e da espessura do alvo. As áreas dos picos foram determinadas pelo ajuste de uma forma gaussiana, a corrente incidente no alvo foi medida com um copo de Faraday e corrigida para a dispersão dos elétrons ao passarem pelo alvo, e as medidas de espessura dos alvos foram realizadas pelo método de retro-espalhamento de Rutherford (RBS). Os resultados experimentais obtidos ficaram acima do calculado com a aproximação de Born de ondas distorcidas para as medidas de seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} do Au e para os multipletos L_{α} e L_{β} do Ta. Para o grupo L_{γ} do Au e do Ta as medidas foram consistentes com o modelo teórico. Os dados encontrados na literatura para ambos os elementos referem-se todos a energias próximas do limiar de ionização da camada L e nessa faixa são consistentes com o modelo teórico, embora em alguns casos afetados por incertezas superiores a 20%. Este trabalho traz as primeiras medidas para a seção de choque de produção de raios X L do Ta para energias superiores a 50 keV.

Abstract

Measurements were made of the L_{α} , L_{β} and L_{γ} x-rays production cross section and also of the ionization cross section of subshell L_1 , L_2 and L_3 for the elements Au and Ta in the electron accelerator Microtron of São Paulo, located at the Institute of Physics of the University of São Paulo. The targets used were produced in the Pelletron Targets Laboratory and consisted of fine targets evaporated on thin carbon substrates. These targets were positioned in the center of the Microtron's irradiation chamber, so that the focused beam perpendicular to the surface. The x-ray originated from the ionization of the Ta target were obtained with a Si(Li), for the Au target it was used a HPGe detector, both positioned at 120 degrees relative to the electrons' beam. The efficiency curve for both detectors was made by using calibration sources and by adjusting the points with a analytical model. For every beam energy the x-rays production cross section were obtained by an accurate knowledge of the peak areas, of the current incident on the target, of the absolute efficiency, and of the thickness of the target. The peak areas were determined by fitting a Gaussian shape, the measurements of the current were made with a Faraday cup and it were corrected for the electrons' dispersion when they pass through the target, and the measurements of the thickness were performed with the method of Rutherford Back Scattering (RBS). The experimental results were above the Born approximation of distorted waves for measurements of L_{α} and L_{β} x-rays production cross sections of Au and for the multiplets L_{α} and L_{β} and of Ta. The measurements of L_{γ} group of Au and Ta were consistent with the theoretical model. The data founded in literature for both elements are all near to the region of the threshold ionization energy of the shell L, on that energy range they are consistent with the theoretical model, although in some instances they are affected by uncertainties greater than 20%. This work presents the first measurements of Ta L x-rays production cross section to energies above 50 keV.

Agradecimentos

Todas as pessoas que conheço deveriam de alguma forma ter seus nomes nestas páginas de agradecimento. Todas elas, de um modo ou de outro, colaboraram para o desenvolvimento deste trabalho. São tantos os nomes que é impossível um agradecimento individual. Então, de uma forma geral, muito obrigada a todas as pessoas que passaram pela minha vida, e também as que continuam nela. Mas, de todos esses nomes, quero relacionar alguns que eu não poderia esquecer, e esta dissertação não estaria completa sem meu sincero agradecimento a eles.

Agradeço aos meus pais, Marli Fernandes de Barros e Rubem Lino de Barros, pelo carinho e amor ao longo de todos os anos de minha vida, em especial à minha mãe, por todos os momentos em que estive ausente para a execução deste trabalho e por toda a força que ela me deu quando passei por momentos difíceis.

À minha irmã Samara por não ter desistido de mim apesar dos muitos convites recusados devido a execução deste trabalho e pelos momentos de distração.

Agradeço ao meu irmão Washington pelas conversas, incentivos e conselhos.

Um agradecimento especial ao André, que tem feito mais doce muitos momentos da minha vida.

Ao meu orientador, Prof. Vito Roberto Vanin, por ter me dado a oportunidade de desenvolver esse trabalho. Agradeço por tudo que ele me ensinou, seja relacionado à física ou a minha vida pessoal, pela paciência e pela compreensão nos momentos mais difíceis. Meu sincero muito obrigado, e o reconhecimento de que sem sua orientação, esse trabalho não teria chegado tão longe.

À professora Nora, pelas conversas, ensinamentos e pelo companheirismo ao longo, não só nesses dois últimos anos, mas também durante toda a graduação.

Ao Prof. José Maria Fernández por ter acompanhado o desenvolvimento deste trabalho, estando sempre disposto a tirar dúvidas e dar sugestões, sempre construtivas.

À minha amiga Monaliza por todas as experiências compartilhadas e pelo companheirismo ao longo de todo esse tempo.

Ao meu amigo Lucas Marques por simplesmente tudo.

Aos amigos Camilo, Juan e Vicky, por estarem sempre dispostos a me ajudar e por tornarem mais descontraídos os momentos no instituto.

Aos amigos Viktor e Cristiane pelas listas resolvidas juntos, pelas conversas no corredor, pelos conselhos, e pelas experiências compartilhadas.

Ao corpo técnico do projeto, Alexandre, Alfredo, Adriano e Roberto, sem dúvidas sem eles a realização deste trabalho seria impossível. Um agradecimento extra ao Alexandre pela paciência que teve comigo assim que entrei no projeto e pelas inúmeras dúvidas esclarecidas.

Aos professores Emerson Passos, Josif Frenkel e Vito Vanin pelos excelentes cursos na pós graduação.

Ao Sérgio e ao Antônio, que sempre me ajudaram nas questões relacionadas a informática.

Ao pessoal da eletrônica: Carlos, Eduardo e Renato. E às secretárias Bianca e Juliana, sempre dispostas a ajudar com os problemas burocráticos.

Aos atendentes da Comissão de Pós-Graduação, pelo atendimento sempre gentil e prestativo.

À todos os professores do LAL, por estarem sempre dispostos a ajudarem os alunos.

E, por fim, ao CNPq, FAPESP e CAPES pelo fundamental apoio financeiro.

Com todo carinho, dedico esse trabalho

à minha mãe,

Marli

 $Sempre\ parece\ impossível\ at\'e\ que\ seja\ feito.$

- Nelson Mandela

Sumário

CAPITULO 1	13
Introdução	13
1.1 Motivação	13
1.2 Organização deste trabalho	15
CAPÍTULO 2	17
Considerações gerais	17
2.1 ESPECTRO CARACTERÍSTICO DE RAIOS X	17
2.2 Interação dos elétrons com a matéria	23
$2.3~{ m Se}$ ção de choque de produção de raios X e seção de ch	OQUE DE IONIZAÇÃO
DAS SUBCAMADAS $\boldsymbol{L1}, \boldsymbol{L2} \in \boldsymbol{L3}$	35
2.4 Radiação de freamento: <i>Bremsstrahlung</i>	42
CAPÍTULO 3	45
DESCRIÇÃO DOS EXPERIMENTOS	45
3.1 ARRANJO EXPERIMENTAL	45
3.2 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	59
CAPÍTULO 4	61
AJUSTE DOS PICOS DE RAIOS X	61
4.1 DESCRIÇÃO DOS PICOS CARACTERÍSTICOS	61

4.2 AJUSTES DE ESPECTROS DE RAIOS X CARACTERISTICOS COM A FUNÇÃO	VOIGT E COM
a Gaussiana - Comparação	67
$4.3~{ m Ajuste}$ dos picos de raios X das fontes de calibração	70
4.4 Discussão	73
CAPÍTULO 5	75
PARÂMETROS EXPERIMENTAIS	75
5.1 CALIBRAÇÃO DE ENERGIA E DA DISPERSÃO DA GAUSSIANA QUE DESCRE	EVE OS PICOS
	75
5.2 DETERMINAÇÃO E CALIBRAÇÃO DA EFICIÊNCIA DOS DETETORES	84
5.3 CALIBRAÇÃO DA FUNÇÃO RESPOSTA	109
5.4 Discussão	114
CAPÍTULO 6	116
DETERMINAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE PRODUÇÃO DE RAIOS \mathbf{X} $\boldsymbol{L}\boldsymbol{\alpha}$, $\boldsymbol{\lambda}$	<i>Lβ</i> ε <i>Lγ</i> do
ELEMENTO TA	116
6.1 Introdução	116
6.2 Ajuste dos picos de raios X \boldsymbol{L} do tântalo	117
6.3 Espessura do alvo irradiado	130
6.4 CARGA INCIDENTE NO ALVO	130
6.5 CORREÇÃO PARA TEMPO DE CARGA E TEMPO DE ESPECTRO	132
6.6 RESULTADOS	135
6.7 Seção de choque das subcamadas $\boldsymbol{L1}$, $\boldsymbol{L2}$ e $\boldsymbol{L3}$	144
6.8 Discussão	150
CAPÍTULO 7	152
DETERMINAÇÃO DA SEÇÃO DE CHOQUE DE PRODUÇÃO DE RAIOS \mathbf{X} $\boldsymbol{L}\boldsymbol{lpha}$, $\boldsymbol{\lambda}$	$L\beta$ E $L\gamma$ do
ELEMENTO AU	152

7.1 Introdução	152
7.2 Ajuste dos picos de raios X \boldsymbol{L} do ouro	153
7.3 Espessura do alvo irradiado	167
7.4 CARGA INCIDENTE NO ALVO	168
7.5 CORREÇÃO PARA TEMPO DE CARGA E TEMPO DE ESPECTRO	169
7.6 RESULTADOS	170
7.7 SEÇÃO DE CHOQUE DAS SUBCAMADAS $L1$, $L2$ E $L3$	177
7.8 DISCUSSÃO	183
CAPÍTULO 8	185
Conclusão	185
BIBLIOGRAFIA	189

Lista de Figuras

Figura 3.1: Esboço da linha de irradiação. O feixe de elétrons entra pelo lado esquerdo inferior da
figura. Quando o dipolo seletor está magnetizado ele desvia o feixe para a linha de baixa energia,
conduzindo-o até a câmara de irradiação, no canto superior direito47
Figura 3.2: Linha de feixe de baixa energia do acelerador Microtron do IFUSP. a-) Visão geral
desde o tripleto de quadrupolos até a câmara de irradiação. b-) Linha de baixa energia com os dois
quadrupolos focalizadores logo antes da câmara de irradiação48
Figura 3.3: a-) Tampa da câmara de irradiação com o suporte para as fontes de calibração. b-)
Suporte para alvos, em que se vê acima do alvo o view screen, que monitora o feixe, já bastante
queimado49
Figura 3.4: Esquema do copo de Faraday. Seu comprimento é de 64,8 mm, seu diâmetro é de 20
mm, sendo o diâmetro externo da forma cônica de 16 mm
Figura 3.5: Esquema do flange onde está o copo de Faraday e a estrutura de carbono confeccionada
com o objetivo de reduzir a produção de radiação de freamento50
Figura 3.6: Reprodução de uma imagem digital obtida de dentro da câmara da estrutura de carbono
colocado no flange antes do copo de Faraday para reduzir a produção de <i>bremsstrahlung</i> 50
Figura 3.7: a-) Blindagem de cobre do detetor de Si(Li) para barrar os raios X provenientes da
fotoexcitação do chumbo. b-) Blindagem de chumbo. As setas vermelhas em a-) e b-) indicam a
posição do detetor de Si(Li)
Figura 3.8: a-) Reprodução de uma imagem digital do detetor de HPGe já posicionado a 120° em
relação ai feixe e com a blindagem de chumbo. b-) Imagem radiográfica da parte superior do detetor
HPGe obtida com um sistema de raios X53
Figura 3.9: a-) Reprodução de uma imagem digital do detetor de Si(Li). b-) Imagem radiográfica da
parte superior do detetor de Si(Li) obtida com um sistema de raios X
Figura 3.10: Esboço das partes dianteira e traseira do suporte de fibra de carbono com o substrato e
o alvo depositado56
Figura 3.11: Alvos finos de tântalo em substratos de fibra de carbono e depositados em molduras de
carbono57
Figura 3.12: Espectro de RBS para o alvo de Ta analisado com o software SIMNRA58
Figura 4.1: a) Gráfico das funções gaussiana, Lorentz e Voigt para $\Gamma \sigma = 0.01$ em escala logarítmica
(21) sendo Γ a largura natural da lorentziana e σ o desvio nadrão da gaussiana, b) Mesmo que em

a) mas em escala linear na região próxima ao pico. c) Diferença relativa entre a gaussiana e o perfil
Voigt
Figura 4.2: a-) Gráfico das funções gaussiana, de Lorentz e Voigt para $\Gamma \sigma = 110$ em escala
logarítmica (21). b-) Mesmo que em a-) mas em escala linear na região próxima ao pico. c-)
Diferença relativa entre a gaussiana e o perfil Voigt. Note a diferença na região central, pequena em
valor relativo, mas importante em valor absoluto como destacado na figura b
Figura 4.3: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K\alpha 1$ e $K\alpha 2$ do 152 Sm que seguem
o decaimento do $^{152} \text{Eu}$ com o perfil Voigt. A linha roxa (à esquerda) corresponde ao pico $K\alpha 2,$ a
laranja (à direita) a linha $K\alpha 1$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma
de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eVcanal71
Figura 4.4: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K\alpha 1$ e $K\alpha 2$ do 133 Cs que seguem
o decaimento do $^{133}\mathrm{Ba}$ com o perfil Voigt. A linha azul (à esquerda) corresponde ao pico $K\alpha2$, a
verde (à direita) a linha $K\alpha 1$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma
de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eVcanal71
Figura 4.5: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K\alpha 1$ e $K\alpha 2$ do 137 Ba que seguem
o decaimento do $^{137}\mathrm{Cs}$ com o perfil Voigt. A linha roxa (à esquerda) corresponde ao pico $K\alpha2,$ a
marrom (à direita) a linha $K\alpha 1$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à
soma de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eVcanal72
Figura 4.6: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K\alpha 1$ e $K\alpha 2$ do 207 Pb que seguem
o decaimento do $^{207}\mathrm{Bi}$ com o perfil Voigt. A linha verde (à esquerda) corresponde ao pico $K\alpha2$, a
laranja (à direita) a linha $K\alpha 1$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma
de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eVcanal72
Figura 5.1: a-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental na calibração de energia,
normalizado pela incerteza experimental, como função do canal para o detetor de Si(Li). b-) Mesmo
que em a-) para o detetor de HPGe. Em ambos os casos as incertezas foram calculadas por meio da
expressão 5.781
Figura 5.2: a-) Calibração da dispersão da gaussiana que descreve a forma dos picos de raios gama
para o detetor de Si(Li). Como resultado do ajuste obteve-se $n2=8,99\times 10-3~{\rm keV^2}$ e $\varepsilon oF=$
$4,4.4 \times 10-4~{\rm keV}.$ b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela
incerteza experimental, como função da energia para o detetor de Si(Li)
Figura 5.3: a-) Calibração da dispersão da gaussiana que descreve a forma dos picos de raios gama
para o detetor de HPGe. Como resultado do ajuste obteve-se $n2 = 3,55 \times 10 - 3 \text{ keV}^2$, $\varepsilon o F =$
$2,69\ 14\times 10-4\ \text{keV}$ e $\gamma'=2,59\ 8\times 10-7$. b-) Diferença entre o valor ajustado e o

experimental, normalizado pela incerteza experimental, como função da energia para o detetor de
HPGe83
Figura 5.4: Probabilidades de escape dos raios X: a-) para o detetor de Si(Li) e b-) para o detetor de
HPGe. Os resultados, normalizados por fóton incidente, dão a probabilidade para que a energia
absorvida seja a energia incidente E menos a energia dos picos $K\alpha$ ou $K\beta$, que para o silício são
$EK\alpha = 1,74 \text{ keV}$ e $EK\beta = 1,84 \text{ keV}$ e, para o germânio são, $EK\alpha = 9,88 \text{ keV}$ e $EK\beta = 1,84 \text{ keV}$
10,99 keV90
Figura 5.5: Esboço da trajetória do fóton ao incidir na região central do cristal do detetor92
Figura 5.6: Probabilidades relativas dos escapes $K\alpha$ e $K\beta$ e do espalhamento Compton a-) para c
detetor de Si(Li) e b-) para o detetor de HPGe
Figura 5.7: Espectros obtidos com a irradiação do alvo de Ta e com o detetor de Si(Li) para energia
do feixe variando de 50 a 100 keV. A dispersão em energia é de 8,8 eV/canal. As diferentes cores
correspondem às diferentes energias de irradiação99
Figura 5.8: Espectros obtidos com a irradiação do alvo de Ge e com o detetor de Si(Li) para energia
do feixe variando de 50 a 100 keV. A dispersão em energia é de 8,8 eV/canal. As diferentes cores
correspondem às diferentes energias de irradiação100
Figura 5.9: Perda de energia mais provável para elétrons freados por uma lâmina de berílio para
cada energia de feixe. Os círculos vazios correspondem aos valores experimentais obtidos dos
espectros da irradiação do alvo de Ge, círculos cheios aos valores obtidos por simulação com o
código PENELOPE, os triângulos aos valores experimentais obtidos dos espectros da irradiação do
alvo de Ta e os quadrados aos valores obtidos pela função distribuição de probabilidade da
referência Landau (64)101
Figura 5.10: Relação entre a perda mais provável e a perda média obtida por simulação com o
código PENELOPE e com a função distribuição de probabilidade da referência (64). Nas
simulações usou-se uma lâmina de berílio com espessura de 25,4 μm. Os pontos verdes (círculos)
correspondem os valores obtidos por simulação com o código PENELOPE, e os azuis (quadrados)
aos valores obtidos com o modelo da referência Landau (64)102
Figura 5.11: Eficiência de pico de um detetor de Si(Li) com um cristal de 4,9 mm de espessura e 4,9
mm de raio, nas energias discriminadas na legenda, em keV. a-) Dependência com a espessura da
camada morta, com 0,05 µm para o contato frontal de ouro. (b) Dependência com a espessura do
contato frontal de ouro, com camada morta de 0,01 µm104
Figura 5.12: Curvas de nível da eficiência de pico. No eixo horizontal tem-se o raio do detetor e na
vertical sua espessura
Figura 5.13: Dependência da função Q da expressão 5.24 com as espessuras: a-) da camada morta e
b-) do contato frontal de ouro

Figura 5.14: Calibração de eficiência de pico do detetor de Si(Li) em função da energia. a-) Dados
experimentais e modelo. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela
incerteza experimental
Figura 5.15: Calibração de eficiência de pico do detetor de HPGe em função da energia. a-) Dados
experimentais e modelo. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela
incerteza experimental
Figura 5.16: Ajuste da forma gaussiana ao pico de 26,34 keV da fonte de calibração ²⁴¹ Am obtido
com o detetor de Si(Li).
Figura 5.17: Ajuste da forma gaussiana ao pico de 26 keV da fonte de calibração ²⁴¹ Am obtido com
o detetor de HPGe.
Figura 5.18: Calibração do parâmetro h da expressão 5.26. Os pontos experimentais foram ajustados
com uma função constante. Dispersão em energia de 0,0316692 keV/canal113
Figura 6.1: Região das linhas L do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV. A
calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088\mathcal{C}-8.20.10-10\mathcal{C}2,$ com \mathcal{C} em canal e E em
keV119
Figura 6.2: Região do multipleto $L\alpha$ junto com as linhas $L\eta$ e Ll do alvo de Ta irradiado com um
feixe de elétrons de 100 keV. A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10-$
10 <i>C</i> 2, com <i>C</i> em canal e <i>E</i> em keV
Figura 6.3: Região do multipleto $L\beta$ do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV.
A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10-10C2$, com C em canal e E em
keV121
Figura 6.4: Região do multipleto $L\gamma$ do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV.
A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10-10C2$, com C em canal e E em
keV
Figura 6.5: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros dos picos da irradiação do alvo de Ta para
energia de 100 keV na região do multipleto $L\alpha$. No eixo horizontal está a posição do centróide da
linha $L\alpha 1$ e no eixo vertical o parâmetro $n2$ da equação 5.3, cujos valores ajustados foram 932,8 e
159,4, respectivamente
Figura 6.6: Ajuste dos parâmetros do grupo $L\alpha$ junto com as linhas $L\eta$ e Ll do elemento Ta obtido
com a irradiação de 100 keV. (Online) A curva laranja corresponde à linha $L\alpha 1$, a curva verde a
$L\alpha 2$, a amarela a $L\eta$, a roxa a Ll , a preta à componente contínua do espectro e a vermelha a soma de
todas as linhas. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos correspondem as linhas Ll , $L\alpha 2$, $L\alpha 1$
e $L\eta$. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,98 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido
de 58%

Figura 6.7: Curvas de nível de $Qn2, xL$, relação 6.2, para o ajuste dos parâmetro	os dos picos da
irradiação do alvo de Ta com elétrons de 80 keV. No eixo horizontal está a posição	do centróide da
linha $L\beta 3$ e no eixo vertical o parâmetro $n2$ da equação 5.3. Os valores ajusta	dos para esses
parâmetros foram de 1086,1 e 189,7, respectivamente	127
Figura 6.8: Ajuste dos parâmetros do grupo $L\beta$ do elemento Ta obtido com a irradia	ıção de 80 keV
(Online) A curva roxa corresponde à linha $L\beta1$, a cor verde a linha $L\beta2$, a curva	laranja a linha
$L\beta$ 3, a curva amarela a linha $L\beta$ 4, a curva preta corresponde à componente contínua	do espectro e a
vermelha a soma de todas as linhas. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos co	orrespondem as
linhas $L\beta4$, $L\beta1$, $L\beta3$ e $L\beta2$. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 1,14 e a proba	abilidade do qui
quadrado ser excedido de 9,7%	127
Figura 6.9: Dependência da função de mérito QxL com a posição da linha $L\gamma 1$ a ser	ajustada para o
alvo de Ta na irradiação de 85 keV. O valor estimado foi de 1245,5	129
Figura 6.10: Ajuste dos parâmetros do grupo $L\gamma$ do Ta obtido com a irradiação de 85	5 keV. (Online)
A curva laranja corresponde a linha $L\gamma$ 1, a curva verde a linha $L\gamma$ 2, a curva roxa a l	inha $L\gamma$ 3, a con
preta corresponde ao fundo e a cor vermelha a soma de todas as linhas. (Impresso) D	a esquerda para
direita os picos correspondem as linhas $L\gamma 1$, $L\gamma 2$ e $L\gamma 3$. O qui quadrado reduzido o	do ajuste foi de
0,89 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 83%	129
Figura 6.11: Valor médio do quociente entre a carga coletada no copo de Faraday co	m e sem o alvo
para as dez medidas de 10 s feitas de cada situação (com e sem alvo) em cada uma	das energias de
irradiação	132
Figura 6.12: Esquema do pulso V(t) resultado da integração e diferenciação numéri	ica do pulso do
pré amplificador digitalizado em alta frequência, evidenciando o rise time (RT) e	o flattop width
(FT).	134
Figura 6.13: Resultados da seção de choque de produção de raios $X L\alpha 1$ para o e	lemento Ta em
função da energia do feixe de elétrons. Os pontos azuis correspondem aos resultados	s deste trabalho
e a linha preta aos cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas	distorcidas (26;
27)	135
Figura 6.14: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\alpha 2$	136
Figura 6.15: Mesmo que a figura 6.13, para raios X Ll	136
Figura 6.16: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\eta$.	137
Figura 6.17: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\beta$ 1	137
Figura 6.18: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\beta$ 2	138
Figura 6.19: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\beta$ 3	138
Figura 6.20: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\beta4$	139

Au para energia de 90 keV. No eixo horizontal está a posição do centróide da linha Lot e no	eivo
Figura 7.7: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros das linhas Ll e $L\eta$ da irradiação do alv	
canoração de energia e de $E = -0.055 + 0.0520 - 0.01.10 - 90.2$, com E em key e C em C	
Figura 7.6: Região do multipleto $L\gamma$ do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 kel calibração de energia é de $E = -0.053 + 0.032C - 6.61.10 - 9C2$, com E em keV e C em ca	
canal.	
A calibração de energia é de $E = -0.053 + 0.032C - 6.61.10 - 9C2$, com E em keV e C	
Figura 7.5: Região do multipleto $L\beta$ do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 l	
com E em keV e C em canal.	
feixe de elétrons de 90 keV. A calibração de energia é de $E = -0.053 + 0.032C - 6.61.10 - 9.000$	
Figura 7.4: Região do multipleto $L\alpha$ junto com as linhas $L\eta$ e Ll do alvo de Au irradiado com	
da borda de absorção <i>K</i> do germânio. A dispersão em energia é de 32 eV/canal	
Figura 7.3: Espectro de um alvo de carbono irradiado com um feixe de elétrons de 50 keV na re	_
canal	
mas com destaque para a componente contínua do espectro. A dispersão em energia é de 32	-
Figura 7.2: a-) Espectro do alvo de Au irradiado com um feixe de 90 keV. b-) Mesmo que em	
em energia é de 32 eV/canal.	
Figura 7.1: Multipleto L do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 keV. A dispe	
Figura 6.29: Mesmo que 6.27, para subcamada L3.	
Figura 6.28: Mesmo que 6.27, para subcamada L2.	
dados da referência (75).	
na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e os pontos vermelhos (triângulos	
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos bases	
Figura 6.27: Seção de choque de ionização da subcamada L1 para o Ta. Os pontos azuis (círcu	
Figura 6.26: Mesmo que 6.24, para o grupo $L\gamma$ do Ta	
Figura 6.25: Mesmo que 6.24, para o grupo $L\beta$ do Ta.	
(triângulos) representam os dados da referência (10).	
baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e os pontos verme	
(círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os cálculos teón	icos
Figura 6.24: Seção de choque de produção de raios X para o grupo $L\alpha$ do Ta. Os pontos a	ızuis
Figura 6.23: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L\gamma 3$.140
Figura 6.22: Mesmo que a figura 6.13, para raios X <i>Lγ</i> 2	.140
Figura 6.21: Mesmo que a figura 6.13, para raios $X L \gamma 1$.	

vertical o parâmetro $n2$ da equação 5.3. Nessa situação os valores ajustados para esses parâmetros
foram de 307,9 e 39,0, respectivamente
Figura 7.8: Ajuste dos parâmetros das linhas $L\eta$ e Ll do elemento Au obtido com a irradiação de 90
keV. (Online) A cor verde corresponde ao ajuste da linha Ll e a cor roxa da linha $L\eta$. As cores azul
e rosa correspondem ao ajuste das linhas de raios X $K\alpha$ e $K\beta$ do cobre, respectivamente, e a cor
preta ao fundo. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos correspondem as linhas $K\alpha$ do Cu, Ll
do Au, $K\beta$ do Cu e $L\eta$ do Au. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,83 e a probabilidade do
qui quadrado ser excedido de 87%
Figura 7.9: Ajuste da componente contínua do espectro na região do grupo $L\alpha$ junto com as linhas
$L\eta$ e Ll do elemento Au obtido com a irradiação de 90 keV. (Online) A cor preta corresponde à
soma de todas as componentes do fundo. A cor vermelha corresponde ao polinômio do primeiro
grau, a verde, ao termo do bremsstrahlung convolucionado com a eficiência e com a gaussiana,
ambos da expressão 7.1, e a roxa ao escape dado pela expressão 5.14. (Impresso) De cima para
baixo as linhas correspondem à soma de todas as componentes do fundo, ao termo do
bremsstrahlung convolucionado com a eficiência e com a gaussiana, ao polinômio do primeiro
grau, ambos da expressão 7.1, e ao escape dado pela expressão 5.14
Figura 7.10: Ajuste dos parâmetros da componente contínua do espectro na região do grupo $L\alpha$ e
$L\beta$ do elemento Au obtido com a irradiação de 65 keV. (Online) A cor preta corresponde a soma de
todas as componentes do fundo. A cor verde corresponde ao bremsstralung multiplicado pela
eficiência, a cor roxa corresponde ao polinômio do primeiro grau, ambos dados pela expressão 7.1 e
a cor laranja ao escape dado pela expressão 5.14. (Impresso) De cima para baixo as linhas
correspondem a soma de todas as componentes do fundo, ao bremsstralung multiplicado pela
eficiência, ao escape e ao polinômio do primeiro grau. A seta vermelha indica a região da
descontinuidade da eficiência consequência da borda de absorção do germânio. A calibração de
energia fornece 32 eV/canal
Figura 7.11: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros das linhas $L\gamma 1$, $L\gamma 2$ e $L\gamma 3$ da irradiação
do alvo de Au para energia de 90 keV. No eixo horizontal está a posição do centróide da linha $L\gamma 1$
e no eixo vertical o parâmetro $n2$ da equação 5.3 . Nessa situação os valores ajustados para esses
parâmetros foram de 424,2 e 43,7, respectivamente
Figura 7.12: Ajuste dos parâmetros do multipleto $L\gamma$ do elemento Au obtido com a irradiação de 90
keV. (Online) A cor vermelha corresponde a soma do fundo e das três linhas ajustadas, a preta ao
fundo, a verde a linha $L\gamma$ 1, a roxa a linha $L\gamma$ 2 e a cor laranja a linha $L\gamma$ 3. O fundo foi ajustado com
um polinômio do segundo grau. (Impresso) Da esquerda para direita os picos correspondem as

linhas $L\gamma 1$, $L\gamma 2$ e $L\gamma 3$. O qui quadrado do ajuste foi de 1,03 com probabilidade de ser excedido de 41%
Figura 7.13: Valor médio do quociente entre a carga coletada no copo de Faraday com e sem o alvo
para as dez medições de 10 s feitas de cada situação (com e sem alvo) para as energias de 50, 65 e
100 keV
Figura 7.14: Resultados da seção de choque de produção de raios X Ll para o elemento Au em
função da energia do feixe de elétrons. Os pontos azuis correspondem aos resultados deste trabalho
e a linha preta aos cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26
27)
Figura 7.15: Mesmo que em 7.13 para a linha $L\eta$.
Figura 7.16 Mesmo que em 7.13 para a linha $L\gamma 1$.
Figura 7.17: Mesmo que em 7.13 para a linha $L\gamma 2$.
Figura 7.18: Mesmo que em 7.13 para a linha $L\gamma 3$.
Figura 7.19: Seção de choque de produção de raios X Lα para o Au. Os pontos azuis (círculos
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados
na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos), verdes
(quadrados), roxos (círculos vazios) e laranjas (ampulhetas) representam os dados experimentais
das referências (16; 9; 8; 17), respectivamente.
Figura 7.20: Seção de choque de produção de raios X $L\beta$ para o Au. Os pontos azuis (círculos
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados
na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos) são da referência
(16), os verdes (quadrados) da referência (9) e os pontos laranja (ampulhetas) da referência (17).175
Figura 7.21: Seção de choque de produção de raios X Lγ para o Au. Os pontos azuis (círculos
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados
na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos) são da referência
(16) e os pontos laranja (ampulhetas) da referência (17)
Figura 7.22: Seção de choque de ionização da subcamada L1 para o Au. Os pontos azuis (círculos
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os cálculos teóricos baseados
na aproximação de Born com ondas distorcidas e os pontos vermelhos (ampulhetas) aos dados da
referência (17).
Figura 7.23: Seção de choque de ionização da subcamada L2 para o Au. Os pontos azuis (círculos
representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados
na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (ampulhetas) aos dados da
referência (17), os rosa (triângulos vazios) da referência (77) e os cinzas (quadrados vazios) da
referência (5)

Lista de tabelas

Tabela 2.1: Correspondência entre as notações de Siegbahn e da IUPAC para as linhas permitidas
por transições de dipolo decorrentes de vacâncias nas camadas K e L
Tabela 2.2: Mecanismos de formação de uma vacância nas várias subcamadas L e as probabilidades
associadas, com os símbolos definidos no texto.
Tabela 3.1: Resultado das medidas das espessuras dos alvos de tântalo obtidas com a técnica de
RBS57
Tabela 4.1: Resultados dos ajustes dos parâmetros dos picos de raios $X K\alpha$ com o perfil Voigt para
as fontes apresentadas na primeira coluna. As demais colunas apresentam, em ordem: o valor do qui
quadrado reduzido; a probabilidade do qui quadrado ser excedido; o valor estimado para a largura
natural da lorentziana e o valor adotado deste último, obtido da referência (50), que apresenta
incerteza da ordem de 10%, conforme citado na própria referência
Tabela 5.1: Energias das transições das fontes radioativas usadas na calibração, posição em canal
correspondente a cada centróide e o parâmetro $\sigma 2$, em ke V^2 , dos picos usados na calibração de
energia e dispersão do detetor de Si(Li). As energias junto com suas respectivas incertezas foram
obtidas da base de dados Laboratoire National Henri Becquerel (52)
Tabela 5.2: Mesmo que na tabela 5.1, para o detetor de HPGe
Tabela 5.3: Eficiência de pico experimental do detetor de Si(Li). Na descrição, indica-se o núcleo
pai se os fótons correspondem a uma transição nuclear γ , ou atômica no núcleo-átomo filho, a linha
característica para os raios X, e a energia emitida em sequência ao decaimento97
Tabela 5.4: Mesmo que na tabela 5.3 para o detetor de HPGe
Tabela 5.5: Dimensões do detetor de germânio e espessura dos absorvedores
Tabela 5.6: Valor do qui quadrado reduzido obtido para os ajustes dos picos de raios gama medidos
com detetor de Si(Li) usando uma resposta gaussiana.
Tabela 5.7: Valor do qui quadrado reduzido obtido para os ajustes dos picos de raios gama medidos
com detetor HPGe usando a resposta da expressão 5.26.
Tabela 6.1: Valores do qui quadrado absoluto para o ajuste das linhas $L\alpha$ do tântalo com a função
gaussiana e com a função Voigt para as várias energias de irradiação. A função Voigt foi
implementada conforme descrito no capítulo 4. O número de graus de liberdade para o ajuste com a
gaussiana foi de 242 e com a Voigt de 241, uma vez que esta apresenta um parâmetro a mais a ser
ajustado
Tabela 6.2: Áreas dos picos $L\alpha 1$, $L\alpha 2$, Ll e $L\eta$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas
irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de quatro gaussianas

Tabela 6.3: Areas dos picos $L\beta 1$, $L\beta 2$, $L\beta 3$ e $L\beta 4$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas
irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de quatro gaussianas126
Tabela 6.4: Áreas dos picos $L\gamma 1$, $L\gamma 2$ e $L\gamma 3$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas
irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de três gaussianas128
Tabela 6.5: Carga coletada no copo de Faraday ao final de cada irradiação com as energias
identificadas na primeira coluna
Tabela 6.6: Valores usados para o tempo vivo e o tempo de relógio do espectrômetro na expressão
6.5. O valor do tempo vivo foi deduzido com base nas especificações do fornecedor (72) para o
tempo morto do digitalizador (DSPEC). O tempo de relógio foi suposto com incerteza nula. Todas
essas medidas foram obtidas com um tempo vivo prefixado em 600 s
Tabela 6.7: Quociente entre as seções de choque de produção de raios $X \sigma L l$ e $\sigma L \alpha$ para cada uma
das energias irradiadas. O valor obtido a partir dos resultados da referência (76) para esse quociente
é de 0,0462(1)
Tabela 6.8: Seção de choque de produção de raios $X L\alpha$, $L\beta$ e $L\gamma$ para o elemento Ta. O número
entre parênteses representa a incerteza associada ao valor, em unidades do dígito menos
significativo
Tabela 6.9: Valores dos yields fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o elemento Ta
obtidos da referência (19).
Tabela 6.10: Taxas de emissão das transições radiativas da camada L para a camada K para o
elemento Ta em unidades de e $V\hbar$ por decaimento de elétrons da camada p . Os dados foram obtidos
da referência (73)
Tabela 6.11: Intensidades de transições Auger da camada L para a camada K para o elemento Ta em
unidades de eVħ. Os dados foram obtidos da referência (28)
Tabela 6.12: Intensidades das transições da camada L para a camada K obtidos com os dados das
tabelas 6.9 e 6.10 por meio das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 para o elemento Ta
Tabela 6.13: Intensidades das transições entre as subcamadas da camada L para o elemento Ta em
unidades de eVħ. Os valores foram obtidos da referencia (74). A incerteza apresentada pela
referência para esses valores é de 0,2%
Tabela 6.14: Seção de choque de ionização atômica das subcamadas L1, L2 e L3 para o elemento
Ta. O número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor
Tabela 7.1: Valores do qui quadrado absoluto para os ajustes dos parâmetros das linhas $L\alpha$ do Au
com a função gaussiana e com a função Voigt para as várias energias de irradiação. A função Voigt
foi implementada conforme descrito no capítulo 4. O número de graus de liberdade foi de 86 para o
ajuste com a gaussiana e de 85 para o ajuste com a Voigt

Tabela 7.2: Áreas do grupo $L\alpha$ e das linhas Ll e $L\eta$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas
irradiações por meio do ajuste de uma função gaussiana
Tabela 7.3: Áreas do grupo $L\beta$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por
meio da soma das contagens subtraída do fundo ajustado na região correspondente164
Tabela 7.4: Áreas das linhas $L\gamma 1, L\gamma 2$ e $L\gamma 3$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas
irradiações por meio do ajuste de uma função gaussiana
Tabela 7.5: Carga coletada no copo de Faraday ao longo de cada irradiação com as energias
identificadas na primeira coluna. Para cada uma das energias de 55 e 65 keV só foi feita uma
irradiação
Tabela 7.6: Valores obtidos para o tempo vivo e o tempo de relógio do espectrômetro. O valor do
tempo vivo foi deduzido com base nas especificações do fornecedor (72) para o tempo morto do
detetor. O tempo de relógio foi suposto sem incerteza. Para cada uma das energias de 65 e 55 keV
foi feita uma única irradiação. Todas essas medidas foram obtidas com um tempo vivo prefixado e
igual a 600 s
Tabela 7.7: Seção de choque de produção de raios $X L\alpha$, $L\beta$ e $L\gamma$ para o elemento Au. O número
entre parênteses representa a incerteza associada ao valor
Tabela 7.8: Quociente entre as seções de choque de produção de raios $X \sigma Ll$ e $\sigma L\alpha$ para cada uma
das energias irradiadas. O valor obtido a partir dos resultados da referência (76) para esse quociente
é de 0,0504(1)
Tabela 7.9: Valores dos yields fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o elemento
Au obtidos da referência (19)
Tabela 7.10: Taxas de emissão das transições radiativas da camada L para a camada K para o
elemento Au em unidades de $eV\hbar$ por decaimento de elétrons da camada p . Os dados foram obtidos
da referência (73)
Tabela 7.11: Intensidades de transições Auger da camada L para a camada K para o elemento Au
em unidades de eVħ. Os dados foram obtidos da referência (28)
Tabela 7.12: Intensidades das transições da camada L para a camada K obtidos com os dados das
tabelas 7.9 e 7.10 por meio das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 para o elemento Au
Tabela 7.13: Intensidades das transições entre as subcamadas da camada L para o elemento Au em
unidades de eVħ. Os valores foram obtidos da referencia (74). A incerteza apresentada pela
referência para esses valores é de 0,2%
Tabela 7.14: Seção de choque de ionização das subcamadas L1, L2 e L3 para o elemento Au. O
número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor

Capítulo 1

Introdução

1.1 Motivação

A seção de choque de ionização de camadas internas por impacto de léptons (pósitrons/elétrons) tem importância tanto em aplicações quanto no estudo dos fundamentos físicos envolvidos no processo. Seu entendimento tem contribuído para uma melhor compreensão dos processos de colisão lépton-átomo, que ainda não são completamente explicados, como é o caso da interação coulombiana e da interação de troca na região de baixa energia (1). Por outro lado, no que diz respeito às aplicações, essas medidas são úteis em ciências de superfícies e de materiais, na área de dosimetria, no que se refere à deposição de energia na matéria, em astrofísica, física de fusão de plasma e na caracterização de fontes de raios X empregadas na medicina e na indústria.

Uma busca na literatura revela que medidas de seção de choque de ionização atômica tem sido tema de pesquisa desde há pelo menos 80 anos até os dias atuais (2; 3; 4; 5; 6). Entretanto, a grande maioria desses dados se refere a medidas para a camada K e em regiões de energia próximas ao limiar de ionização. Medidas para a camada L são escassas, e provavelmente a primeira data de 1964 (4), e para a camada M quase não existem. Acrescido a isso, há o problema da falta de concordância do corpo de dados disponíveis, uma vez que resultados obtidos por diferentes grupos apresentam discrepâncias que vão além das barras de erro.

Uma das razões para essa escassez está na dificuldade em se determinar a seção de choque de ionização para camadas externas à camada K. No caso desta última, a intensidade dos raios X característicos é função somente da seção de choque de ionização da camada, enquanto que para as camadas L e M essas intensidades dependem simultaneamente das várias subcamadas pertencentes a cada camada. Essa dependência ocorre porque a vacância em uma camada superior a K pode ter sido produzida não somente por impacto de léptons, mas também por transições Coster-Kronig. Além dessa dificuldade, há os problemas de limitação experimental, uma vez que para resolver as linhas L e M necessita-se de detetores com boa resolução energética nessa faixa de energia. Além do mais, para determinar a seção de choque de ionização dessas camadas é preciso ter

conhecimento dos *yields* fluorescentes, dos coeficientes de Coster-Kronig, das probabilidades de transferência de vacância de uma camada para outra e das taxas de emissão de raios X, que, porém, são em geral conhecidos pobremente. Devido a estas dificuldades, uma prática comum na literatura, para as camadas *L* e *M*, é registrar a seção de choque de produção dos raios X característicos e não a seção de choque de ionização da camada atômica (7; 8; 9; 10).

Medidas de seção de choque de raios X L, entretanto, têm aumentado nos últimos anos. Campos et al. (8) registram medidas de seção de choque de raios $X L_{\alpha}$ para os elementos W, Pt e Au na faixa de energia de 10-30 keV. Merlet et al. (7; 11) apresentam resultados de medições de seção de choque de produção de raios X L_{α} e $L_{\beta 1}$ para Ga e As na faixa de energia de 1,5-30 keV e medidas de seção de choque de raios X L_{α} para Ge na faixa de energia de 1,62-40,62 keV. Esses resultados são comparados com a aproximação de Born de ondas distorcidas e com a aproximação de Born de ondas planas. Y Wu et al. (9) apresentam resultados de medições de seção de choque de produção de raios X L_{α} e L_{β} para Au na faixa de energia de 14 a 25 keV e medidas de seção de choque ionização da camada L da Ag na faixa de energia de 15 a 25 keV e compara seus resultados com a aproximação de Born de ondas planas. WU Zhang-Wen et al. (10) trazem resultados de medições de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para os elementos Ta e Tm na faixa de energia desde o limiar de ionização até aproximadamente 40 keV. Y. Wu et al. (12) também trazem medidas de seção de choque de produção de raios X L_{α} e L_{β} para o Pb na faixa de energia de 16 até 40 keV. Todas essas medidas envolvem substratos e alvos com espessuras que variam, sendo que são considerados substratos grossos aqueles com espessuras da ordem de 1,0 mg/cm², enquanto espessuras finas de substrato e alvo são da ordem de 10 µg/cm². Uma revisão desses resultados pode ser encontrada na referência Llovet et al. (13).

No Laboratório do Acelerador Linear do Instituto de Física da Universidade de São Paulo encontra-se em construção um acelerador do tipo *race-track* Microtron, cujo sistema injetor produz atualmente um feixe de elétrons de 1,9 MeV. Esse feixe tem a possibilidade de ser inserido no microtron *booster*, onde sua energia inicial é elevada até 5 MeV ou ser desviado para a linha de 1,9 MeV, que dá acesso à câmara de alvos. Nos experimentos descritos aqui usou-se a linha de 1,9 MeV, mas com as cavidades ressonantes desligadas, de modo que o feixe de elétrons possui a energia do canhão, que pode variar de 50 a 100 keV. Medidas de seção de choque de ionização da camada *K* dos elementos Au e Bi realizadas recentemente neste laboratório apresentaram comportamento diferente do previsto pela aproximação de Born de ondas distorcidas, ficando cerca de 30% acima desta na energia de 100 keV (14).

Nesse contexto o objetivo deste trabalho é medir a seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} dos elementos Au e Ta para energia de 50 keV até aproximadamente dez vezes o limiar de ionização da camada L desses elementos com precisão da ordem de 10%. Esses alvos foram escolhidos devido à escassez de dados experimentais na faixa de energia deste trabalho e às aplicações em diversas áreas como implantes em medicina odontológica, ligas com alto ponto de fusão, resistência e ductilidade, além das já citadas no início do capítulo.

Os resultados para as medidas com o alvo de Ta foram comparados com os únicos dados encontrados na literatura para este elemento (10) que são de 2005. Nessa referência usou-se um alvo fino de Ta depositado sobre um substrato grosso de carbono, sendo que as correções devido ao uso do substrato grosso foram feitas com base no modelo de bipartição do transporte de elétrons (15).

As medidas de Au foram comparadas com os dados das referências (8; 9; 16; 17). Shima et al. (16) traz dados para a seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para o Au, bem como a seção de choque de ionização da subcamada L_3 . As medidas vão desde a energia do limiar de ionização da camada L até 30 keV. Usou-se alvo de Au fino depositado sobre substrato fino de carbono. O experimento de Y. Wu et al. (9) usa um alvo de Au fino depositado sobre um substrato grosso de Al, sendo que as correções para o uso do substrato grosso foram feitas por meio de simulações Monte Carlo. Campos et al. (8) também faz uso de alvos finos depositados sobre substratos grossos, e faz as correções para o uso do substrato grosso por meio de simulações Monte Carlo, sendo que neste caso se usa um substrato de carbono. Por fim, Pálinkás et al. (17) traz medidas de seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} e de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 para os alvos de Au, Pb e Bi, com a energia do feixe de elétrons variando de 60 até 600 keV. Os alvos usados eram auto sustentáveis ou depositados sobre um backing de carbono.

1.2 Organização deste trabalho

No capitulo 2 será feita uma breve apresentação dos conceitos físicos necessários para o entendimento deste trabalho e serão apresentados os modelos teóricos mais usados para o cálculo de seção de choque de ionização atômica.

No capítulo 3 será descrito o aparato e o procedimento experimental usado na realização das medidas.

No capítulo 4 detalha-se o procedimento de ajuste dos picos de raios X com o perfil Voigt e apresentam-se as situações onde esse perfil pode ser aproximado por uma gaussiana.

No capítulo 5 estão explicados os métodos de calibração do sistema de medidas, em particular, as calibrações de energia, largura, eficiência e função resposta de ambos os detetores utilizados.

No capítulo 6 é feita a apresentação e a discussão dos resultados obtidos para o alvo de Ta e no capítulo 7, para o alvo de Au.

No capítulo 8 apresenta-se a conclusão deste trabalho.

Na legenda de algumas das figuras ao longo do texto encontra-se a notação (Online) e (Impresso). Elas descrevem o conteúdo do gráfico para a versão em pdf ou impressa em colorido (Online), e para a versão impressa em branco e preto (Impresso), com o objetivo de facilitar a leitura em cada um dos casos.

Capítulo 2

Considerações gerais

Neste capítulo serão apresentados os conceitos fundamentais necessários para o desenvolvimento deste trabalho. Inicialmente será dada uma descrição dos processos envolvidos na geração de um espectro de raios X, seguida de uma breve apresentação da interação dos elétrons com a matéria. Na sequência, serão apresentadas as expressões das seções de choque de produção dos raios X L para as linhas permitidas por transições de dipolo. E, por fim, será dada uma sucinta descrição sobre a radiação de bremsstrahlung.

2.1 Espectro característico de raios X

Introdução

Quando os elétrons de um feixe atravessam os átomos de um dado material eles podem eventualmente colidir com elétrons de subcamadas internas. Devido à interação coulombiana entre eles, o elétron do feixe pode ceder energia para o elétron do átomo retirando-o do seu nível e, ocasionalmente, ejetá-lo do átomo. Nessa situação o átomo passa a um estado excitado e pode voltar ao seu estado fundamental emitindo um conjunto de fótons com energias características, que pertencem ao espectro de raios X do elemento. O espectro total de raios X emitido quando um feixe de elétrons incide sobre um dado material consiste de uma parte discreta superposta a um contínuo, sendo este consequência do processo de *bremsstrahlung* que ocorre quando os elétrons são

acelerados pelo potencial atômico, sua forma dependendo, sobretudo, da energia do feixe de elétrons e do número atômico do alvo (18). A parte discreta do espectro, entretanto, é característica do elemento que compõem o alvo.

Os elétrons em uma camada se classificam de acordo com o momento angular e com a direção do spin. A camada K, por exemplo, é formada por um único nível atômico $1s_{1/2}$, enquanto que a camada L apresenta três subcamadas, a L_1 , que corresponde ao orbital atômico $2s_{1/2}$, a subcamada L_2 , que corresponde ao orbital $2p_{1/2}$, e a L_3 , ao orbital $2p_{3/2}$. Para a camada M têm-se cinco subcamadas, a M_1 que corresponde ao orbital $3s_{1/2}$, a M_2 que corresponde ao orbital $3p_{1/2}$, a M_3 que corresponde ao orbital $3p_{3/2}$, a M_4 que corresponde ao orbital $3d_{3/2}$ e a subcamada M_5 que corresponde ao orbital $3d_{5/2}$.

Processos de transições atômicas

Os dois principais modos de decaimento de um átomo correspondem à emissão de um fóton característico, onde se pode ter ou uma transição radiativa ou uma transição Coster-Kronig, ou à emissão de um elétron, onde se pode ter o efeito Auger ou as transições Coster-Kronig, sendo elas muito mais prováveis nesse último caso.

Em uma transição radiativa, um elétron de uma camada S1 preenche a vacância de uma camada S0, sendo $n_1 \ge n_2$, e um fóton é emitido com energia igual à diferença de energia entre as duas camadas envolvidas.

No caso da transição Auger, um elétron da camada S1 preenche a vacância da camada S0, sendo que as camada S1 e S2 têm números quânticos principais diferentes da camada S0, $n_1 > n_0$ e $n_2 > n_0$, e a energia envolvida na transição é usada para arrancar outro elétron do átomo em uma camada S2. Neste processo, o átomo no estado final encontra-se com duas vacâncias, uma na camada S1 e outra na camada S2. Os elementos de menor número atômico são mais suscetíveis a este tipo de processo.

As transições Coster-Kronig são transições entre as subcamadas de uma mesma camada atômica. Uma vacância na subcamada S0 migra para a subcamada S1, mais externa, e um fóton ou um elétron de uma camada S2 é emitido, sendo que as subcamadas S0 e S1 apresentam o mesmo número quântico principal, $n_0 = n_1$ e $n_2 > n_0$. Nesse processo a probabilidade de emissão de um fóton é muito menor do que a de emissão de um elétron. Quando as subcamadas S0, S1 e S2 pertencem à mesma camada, diz-se que é uma transição *super Coster-Kronig*. Para a camada L, por

exemplo, as transições Coster-Kronig são do tipo LI - LJ - Xq, ou seja, a vacância inicial da subcamada LI foi transferida para a subcamada, mais externa, LJ e um fóton ou um elétron da camada Xq é emitido do átomo.

Quando se cria uma vacância em um átomo ele passa para um estado instável. O tempo de vida τ de uma única vacância em um dado nível eletrônico está relacionado com a largura natural Γ deste nível por meio da relação:

$$\Gamma \tau = \hbar$$
 2.1

em que \hbar é a constante de Planck dividido por 2π . A taxa que engloba todos os processos envolvidos no preenchimento de uma vacância S é dada por:

$$S = \frac{1}{\tau} = \frac{\Gamma}{\hbar}$$
 2.2

Se todos os diferentes processos de preenchimento de uma vacância são independentes, a taxa total *S* será dada pela soma das taxas parciais:

$$S = S_R + S_A + S_C 2.3$$

e a largura total do nível, ou seja, sua largura natural será dada pela soma:

$$\Gamma = \Gamma_R + \Gamma_A + \Gamma_C \tag{2.4}$$

em que os sub-índices R, A e C representam as transições Radiativas, Auger e Coster-Kronig, respectivamente (19).

É usual descrever esses processos por meio de taxas de produção relativas que são definidas para camada L como (20):

yield ω_i^L que corresponde ao número de fótons de raios X característicos emitidos em transições para a subcamada L_i dividido pelo número total de vacâncias na subcamada L_i ;

yield a_i^L que corresponde ao número de elétrons Auger por vacância na subcamada L_i ;

yield f_{ij}^L que corresponde ao número de transições que levantam as vacâncias de uma subcamada L_i para uma subcamada L_j mais alta, dividido pelo número total de vacâncias na subcamada L_i .

As transições Coster-Kronig podem ser não radiativas ou radiativas, embora esta última tenha probabilidade muito pequena, conforme já citado anteriormente. Assim, é possível escrever:

$$f_{ij}^{L} = f_{ij} + f'_{ij} 2.5$$

em que f'_{ij} e f_{ij} representam a parte radiativa e não radiativa, respectivamente.

Neste trabalho esses *yields* foram obtidos da referência (19). Cabe destacar que nesta referência a intensidade da transição Coster-Kronig radiativa f'_{13} é considerada dentro do *yield* fluorescente ω_1 , assim como a transição f'_{12} , entretanto, como este último é muito menor do que o primeiro, seu valor não é apresentando separadamente. Para as demais subcamadas L_2 e L_3 o mesmo não ocorre, uma vez que as probabilidades de transições Coster-Kronig radiativas entre elas são pequenas o bastante para serem ignoradas. No caso do ouro, por exemplo, na subcamada L_1 , a probabilidade de transição Auger é de 22,1 %, de transição Coster-Kronig não radiativa é de 67,2% e de transição radiativa é de 10,7%, sendo que as transições de Coster-Kronig que resultam na emissão de um fóton estão sendo contabilizadas nas transições radiativas. Essa fração, entretanto, é pequena, correspondendo a 0,28% dos processos possíveis. Para o tântalo essas frações são de 40,6% para transições Auger, 45,7% para transições Coster-Kronig não radiativas e de 13,7% para transições radiativas, sendo que a parcela de transições Coster-Kronig radiativas é de apenas 0,26% do total de processos possíveis.

No caso de uma transição radiativa a largura de uma determinada linha será dada por:

$$\Gamma(X \to Y) = \Gamma(X) + \Gamma(Y)$$
 2.6

em que *X* e *Y* correspondem aos níveis envolvidos na transição. Essas larguras serão cada vez menores quanto mais externos forem os níveis.

Descrição dos picos de raios X

De acordo com a teoria da mecânica quântica, devido ao tempo de vida finito de um nível excitado de um átomo, a forma de uma linha de raio X é dada pela função de Lorentz (21):

$$L(E, E_0, \Gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\frac{\Gamma}{2}}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}$$
 2.7

em que E corresponde a energia, E_0 a energia da linha de raio X e Γ a largura natural da linha dada pela expressão 2.6. Quando esses picos são observados com detetores semicondutores, o que se vê no espectro, entretanto, é a convolução desta função lorentziana com a função resposta do detetor. Para detetores semicondutores essa função resposta é bem aproximada pela forma gaussiana (22), onde a largura a meia altura dessa gaussiana está associada à resolução do detetor, conforme será discutido no capítulo 5. Assim, a forma a ser ajustada aos picos de raios X é a convolução da expressão 2.7 com a gaussiana que é chamada de função Voigt e será detalhada no capítulo 4.

Notação para as linhas de raios X

As linhas características emitidas como resultados de transições eletrônicas subdividem-se em grupos de acordo com a camada em que a vacância é preenchida. Assim, tem-se o grupo das linhas K, o grupo das linhas L, das linhas M etc.. Há atualmente duas notações estabelecidas para designar essas linhas. A notação da IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry) descreve quais foram as camadas ou subcamadas envolvidas na transição que deu origem à linha de raio X, sendo que primeiro se coloca a camada para onde o elétron decai e depois a camada de onde ele partiu (23). A notação de Siegbahn usa uma letra maiúscula para indicar a camada onde se

originou a vacância e letras gregas para indicar a intensidade dos picos, geralmente em ordem decrescente, começando por α . Com números naturais como sub-índice se denota o desdobramento. Para uma linha de raios X resultante da transição de um elétron da subcamada M_5 para a subcamada L_3 a IUPAC estabelece a notação L_3-M_5 , enquanto que na notação de Siegbahn usa-se $L\alpha_1$. A tabela 2.1 apresenta a correspondência entre essas duas notações para as linhas mais usadas neste trabalho (23).

Tabela 2.1: Correspondência entre as notações de Siegbahn e da IUPAC para as linhas permitidas por transições de dipolo decorrentes de vacâncias nas camadas K e L.

Siegbahn	IUPAC
$K\alpha_1$	$K-L_3$
$K\alpha_2$	$K-L_2$
$K\beta_1$	$K-M_3$
$K\beta_3$	$K-M_2$
$K\beta_2$	$K - N_{2,3}$
$Koldsymbol{eta_4}$	$K - N_{4,5}$
$Llpha_1$	L_3-M_5
$L\alpha_2$	L_3-M_4
Ll	L_3-M_1
Lη	L_2-M_1
$Loldsymbol{eta}_1$	L_2-M_4
$Loldsymbol{eta}_2$	$L_3 - N_5$
$Loldsymbol{eta}_3$	L_1-M_3
$Loldsymbol{eta}_4$	L_1-M_2
$L\gamma_1$	L_2-N_4
$L\gamma_2$	$L_1 - N_2$
$L\gamma_3$	$L_1 - N_3$

2.2 Interação dos elétrons com a matéria

Introdução

Quando os elétrons penetram em um meio material eles experimentam uma série de colisões com os elétrons e com o núcleo do átomo-alvo. Essas colisões podem ser divididas em dois grupos: elásticas e inelásticas.

A interação elástica entre um elétron do feixe e o átomo-alvo provoca uma deflexão na direção do elétron incidente, sem que haja, entretanto, excitação do átomo. Já para a interação inelástica do elétron do feixe com o átomo-alvo, além da deflexão há emissão de radiação de *bremsstrahlung* e o elétron incidente perde energia.

Quando a interação elástica ocorre entre o elétron do feixe e o elétron do átomo-alvo, o primeiro sofre um desvio de sua direção inicial, mas não perde energia na interação. Para as interações inelásticas entre o elétron do feixe e o elétron do átomo-alvo, a transferência de energia envolvida na colisão pode resultar em excitações ou ionizações. A probabilidade que um elétron produza uma ionização no átomo está relacionada com a seção de choque σ de ionização, que será discutida nas seções seguintes.

Seção de choque

Os resultados de experimentos de colisões são normalmente expressos em termos da seção de choque, que, para certo tipo de evento em uma dada colisão é igual ao número de eventos deste tipo por unidade de tempo e por alvo, dividido pelo número de partículas incidentes no alvo (24). A seção seguinte é uma breve apresentação da teoria de ionização por impacto de elétrons, em que a seção de choque de ionização é calculada na aproximação de Born.

Teoria de ionização por impacto de elétrons

Aproximação de Born de ondas planas

Considere um feixe de elétrons incidindo sobre um átomo estacionário, em um sistema de coordenadas centrado no átomo. Inicialmente considere que o elétron incidente é distinguível dos elétrons do átomo. Escrevendo a Hamiltoniana que descreve o sistema de espalhamento como:

$$H = H_0 + V 2.8$$

sendo H_0 a hamiltoniana do projétil e do átomo e V a hamiltoniana de interação entre o átomo e o projétil, a amplitude de transição de um estado inicial i, caracterizado pela autofunção $|\Psi\rangle$, para um estado final f, caracterizado pela autofunção $|\Phi_f\rangle$, em teoria de perturbação de primeira ordem, será dada por:

$$T_{fi} = \langle \Phi_f | V | \Psi \rangle \tag{2.9}$$

onde Φ_f são as autofunções da Hamiltoniana H_0 e Ψ é a função de onda para a Hamiltoniana total H. A equação 2.9 será tanto mais precisa quanto menor for a perturbação V escolhida.

Tomando H_0 como sendo a soma da Hamiltoniana do átomo H_A com a do projétil H_p , temse:

$$H_0 = H_A(\xi) + H_p(\overrightarrow{r_p})$$
 2.10

sendo que ξ representa as coordenadas de todos os elétrons atômicos e $\overrightarrow{r_p}$ a coordenada do projétil. A Hamiltoniana do átomo é dada por:

$$H_A = \sum_{k=1}^{Z} \left[\frac{-Ze^2}{r_k} + c\overrightarrow{\alpha_k} \cdot \overrightarrow{p_k} + (\overrightarrow{\beta_k} - 1)m_e c^2 \right] + \sum_{k \le j} \frac{e^2}{|\overrightarrow{r_k} - \overrightarrow{r_j}|} \quad 2.11$$

sendo $\overrightarrow{\alpha_k}$ e $\overrightarrow{\beta_k}$ as matrizes de Dirac e $\overrightarrow{r_k}$ o vetor posição do k-ésimo elétron. A equação 2.11, entretanto, não apresenta solução analítica, assim, costuma-se trabalhar com aproximações de modelos atômicos, onde o átomo é descrito usando a aproximação de elétrons independentes submetidos a um potencial central.

Na situação em que o elétron do feixe tem velocidade relativística, e supondo que o potencial do átomo V cause uma perturbação na função de onda do projétil suficientemente pequena para ser ignorada, a Hamiltoniana do projétil obedecerá a equação de Dirac para uma partícula livre, dada por:

$$H_p = c\vec{\alpha}.\vec{p} + \vec{\beta} m_e c^2$$
 2.12

A aproximação acima corresponde à conhecida aproximação de Born de ondas planas (PWBA).

Um conjunto particular de autofunções para a Hamiltoniana da partícula livre H_p é dada pela onda plana:

$$\phi_{\overrightarrow{Kf}}(p) = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} U_{\sigma p}(\overrightarrow{K_f}) \exp(i\overrightarrow{K_f}.\overrightarrow{r_p})$$
 2.13

em que $U_{\sigma p}$ corresponde a função de onda de spin do projétil e $\overrightarrow{K_f}$ corresponde ao momento final dividido por \hbar . No caso não relativístico $U_{\sigma p}$ representa o spinor de Pauli de duas componentes, já para o caso relativístico ele corresponde ao spinor de Dirac de quatro componentes. As soluções da Hamiltoniana da partícula livre no caso relativístico são dadas por:

$$\phi_{1}(\vec{p}) = A_{1} \begin{pmatrix} 1\\0\\cp_{z}\\ \overline{E + m_{e}c^{2}}\\ \frac{c(p_{x} + ip_{y})}{E + m_{e}c^{2}} \end{pmatrix} \exp(i\vec{K_{f}}.\vec{r_{p}})$$
2.14

$$\phi_{2}(\overrightarrow{p}) = A_{2} \begin{pmatrix} 0\\1\\\frac{c(p_{x} - ip_{y})}{E + m_{e}c^{2}}\\\frac{-cp_{z}}{E + m_{e}c^{2}} \end{pmatrix} \exp(i\overrightarrow{K_{f}}.\overrightarrow{r_{p}})$$
2.15

onde A_1 e A_2 são constantes de normalização, p_i são as componentes do momento final do elétron e E sua energia total.

A autofunção da Hamiltoniana do átomo H_A é dada por:

$$\psi(\xi) = \sqrt{N!} \, A |\psi_1(\overrightarrow{r_1}) \psi_2(\overrightarrow{r_2}) \dots \psi_Z(\overrightarrow{r_Z}) \rangle = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \psi_1(\overrightarrow{r_1}) & \cdots & \psi_1(\overrightarrow{r_Z}) \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \psi_Z(\overrightarrow{r_1}) & \dots & \psi_Z(\overrightarrow{r_Z}) \end{vmatrix}$$

onde $\psi_i(\overrightarrow{r_I})$ é a função de onda do *i*-ésimo orbital atômico.

Essa escolha para H_0 permite exprimir Φ_f em termos do produto das autofunções de H_A e H_p .

Com base na teoria de perturbação de primeira ordem, Ψ deve ser aproximada para a autofunção do estado inicial de H_0 . Usando a PWBA, as funções de onda final e inicial do projetil serão funções de onda de uma partícula livre e Ψ poderá ser aproximado por:

$$\Psi \sim \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} U_{\sigma p}(\vec{K}) \exp(i\vec{K}.\vec{r_p}) \psi_i(\xi)$$
 2.16

em que \vec{K} corresponde ao momento inicial do projétil.

Usando 2.16 e 2.13 em 2.9 tem-se que a amplitude de transição na aproximação de Born é dada por:

$$T_{fi}^{B} = \frac{1}{(2\pi)^{3}} \int \psi_{f}^{*}(\xi) U_{\sigma p'}^{*}(\overrightarrow{K_{f}}) V(\xi, \sigma_{\xi}, \overrightarrow{r_{p}}, \sigma_{p})$$

$$\times U_{\sigma p}(\overrightarrow{K}) \psi_{i}(\xi) \exp(i\overrightarrow{q}.\overrightarrow{r_{p}}) d^{3}r_{p} d\xi \qquad 2.17$$

sendo $\vec{q} = \vec{K} - \vec{K_f}$, $d\xi$ representa a integração sobre as 3 coordenadas de todos os Z elétrons atômicos e $V(\xi, \sigma_{\xi}, \vec{r_p}, \sigma_p)$ corresponde ao potencial de interação da expressão 2.8, que depende do spin do projétil e do alvo para um caso geral, sendo que sua forma deve ser conhecida para qualquer cálculo posterior com a expressão 2.17.

Uma forma geral de se escrever o potencial $V(\xi, \sigma_{\xi}, \overrightarrow{r_p}, \sigma_p)$ para que seja possível explorar a expressão 2.17 tanto no caso relativístico quanto não relativístico é dada por (20):

$$V(\xi, \sigma_{\xi}, \overrightarrow{\boldsymbol{r_p}}, \sigma_p) = V_C(\overrightarrow{\boldsymbol{r_p}}, \sigma_p) + \sum_{k=1}^{Z} V_{kp}(\overrightarrow{\boldsymbol{r_k}}, \sigma_k, \overrightarrow{\boldsymbol{r_p}}, \sigma_p)$$
 2. 18

com

$$V_{kp} = \frac{Z_1 e^2}{|\vec{r}_p - \vec{r}_k|} F(\sigma_k, \sigma_p) \exp(i\lambda |\vec{r}_p - \vec{r}_k|)$$
 2.19

sendo Z_1 a carga do projétil. Essa forma permite levar em conta, por exemplo, a interação magnética dos spins dos elétrons do projétil e do alvo. O potencial de interação para dois elétrons no campo de um núcleo pesado para um tratamento relativístico, por exemplo, é dado por (20; 25):

$$V_{kp} = \left(\frac{e^2}{|\overrightarrow{r_p} - \overrightarrow{r_k}|}\right) \left(1 - \overrightarrow{\alpha_k}.\overrightarrow{\alpha_p}\right) \exp\left(\frac{i|E_i - E_f||\overrightarrow{r_p} - \overrightarrow{r_k}|}{c}\right)$$
 2.20

Comparando 2.20 com 2.19 identifica-se:

$$\lambda = \frac{\left|E_i - E_f\right|}{c}$$

e

$$F(\sigma_k, \sigma_p) = (1 - \overrightarrow{\alpha_k}. \overrightarrow{\alpha_p})$$

Substituindo a expressão 2.18 na expressão 2.17 tem-se a amplitude de Born em termos das funções de onda antissimétricas das partículas do átomo e da interação *V*:

$$T_{fi}^{B} = \frac{1}{(2\pi)^{3}} \int \psi_{f}^{*}(\xi) U_{\sigma p'}^{*}(\overrightarrow{K_{f}}) \left[V_{C}(\overrightarrow{r_{p}}, \sigma_{p}) + \sum_{k=1}^{Z} V_{kp}(\overrightarrow{r_{k}}, \sigma_{k}, \overrightarrow{r_{p}}, \sigma_{p}) \right] \times U_{\sigma p}(\overrightarrow{K_{i}}) \psi_{i}(\xi) \exp(i\overrightarrow{q}. \overrightarrow{r_{p}}) d^{3}r_{p} d\xi \qquad 2.21$$

A seção de choque diferencial com respeito ao momento final $\overrightarrow{K_f}$ do projétil é dada por (20):

$$d\sigma_f = \frac{16\pi^4}{v\hbar^4} |T_{fi}|^2 \delta(E_f + E_t - E_i) d^3 K_f$$
 2.22

em que E_i e E_f correspondem às energias total inicial e final do projétil, respectivamente, E_t à energia transferida para o átomo, e T_{fi} é dado pela expressão 2.21. A função δ impõe a conservação de energia para a colisão. O diferencial d^3K_f é dado por $d^3K_f = K_f^2 dE_f d\Omega/v_f$, enquanto que

dK/dE = 1/v tanto para o caso relativístico quanto para o não relativístico, e $d\Omega$ é o elemento de ângulo sólido para o projétil final. Integrando a expressão 2.22 sobre E_f chega-se no resultado:

$$\frac{d\sigma_f}{d\Omega} = \frac{16\pi^4 E_i E_f K_f}{c^4 \hbar^4 K_i} |T_{fi}|^2$$
 2.23

Quando se considera um feixe de elétrons incidindo em um alvo, o efeito de troca entre o elétron incidente e o elétron atômico deve ser levado em conta no cálculo de T_{fi} . A amplitude de transição antissimétrica na aproximação de Born pode ser escrita de forma análoga à expressão 2.9:

$$T_{fi}^{e} = (N+1)\langle \Phi_f | V | A(1, \dots, N, p) \Phi_i \rangle$$
 2.24

em que o operador A(1,...,N,p) antissimetriza os N+1 elétrons do sistema formado pelo átomo mais o projétil. Escrevendo em termos do operador P_{ij} que permuta as partículas i e j, tem-se que:

$$A(1,...,N,p)\Phi_{i} = \phi_{\overrightarrow{K_{i}}}(p)\psi_{i}(1,...,N) = \left[\frac{1}{N+1}\right]\left(1 - \sum_{j=1}^{N} P_{jp}\right)\phi_{\overrightarrow{K_{i}}}(p)\psi_{i}(1,...,N)$$
 2.25

uma vez que a ψ_i já é antissimétrica. Substituindo a expressão 2.25 na expressão 2.24, chega-se em:

$$T_{fi}^{e} = T_{fi}^{B} - T_{ex} 2.26$$

onde ${T_{fi}}^{B}$ é idêntica a amplitude de transição apresentada na expressão 2.21 e T_{ex} é dada por

$$T_{ex} = N \left\langle \phi_{\overrightarrow{K_f}}(p) \psi_f(\xi) \middle| V \middle| \phi_{\overrightarrow{K_i}}(1) \psi_i(p, 2, ..., N) \right\rangle$$
 2.27

Usando o potencial dado pela expressão 2.18 e o fato de que a função de onda $\psi_f(\xi)$ pode ser expressa em termos das funções de onda de cada um dos átomos:

$$\psi_f(\xi) = (N!)^{1/2} A(1, ..., N) \chi_f(1) \chi_2(2) ... \chi_N(N)$$

sendo que as funções de onda com índices de 2 até N correspondem às funções de onda que não sofrem alteração com a ionização resultante da colisão, enquanto que χ_f corresponde à função de onda para o elétron ejetado, pode-se mostrar que o termo de troca T_{ex} é dado por (20):

$$T_{ex} = \left\langle \phi_{\overrightarrow{K_f}}(p) \middle| V_c(p) \middle| \chi_i(p) \right\rangle \left\langle \chi_f(1) \middle| \phi_{\overrightarrow{K_i}}(1) \right\rangle$$

$$+ \sum_{j=2}^{N} \left\langle \chi_j(1) \middle| \phi_{\overrightarrow{K_i}}(1) \right\rangle \left\langle \phi_{\overrightarrow{K_f}}(p) \chi_f(2) \middle| V_{jp} \middle| \left[\chi_j(p) \chi_i(2) - \chi_j(2) \chi_i(p) \right] \right\rangle$$

$$+ \sum_{j=2}^{N} \left\langle \chi_f(1) \middle| \phi_{\overrightarrow{K_i}}(1) \right\rangle \left\langle \phi_{\overrightarrow{K_f}}(p) \chi_j(2) \middle| V_{jp} \middle| \left[\chi_j(2) \chi_i(p) - \chi_j(p) \chi_i(2) \right] \right\rangle$$

$$+ \left\langle \phi_{\overrightarrow{K_f}}(p) \chi_f(1) \middle| V_{1p} \middle| \chi_i(p) \phi_{\overrightarrow{K_i}}(1) \right\rangle \qquad 2.28$$

Os vários termos da expressão 2.28 correspondem às diferentes possibilidades de troca. O primeiro termo corresponde à troca entre o elétron do projétil e o elétron que está inicialmente ocupando o estado ligado χ_i devido ao operador de uma partícula V_c . Os termos restantes originamse do operador de duas partículas V_{jp} . No segundo termo tem-se a troca do projétil inicial com o elétron espectador do átomo e no terceiro a troca do projétil inicial com o elétron ejetado. O último termo da expressão corresponde à troca direta entre o projétil incidente e o elétron que está inicialmente ocupando o estado χ_i devido à interação entre essas duas partículas.

Cabe destacar que o efeito de troca entre o elétron do projétil e o elétron do alvo será mais importante quando a velocidade do elétron do feixe for da mesma ordem de magnitude que a

velocidade do elétron no átomo (24), no entanto, quando isso acontece, a aproximação de Born de ondas planas não é mais adequada, de modo que desprezar o efeito de troca quando se está na validade da aproximação de Born não é uma aproximação ruim.

Caso semiclássico

Considere um feixe de elétrons incidindo sobre um átomo neutro, em que a velocidade do feixe não é relativística, mas é alta comparada com a velocidade dos elétrons do átomo, de modo que a aproximação de Born de ondas planas possa ser usada. Além disso, suponha que o núcleo seja infinitamente duro e esteja fixo na origem.

Para o caso não relativístico a hamiltoniana do sistema será dada por:

$$H = H_p + h + V(\vec{r}, \xi)$$
 2.29

em que H_p , na aproximação de ondas planas, será dada pela Hamiltoniana da partícula livre,

$$H_p = \frac{p^2}{2m} \tag{2.30}$$

h corresponde a hamiltoniana do átomo e $V(\vec{r}, \xi)$, ao potencial de interação.

Para o tratamento não relativístico, no potencial $V(\vec{r}, \xi)$, conforme apresentado na expressão 2.19, deve-se fazer $\lambda = 0$, F = 1 e V_c igual à interação de Coulomb entre o projétil e o núcleo atômico. Nessas condições, o potencial V é dado por:

$$V(\vec{r},\xi) = -\frac{Ze^2}{r_p} + \sum_{k=1}^{Z} \frac{e^2}{|\vec{r_p} - \vec{r_k}|}$$
 2.31

onde o primeiro termo expressa a interação do elétron do feixe com o núcleo do átomo e o segundo com os elétrons do átomo.

Desprezando o efeito de troca entre o elétron do feixe e o elétron do alvo e substituindo o potencial da expressão 2.31 na expressão 2.21 chega-se em:

$$T_{fi}^{B} = \frac{1}{(2\pi)^{3}} \int \psi_{f}^{*}(\xi) \left[\frac{-Ze^{2}}{r_{p}} \right] \times \psi_{i}(\xi) \exp\left(i\vec{\boldsymbol{q}}.\vec{\boldsymbol{r}_{p}}\right) d^{3}r_{p}d\xi$$

$$+ \frac{1}{(2\pi)^{3}} \int \psi_{f}^{*}(\xi) \left[\sum_{k=1}^{Z} \frac{e^{2}}{|\vec{\boldsymbol{r}_{p}} - \vec{\boldsymbol{r}_{k}}|} \right] \times \psi_{i}(\xi) \exp\left(i\vec{\boldsymbol{q}}.\vec{\boldsymbol{r}_{p}}\right) d^{3}r_{p}d\xi \qquad 2.32$$

A primeira integral independe das coordenadas dos elétrons atômicos. Devido à ortogonalidade das funções de onda, esse termo somente será não nulo no caso do espalhamento elástico, onde o estado final é igual ao estado inicial. O cálculo da segunda integral recai no problema da transformada de Fourier do campo coulombiano, resultando em:

$$T_{fi}^{\ B} = \frac{e^2}{2\pi^2 a^2} |F(q)|$$
 2.33

sendo que F(q) corresponde ao fator de forma inelástico e é dado por:

$$F(q) = \frac{1}{Z} \sum_{k=1}^{Z} \int \psi_f(\xi) \exp(i\vec{\boldsymbol{q}} \cdot \vec{\boldsymbol{r}_k}) \psi_i(\xi) d^3 \xi$$
 2.34

Aplicando o resultado da expressão 2.33 na expressão 2.23 e lembrando que no limite não relativístico tem-se que $E_{i(f)}/c^2 \rightarrow m$, chega-se em:

$$\frac{d\sigma_f}{d\Omega} = 4m^2 Z^2 e^4 \frac{k_f}{k_i} \frac{|F(q)|^2}{q^4 \hbar^4}$$
 2.35

Esse resultado tem uma aplicabilidade limitada, mas é útil como uma situação limite da expressão 2.23. Para um feixe de elétrons de 50 a 100 keV, que corresponde ao intervalo de energia de interesse deste trabalho, a velocidade dos elétrons do projétil já é cerca de metade da velocidade da luz, de modo que o tratamento relativístico seria o mais adequado. Além disso, para um átomo de ouro, por exemplo, a velocidade do elétron na camada L é cerca de 30% da velocidade da luz, e a condição de que a velocidade do feixe deve ser muito maior que a velocidade do elétron não é satisfeita, de modo que a aproximação de Born de ondas planas não é mais aplicável.

Cálculos subjacentes a aproximação de Born de ondas planas (PWBA)

Os resultados apresentados nesta seção seguirão o esquema de cálculo desenvolvido por Bote e Salvat (26; 27).

Conforme apresentado na seção anterior, na aproximação de Born de ondas planas a Hamiltoniana do projétil é dada pela equação de Dirac para elétrons livres.

A aproximação seguinte consiste em considerar a hamiltoniana da interação V como sendo a soma da interação eletromagnética entre o projétil com o núcleo e com os elétrons do átomo-alvo, de modo que se tem:

$$V = \frac{-Ze^2}{r_p} + \sum_{k=1}^{Z} V_{int}(\overrightarrow{r_p}, \overrightarrow{r_k})$$
 2.36

sendo que o primeiro termo corresponde à interação dos elétrons do feixe com o núcleo do átomo e $V_{int}(\overrightarrow{r_p},\overrightarrow{r_k})$ descreve a interação do projétil com os elétrons atômicos. Essa perturbação induzirá transições entre os auto estados da Hamiltoniana dada por 2.8 e a seção de choque de ionização será obtida por 2.23 com a amplitude de transição calculada na aproximação de Born da expressão 2.21. As funções de ondas envolvidas na amplitude de transição são dadas pelas autofunções das hamiltonianas 2.11 e 2.12. De modo análogo ao que acontece para o caso semiclássico, o termo da

amplitude de transição que vem da interação entre o núcleo do alvo e o elétron do projétil será nulo para a situação onde o estado inicial e final são diferentes, só contribuindo para o caso do espalhamento elástico. No caso de ionização a Hamiltoniana V terá, portanto, somente a contribuição de V_{int} . No calibre de Coulomb essa hamiltoniana pode ser dividida em duas componentes independentes, uma parte longitudinal e uma parte transversal (26; 25). A interação longitudinal resulta do campo coulombiano puro e a interação transversal origina-se da troca de fótons virtuais.

Nessa aproximação, apesar de se estar levando em conta a hamiltoniana relativística, não é levado em conta o efeito de troca dos elétrons. Além disso, para que ela seja aplicável a energia dos elétrons incidentes deve ser bem maior do que a do potencial de ionização, de modo que o potencial V possa ser tratado como uma perturbação da hamiltoniana 2.8. Conforme dito anteriormente, para um feixe de elétrons com energia de aproximadamente 100 keV e alvos de elementos com número atômico alto a PWBA não é adequada.

A aproximação de Born de ondas distorcidas (DWBA) leva em conta a perturbação que o átomo causa nos elétrons do feixe e o efeito de troca entre os elétrons do alvo e do projétil. Tanto na aproximação de Born de ondas planas quanto na de ondas distorcidas o átomo é modelado da mesma forma por meio da hamiltoniana dada pela expressão 2.11 - a diferença entre esses dois formalismos está na escolha da hamiltoniana do projétil e na perturbação. No formalismo DWBA a Hamiltoniana do sistema é escrita como:

$$H = [H_A + H_P + V(\overrightarrow{r_0})] + [V - V(\overrightarrow{r_0})]$$
 2.37

sendo que a prática geral é escolher $V(\overrightarrow{r_0})$ como o potencial auto consistente, que é soma do potencial de Coulomb atrativo, devido ao núcleo, com o potencial repulsivo, que representa o efeito médio das interações coulombianas entre um elétron do átomo e os outros Z-1 elétrons, decorrente da suposição de que todos eles se movem de forma independente (18). No trabalho de Bote e Salvat (26; 27) adota-se $V(\overrightarrow{r_0})$ como sendo o potencial de Dirac Hartree Fock Slater DHFS, que é empregado também na Hamiltoniana do átomo.

O hamiltoniano não perturbado passa a ser $H_0 = H_A + H_P + V(\overrightarrow{r_0})$ enquanto que a perturbação é dada por $V' = V - V(\overrightarrow{r_0})$. Nesse caso o elétron do projétil respeita a hamiltoniana de Dirac com o potencial $V(\overrightarrow{r_0})$ indicando, portanto, que o elétron do projétil sente a ação do potencial

do átomo. Com isso as funções de onda do projétil deixam de ser ondas planas e passam a ser ondas distorcidas.

Segundo Bote e Salvat (26), devido a problemas de convergências a DWBA é aplicável somente para energias de até cerca de dez vezes a energia de ionização da camada do elétron ativo. Para essas energias os autores argumentam que o termo transversal da hamiltoniana de interação é pequeno e por isso desprezado em seus cálculos (26). Essa aproximação é aceitável, entretanto, para projéteis com velocidades muito menores do que a velocidade da luz *c*.

A vantagem da DWBA em relação à PWBA é que a perturbação no caso da primeira será menor do que na segunda, de modo que se espera que os resultados obtidos por meio da teoria de perturbação de primeira ordem sejam mais precisos. Entretanto ela tem a desvantagem de desconsiderar o termo transversal do potencial de interação que pode exercer apreciável contribuição quando se tem projéteis com velocidades próximas a velocidade da luz.

Os resultados obtidos no trabalho de Bote e Salvat (26) para seção de choque de ionização atômica podem ser aproximados por meio de expressões simples que estão em função do número atômico Z do átomo e da camada atômica ionizada. Essas expressões foram usadas neste trabalho para comparação com os resultados experimentais obtidos.

2.3 Seção de choque de produção de raios X e seção de choque de ionização das subcamadas $L_1,\,L_2$ e L_3

Introdução

É uma prática comum na literatura apresentar, como resultado final dos experimentos de ionização da camada L, a seção de choque de produção de raios X L e não a seção de choque de ionização da camada L ou das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , conforme já citado anteriormente. Entre outros motivos, isso acontece por conta da dificuldade na separação das linhas de raios X L mais intensas, o que é importante para a determinação da seção de choque de ionização, além do problema relacionado aos parâmetros atômicos, que apresentam incertezas altas (da ordem de 15% para os coeficientes de Coster-Kronig, por exemplo) e que não são bem conhecidos para todos os elementos. Apesar destas dificuldades, como nesse trabalho foi possível separar no espectro de

energia as linhas do multipleto de raios X L com precisão razoável, foram calculadas, além das seções de choque de produção de raios X, as seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 . Para tanto se usou o método dos mínimos quadrados (MMQ) com uma matriz de planejamento construída com base nas equações que relacionam as seções de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 com as de produção de raios X, conforme descrito nas seções seguintes. A aplicação do MMQ aos dados experimentais está no capítulo 6.

Seções de choque de produção de raios X

Partiremos determinando a seção de choque de produção de uma *vacância* em uma dada subcamada i, σ_i^h ; o sobrescrito h denota que o estado final tem uma vacância na subcamada i. Essa seção de choque será dada pela soma das seções de choque dos diversos processos que podem ter dado origem àquela vacância.

Uma vacância produzida na subcamada L_1 pode ter sido originada por ionização direta da camada L_1 ou por ionização da camada K com a subsequente transferência da vacância para L_1 . Assim, a seção de choque de produção de uma vacância na subcamada L_1 é dada por:

$$\sigma_{L_1}^h = \sigma_{L_1} + \eta_{KL_1} \sigma_K 2.38$$

em que σ_{L_1} e σ_K correspondem a seção de choque de ionização por impacto de elétrons da subcamada L_1 e da camada K, respectivamente, e η_{KL_1} corresponde a probabilidade de transferência da vacância da camada K para a subcamada L_1 .

Para a subcamada L_2 as possibilidades envolvem: a ionização direta da subcamada L_2 ; a ionização da subcamada L_1 com subsequente transferência da vacância para L_2 ; a ionização da camada K com transferência de vacância diretamente para a subcamada L_2 ou indiretamente via transferência de vacância da camada K para L_1 e desta para L_2 . Assim, a seção de choque de produção de uma vacância na subcamada L_2 será dada pela soma dos três termos que representam esses processos:

$$\sigma_{L_2}^h = \sigma_{L_2} + f_{12}\sigma_{L_1} + (\eta_{KL_2} + f_{12}\eta_{KL_1})\sigma_K$$
 2.39

onde σ_{L_2} corresponde à seção de choque de ionização da subcamada L_2 , f_{12} à probabilidade de transferência da vacância da subcamada L_1 para L_2 com a subsequente liberação de um elétron de uma camada mais externa, e η_{KL_2} corresponde à transferência da vacância da camada K para subcamada L_2 .

Na subcamada L_3 a vacância pode se originar de uma ionização direta, de uma ionização na subcamada L_2 com transferência da vacância para L_3 , de uma ionização na subcamada L_1 com transferência para L_3 , ou com transferência para L_2 e na sequência para L_3 , e de uma ionização na camada K que engloba quatro possibilidades: a transferência direta da vacância da camada K para subcamada L_3 , transferência da vacância da camada K para L_2 e depois L_3 , para L_1 e depois L_3 e por fim, transferência da vacância da camada K para subcamada L_1 , depois L_2 e então L_3 . Assim, a seção de choque de produção de uma vacância na subcamada L_3 será dada por:

$$\sigma_{L_3}^h = \sigma_{L_3} + f_{23}\sigma_{L_2} + (f_{13} + f'_{13} + f_{12}f_{23})\sigma_{L_1} + (\eta_{KL_3} + f_{23}\eta_{KL_2} + (f_{13} + f'_{13} + f_{12}f_{23})\eta_{KL_1})\sigma_K \quad 2.40$$

onde σ_{L_3} corresponde à seção de choque de ionização da subcamada L_3 , f_{13} e f_{23} correspondem às probabilidades de transferência das vacâncias das subcamadas L_1 para L_3 e de L_2 para L_3 , respectivamente, com a subsequente emissão de um elétron de uma camada mais externa, f'_{13} corresponde à probabilidade de transferência da vacância de L_1 para L_3 com a subsequente emissão de um fóton, e η_{KL_3} corresponde à probabilidade de transferência da vacância da camada K para a subcamada L_3 .

Os coeficientes f_{ij} e f'_{ij} correspondem aos coeficientes de Coster-Kronig quando se têm transições não radiativas e radiativas entre as subcamadas L_i e L_j , respectivamente.

Conforme já explicitado, o coeficiente η_{KL_i} corresponde à probabilidade de transferência de uma vacância da camada K para a subcamada L_i . Os valores usados neste trabalho foram obtidos por meio das expressões (28):

$$\eta_{KL_1} = \frac{\Gamma_R(KL_1)}{\Gamma(K)} + \frac{2\Gamma_A(KL_1L_1) + \Gamma_A(KL_1L_2) + \Gamma_A(KL_1L_3)}{\Gamma(K)} \quad 2.41$$

$$\eta_{KL_2} = \frac{\Gamma_R(KL_2)}{\Gamma(K)} + \frac{2\Gamma_A(KL_2L_2) + \Gamma_A(KL_1L_2) + \Gamma_A(KL_2L_3)}{\Gamma(K)} \quad 2.42$$

$$\eta_{KL_3} = \frac{\Gamma_R(KL_3)}{\Gamma(K)} + \frac{2\Gamma_A(KL_3L_3) + \Gamma_A(KL_1L_3) + \Gamma_A(KL_2L_3)}{\Gamma(K)} \quad 2.43$$

em que $\Gamma_R(KL_i)$ e $\Gamma_A(KL_i)$ correspondem às intensidades de transição radiativa e de transição Auger entre a camada K e a subcamada L_i , respectivamente, conforme a expressão 2.4.

Cabe destacar que as contribuições das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 somente foram incluídas nas expressões 2.38, 2.39 e 2.40 para energias do feixe superiores à energia de ionização da camada K, uma vez que para energias inferiores ela não pode ser ionizada e, portanto, não há possiblidade de uma vacância ser transferida da camada K para camada L. Os termos envolvendo as camadas superiores a L, a saber, as camadas M, N, O e etc., não foram levados em conta nas expressões 2.41, 2.42 e 2.43 devido à pequena contribuição que eles representam. A tabela 2.2 resume as possibilidades de transferência da vacância junto com a probabilidade de cada uma delas acontecer.

A seção de choque de produção de raios X será dada pela probabilidade de que a vacância produzida na subcamada seja preenchida por meio de uma transição radiativa de uma determinada linha. Essas seções de choque são marcadas com um sobrescrito x, e o subscrito indica o raio X produzido na notação de Siegbahn (tabela 2.1).

Assim, para as linhas mais intensas e que foram usadas neste trabalho tem-se:

$$\sigma_{L_{\alpha 1}}^{x} = \frac{\Gamma_{L_3 M_5}}{\Gamma_{3 \text{ total}}} \omega_3 \sigma_{L_3}^{h}$$
 2.44

$$\sigma_{L_{\alpha 2}}^{\chi} = \frac{\Gamma_{L_3 M_4}}{\Gamma_{3 \text{ total}}} \omega_3 \sigma_{L_3}^h$$
 2.45

Tabela 2.2: Mecanismos de formação de uma vacância nas várias subcamadas L e as probabilidades associadas, com os símbolos definidos no texto.

Vacância Final	Sequência de	Probabilidade
	transferências	
L_1	Direta	σ_{L_1}
L_1	$K \to L_1$	$\eta_{KL_1}\sigma_K$
L_2	Direta	σ_{L_2}
L_2	$L_1 \rightarrow L_2$	$f_{12}\sigma_{L_1}$
L_2	$K \to L_2$	$\sigma_K \eta_{KL_2}$
L_2	$K \to L_1 \to L_2$	$\sigma_K \eta_{KL_1} f_{12}$
L_3	Direta	σ_{L_3}
L_3	$L_2 \rightarrow L_3$	$f_{23}\sigma_{L_2}$
L_3	$L_1 \rightarrow L_3$	$\sigma_{L_1}(f_{13} + f'_{13})$
L_3	$L_1 \to L_2 \to L_3$	$\sigma_{L_1}f_{12}f_{13}$
L_3	$K \to L_3$	$\sigma_K \eta_{KL_3}$
L_3	$K \to L_2 \to L_3$	$\sigma_K \eta_{KL_2} f_{23}$
L_3	$K \to L_1 \to L_3$	$\sigma_K \eta_{KL_1} (f_{13} + f'_{13})$
L_3	$K \to L_1 \to L_2 \to L_3$	$\sigma_K \eta_{KL_1} f_{12} f_{23}$

$$\sigma_{L_l}^{x} = \frac{\Gamma_{L_3 M_1}}{\Gamma_{3,\text{total}}} \omega_3 \sigma_{L_3}^{h}$$
 2.46

$$\sigma_{L_{\eta}}^{x} = \frac{\Gamma_{L_{2}M_{1}}}{\Gamma_{2,\text{total}}} \omega_{2} \sigma_{L_{2}}^{h}$$
2.47

$$\sigma_{L_{\beta_1}}^{\chi} = \frac{\Gamma_{L_2M_4}}{\Gamma_{2,\text{total}}} \omega_2 \sigma_{L_2}^h$$
 2.48

$$\sigma_{L_{\beta_2}}^x = \frac{\Gamma_{L_3N_5}}{\Gamma_{3,\text{total}}} \omega_3 \sigma_{L_3}^h$$
 2.49

$$\sigma_{L\beta_3}^{\chi} = \frac{\Gamma_{L_1M_3}}{\Gamma_{1\text{ total}}} \omega_1 \sigma_{L_1}^h$$
 2.50

$$\sigma_{L_{\beta_4}}^x = \frac{\Gamma_{L_1 M_2}}{\Gamma_{1 \text{ total}}} \omega_1 \sigma_{L_1}^h$$
 2.51

$$\sigma_{L_{\gamma_1}}^{x} = \frac{\Gamma_{L_2N_4}}{\Gamma_{2 \text{ total}}} \omega_2 \sigma_{L_2}^{h}$$
 2.52

$$\sigma_{L\gamma_2}^{x} = \frac{\Gamma_{L_1N_2}}{\Gamma_{1,\text{total}}} \omega_1 \sigma_{L_1}^{h}$$
 2.53

$$\sigma_{L\gamma_3}^{\chi} = \frac{\Gamma_{L_1N_3}}{\Gamma_{1,\text{total}}} \omega_1 \sigma_{L_1}^h$$
 2.54

em que $\Gamma_{L_iM(N)_j}$ corresponde à taxa de emissão de raios X para a transição $L_iM(N)_j$ e $\Gamma_{i,total}$, à soma de todas as possíveis transições para a subcamada L_i .

A seção de choque de produção de raios X L_{α} é dada pela soma das expressões 2.44 e 2.45. A seção de choque para L_{β} é dada pela soma das expressões 2.48, 2.49, 2.50 e 2.51 e para L_{γ} a seção de choque é dada pela soma das expressões 2.52, 2.53 e 2.54. Cabe lembrar que estão sendo levadas em conta somente as linhas de maior intensidade de cada um dos grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} .

Aplicação do MMQ na determinação da seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3

As equações envolvidas nas expressões 2.44 - 2.54 podem ser escritas na forma matricial por meio da equação:

$$\overrightarrow{y_0} = X \overrightarrow{a_0}$$
 2.55

sendo que $\overrightarrow{y_0}$ corresponde à matriz coluna com os valores verdadeiros da seção de choque de produção de raios X, $\overrightarrow{a_0}$ corresponde à matriz coluna com os valores verdadeiros para as seções de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 e X é a matriz retangular que relaciona esses dois vetores coluna, normalmente chamada de matriz de planejamento (29). Na expressão 2.55 o objetivo é encontrar uma estimativa \vec{a} para o vetor $\overrightarrow{a_0}$, uma vez uma estimativa para $\overrightarrow{y_0}$ é construída a partir dos dados experimentais e X é obtido a partir dos parâmetros atômicos. Do MMQ, buscando o mínimo da expressão $Q(\vec{a}) = (\vec{y} - X \vec{a})^t V_e^{-1} (\vec{y} - X \vec{a})$ para o vetor coluna \vec{a} das estimativas, chega-se em (29):

$$\hat{\vec{a}} = (X^t V_e^{-1} X)^{-1} X^t V_e^{-1} \vec{y}$$
 2.56

sendo que V_e corresponde a matriz de variâncias e covariâncias dos dados experimentais da matriz \vec{y} . A matriz de variâncias e covariâncias do vetor \vec{a} é dada por:

$$V_{\vec{o}} = \left(X^t V_e^{-1} X\right)^{-1} \tag{2.57}$$

2.4 Radiação de freamento: Bremsstrahlung

Quando uma partícula carregada colide com um alvo ou interage com o campo eletrostático de um átomo ela sofre uma aceleração e, consequentemente, emite radiação, habitualmente denominada radiação de freamento (*bremsstrahlung*). Se a partícula carregada colide com outra partícula, também carregada, ambas emitirão radiação e será necessário levar em conta a superposição dos campos de radiação. Entretanto, na prática, as situações mais comuns envolvem a colisão de uma partícula mais leve com uma de maior massa. Assim, para a emissão da radiação é suficiente tratar a colisão como a interação da partícula mais leve com um campo de força fixo (30).

A energia irradiada por unidade de ângulo sólido e por intervalo de frequência para uma partícula de carga *Ze* durante uma colisão pode ser expressa como (30):

$$\frac{d^2I}{d\omega d\Omega} = \frac{Z^2 e^2}{4\pi^2 c} \left| \int \frac{d}{dt} \left[\frac{\vec{\mathbf{n}} \times (\vec{\mathbf{n}} \times \vec{\boldsymbol{\beta}})}{1 - \vec{\mathbf{n}} \cdot \vec{\boldsymbol{\beta}}} \right] e^{i\omega(t - \vec{\mathbf{n}} \cdot \vec{\mathbf{r}}(t)/c)} dt \right|^2$$
 2.57

em que $\vec{\beta}$ é a velocidade do elétron em unidades da velocidade da luz c, $\vec{\beta} = \vec{v}/c$, \vec{r} é o vetor posição do elétron do projétil, ω a frequência da radiação, Ω o ângulo sólido dentro do qual o fóton se desloca e \vec{n} um vetor unitário na direção de um dado ponto de observação.

O espectro de radiação, em frequências finitas, vai depender dos detalhes da colisão, entretanto, a sua forma, em baixas frequências, dependerá somente das velocidades inicial e final da partícula carregada. No limite em que $\omega \to 0$, o fator exponencial na equação 2.57 tende a unidade, com isso o integrando passa a ser uma diferencial exata, e pode-se mostrar que o espectro de radiação, com a polarização $\vec{\epsilon}$, será dado por (30):

$$\lim_{\omega \to 0} \frac{\mathrm{d}^2 I}{\mathrm{d}\omega \mathrm{d}\Omega} = \frac{Z^2 e^2}{4\pi^2 c} \left| \overrightarrow{\epsilon}^* \cdot \left(\frac{\overrightarrow{\beta}'}{1 - \overrightarrow{\mathbf{n}} \cdot \overrightarrow{\beta}'} - \frac{\overrightarrow{\beta}}{1 - \overrightarrow{\mathbf{n}} \cdot \overrightarrow{\beta}} \right) \right|^2$$
 2.58

O resultado da expressão 2.58 pode ser convertido em um espectro numérico diferencial de fótons dividindo-se ambos os lados da equação 2.58 por $\hbar^2\omega$ e lembrando que a energia de um fóton é dada por $\hbar\omega$. Obtendo-se

$$\lim_{\hbar\omega\to 0} \frac{\mathrm{d}^2 N}{\mathrm{d}(\hbar\omega)\mathrm{d}\Omega_{\gamma}} = \frac{Z^2}{4\pi^2} \frac{e^2}{\hbar c} \frac{1}{\hbar\omega} \left| \overrightarrow{\epsilon}^* \cdot \left(\frac{\overrightarrow{\beta}'}{1 - \overrightarrow{\mathbf{n}} \cdot \overrightarrow{\beta}'} - \frac{\overrightarrow{\beta}}{1 - \overrightarrow{\mathbf{n}} \cdot \overrightarrow{\beta}} \right) \right|^2 \quad 2.59$$

onde se nota a dependência com $1/\hbar\omega$. O resultado acima é válido tanto clássica quanto quanticamente (30).

A seção de choque de *bremsstrahlung* (DCS), por outro lado, é diretamente proporcional ao número de fótons emitidos, de modo que a mesma dependência com 1/W é esperada para esse caso, em que W é a energia do fóton emitido.

Uma descrição simplificada da seção de choque diferencial de *bremsstrahlung* é dada pela fórmula de Bethe-Heitler, derivada com base na aproximação de Born (31). Sendo E a energia do elétron e $\sigma_{\rm br}$ a seção de choque de *bremsstrahlung*, a fórmula de Bethe-Heitler indica que para um dado valor de Z, a quantidade $W d\sigma_{\rm br}/dW$ varia suavemente com E e W, por isso, é comum na literatura expressar a seção de choque diferencial para emissão de *bremsstrahlung* por impacto de elétrons por meio da expressão:

$$\frac{\mathrm{d}\sigma_{\mathrm{br}}}{\mathrm{d}W} = \frac{Z^2}{\beta^2} \frac{1}{W} \chi(Z, E, \kappa)$$
 2.60

em que $\kappa \equiv W/E$ (32) e $\chi(Z, E, \kappa)$ é conhecido como a seção de choque diferencial de *bremsstrahlung* reduzida, que leva em conta as interações elétron-núcleo e elétronelétron, é finito para todo κ , e para um dado elemento Z ele varia suavemente com E e κ . Seltzer et al. (33; 34) apresentam extensas tabelas para DCS para todos os elementos (Z = 1 - 92) e para elétrons com energia de 1 keV até 10 GeV.

A seção de choque de emissão de *bremsstrahlung* duplamente diferencial, por unidade de energia perdida W, e por ângulo sólido da direção de emissão é convenientemente expressa por:

$$\frac{\mathrm{d}^2 \sigma_{\mathrm{br}}}{\mathrm{d}W \mathrm{d}\Omega} = \frac{\mathrm{d}\sigma_{\mathrm{br}}}{\mathrm{d}W} \frac{1}{2\pi} p(Z, E, \kappa; \cos\theta)$$
 2.61

em que $p(Z, E, \kappa; \cos \theta)$ é a função distribuição de probabilidade de $\cos \theta$, normalizada para a unidade (31).

A expressão 2.61 tem, com boa aproximação, a mesma dependência de 1/W, já esperada pela expressão 2.59 e que será usada no capítulo 7 para ajustar a componente contínua do espectro obtido na irradiação do alvo de ouro.

Capítulo 3

Descrição dos experimentos

Neste capítulo serão descritos os experimentos realizados e os equipamentos de medição utilizados, bem como a metodologia empregada. Na sequência serão apresentados os detalhes do procedimento experimental, que foram diferentes com os dois elementos usados (Au e Ta).

3.1 Arranjo experimental

Introdução

Os experimentos com os alvos de Au e de Ta foram realizados no acelerador de elétrons do Laboratório de Acelerador Linear localizado no Instituto de Física da Universidade de São Paulo. Em ambos os experimentos foi usada a linha de baixa energia do acelerador, construída para a realização de experimentos sobre a interação dos elétrons com a matéria. A deteção dos raios X foi feita com um detetor de Si(Li) no experimento com o alvo de Ta e com um detetor de germânio hiperpuro (HPGe) para o alvo de Au. As seções seguintes descrevem a linha de feixe, bem como os alvos e os arranjos experimentais.

Linha de feixe do acelerador Microtron

O sistema injetor do acelerador Microtron produz um feixe de elétrons de 1,9 MeV. Esse feixe tem a possibilidade de ser inserido no microtron *booster*, onde sua

energia inicial é elevada até 5 MeV, ou ser desviado para a linha de 1,9 MeV que dá acesso à câmara de alvos onde se realiza experimentos de interação de elétrons com a matéria. O desvio do feixe para a linha de baixa energia é feito por meio de um dipolo magnético com câmara de vácuo em forma de Y. Quando ele está desmagnetizado o feixe segue em direção ao *booster*, caso contrário ele será desviado para a linha de baixa energia.

Nos experimentos realizados a energia dos elétrons foi de 50 a 100 keV, de modo que em todas as irradiações se trabalhou com as cavidades ressonantes desligadas, usando diretamente o feixe que sai do canhão de elétrons.

A linha de feixe está esquematizada na figura 3.1 e a figura 3.2 traz uma representação de uma imagem desta, destacando a parte de baixa energia. Ela é composta de um tubo de aço que passa através de vários equipamentos até chegar à câmara de irradiação. O feixe proveniente do sistema injetor passa inicialmente por um conjunto de três quadrupolos que tem por objetivo focalizá-lo. Na sequência, ele pode ou ser inserido no microtron booster, ou ser desviado pelo dipolo magnético seletor para a linha de baixa energia que dá acesso à câmara de irradiação onde são realizados os experimentos de interação dos elétrons com a matéria. Quando os elétrons do feixe passam pelo conjunto dos três quadrupolos eles podem não ter todos a mesma energia, o que fará com que cada um deles sofra um desvio diferente, assim, ao entrar na linha de baixa energia esse feixe passa por uma fenda de carbono cujo objetivo é barrar os elétrons que sofreram maiores desvios. Uma vez que esse processo pode gerar bremsstrahlung a fenda possui uma blindagem de chumbo para absorver essa radiação. Depois de passar pela fenda os elétrons passam por mais dois quadrupolos que vão focalizá-los e por fim chega até a câmara de irradiação. Nessas condições o feixe apresenta um diâmetro de aproximadamente 3 mm. Um monitor de posição permite visualizá-lo antes que chegue a câmara de irradiação. Acoplado a câmara está o detetor, posicionado em um dado ângulo em relação ao feixe, e o copo de Faraday, formando um ângulo de 0 graus com o feixe.

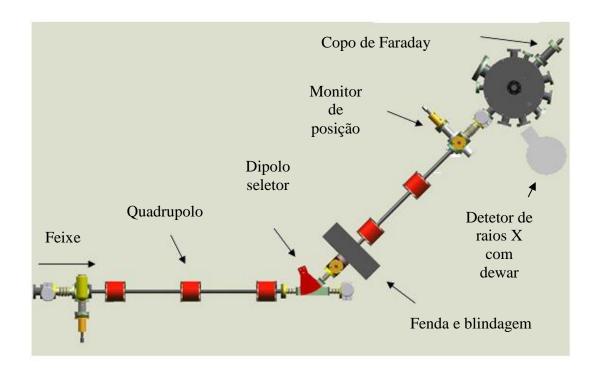


Figura 3.1: Esboço da linha de irradiação. O feixe de elétrons entra pelo lado esquerdo inferior da figura. Quando o dipolo seletor está magnetizado ele desvia o feixe para a linha de baixa energia, conduzindo-o até a câmara de irradiação, no canto superior direito.

A câmara de irradiação é de aço, sendo que sua parede próxima ao copo de Faraday está revestida internamente com alumínio, com o objetivo de reduzir a produção de *bremsstrahlung* pelos elétrons espalhados no alvo. Ela possui flanges que permitem colocar o detetor nas posições de 12, 30, 45, 60, 90 e 120 graus em relação ao feixe incidente e duas tampas distintas com suportes ora para o alvo e ora para as fontes de calibração, de modo que no momento da calibração do sistema de aquisição seja possível reproduzir, o mais próximo possível, a geometria do experimento durante a irradiação. A tampa da câmara com o suporte para alvos possui um monitor de posição. Com o auxílio de um dispositivo pneumático é possível colocar ou o alvo, ou o monitor de posição no centro da câmara, onde eles serão atingidos pelo feixe, ou então suspender ambos, deixando o centro da câmara livre. A figura 3.3 traz o suporte de alvos e de fontes de calibração em cada uma das tampas.



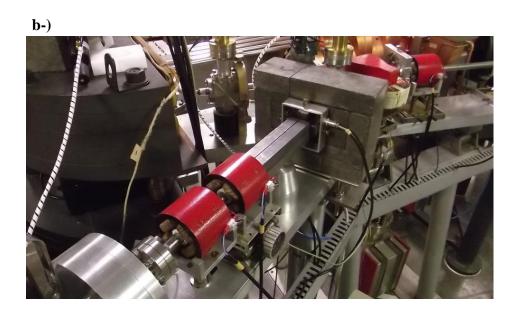
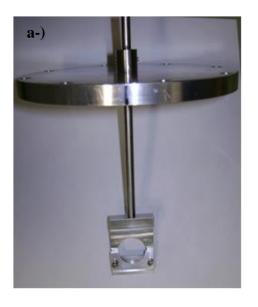


Figura 3.2: Linha de feixe de baixa energia do acelerador Microtron do IFUSP. a-) Visão geral desde o tripleto de quadrupolos até a câmara de irradiação. b-) Linha de baixa energia com os dois quadrupolos focalizadores logo antes da câmara de irradiação.



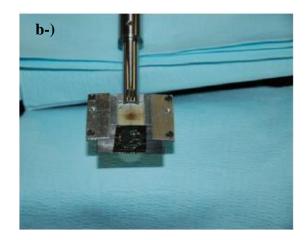


Figura 3.3: a-) Tampa da câmara de irradiação com o suporte para as fontes de calibração. b-) Suporte para alvos, em que se vê acima do alvo o view screen, que monitora o feixe, já bastante queimado.

O copo de Faraday feito de carbono colocado à 0 graus em relação ao feixe é usado para fazer a medida da corrente. A figura 3.4 traz um esquema de sua representação. Seu diâmetro externo é de 20 mm sendo que o diâmetro externo do cone interno é de 16 mm e seu comprimento é de 64,8 mm.

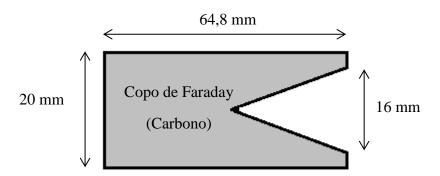


Figura 3.4: Esquema do copo de Faraday. Seu comprimento é de 64,8 mm, seu diâmetro é de 20 mm, sendo o diâmetro externo da forma cônica de 16 mm.

Quando o feixe atravessa o alvo ele diverge e alguns elétrons conseguem atingir as paredes internas da câmara gerando radiação de freamento. A cargo de reduzir essa radiação, além do revestimento interno com alumínio na região próxima ao copo de Faraday, foi instalada uma estrutura de carbono logo a frente deste, na entrada do flange da câmara. Com isso, os elétrons que antes atingiam as paredes passam agora a atingir o carbono, diminuindo a produção de *bremsstrahlung*, uma vez que a seção de choque de produção de *bremsstrahlung* é proporcional à Z^2 e o número atômico do carbono (Z = 6), é menor do que o do alumínio (Z = 13) e do ferro (Z = 26). As figuras 3.5 e 3.6 trazem um esquema e a reprodução de uma imagem, respectivamente, da estrutura de carbono que foi instalada na câmara.

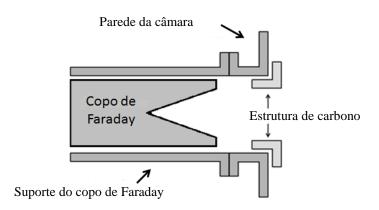


Figura 3.5: Esquema do flange onde está o copo de Faraday e a estrutura de carbono confeccionada com o objetivo de reduzir a produção de radiação de freamento.



Figura 3.6: Reprodução de uma imagem digital obtida de dentro da câmara da estrutura de carbono colocado no flange antes do copo de Faraday para reduzir a produção de *bremsstrahlung*.

Os espectros de energia obtidos das irradiações apresentam não só os picos de raios X característicos dos alvos, mas também um contínuo que se estende desde a região de baixa energia até a energia do feixe de elétrons. No experimento deste trabalho grande parte dessa radiação é gerada quando os elétrons do feixe são desviados para a linha de baixa energia, quando atravessam o alvo e quando atingem o copo de Faraday. Para barrar essa radiação foi usada uma blindagem de chumbo e uma blindagem de cobre em torno do detetor, sendo o objetivo desta última blindar o detetor dos raios X provenientes da fotoexcitação do chumbo utilizado na região externa. A figura 3.7 traz a blindagem de cobre e de chumbo, do experimento realizado com o alvo de tântalo e com o detetor de Si(Li).

Detetores e sistema de aquisição

O arranjo experimental utilizado para a deteção de raios X consiste de um detetor associado a um conjunto de módulos eletrônicos e a um microcomputador. Nos experimentos realizados foi usado um detetor de germânio hiper puro para as medidas com o alvo de ouro e um detetor de Si(Li) para o experimento realizado com o alvo de tântalo.

O detetor de germânio hiper puro usado foi um Ortec 1000 Series Hyperpure Germanium Low Energy Photon Spectrometer (ORTEC Advanced Measurements Technology, Oak Ridge, USA). As especificações do fornecedor são de que o diâmetro do cristal do detetor é 25 mm e sua espessura 10 mm, sendo a espessura da janela de berílio de 0,25 mm e a voltagem de trabalho de -1000 V. Medidas da espessura da camada morta deste detetor (35; 36) mostraram que ela apresenta uma espessura mais fina na região central do detetor, da ordem de 2 µm e uma espessura bem mais grossa nas extremidades, da ordem de 2,5 mm, o que compromete a deteção de raios X de baixa energia nessa região. Devido a essa característica peculiar, foi usado um colimador de cobre cilíndrico com 70 mm de comprimento e abertura de 10 mm alinhado com o eixo do cristal do detetor. Com esse colimador os fótons são direcionados para a região central do detetor onde a espessura da camada morta é pequena. A figura 3.8 traz uma imagem radiográfica do detetor obtida com um sistema de raios X e reprodução e uma imagem dele já com a blindagem de chumbo.



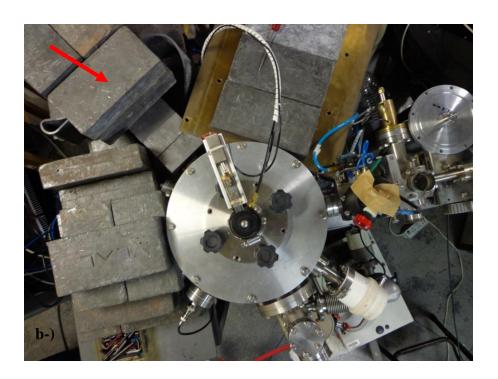


Figura 3.7: a-) Blindagem de cobre do detetor de Si(Li) para barrar os raios X provenientes da fotoexcitação do chumbo. b-) Blindagem de chumbo. As setas vermelhas em a-) e b-) indicam a posição do detetor de Si(Li).



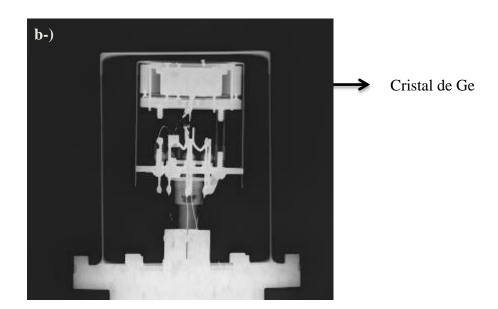


Figura 3.8: a-) Reprodução de uma imagem digital do detetor de HPGe já posicionado a 120° em relação ai feixe e com a blindagem de chumbo. b-) Imagem radiográfica da parte superior do detetor HPGe obtida com um sistema de raios X.

O detetor de Si(Li) empregado foi um Ortec modelo SLP 10180P com voltagem de trabalho de -1200 V. A figura 3.9 a-) traz a reprodução de uma imagem digital do detetor de Si(Li) e em b-) uma imagem obtida com um sistema de raios X para esse detetor e que foi usada para obter as primeiras estimativas para o seu diâmetro e sua espessura, que foram de aproximadamente 9,9 mm e 4,9 mm, respectivamente. Com a calibração de eficiência

apresentada no capitulo 5, foi possível obter estimativas mais precisas dessas medidas, além de fornecer também a estimativa da espessura do contato frontal de ouro, $0.0045(25) \, \mu m$. A espessura da janela de berílio foi estimada por meio dos espectros dos alvos de Ta e Ge obtidos com esse detetor, sendo o valor obtido igual a aproximadamente $24 \, \mu m$. O procedimento adotado para a obtenção destes valores será detalhado no capítulo 5.



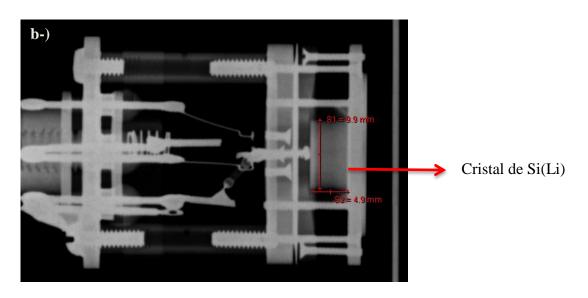


Figura 3.9: a-) Reprodução de uma imagem digital do detetor de Si(Li). b-) Imagem radiográfica da parte superior do detetor de Si(Li) obtida com um sistema de raios X.

Na eletrônica tradicional, durante o processo de aquisição o sinal que sai do detetor é enviado para um pré-amplificador e na sequência para um amplificador antes de chegar ao conversor analógico digital (ADC), onde é feita a histogramação dos sinais. O histograma na forma de um arquivo é gerado por meio de um computador associado a um software. Nos experimentos realizados, entretanto, essa eletrônica foi substituída por um espectrômetro digital da ORTEC (DSPEC), que integra e diferencia numericamente o pulso do préamplificador, digitalizado em alta frequência (10 MHz). O controle da aquisição dos espectros bem como a sua gravação em arquivos com extensão CHN foram feitos com o software MAESTRO (37).

Alvos: Confecção e espessuras

Os alvos utilizados em ambos os experimentos foram alvos auto-sustentáveis de Ta e Au depositados sobre filmes finos de carbono. Esses alvos foram confeccionados no Laboratório de Alvos do Pelletron utilizando a técnica de deposição física de vapor (PVD) (38).

O preparo dos alvos pode ser dividido em três etapas, sendo elas a evaporação do carbono, que será usado como substrato dos alvos, em películas sobre suportes de vidro, o descolamento destes filmes, por meio do derretimento dessas películas, e sua deposição nas molduras de carbono e, por fim, a evaporação do elemento escolhido em uma evaporadora a vácuo. Os substratos de carbono dos alvos deste trabalho apresentam espessura na faixa de 10 a $25~\mu g/cm^2$.

O processo de evaporação consiste em se aquecer um cadinho contendo o material de que será constituído o alvo a temperaturas superiores ao seu ponto de ebulição, de modo que se tenham condições adequadas para que as moléculas do material aquecido formem uma atmosfera e se condensem sobre o *backing* de carbono, confeccionado previamente.

Cuidados devem ser tomados para que não haja contaminação dos alvos com outros materiais, principalmente no caso do tântalo que apresenta alta temperatura de ebulição. A distância do cadinho de aquecimento do elemento a ser evaporado até a moldura com os substratos de carbono foi mantida fixa durante todas as evaporações. Como estes alvos são muito finos eles costumam romper com facilidade, assim é sempre confeccionado mais de um

alvo nas mesmas condições, para cada elemento, de modo que eles tenham espessuras semelhantes.

As dimensões dos suportes dos substratos de carbono e dos alvos finos são mostradas na figura 3.10. Com o intuito de minimizar os eventos de fotoionização no alvo ele foi construído com um diâmetro menor do que as dimensões do furo do suporte, mas que permitisse a completa recepção do feixe de elétrons, que apresenta um diâmetro médio de 3 mm. A figura 3.11 mostra alguns dos alvos de tântalo produzidos, sendo que um deles foi usado na irradiação deste trabalho.

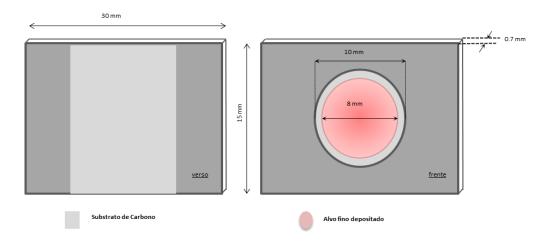


Figura 3.10: Esboço das partes dianteira e traseira do suporte de fibra de carbono com o substrato e o alvo depositado.

As espessuras dos dois alvos utilizados neste trabalho foram obtidas por meios diferentes. A do alvo de tântalo foi obtida por meio do método de retro-espalhamento de Rutherford (RBS) e a espessura do alvo de ouro, pelo ajuste do *bremsstrahlung* dos espectros deste elemento.

A descrição detalhada da técnica de RBS empregada para as medidas de espessura de alvos finos está disponível no sítio do Laboratório de Materiais de Feixes Iônicos (LAMFI) (39) onde as medidas de espessura dos alvos de tântalo foram realizadas.



Figura 3.11: Alvos finos de tântalo em substratos de fibra de carbono e depositados em molduras de carbono.

O alvo de tântalo utilizado neste trabalho quebrou logo após o experimento, assim, para a determinação da sua espessura foram usados os outros três alvos que haviam sido evaporados sobre as mesmas condições. Esses alvos foram irradiados com um feixe de He⁺ de 2,2 MeV do Acelerador Tandem do LAMFI. Os espectros de íons retro-espalhados foram obtidos por meio de um detetor de barreira de superfície comumente empregado nas medidas. A análise dos espectros RBS foi feita com o software SIMNRA (40). A tabela 3.1 apresenta as espessuras encontradas para os três alvos de tântalo analisados e a figura 3.12 um dos espectros de RBS analisado com o software SIMNRA para alvo de Ta.

Tabela 3.1: Resultado das medidas das espessuras dos alvos de tântalo obtidas com a técnica de RBS.

Alvo	Espessura (μg/cm ²)
Tântalo 1	5,86(23)
Tântalo 3	5,70(23)
Tântalo 4	5.49(22)

A espessura considerada neste trabalho foi o valor médio dessas três medidas, que resultou em:

$$5.7(2) \mu g/cm^2 = 1.89(8)10^{16} \text{ átomos/cm}^2$$

A espessura do alvo de ouro foi obtida por meio do ajuste do *bremsstrahlung* dos espectros obtidos com a irradiação deste alvo (14; 41), sendo o valor obtido de:

$$8.0(1.0) \mu g/cm^2 = 2.45(12)10^{16} \text{ átomos/cm}^2$$
 3.2

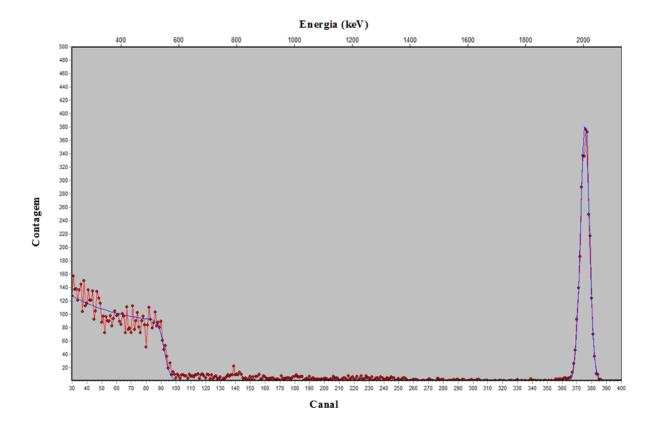


Figura 3.12: Espectro de RBS para o alvo de Ta analisado com o software SIMNRA.

3.2 Procedimento Experimental

Experimento com o alvo de ouro

A deteção dos raios X do ouro foi feita com o detetor HPGe colocado a 120 graus em relação à direção do feixe incidente. O detetor não foi colocado no vácuo, de modo que os raios X que chegaram até ele passaram pela janela de Al do flange.

As irradiações foram feitas para as energias de 50, 55, 60, 65, 70, 80, 90 e 100 keV, sendo que em cada uma delas se tomou dois espectros de 600 s cada. Durante as medições a corrente variou de 100 a 550 nA. O tempo morto do sistema de espectroscopia de fótons foi mantido inferior a 5% em todas as irradiações.

Experimento com o alvo de Tântalo

O alvo de tântalo foi posicionado no centro da câmara de irradiação com auxílio do suporte apresentado na figura 3.3. O detetor de Si(Li) foi colocado no vácuo a uma posição de 120 graus em relação ao feixe incidente. Com esse arranjo, os fótons conseguem chegar ao detetor sem atravessar o ar e a janela de 50 µm de alumínio do flange, que exerce apreciável atenuação dos raios X de baixa energia.

Antes de cada irradiação, a focalização do feixe no centro da câmara foi verificada com o monitor de posição.

As irradiações foram feitas para as energias de 50, 60, 70, 75, 80, 85, 90 e 100 keV sendo que a cada energia se tomaram duas medições de 600 s cada. A corrente durante essas medições variou de 3,5 até 7 nA. O tempo morto do sistema de espectroscopia de fótons em todas as irradiações foi mantido inferior a 10% do tempo de contagem.

Alvos de Ge também foram irradiados com o detetor de Si(Li), sob as mesmas condições descritas acima para o alvo de Ta. Os espectros obtidos nessas irradiações foram usados neste trabalho para a estimativa da espessura da janela de berílio do detetor de Si(Li), conforme será descrito na seção 5.2.

Fator de coleção de carga

Para o cálculo da seção de choque de produção de raios X é necessário conhecer o número de elétrons que incide no alvo durante a irradiação. A medida de corrente durante o experimento é feita no copo de Faraday, entretanto o feixe que incide no alvo não é o mesmo que incide no copo, uma vez que ele sofre uma divergência ao passar por este e seu substrato. A perda de corrente foi determinada a partir de uma sequência de medições com e sem o alvo, mantendo-se a corrente o mais estável possível. Com tais medidas foi possível determinar a fração do feixe que chega ao copo de Faraday e fazer a devida correção para obter a corrente de elétrons que incide no alvo.

Capítulo 4

Ajuste dos picos de raios X

Para calcular a seção de choque de produção de uma transição de raios X é necessário o conhecimento preciso da intensidade da linha emitida. Para tanto, os picos correspondentes no espectro de energia devem ser ajustados por funções que levem em conta a maior quantidade possível dos fenômenos físicos envolvidos na emissão da linha em questão. Neste capítulo será apresentado o procedimento adotado no ajuste dos picos de raios X usando a função Voigt.

4.1 Descrição dos picos característicos

Introdução

Quando se trabalha com detetores de Si(Li) um dos programas computacionais mais usados para o ajuste de picos de raios X é o Analytical x-ray Analysis by Iterative Least-Squares (AXIL) (42; 43). O programa foi desenvolvido inicialmente na Bélgica, na Universidade de Antwerp e está escrito em Fortran IV. Seu algoritmo usa para picos de raios X uma forma gaussiana em função do canal x_i do espectro:

$$G_i(k,m) = \exp\left[-\frac{1}{2} \frac{\left(C_1 + C_2 E_{k,m} - x_i\right)^2}{C_3 + C_4 E_{k,m}}\right]$$
 4.1

em que $E_{k,m}$ é a energia do raio X (k,m) e os parâmetros C_i expressam a relação entre a posição $\mu_{k,m}$ do pico e a sua correspondente energia, e entre o desvio padrão $\sigma_{k,m}$ do pico e a energia, por meio das expressões:

$$\mu_{k,m} = C_1 + C_2 E_{k,m} \tag{4.2}$$

$$\sigma^2_{k,m} = C_3 + C_4 E_{k,m} 4.3$$

sendo x_i o número do canal. O ajuste de um multipleto é feito com a expressão:

$$Y_i = \sum_{j=1}^{BP} B_j x_i^{j-1} + \sum_{k=1}^{NG} H_k \sum_{m=1}^{NP(k)} R_{km} G_i(k, m)$$
 4.4

A primeira soma ajusta a componente contínua do espectro por meio de um polinômio, onde BP é o número de parâmetros do fundo e B_j são os coeficientes do polinômio. A segunda soma ajusta os grupos de picos na região de interesse, sendo NG o número de grupos existentes e H_k um parâmetro de amplitude do grupo, e por fim a terceira soma ajusta os picos em cada grupo, sendo NP o número de picos existentes, R_{km} a intensidade relativa da linha m no grupo k e $G_i(k,m)$ a gaussiana da expressão 4.1. A rotina de ajuste usa o método dos mínimos quadrados baseado no algoritmo de Marquardt, sendo que o mínimo é obtido para os parâmetros C_1, C_2, C_3 e C_4 além dos parâmetros de amplitude da expressão 4.4 e dos parâmetros da componente contínua do espectro.

Picos de raios X obtidos com detetores semicondutores, entretanto, são descritos pela função Voigt, que corresponde à convolução de uma lorentziana com uma gaussiana, conforme descrito no capítulo 2. Linhas de raios X de elementos com baixo número atômico e que foram obtidas com detetores semicondutores podem ser aproximadas com boa precisão por uma função gaussiana (21). Para os elementos de alto número atômico, porém, os picos de

raios X apresentam caudas muito mais pronunciadas de ambos os lados. Quando esse pico é ajustado com uma forma gaussiana, o ajuste resulta em um qui quadrado alto, inviabilizando o uso dos parâmetros estimados e evidenciado a necessidade de se usar a função Voigt para essa situação.

A grande dificuldade associada ao perfil Voigt é que a expressão analítica que a descreve envolve uma função especial, cuja representação integral pode consumir muito tempo de cálculo. Devido a isso, uma aproximação comum em espectroscopia é utilizar a função pseudo-Voigt, que corresponde à combinação linear de uma gaussiana com uma lorentiziana. Todavia, essa função pode introduzir erros importantes em alguns casos. Limandri (44) apresenta o ajuste de um espectro experimental da linha M_{β} do urânio com a função Voigt e com a função pseudo-Voigt e mostra que, embora não haja diferenças significativas no qui quadrado do ajuste, os parâmetros de largura obtidos com a pseudo-Voigt não são corretos.

Muitas tentativas têm sido feitas com o intuito de encontrar uma expressão para a função Voigt. Uma delas foi feita por Kielkopf (45) e os procedimentos computacionais existentes foram recompilados por Drayson (46). Esse algoritmo foi usado por Dariusz et al. (21) para modificar o código AXIL tornando-o mais adequado para o ajuste de picos de raios X.

Neste trabalho a função Voigt será obtida de maneira similar ao que fez Limandri (44; 47) em sua tese de doutoramento, conforme está descrito na seção seguinte.

Implementação do perfil Voigt

Conforme já dito anteriormente, os picos de raios X obtidos com detetores semicondutores são descritos pela função Voigt que corresponde a convolução da função de Lorentz com a função gaussiana. Escrevendo todas essas funções: gaussiana, Voigt e lorentziana, normalizadas de modo que sua integral ao longo de todo o eixo x seja igual a um,

$$G(x) = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi \gamma_G}} \exp\left[-\ln 2\left(\frac{x}{\gamma_G}\right)^2\right]$$
 4.5

$$L(x) = \frac{1}{\pi \gamma_L} \frac{\gamma_L^2}{(x^2 + \gamma_L^2)}$$
 4.6

$$V(x) = \int_{-\infty}^{\infty} G(x')L(x - x')dx' = \frac{\sqrt{\ln 2} \gamma_L}{\pi^{3/2} \gamma_G} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp\left[-\ln 2\left(\frac{x'}{\gamma_G}\right)^2\right]}{(x - x')^2 + \gamma_L^2} dx' \quad 4.7$$

em que os parâmetros de largura γ_G e γ_L correspondem a metade da largura a meia altura (FWHM/2) e metade da largura natural, respectivamente.

Definindo um parâmetro a e duas variáveis b e y, todos adimensionais:

$$a = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\gamma_G} \gamma_L$$

$$y = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\gamma_G} x'$$

$$b = \frac{\sqrt{\ln 2}}{\gamma_G} x$$

a expressão 4.7 pode ser escrita como:

$$V(a,b) = \frac{a^2}{\gamma_L \pi^{3/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-y^2)}{(y-b)^2 + a^2} dy$$
 4.8

Neste caso, o parâmetro adimensional *a* fornece informações sobre a função dominante na convolução. Quando *a* tende a zero a contribuição gaussiana se mostra mais importante.

Procedendo da mesma maneira que em (44), derivando 4.8 se obtém a equação diferencial:

$$\frac{d^2V(a,b)}{db^2} + 4b\frac{dV(a,b)}{db} + [4b^2 + 2(2a^2 + 1)]V(a,b) = \frac{4a^2}{\pi\gamma_I}$$
 4.9

A solução desta equação diferencial encontrada por Roston e Obaid (48) é dada por:

$$V(a,b) = \frac{a}{\gamma_L \sqrt{\pi}} \left\{ e^{a^2 + b^2} \operatorname{erfc}(a) \cos(2ab) - \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-b^2} \left[\cos(2ab) \int_0^b e^{u^2} \sin(2au) du - \sin(2ab) \int_0^b e^{u^2} \cos(2au) du \right] \right\}$$
4.10

sendo que $\operatorname{erfc}(a)$ corresponde a função erro complementar calculada no ponto a.

As integrais da expressão 4.10 podem ser escritas em termos da função erro com argumento complexo, o que resulta em:

$$V(a,b) = \frac{ae^{a^2-b^2}}{\gamma_L\sqrt{\pi}} \left\{ \operatorname{erfc}(a)\cos(2ab) + \cos(2ab) \left[\operatorname{erf}(a) - Re\left(\operatorname{erf}(a+ib)\right) \right] + \sin(2ab) \left[\operatorname{Im}\left(\operatorname{erf}(a+ib)\right) \right] \right\}$$

$$4.11$$

Em seu trabalho, Limandri (44; 47) expandiu a função erro com argumentos complexos em uma série de potências. Aqui seguiremos uma estratégia alternativa. Será mantida a função erro com argumentos complexos, fazendo-se algumas simplificações na expressão 4.11.

Lembrando que $\operatorname{erfc}(a) = 1 - \operatorname{erf}(a)$, chega-se em:

$$V(a,b) = \frac{ae^{a^2-b^2}}{\gamma_L\sqrt{\pi}} \left\{ \cos(2ab) \left(1 - Re(\operatorname{erf}(a+ib)) \right) + \sin(2ab) \left(Im(\operatorname{erf}(a+ib)) \right) \right\}$$

$$4.12$$

A expressão 4.12 foi escrita no programa Mathematica 9.1 para ajustar os picos de raios X utilizados neste trabalho.

Algumas mudanças na expressão 4.12 foram ainda realizadas a fim de: introduzir o degrau do lado esquerdo dos picos de raios X, bastante proeminente principalmente em picos muito intensos; incluir a componente contínua do espectro, uma vez que os espectros são soma dos picos característicos com um fundo contínuo e a diminuir a correlação, de quase uma unidade, entre os parâmetros a e b.

O escape de fotoelétrons e de fótons do volume ativo do detetor gera um degrau do lado de baixa energia do pico (49). Este efeito foi descrito por uma função teta de Heaviside convolucionada com uma gaussiana:

$$D(x, x_0) = h \operatorname{erfc} \left[2\sqrt{\ln(2)} \left(\frac{x - x_0}{\gamma_g} \right)^2 \right]$$
 4.13

sendo γ_g a largura a meia altura completa da gaussiana, que é uma das funções do programa Hypermet (50). Um polinômio de até segundo grau foi usado para descrever o fundo dos espectros. A dependência em x do parâmetro b passou a ser em $x-x_0$, com x_0 sendo o centróide do pico e na expressão 4.12 substituiu-se a, b e y pelas suas respectivas definições.

Além dessas alterações, o parâmetro γ_L que correspondia à metade da largura natural foi substituído pela largura natural completa γ_l . A metade da largura a meia altura da gaussiana γ_G foi substituído pela largura a meia altura completa γ_g e esta por sua vez substituída pela relação:

$$\gamma_g^2 = \mu + \nu(x - x_C) 4.14$$

que é análoga a expressão 4.3 usada no programa AXIL para a variância da gaussiana ajustada, exceto pelo termo x_C que é um valor fixo para cada ajuste e corresponde a posição central da região de interesse. Esse termo foi introduzido com o intuito de diminuir a correlação entre os parâmetros de ajuste μ e ν . Introduzir a expressão 4.14 na expressão 4.12 tem a vantagem de se ajustar desvios padrões diferentes para picos diferentes, que é a situação real dos espectros.

Ao final, os parâmetros de ajuste foram os dois parâmetros μ e ν que descrevem a largura a meia altura da gaussiana, o parâmetro γ_l , que corresponde à largura natural da lorentziana, x_0 que corresponde ao centróide do pico, dois ou três parâmetros de fundo, a depender da escolha do grau do polinômio, o parâmetro h associado à altura do degrau a esquerda do pico e, finalmente, o parâmetro de interesse, a amplitude do pico ajustado.

4.2 Ajustes de espectros de raios X característicos com a função Voigt e com a Gaussiana - Comparação

Conforme descrito na introdução deste capítulo, os primeiros programas criados para ajuste de picos de raios X obtidos com detetores semicondutores usavam formas gaussianas, independente dos picos de raios X serem das linhas K ou L, M, N, e independente do número atômico do elemento. A cargo de ilustrar as diferenças entre uma e outra, será apresentado o perfil Voigt nas situações em que a largura da gaussiana é predominante e quando a largura da Lorentziana passa a exercer influência significativa.

A figura 4.1 traz o perfil Voigt, o gaussiano e o de Lorentz quando a razão entre a largura natural da lorentziana e o desvio padrão da gaussiana é de 1/100. Esse valor foi escolhido porque ele é uma boa aproximação para linhas de raios X de baixo e médio número atômico obtidos com detetores com resolução em torno de 170 eV em 5,9 keV (21). Como se pode ver, a função Voigt e a Gaussiana são quase indistinguíveis dentro de um intervalo de

1,27 FWHM em torno do pico (3σ) , sendo que na região do pico as duas funções são praticamente idênticas.

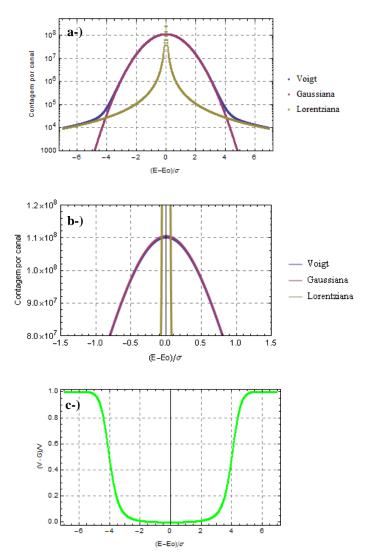


Figura 4.1: a) Gráfico das funções gaussiana, Lorentz e Voigt para $\Gamma/\sigma=0.01$ em escala logarítmica (21), sendo Γ a largura natural da lorentziana e σ o desvio padrão da gaussiana. b) Mesmo que em a) mas em escala linear na região próxima ao pico. c) Diferença relativa entre a gaussiana e o perfil Voigt.

Para situações como essa, a função gaussiana pode ser usada com boa aproximação para ajustar o pico de raio X, mesmo para os casos com grande número de contagens no pico $(\sim 10^7)$ (21), uma vez que a diferença só é importante na região onde pode-se ignorar o número total de contagens.

A figura 4.2 traz a mesma comparação, mas desta vez para $\Gamma/\sigma=1/10$, que é um valor representativo quando se tem picos de raios X de elementos de alto número atômico. Nesta situação a diferença entre a função gaussiana e a função de Voigt não pode ser mais ignorada, como pode ser visto na figura 4.2. Ajustar um pico de raio X com uma forma gaussiana neste caso levaria a uma subestimativa da área do pico , além de um χ^2 alto.

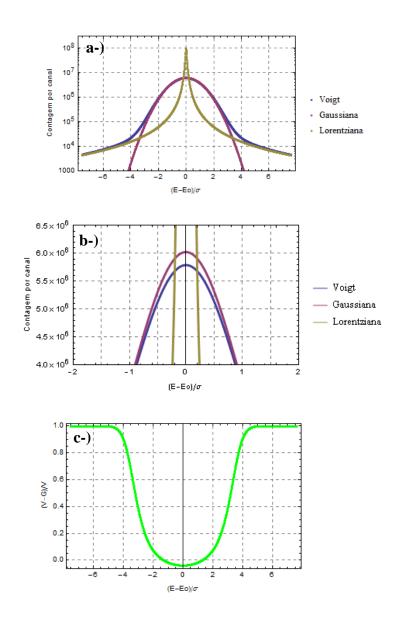


Figura 4.2: a-) Gráfico das funções gaussiana, de Lorentz e Voigt para $\Gamma/\sigma=1/10$ em escala logarítmica (21). b-) Mesmo que em a-) mas em escala linear na região próxima ao pico. c-) Diferença relativa entre a gaussiana e o perfil Voigt. Note a diferença na região central, pequena em valor relativo, mas importante em valor absoluto como destacado na figura b.

4.3 Ajuste dos picos de raios X das fontes de calibração

Considerações experimentais e desenvolvimento do método

Para avaliar o algoritmo da função Voigt com a expressão 4.12 no programa Mathematica 9.1, esse perfil foi usado para ajustar os picos de raios X K_{α} das fontes radioativas de calibração ¹⁵²Eu, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs e ²⁰⁷Bi. Os espectros foram obtidos com um detetor de Si(Li) com resolução de aproximadamente 252 eV na energia de 5,9 keV. O tempo de aquisição foi escolhido a partir da atividade da fonte, de modo que a incerteza na área do pico de interesse fosse da ordem de 2%.

Os ajustes foram realizados usando-se a função de ajuste não linear nos parâmetros do programa Mathematica 9.1. Para tanto é preciso fornecer boas estimativas dos parâmetros a serem calculados. Usou-se como *estimativa* da largura natural da lorentziana os valores experimentais tabelados por Krause et al. (51). Tanto as posições quanto as amplitudes foram deixadas livres nos ajustes realizados.

Resultados

As figuras 4.3, 4.4, 4.5 e 4.6 trazem os resultados dos ajustes do perfil Voigt aos picos de raios X K_{α} dos espectros de energia das fontes radioativas. Para avaliar a qualidade do ajuste, usou-se o valor do qui quadrado reduzido bem como o valor estimado para a largura natural da lorentziana, junto à sua respectiva incerteza, já que esse é o parâmetro mais crítico do ajuste, uma vez que ele costuma ser bem menor do que a largura a meia altura da gaussiana e apresenta uma forte correlação com esta.

Na tabela 4.1 é apresentado o valor do qui quadrado reduzido para cada ajuste, bem como os valores da largura natural da lorentziana ajustados e o tabelado por Krause et al. (51).

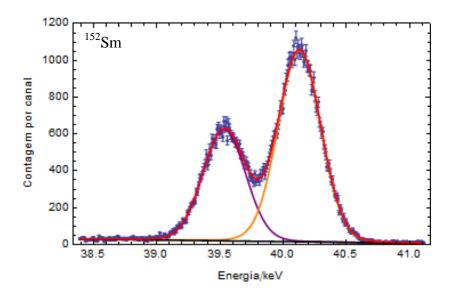


Figura 4.3: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K_{\alpha 1}$ e $K_{\alpha 2}$ do ¹⁵²Sm que seguem o decaimento do ¹⁵²Eu com o perfil Voigt. A linha roxa (à esquerda) corresponde ao pico $K_{\alpha 2}$, a laranja (à direita) a linha $K_{\alpha 1}$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eV/canal.

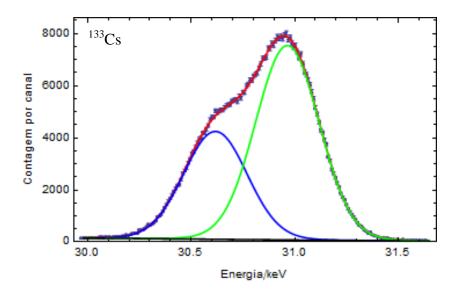


Figura 4.4: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K_{\alpha 1}$ e $K_{\alpha 2}$ do ¹³³Cs que seguem o decaimento do ¹³³Ba com o perfil Voigt. A linha azul (à esquerda) corresponde ao pico $K_{\alpha 2}$, a verde (à direita) a linha $K_{\alpha 1}$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eV/canal.

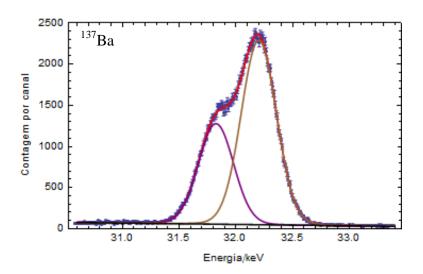


Figura 4.5: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K_{\alpha 1}$ e $K_{\alpha 2}$ do ¹³⁷Ba que seguem o decaimento do ¹³⁷Cs com o perfil Voigt. A linha roxa (à esquerda) corresponde ao pico $K_{\alpha 2}$, a marrom (à direita) a linha $K_{\alpha 1}$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eV/canal.

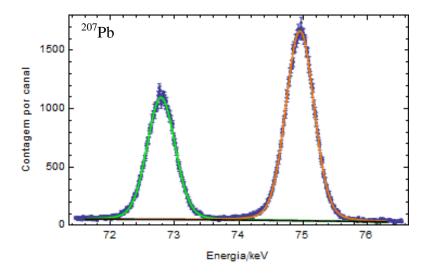


Figura 4.6: Ajuste dos parâmetros dos picos devido às transições $K_{\alpha 1}$ e $K_{\alpha 2}$ do 207 Pb que seguem o decaimento do 207 Bi com o perfil Voigt. A linha verde (à esquerda) corresponde ao pico $K_{\alpha 2}$, a laranja (à direita) a linha $K_{\alpha 1}$, a preta à componente contínua do espectro e a linha vermelha à soma de todas as contribuições. A dispersão em energia é de aproximadamente 8,8 eV/canal.

Tabela 4.1: Resultados dos ajustes dos parâmetros dos picos de raios X K_{α} com o perfil Voigt para as fontes apresentadas na primeira coluna. As demais colunas apresentam, em ordem: o valor do qui quadrado reduzido; a probabilidade do qui quadrado ser excedido; o valor estimado para a largura natural da lorentziana e o valor adotado deste último, obtido da referência (51), que apresenta incerteza da ordem de 10%, conforme citado na própria referência.

Descrição	χ^2_{red}	P	γ_l estimado	γ_l tabelado
¹⁵² Eu	1,12	6,8%	0,019(5)	0,023
¹³³ Ba	1,19	3,7%	0,011(3)	0,015
¹³⁷ Cs	1,06	20,61%	0,013(3)	0,017
207 Bi	1,09	5,2%	0,071(7)	0,065

4.4 Discussão

Foi apresentada uma expressão para a função Voigt a partir da função erro com argumentos complexos que foi usada junto com a função de ajuste não linear nos parâmetros do programa Mathematica 9.1. Os valores ajustados para a largura natural da lorentiziana mostraram-se compatíveis com os valores adotados na literatura, levando em conta a incerteza de cerca de 10% (51) destes últimos, para os picos ajustados. No caso do espectro de ¹³³Ba, o valor do qui quadrado reduzido está no limite do que se considera aceitável para um bom ajuste, com uma probabilidade de ser excedido de 3,7%. Este pico, entretanto, apresenta cerca de três vezes mais contagens do que os demais, de modo que uma hipótese é o fato dos fenômenos não levados em conta no perfil Voigt e que são mais proeminentes no caso de maior estatística estarem conduzindo a esse resultado. Um exemplo desses fenômenos é o espalhamento a baixo ângulo, tanto nos arredores do detetor quando da fonte, que dá origem a uma cauda, muitas vezes ajustada com uma forma exponencial (49) e que será tanto mais explícita quanto maior for o número de contagens no pico.

Apresentou-se um estudo avaliando as regiões onde a função gaussiana pode ser usada para substituir a função de Voigt com boa aproximação, ficando claro que para a razão Γ/σ da ordem de 0,1 a função de Voigt não pode ser substituída por uma forma gaussiana, enquanto que para valores da ordem de 0,01 pode-se fazer essa aproximação com boa

precisão. Para situações intermediárias, é necessária uma avaliação particular do caso, verificando a influência no qui quadrado absoluto quando se aumenta um parâmetro a ser ajustado.

A função Voigt apresentada foi usada para calcular as áreas dos picos de raios X usados na calibração de eficiência. Para as áreas necessárias no cálculo das seções de choque das linhas L do Ta e do Au não se usou a função Voigt, uma vez que um teste, detalhado nos capítulos 6 e 7, mostrou que o ajuste dos picos naquela região pode ser feito com a forma gaussiana com boa aproximação.

Capítulo 5

Parâmetros experimentais

Para descrever com precisão um espectro de emissão de raios X é preciso conhecer não só os parâmetros atômicos envolvidos, mas também a calibração completa do sistema de deteção. Este capítulo tem por objetivo detalhar os procedimentos de calibração de energia, largura e eficiência do sistema de espectroscopia. Para tanto ele está dividido em três partes: a primeira aborda as calibrações de energia e largura, enquanto a segunda apresenta a calibração de eficiência, tanto para o detetor de Si(Li) quanto para o de HPGe usados neste trabalho, e a última apresenta a calibração da função resposta.

5.1 Calibração de energia e da dispersão da gaussiana que descreve os picos

Introdução

Calibração de energia

Em espectroscopia de raios X e gama os espectros são obtidos sob a forma de histogramas multicanais. A calibração de energia consiste em se atribuir uma energia para cada canal do histograma, o que é importante para a identificação dos picos presentes no espectro a ser analisado, bem como para a determinação da energia do "tip" do bremsstrahlug dos elétrons, que permite determinar a energia do feixe em cada espectro.

Para intervalos de energia da ordem de alguns keVs, cada canal *C* do histograma se relaciona linearmente com a energia *E* dos fótons detetados. Entretanto, em alguns casos, para faixas que vão de keVs até centenas de keVs a dependência do canal do histograma com a energia é melhor descrita por meio de uma função do segundo grau:

$$E = \alpha + \beta C + \gamma C^2$$
 5.1

em que o parâmetro α está relacionado à voltagem da linha de base do amplificador de espectroscopia, enquanto que o parâmetro β depende do ganho do amplificador utilizado durante a aquisição dos dados. O parâmetro γ é introduzido para dar conta, em princípio, da não linearidade dos elementos do circuito: pré-amplificador e DSPEC.

Calibração da dispersão da gaussiana que descreve os picos

Os picos de raios gama obtidos com o detetor semicondutor utilizado são razoavelmente bem descritos por uma forma gaussiana (22):

$$G(E) = \frac{A}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left[\frac{-(E - E_o)^2}{2\sigma^2}\right]$$
 5.2

em que A corresponde a amplitude, σ a dispersão e E_0 o centróide do pico.

A dispersão da gaussiana relaciona-se com sua largura a meia altura FWHM por meio da expressão: FWHM = $2\sqrt{2 \ln 2} \ \sigma$, e esta, por sua vez, está convencionalmente relacionada com a resolução do detetor na correspondente faixa de energia. Assim o conhecimento da dispersão dos picos obtidos com o detetor permite a caracterização da resolução do mesmo na região analisada.

A dispersão da gaussiana que descreve a forma dos picos obedece a relação (52):

$$\sigma(E)^2 = n^2 + \varepsilon_0 FE \tag{5.3}$$

sendo que o parâmetro n^2 está relacionado a ruídos estatísticos associados ao processo de amplificação, F é o fator de Fano, ε_o é a energia média necessária para a formação de um par elétron-buraco no cristal semicondutor (53; 54) e E é a energia característica da linha de emissão considerada. O fator de Fano está relacionado às flutuações de carga medidas pelo detetor para uma mesma energia (52). Em algumas situações, entretanto, pode ser necessário introduzir mais um termo na expressão 5.3, com uma dependência quadrática na energia, para dar conta das variações que podem existir no ganho e tensão de base dos circuitos eletrônicos do sistema de espectroscopia entre uma medida e outra.

Condições experimentais

A energia e a largura foram calibradas usando-se os picos de raios gama das fontes radioativas de calibração de ²⁴¹Am, ⁵⁷Co, e ¹³³Ba apresentados na tabela 5.1. Essas fontes foram posicionadas dentro da câmara de irradiação com auxílio do suporte de fontes ilustrado na figura 3.3. O tempo de medida foi escolhido de acordo com a atividade da fonte, de modo a obter picos com incerteza relativa na área da ordem de 2%. Os picos selecionados foram ajustados com uma forma gaussiana utilizando o Programa Mathematica 9.1, o que permitiu obter a posição do centróide bem como a dispersão do pico de interesse.

Essa metodologia foi utilizada tanto para calibração do detetor de Si(Li) quanto para o detetor de HPGe.

Desenvolvimento do método

Com as energias dos picos obtidas da base de dados Laboratoire National Henri Becquerel do Bureau Internacional de Pesos e Medidas (55) e a posição dos centróides obtidas pelo ajuste da gaussiana, a energia dos espectros foi calibrada de acordo com a expressão 5.1.

Um ajuste inicial foi feito sem levar em conta a incerteza na variável independente. Com as estimativas dos parâmetros α , β e γ obtidos desse ajuste, a incerteza na variável independente foi transferida para a incerteza na variável dependente e um novo ajuste foi feito.

A incerteza do ganho do amplificador foi obtida por meio de uma estimativa não tendenciosa baseada na soma dos quadrados dos resíduos dos valores ajustados, e também foi levada em conta no ajuste. Para tanto se supôs que cada canal apresenta uma incerteza que está relacionada ao ganho, sendo ela dada pelo valor do canal multiplicado pela incerteza do ganho. Impondo a condição de que o qui quadrado do ajuste deve ser igual ao correspondente número de graus de liberdade, chega-se em uma equação cuja única incógnita é a incerteza do ganho e com isso é possível obter sua estimativa. Os valores obtidos foram de σ_G = 0,00255 eV/canal para o detetor de Si(Li) e de 0,00308 eV/canal para o detetor de HPGe. Por fim, um último ajuste foi feito levando em conta esse valor estimado para a incerteza do ganho.

Para a calibração da dispersão dos detetores usou-se procedimentos distintos para o detetor de Si(Li) e de HPGe. Para o detetor de Si(Li) foi ajustado aos pontos experimentais a expressão 5.3. Um ajuste inicial foi feito sem a incerteza na variável independente e os parâmetros estimados foram usados em novos ajustes levando em conta essa incerteza. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,75 com probabilidade de ser excedido de 59%.

No caso do detetor de HPGe o ajuste da dispersão com a expressão 5.3 não passou no teste do qui quadrado, assim foi ajustado uma função do segundo grau na energia. Um teste z foi realizado para avaliar a hipótese de que o coeficiente que acompanha o termo quadrático fosse compatível com zero e a hipótese foi rejeitada, evidenciando a necessidade de uma função de maior ordem. O qui quadrado do ajuste foi de 1,65 com probabilidade de ser excedido de 17%.

A incerteza dos resíduos foi obtida por meio da matriz chapéu H (29), que permite avaliar a influência de cada dado y_i no valor ajustado \hat{y}_i , para cada x_i , e é definida como:

$$H = X(X^t X)^{-1} X^t 5.4$$

em que X corresponde a matriz de planejamento do ajuste.

Dessa forma os resíduos podem ser escritos como:

$$y - \hat{y} = [I_N - H]y \tag{5.5}$$

sendo que y corresponde a matriz coluna dos dados experimentais, \hat{y} à matriz coluna dos valores ajustados e I_N à matriz identidade de ordem N. Lembrando que $\vec{\hat{y}} = X\hat{\vec{a}} + \vec{e}$, em que $\hat{\vec{a}}$ é a matriz coluna dos parâmetros estimados e \vec{e} o vetor coluna dos erros, com uma manipulação algébrica chega-se em:

$$y - \hat{y} = [I_N - H]\vec{e} \tag{5.6}$$

A matriz de variâncias e covariâncias dos resíduos será dada por:

$$V_{residuo} = \langle (y - \hat{y})(y - \hat{y})^t \rangle = [I_N - H]V_v$$
 5.7

onde se usou o fato que a matriz $[I_N - H]$ é idempotente e que $V_y = \langle \vec{e} \vec{e^t} \rangle$.

Resultados

A tabela 5.1 mostra as energias usadas na calibração de energia e dispersão, bem como a posição do centróide e os valores de σ^2 obtidos a partir dos ajustes dos parâmetros dos picos de raios gama. A figura 5.1 apresenta o gráfico dos resíduos reduzidos para a calibração de energia de ambos os detetores. As representações dos pontos com suas respectivas incertezas não foram incluídas porque eles ficariam escondidos pela reta traçada. As figuras 5.2 e 5.3

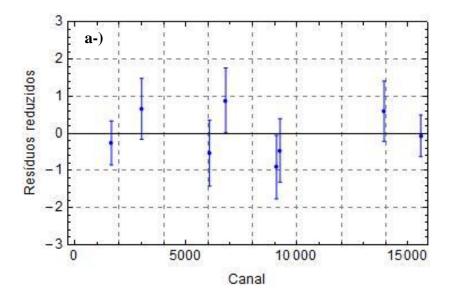
trazem o resultado do ajuste para a calibração da dispersão dos detetores de Si(Li) e HPGe, respectivamente, com o correspondente gráfico dos resíduos reduzidos.

Tabela 5.1: Energias das transições das fontes radioativas usadas na calibração, posição em canal correspondente a cada centróide e o parâmetro σ^2 , em keV², dos picos usados na calibração de energia e dispersão do detetor de Si(Li). As energias junto com suas respectivas incertezas foram obtidas da base de dados Laboratoire National Henri Becquerel (55).

Descrição	Energia (keV)	Centróide	σ^2 (keV ²)
²⁴¹ Am	26,3442(2)	3007,48	0,0199
²⁴¹ Am	59,5409(1)	6793,05	0,0355
⁵⁷ Co	14,41295(31)	1647,29	0,0152
⁵⁷ Co	122,06065(12)	13926,9	0,0627
⁵⁷ Co	136,4735(29)	15570,3	0,0704
¹³³ Ba	53,1622(6)	6062,74	0,0323
¹³³ Ba	80,9979(11)	9236,87	0,0439
¹³³ Ba	79,6142(12)	9080,05	0,0438

Tabela 5.2: Mesmo que na tabela 5.1, para o detetor de HPGe.

Descrição	Energia (keV)	Centróide	σ^2 (keV ²)
²⁴¹ Am	26,3442(2)	833,64	0,0418
²⁴¹ Am	59,5409(1)	1882,41	0,0527
⁵⁷ Co	14,41295(31)	456,84	0,0393
⁵⁷ Co	122,06065(12)	3859,21	0,0720
⁵⁷ Co	136,4735(29)	4314,57	0,0775
¹³³ Ba	53,1622(6)	1680,86	0,0489
¹³³ Ba	80,9979(11)	2517,12	0,0587
¹³³ Ba	79,6142(12)	2560,72	0,0588



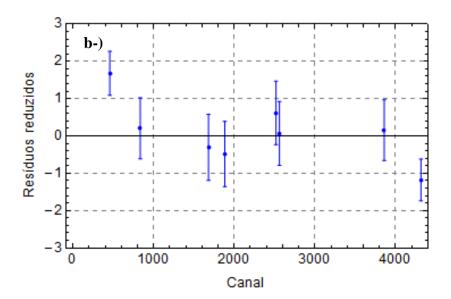


Figura 5.1: a-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental na calibração de energia, normalizado pela incerteza experimental, como função do canal para o detetor de Si(Li). b-) Mesmo que em a-) para o detetor de HPGe. Em ambos os casos as incertezas foram calculadas por meio da expressão 5.7.

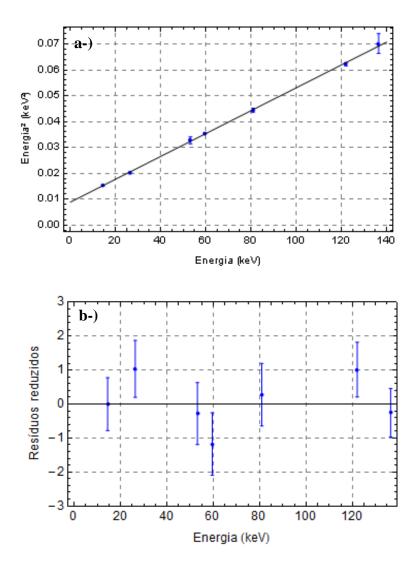


Figura 5.2: a-) Calibração da dispersão da gaussiana que descreve a forma dos picos de raios gama para o detetor de Si(Li). Como resultado do ajuste obteve-se $n^2=8,9(9)\times 10^{-3}~{\rm keV^2}$ e $\varepsilon_o F=4,4~(4)\times 10^{-4}~{\rm keV}$. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela incerteza experimental, como função da energia para o detetor de Si(Li).

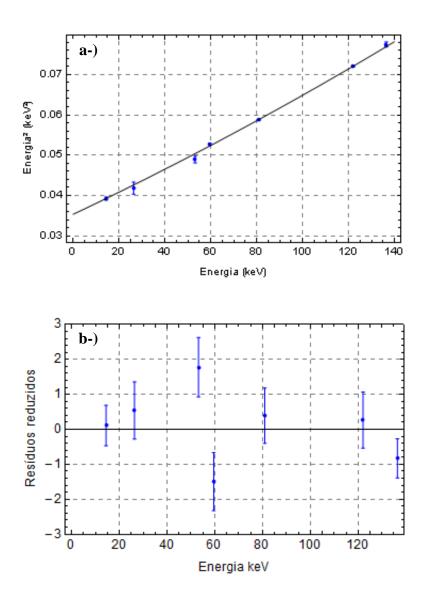


Figura 5.3: a-) Calibração da dispersão da gaussiana que descreve a forma dos picos de raios gama para o detetor de HPGe. Como resultado do ajuste obteve-se $n^2=3.5(5)\times 10^{-3}~{\rm keV^2}$, $\varepsilon_o F=2.69~(14)\times 10^{-4}~{\rm keV}$ e $\gamma'=2.59~(8)\times 10^{-7}$. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela incerteza experimental, como função da energia para o detetor de HPGe.

5.2 Determinação e calibração da eficiência dos detetores

Introdução

Para determinar a eficiência de pico de um detetor, deve-se ter em conta que para que um fóton seja detetado no pico de absorção total de energia ele deve chegar até a zona ativa do detetor, passando por vários absorvedores e sofrendo diversas interações ao longo desse trajeto.

Encontram-se na literatura vários trabalhos (56; 57; 58; 59; 60; 61) que propõem um modelo analítico para a curva de eficiência de detetores semicondutores com o intuito de calcular a eficiência de pico em uma dada energia com maior segurança do que quando se faz por meio da interpolação dos dados ou pela leitura de gráficos, principalmente em regiões onde há poucos dados experimentais.

Hansen et al. (56) propõem um modelo que leva em conta as várias atenuações que a radiação sofre ao sair da fonte até chegar ao volume ativo do detetor (ar, camada morta do detetor, janela de berílio e contato frontal de ouro), a eficiência intrínseca, calculada com o coeficiente de atenuação de fótons total do material do detetor, o escape dos picos de raios X, o efeito do colimador sobre os espectros e a eficiência da coleção total de carga. Destaca-se ainda o fato de que o modelo da curva de eficiência de pico subdivide-se naturalmente em duas regiões, a de baixas energias, onde a seção de choque do efeito fotoelétrico chega a ser cerca de dez vezes maior que a do espalhamento Compton, e de altas energias, onde essa desigualdade se inverte.

O modelo é testado pelos autores em quatro detetores, um Si(Li), um detetor de germânio intrínseco e dois detetores Ge(Li), todos eles bem colimados. Os ajustes apresentaram discrepâncias que são justificadas de diferentes formas conforme a faixa de energia, em particular, para a região de baixa energia, justifica-se que o desacordo entre o modelo e os pontos obtidos experimentalmente pode ser consequência de a eficiência de pico mudar rapidamente nessa região, com isso, pequenos erros na determinação da energia média de multipletos de raios X M podem introduzir grandes erros na posição dos valores de eficiência de pico correspondentes.

Gallagher et al. (57) propõem um modelo onde a dependência da eficiência de pico com a energia aparece de forma direta, não ficando mais por parte dos coeficientes de atenuação, como no modelo proposto por Hansen et al. Além disso, no termo correspondente à eficiência intrínseca, leva-se em conta somente o coeficiente de atenuação fotoelétrica e não mais o coeficiente de atenuação total. Para tanto se partiu da expressão:

$$\varepsilon = \frac{\Omega}{4\pi} \exp(-\mu_b t_b - \mu_s t_{ds}) \left[1 - \exp(-\mu_{pe} t_{sp}) \right]$$
 5.8

em que Ω corresponde ao ângulo sólido subtendido pelo detetor, t_b à espessura da janela de berílio, t_{ds} à espessura da camada morta, t_{sp} à espessura do volume ativo do detetor, μ_b e μ_s aos coeficientes de atenuação total do berílio e do silício, respectivamente, e μ_{pe} ao coeficiente de atenuação fotoelétrico do silício. Cabe citar que essa expressão é análoga à citada por Hansen et al. exceto pelo fato de ele usar o coeficiente de atenuação total do silício no termo da eficiência intrínseca. Segundo os autores, usando a aproximação de Born para fótons com energia superior à energia de ligação dos elétrons, mas muito menor do que a sua energia de repouso, mostra-se que $\mu_{pe} \propto E^{-3,5}$. Por outro lado, propõe-se que $\mu \propto E^B$, com $B \cong -2,9$ para regiões distantes de bordas de absorção, baseando-se, para isso, nos dados experimentais existentes para seção de choque total. Supondo que B seja o mesmo para todos os materiais absorvedores, chega-se na expressão:

$$\varepsilon = \frac{\Omega}{4\pi} \exp(\alpha E^{\beta}) [1 - \exp(\gamma E^{\delta})]$$
 5.9

Nessa altura é importante destacar dois pontos. Primeiro, que os parâmetros α e γ que aparecem como expoentes da função exponencial em 5.9 devem ser negativos para que não haja problemas de divergências nas regiões de extrapolação da curva. Segundo, que o modelo não dá conta de absorvedores de alto número atômico, como, por exemplo, o ouro, que é comum nos contatos elétricos dos detetores de Si(Li), e que dá origem a várias bordas de absorção, desde as da camada L até a da camada K na região de energia de interesse.

O modelo foi testado pelos autores em um detetor de Si(Li) bem colimado. Os resultados do ajuste levaram a $\hat{\delta}=-3,6(4)$, que está de acordo com o esperado. Entretanto o valor de β encontrado para o ajuste, $\hat{\beta}=-1,32(20)$ é menor do que o valor esperado teoricamente. Esse resultado faz levantar a hipótese de não estarem sendo levados em conta no modelo outros materiais absorvedores, como o contato frontal de ouro. Entretanto, para que tal discrepância fosse devido à absorção no contato frontal, este deveria ter uma espessura muito maior do que o encontrado na literatura para o tipo de detetor empregado. Hipótese semelhante é feita para a camada morta do detetor e o mesmo argumento é usado para refutála. Conclui-se que a auto absorção na fonte poderia estar reduzindo a intensidade dos fótons de baixa energia, uma vez que este efeito não é levado em conta nem no modelo nem nos dados experimentais. Outro argumento citado é o proposto por Hansen et al. (56) quanto aos possíveis erros na energia média de multipletos usados na região de baixa energia da curva de eficiência de pico.

Campbell et al. (58) aplicam o modelo proposto por Gallagher et al. (57; 59) em um detetor de Si(Li) não colimado e em um Ge(Li) também não colimado e encontram problemas na região de baixa energia da curva ajustada para o detetor de Si(Li) e na região de alta energia para o detetor de Ge(Li). No caso do detetor de Si(Li), o parâmetro β , que está relacionado com a atenuação dos fótons nos absorvedores de baixo número atômico Z, foi ajustado por um valor distante do que se esperava com base nos argumentos físicos. No caso do detetor de Ge(Li), o parâmetro α resultou em um valor positivo e o parâmetro β estava muito distante do valor esperado teoricamente, levando a divergências da curva de eficiência de pico na região de baixa e de altas energias, o que não tem significado físico. Os autores discutem esses resultados argumentando sobre a dificuldade em se ajustar a região de baixa energia da eficiência, uma vez que há poucos pontos experimentais para essa faixa. No que diz respeito ao problema encontrado na região de alta energia, propõe-se incluir transições de outros nuclídeos, que abrangem energias maiores, como o gama de 165 keV do 139 Ce.

O'Meara et al. (60) propõe um modelo para curva de eficiência de pico que leva em conta a presença ou ausência de um colimador no detetor e o efeito de espalhamento múltiplo, além de alertarem para o erro cometido quando se leva em conta somente a interação fotoelétrica no modelo de eficiência intrínseca. Segundo os autores, quando se descreve a eficiência intrínseca do detetor, pela expressão:

$$f_{pe} = 1 - \exp(-\mu_{pe}t_{sp})$$
 5.10

considerando μ_{pe} como sendo somente o coeficiente de atenuação fotoelétrica, deixa-se de levar em conta eventos que envolvem espalhamento Compton único ou múltiplo e comete-se erros que aumentam com a energia do fóton. Quando a energia do fóton é baixa, a expressão 5.10 pode ser usada, mas o erro cresce quando a energia aumenta. Para a faixa de energia de 20 keV o erro cometido já é da ordem de 8-9%. A proposta do trabalho de O'Meara et al. é calcular a eficiência intrínseca como:

$$f_{pe} = \frac{\mu_{pe}}{\mu_{tot}} \left[1 - \exp(-\mu_{tot} t_{sp}) \right]$$
 5.11

em que μ_{pe} e μ_{tot} são os coeficientes de atenuação fotoelétrica e total, respectivamente. O artigo discute ainda o erro cometido quando não se corrige o efeito da presença ou ausência de um colimador e o efeito do espalhamento múltiplo e apresenta o interessante resultado que para o caso do detetor colimado, os efeitos de ignorar a correção do colimador e do espalhamento múltiplo, ao mesmo tempo, se cancelam na faixa de energia de 10 a 20 keV, sendo que o mesmo acontece para o caso do detetor não colimado, mas na faixa de energia de 50 a 60 keV.

Por fim, Seltzer (61) propõe um modelo para a função resposta de detetores de germânio intrínseco para energias de até 300 keV. O modelo inclui efeitos de espalhamento e escape do detetor de fótons e raios X característicos do germânio produzidos na absorção fotoelétrica. As expressões obtidas por ele foram comparadas com medidas já existentes e com simulações Monte Carlo apresentando resultados satisfatórios. Tais expressões podem ser usadas não só para o cálculo da função resposta dos detetores, mas também para cálculos de eficiências de pico. Esse modelo foi usado neste trabalho para a construção da curva teórica da eficiência do detetor de Si(Li) e do HPGe e será descrito mais detalhadamente na próxima seção.

Modelo teórico para curva de eficiência de pico

O modelo de eficiência de pico absoluta proposto por Seltzer (61) é dado por:

$$\varepsilon = \frac{\Omega}{4\pi} \exp\left(-\sum_{i=1}^{n} \mu_i d_i\right) \left(1 - \exp(-\mu_{tnocoh} z) - P_{esc\alpha} - P_{esc\beta} - P_{inc}\right)$$
5.12

sendo que Ω corresponde ao ângulo sólido, μ_i aos coeficientes de atenuação total dos diversos materiais que estão atenuando o feixe de fótons, d_i a distância atravessada ao longo do material i, μ_{tnocoh} corresponde ao coeficiente de atenuação total sem levar em conta o espalhamento coerente e $P_{esc\alpha}$, $P_{esc\beta}$, P_{inc} correspondem as frações de escape K_{α} , K_{β} e Compton, respectivamente. Assim, o termo no primeiro parênteses dá conta da atenuação dos fótons emitidos pela fonte nos vários meios que eles atravessam até chegarem ao detetor, e o segundo fator leva em conta a eficiência intrínseca, os efeitos de escape dos raios X K_{α} e K_{β} e o espalhamento Compton.

Supondo que o escape de raios X pelos lados do detetor e por sua parte traseira possa ser ignorado, o detetor pode ser considerado um plano semi-infinito e a probabilidade de escape de raios X pode ser calculada por meio da expressão:

$$d^{3}P_{x\alpha,\beta}(E) = e^{-\mu(E)z'} \left[\mu_{PE}(E)dz'\right] \left[q_{K}(E)\frac{\omega_{k}}{4\pi}p_{\alpha,\beta} d(\cos\theta)d\phi\right] e^{-\frac{\mu(E_{\alpha,\beta})z'}{|\cos\theta|}} 5.13$$

sendo que a primeira exponencial dá a probabilidade dos fótons incidentes atingirem a profundidade z', o primeiro colchetes dá a probabilidade de que este fóton seja absorvido foto-eletricamente entre as distâncias z' e z'+dz', o segundo parênteses dá a probabilidade que o raio X de interesse, fruto da absorção fotoelétrica, seja emitido na direção entre θ e $\theta+d\theta$ e ϕ e $\phi+d\phi$ e a última exponencial dá a probabilidade que o fóton de raio X escape

pela parte frontal do detetor sem sofrer mais nenhuma interação. Integrando essa expressão sobre z' de 0 até ∞ , sobre ϕ de 0 até 2π e sobre $\cos\theta$ de -1 a 0 se obtêm:

$$P_{x\alpha,\beta} = \frac{1}{2} \omega_K p_{\alpha,\beta} q_K(E) \left[\frac{\mu_{PE}(E)}{\mu(E)} \right] \left\{ 1 - \left[\frac{\mu(E_{\alpha,\beta})}{\mu(E)} \right] \ln \left[1 + \frac{\mu(E)}{\mu(E_{\alpha,\beta})} \right] \right\}$$
 5. 14

sendo que as quantidades envolvidas na equação são: $\mu(E)$ coeficiente de atenuação (incluindo absorção fotoelétrica e espalhamento Compton); $\mu_{PE}(E)$, coeficiente de atenuação fotoelétrica; $q_K(E)$ fração de absorção fotoelétrica que ocorre na camada K; ω_K yield fluorescente da camada K; $p_{\alpha,\beta}$, probabilidade relativa que um raio X da camada K tenha a energia da linha K_{α} ou K_{β} e $E_{\alpha,\beta}$, energia da linha K_{α} ou K_{β} . A figura 5.4 a-) traz a probabilidade de escape de raios X K para um detetor de Si(Li) e mostra que entre os escapes K_{α} e K_{β} , o primeiro será dominante para o detetor de Si(Li) e a figura 5.4 b-) traz o mesmo gráfico para um detetor de HPGe, em que a contribuição do escape K_{β} é mais significativa do que para o caso do Si(Li).

O modelo do espalhamento Compton parte da energia de recuo de um elétron livre em repouso espalhado por um fóton com energia *E*, dada por:

$$\epsilon = \frac{E^2(1 - \cos \theta)}{mc^2 + E(1 - \cos \theta)}$$
5.15

Com isso, quando se tem um único espalhamento, os valores de energia estão restritos ao intervalo:

$$0 \le \epsilon \le \epsilon_C$$

que corresponde às situações limite de espalhamento a $\theta=0^\circ$ ou a $\theta=180^\circ$, em que $\epsilon_C=2E^2/(mc^2+2E)$. Os eventos cuja energia do elétron depositado são superiores a ϵ_C devem ser consequência de mais de um espalhamento. Para dois espalhamentos sucessivos de $\theta=180^\circ$ tem-se que $\epsilon_{2C}=4E^2/(mc^2+4E)$. Com isso, se denota como região de múltiplo espalhamento o intervalo:



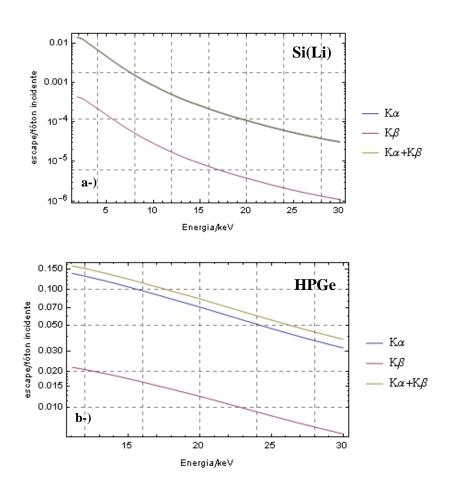


Figura 5.4: Probabilidades de escape dos raios X: a-) para o detetor de Si(Li) e b-) para o detetor de HPGe. Os resultados, normalizados por fóton incidente, dão a probabilidade para que a energia absorvida seja a energia incidente E menos a energia dos picos K_{α} ou K_{β} , que para o silício são $E_{K_{\alpha}}=1,74$ keV e $E_{K_{\beta}}=1,84$ keV e, para o germânio são, $E_{K_{\alpha}}=9,88$ keV e $E_{K_{\beta}}=10,99$ keV.

Assim, o contínuo Compton pode ser descrito como:

$$P_{inc} = \int_0^E C(\epsilon, \varepsilon, z, r) d\varepsilon$$

com $C(\epsilon, E, z, r)$ dado por:

$$C(\epsilon, E, z, r) = \begin{cases} C_1(\epsilon, E, z, r), & 0 \le \epsilon \le 2E^2/(mc^2 + 2E) \\ C_2(\epsilon, E, z, r), & 2E^2/(mc^2 + 2E) \le \epsilon \le 4E^2/(mc^2 + 4E) \end{cases}$$
 5.16

Para a região de único espalhamento tem-se:

$$dC_{1}(\epsilon, E, z, r) = e^{-\mu(E)z'} dz' \left[\frac{\sigma_{inc}(E)}{\sigma_{KN}(E)} \right] \left(\frac{N_{A}Z}{A} \right) \frac{d\sigma_{KN}}{d\epsilon} e^{-\mu(E-\epsilon)s}$$
 5.17

onde a primeira exponencial dá a probabilidade que o fóton incidente atinja a profundidade z', o termo do meio dá a probabilidade que ocorra espalhamento Compton dando origem a um elétron de energia ϵ e a última exponencial dá a probabilidade que o fóton espalhado escape do detetor sem sofrer mais nenhuma interação ao longo da distância s. N_A corresponde ao número de Avogadro, Z e A ao número e massa atômica, respectivamente, para o material do detetor e $\sigma_{KN}(E)$ a seção de choque de Klein Nishina. Substituindo s pela distância do ponto correspondente até a superfície que delimita o detetor e integrando sobre z' de 0 a ∞ , chegase em:

$$C_{1}(\epsilon, E, z, r) = mc^{2}\pi r_{e}^{2} N_{A} \frac{Z}{A} \left[\frac{\sigma_{inc}(E)}{\sigma_{KN}(E)} \right] \left[\frac{1}{\mu(E)E^{2}} \right] \left\{ 2 + \frac{mc^{2}\epsilon}{E(E - \epsilon)} \left[\frac{mc^{2}\epsilon}{E(E - \epsilon)} + \frac{\epsilon}{mc^{2}} - 2 \right] \right\} G(\epsilon, E, z, r)$$
 5.18

em que r_e corresponde ao raio clássico do elétron e $G(\epsilon, E, z, r)$ é um fator adimensional que contém a dependência geométrica da probabilidade de escape de fótons.

Usando a notação simplificada $\mu = \mu(E)$, $\mu' = \mu(E - \epsilon)$ e $\kappa = \frac{\mu'}{\mu \cos \theta} - 1$ onde $\cos \theta$ é dado pela expressão que fornece a energia do elétron espalhado por um fóton 5.15, o fator G, transcrito literalmente como na referência (61), é descrito por:

$$G = \mu z e^{-\mu z} \qquad \text{para } \cos \theta = 1$$

$$G = \kappa^{-1} e^{-\mu z} (1 - e^{-\kappa \mu z}) \qquad \text{para } 1 > \cos \theta \ge \frac{z}{(z^2 + r^2)^{1/2}}$$

$$G = e^{-(\kappa + 1)\mu r \cot \theta} - e^{-\mu z} \left[(1 + \kappa^{-1}) e^{-\kappa \mu r \cot \theta} - \kappa^{-1} \right] \text{para } \frac{z}{(z^2 + r^2)^{1/2}} > \cos \theta \ge 0$$

$$G = e^{-\mu' r} (1 - e^{-\mu z}) \qquad \text{para } \cos \theta = 0$$

$$G = (1 + \kappa^{-1}) e^{-\mu \kappa r \cot \theta} - \kappa^{-1} - e^{-\mu z} e^{-(\kappa + 1)\mu r \cot \theta} \qquad \text{para } 0 > \cos \theta > \frac{-z}{(z^2 + r^2)^{1/2}}$$

$$G = \kappa^{-1} (e^{\kappa \mu z} - 1) \qquad \text{para } \frac{-z}{(z^2 + r^2)^{1/2}} \ge \cos \theta \ge -1$$

A figura 5.5 traz um esboço da trajetória do fóton ao incidir na região central do cristal do detetor. O fator G pode ser calculado com base nesta figura, para cada uma das situações possíveis para o ângulo θ .

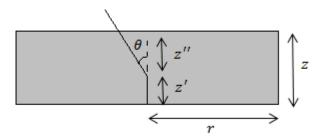


Figura 5.5: Esboço da trajetória do fóton ao incidir na região central do cristal do detetor.

Para a primeira situação, único exemplo mais fácil, onde $\cos \theta = 1$, tem-se que:

$$G = \int_0^z \mu e^{-\mu z'} e^{-\mu(z-z')} dz' = \mu z e^{-\mu z}$$

já que $\cos \theta = 1$, e nesta situação $\epsilon = 0$, o que implica em $\mu = \mu'$.

A pequena contribuição do termo de espalhamento múltiplo foi calculada por meio de uma aproximação com base nos espectros simulados por Seltzer (61). Assim, assumiu-se uma distribuição triangular para descrever a região com energia entre ϵ_C e ϵ_{2C} :

$$C_2(\epsilon, E, z, r) = \left[\frac{(\epsilon_{2c} - \epsilon)}{(\epsilon_{2c} - \epsilon_c)} \right] C_2(\epsilon_c, E, z, r)$$
 5.19

onde a dependência de $C_2(\epsilon_c, E, z, r)$ com as dimensões do detetor foi estimada considerando um espalhamento de 180° seguido de um espalhamento de 0°. Este resultado foi normalizado para que a área abaixo do $C_2(\epsilon, E, z, r)$ estivesse próxima do que se obteve para os valores simulados. O resultado foi:

$$C_{2}(e_{c}, E, z, r) = \left(\frac{mc^{2}\pi r_{e}^{2}N_{A}Z}{A}\right)^{2} \left[\frac{\sigma_{inc}(E)}{\sigma_{KN}(E)}\right] \left[\frac{\sigma_{inc}(E - \epsilon_{c})}{\sigma_{KN}(E - \epsilon_{c})}\right] 4T\{E(E - \epsilon_{c})[\mu(E) + \mu(E - \epsilon_{c})]\}^{-2} \left\{1 + \frac{2E^{2}}{[mc^{2}(mc^{2} + 2E)]}\right\} \left\{1 - \left[1 + \left(\mu(E) + \mu(E - \epsilon_{c})\right)z\right]e^{-[\mu(E) + \mu(E - \epsilon_{c})]z}\right\}$$
5.20

sendo que T corresponde ao fator de normalização $T=0.002660E^{1.707}$, para T e E em keV.

As constantes utilizadas nas fórmulas acima foram obtidas das seguintes referências: para o caso do Si(Li), q_K foi obtido de Scofield (62), a seção de choque de espalhamento

incoerente de Hubbel et al. (63), o coeficiente de absorção mássico de Hubbel et al. (64) e o *yield* fluorescente de Bambynek et al. (65). No caso do detetor de germânio essas constantes foram obtidas do próprio artigo de Seltzer (61). Entretanto ele só fornece valores até a energia de 11,103 keV, assim, abaixo desse valor os parâmetros foram obtidos das mesmas referências citadas acima para o caso do Si(Li).

A figura 5.6 traz a contribuição relativa dos escapes K_{α} , K_{β} e espalhamento Compton na faixa de energia de 0 a 25 keV e de 0 a 100 keV, obtidas com as expressões acima, para os detetores de Si(Li) e de HPGe, respectivamente. No caso do detetor de Si(Li), é possível observar que, a 10 keV, a contribuição relativa do escape K_{α} é tão importante quanto a do espalhamento Compton, de modo que este deve ser levado em conta no cálculo da eficiência intrínseca.

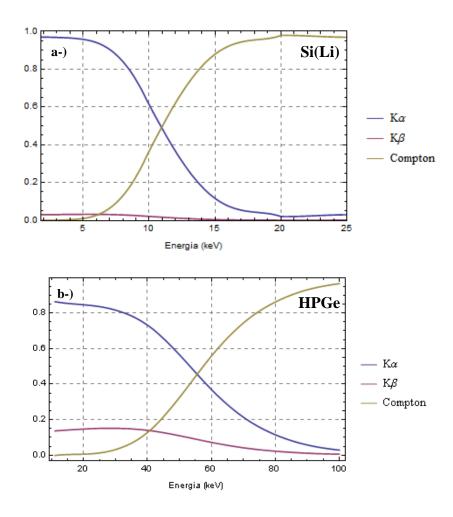


Figura 5.6: Probabilidades relativas dos escapes K_{α} e K_{β} e do espalhamento Compton a-) para o detetor de Si(Li) e b-) para o detetor de HPGe.

Desenvolvimento do método

A eficiência de pico absoluta de um dado detetor em uma energia particular pode ser calculada com o auxílio de fontes de calibração cuja atividade seja conhecida. Nesse caso a eficiência é obtida por meio da expressão:

$$\varepsilon = \frac{N}{IA\Lambda t}$$
 5.21

sendo que N corresponde ao número de eventos detetados no pico da energia de interesse, I a intensidade do pico de raio X ou gama analisado, A corresponde à atividade da fonte e Δt ao intervalo de tempo que durou a medida. Quando a atividade da fonte é grande são necessárias correções para efeitos secundários de deteção, o que não é o caso da calibração efetuada, em que fontes de 10-300 kBq foram posicionadas a 30 cm do detetor.

A eficiência de pico foi obtida por meio da expressão 5.21, sendo que os picos de raios gama foram ajustados com uma gaussiana, enquanto os de raios X, com a *função Voigt*, implementada conforme descrito no capítulo 4, para os espectros obtidos com o detetor de Si(Li). Para o detetor de HPGe as áreas foram obtidas pela soma das contagens conforme apresentado na referência (36). Os dados obtidos com as fontes Amersham foram corrigidos para a absorção de fótons na fonte e para pequena diferença da posição destas fontes quando colocadas no suporte da figura 3.3. O ajuste dos parâmetros dos picos de raios X com a função Voig para o detetor de Si(Li) foi de fundamental importância, principalmente para os raios X K, uma vez que esse detetor apresenta resolução de aproximadamente 252 eV na energia de 5,9 keV, a contribuição lorentziana nos picos exerce apreciável contribuição, de modo que a aproximação da Voigt por uma gaussiana não seria adequada.

Os parâmetros da curva teórica citada na seção 5.2 foram ajustados aos dados experimentais, sendo que o ajuste levou em conta a correlação entre os valores de eficiência de pico obtidos com a mesma fonte. Uma vez que eles foram obtidos com a mesma atividade, eles apresentam uma correlação que deve ser levada em conta para que o χ^2 do ajuste seja calculado corretamente.

Condições experimentais

As transições usadas na calibração de eficiência de pico foram raios X característicos e transições que seguem os decaimentos das fontes radioativas ²⁴¹Am, ⁵⁷Co, ¹³³Ba , ¹⁵²Eu, ²⁰⁷Bi e ¹³⁷Cs, que estão relacionadas na tabela 5.3 para o detetor de Si(Li) e na tabela 5.4 para o detetor de HPGe. As fontes de ²⁰⁷Bi e ¹³³Ba foram produzidas e calibradas pela Amersham, enquanto as fontes ²⁴¹Am, ⁵⁷Co, ¹⁵²Eu e ¹³⁷Cs foram fabricadas e calibradas absolutamente no LMN-IPEN/CNEN-SP (Laboratório de Metrologia Nuclear-Instituto de Pesquisas Enérgicas e Nucleares, Comissão Nacional de Energia Nuclear, São Paulo).

As medidas foram realizadas com as fontes colocadas na câmara de irradiação com auxílio do suporte ilustrado na figura 3.3, na mesma posição em que o alvo foi colocado durante a irradiação. Os raios X de chumbo da fonte de ²⁰⁷Bi puderam ser usados devido a presença da blindagem de cobre, que prevenia que os raios X provenientes de fotoionização na blindagem de chumbo chegassem ao detetor. Os dados de decaimento necessários para o cálculo da eficiência de pico foram obtidos da referência (55), exceto para a meia vida do ²⁰⁷Bi, onde se usou o valor da referência (66). O detetor de germânio foi usado com um colimador de cobre de modo a permitir que os fótons atingissem a sua região central, onde a espessura da camada morta é da ordem de 2 µm (35; 36), conforme discutido no capítulo 3.

Resultados para o detetor de Si(Li)

O modelo descrito para a curva de eficiência de pico necessita de grandezas características do detetor e da geometria de aquisição, sendo elas a espessura e o raio do cristal do detetor, a espessura da camada morta, a espessura da janela de berílio e a distância entre a fonte e o cristal do detetor, já que as medidas com as fontes radioativas foram feitas no ar e este atenua os raios X de baixa energia.

Para o detetor de Si(Li) utilizado, exceto a distância entre a fonte e o detetor, nenhuma dessas grandezas era conhecida com precisão. Nas seções seguintes será descrito como foi determinada a espessura da janela de berílio, a espessura da camada morta e do contanto frontal de ouro, bem como o ajuste dos parâmetros: raio e espessura do cristal aos dados experimentais da eficiência de pico absoluta.

Tabela 5.3: Eficiência de pico experimental do detetor de Si(Li). Na descrição, indica-se o núcleo pai se os fótons correspondem a uma transição nuclear (γ), ou atômica no núcleo-átomo filho, a linha característica para os raios X, e a energia emitida em sequência ao decaimento.

Descrição	Energia (keV)	$\epsilon \times 10^{-5}$
²⁴¹ Am - γ	26,3442	8,89(35)
²⁴¹ Am - v	59,5409	1,596(29)
241 Am - \mathbf{L}_{α}	13,928	9,56(19)
241 Am - $\mathbf{L_{\beta 2}} + \mathbf{L_{\beta 4}}$	16,9299	9,99(19)
241 Am - $L_{61} + L_{63}$	17,7739	10,09(20)
241 Am - $\mathbf{L}_{\mathbf{v}}$	20,9584	9,87(22)
²⁰⁷ Bi - K ₆₁	74,97	8,18(25)
207 Bi - $\mathbf{K}_{\mathbf{q}2}$	72,8049	8,70(24)
207 Bi - $\mathbf{K_{61} + K_{63}}$	84,937	5,26(39)
207 Bi - $\mathbf{K_{62} + K_{64}}$	87,58	5,21(18)
¹³³ Ba - γ	53,1622	2,09(16)
¹³³ Ba - γ	79,6142	0,73(38)
¹³³ Ba - γ	80,9979	0,69(15)
133 Ba - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	30,85	7,47(15)
133 Ba - \mathbf{K}_{61}	35,103	6,21(21)
133 Ba - $K_{\beta 2}$	35,899	5,65(38)
152 Eu - $\mathbf{K}_{\alpha 1} + \mathbf{K}_{\alpha 2}$	39,9	4,43(11)
152 Eu - $\mathbf{K}_{\beta 1}$	45,477	3,292(92)
152 Eu - $\mathbf{K_{62}}$	46,698	3,04(14)
137 Cs - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	32,0614	6,99(16)
13 Cs - \mathbf{K}_{61}	36,4457	5,46(28)
137 Cs - $K_{\beta 2}$	37,3317	5,29(47)
⁵⁷ Co - γ	14,413	9,35(23)
57 Co - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	6,3995	6,20(13)
⁵⁷ Co - K _β	7,083	6,89(24)

Tabela 5.4: Mesmo que na tabela 5.3 para o detetor de HPGe.

Descrição	Energia (keV)	$\epsilon \times 10^{-5}$
²⁴¹ Am - γ	26,3442	7,15(28)
²⁴¹ Am - γ	59,5409	7,64(14)
241 Am - \mathbf{L}_{α}	13,928	4,925(95)
241 Am - $\mathbf{L_v}$	20,9584	6,48(12)
207 Bi - $\mathbf{K}_{\alpha 1}$	74,97	7,49(22)
$^{207}\mathrm{Bi}$ - $\mathbf{K_{\alpha2}}$	72,8049	7,53(23)
207 Bi - $K_{\beta 1} + K_{\beta 3}$	84,937	7,09(24)
207 Bi - $K_{62} + K_{64}$	87,58	7,22(27)
¹³³ Ba - γ	53,1622	7,51(16)
¹³³ Ba - γ	80,89	7,52(14)
133 Ba - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	30,85	7.02(22)
$^{133}Ba - K_{\beta 1} + K_{\beta 2}$	35,173	7,20(22)
13 Cs - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	32,0614	7,21(15)
137 Cs - $K_{\beta 1+\beta 2}$	36,4457	7,32(17)
⁵ /Co - γ	14,413	5,19(12)
5 Co - $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$	6,3995	1,070(36)
⁵⁷ Co - K _β	7,083	1,660(66)

Determinação da espessura da janela de berílio

As figuras 5.7 e 5.8 trazem exemplos dos espectros obtidos com o detetor de Si(Li) nas irradiações dos alvos de Ta e Ge, para várias energias, conforme descrito na seção 3.2.

Nota-se em todos os espectros uma corcova na região de mais alta energia, que corresponde à elétrons do feixe que não foram totalmente freados pelos absorvedores entre o alvo e o detetor e conseguiram atingir o cristal do Si(Li). Uma vez que essas irradiações foram feitas no vácuo, não há a atenuação pelo ar, de modo que os absorvedores seriam a camada morta do cristal do detetor, o contato frontal de ouro e a janela de berílio. Desses três, a janela de berílio seria a responsável pela maior parte da absorção, uma vez que sua espessura costuma ser ordens de grandeza maior do que as do contato frontal de ouro e da camada morta (22). Com essa suposição, é possível estimar a espessura da lâmina que está absorvendo parte da energia dos elétrons. Isso porque se sabe qual é a energia inicial de feixe, que corresponde à energia do canhão na irradiação correspondente, e pelos espectros é possível estimar a energia mais provável com que os elétrons chegaram ao detetor. Usando a expressão:

$$R = \int_{E_0}^{E_f} dx = \int_{E_0}^{E_f} \frac{dx}{dE} dE = -\int_{E_0}^{E_f} \frac{dE}{S(E)}$$
 5.22

em que E_0 e E_f correspondem as energias médias inicial e final dos elétrons, respectivamente, e $S(E) = -\frac{dE}{dx}$ é o *stopping power*, a partir de S(E) retirado da literatura, consegue-se estimar a distância que os elétrons estão percorrendo dentro do material.

Para que seja possível usar a expressão 5.22, entretanto, é necessário que seja conhecida a relação entre a energia mais provável e a energia média dos elétrons detetados. Isso porque pelos espectros das figuras 5.7 e 5.8 é possível estimar a energia mais provável desses elétrons, mas a expressão 5.22 deve ser usada com a energia média dos mesmos.

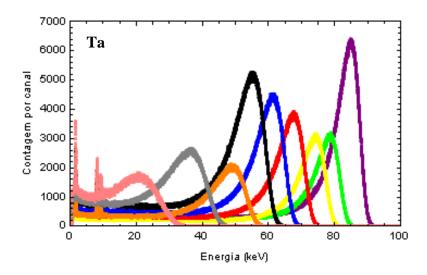


Figura 5.7: Espectros obtidos com a irradiação do alvo de Ta e com o detetor de Si(Li) para energia do feixe variando de 50 a 100 keV. A dispersão em energia é de 8,8 eV/canal. As diferentes cores correspondem às diferentes energias de irradiação.

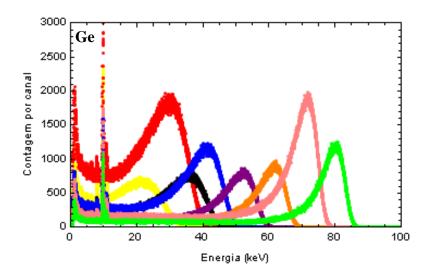


Figura 5.8: Espectros obtidos com a irradiação do alvo de Ge e com o detetor de Si(Li) para energia do feixe variando de 50 a 100 keV. A dispersão em energia é de 8,8 eV/canal. As diferentes cores correspondem às diferentes energias de irradiação.

Landau (67) determinou a função distribuição de probabilidade para a perda de energia de partículas rápidas por ionização, que fornece a probabilidade com que uma partícula de uma dada energia E_0 , ao atravessar uma espessura x de um dado material, perca uma quantidade de energia entre Δ e Δ + $d\Delta$. O código de simulação PENELOPE (32) utiliza uma modificação desta função distribuição de probabilidade para simular o transporte de elétrons na matéria, e foi usado aqui para se obter a relação entre a energia mais provável e a energia média dos elétrons freados pela janela de berílio.

Foram simulados feixes de elétrons com energias de 50, 60, 70, 80, 90, 95 e 100 keV incidindo sobre uma lâmina de berílio de 25,4 µm de espessura, sendo que a deteção dos elétrons foi feita em um cilindro de silício com 4,9 mm de raio e 4,94 mm de espessura, posicionado logo atrás da lâmina de berílio. As dimensões usadas para o detetor de silício foram as obtidas a partir do ajuste dos parâmetros da curva de eficiência, descrito logo abaixo, nesta mesma seção, e a espessura da lâmina de berílio escolhida é o valor típico para esse detetor (37). Por meio dos espectros simulados foi possível obter a energia mais provável e a energia média dos elétrons para cada energia de feixe. A figura 5.9 traz a perda de energia mais provável para cada energia do feixe com os espectros simulados, com o modelo da referência Landau (67) e medidos nos espectros experimentais das figuras 5.7 e 5.8, obtidos com as irradiações dos alvos de Ta e Ge, respectivamente. Nota-se que os valores

experimentais são compatíveis com a simulação para uma janela de berílio com espessura de 25,4 µm. O modelo da referência (67) reproduz a forma tanto dos dados experimentais quanto dos valores simulados, mas encontra-se deslocado para baixo em relação a estes.

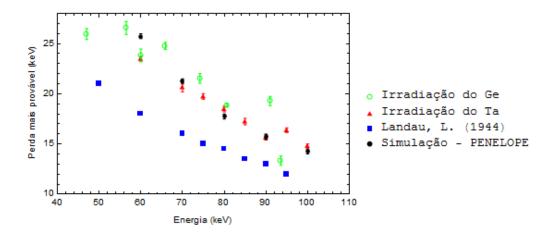


Figura 5.9: Perda de energia mais provável para elétrons freados por uma lâmina de berílio para cada energia de feixe. Os círculos vazios correspondem aos valores experimentais obtidos dos espectros da irradiação do alvo de Ge, círculos cheios aos valores obtidos por simulação com o código PENELOPE, os triângulos aos valores experimentais obtidos dos espectros da irradiação do alvo de Ta e os quadrados aos valores obtidos pela função distribuição de probabilidade da referência Landau (67).

Os valores encontrados por meio dos espectros simulados para a energia mais provável e a energia média dos elétrons foram interpolados para se obter a relação entre essas duas grandezas. Com a função interpolada foi possível estimar nos espectros experimentais a energia média dos elétrons freados pela janela de berílio, e utilizar a expressão 5.22 para encontrar a distância média percorrida por eles dentro desse material. A figura 5.10 traz a relação entre a perda de energia média e a perda mais provável obtida por simulação e pela função distribuição de probabilidade da referência (67). Da figura nota-se que a inclinação é praticamente a mesma tanto para os pontos obtidos por simulação com o código PENELOPE quanto para os obtidos com o modelo do Landau (67), sendo que há um deslocamento para baixo desses últimos e que fica maior quanto menor a energia do feixe, e consequentemente maior a perda mais provável.

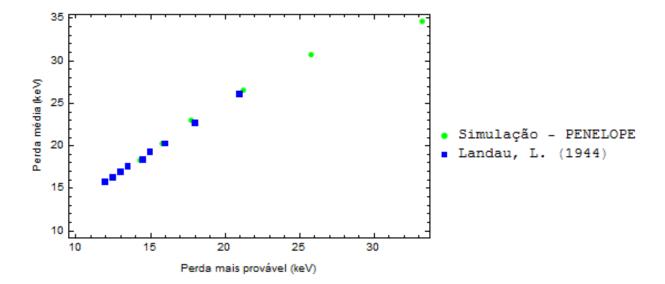


Figura 5.10: Relação entre a perda mais provável e a perda média obtida por simulação com o código PENELOPE e com a função distribuição de probabilidade da referência (64). Nas simulações usou-se uma lâmina de berílio com espessura de 25,4 μm. Os pontos verdes (círculos) correspondem os valores obtidos por simulação com o código PENELOPE, e os azuis (quadrados) aos valores obtidos com o modelo da referência Landau (67).

Uma vez que o feixe de elétrons sofre um espalhamento ao passar pelo alvo e pela janela de berílio, as distâncias percorridas pelos elétrons dentro deste material, obtidas pela expressão 5.22, tiveram que ser corrigidas para se chegar à estimativa da espessura da janela. Essa correção foi feita com base na expressão apresentada na referência Clark et al. (3), dada por:

$$\lambda = \frac{8.0}{V} \left(\frac{V + 511}{V + 1022} \right) Z \left(\frac{\rho x}{A} \right)^{\frac{1}{2}}$$
 5.23

em que λ corresponde ao ângulo de deflexão mais provável de um elétron ao sofrer múltiplo espalhamento, em radiano, V ao potencial de aceleração dos elétrons em kV, Z e A ao número e massa atômica, respectivamente, ρ à densidade do meio em g/cm³ e x à distância percorrida pelo elétron no meio em μ m. O ângulo λ que o feixe de elétrons abre ao passar pelo alvo é pequeno, da ordem de 3°, o que corresponde a uma correção de aproximadamente

0,1 % nas distâncias calculadas com a expressão 5.22, mas a abertura que o feixe sofre ao passar pela espessura de berílio é bem maior, chegando a aproximadamente 42 ° para a energia de 50 keV. Para cada energia do feixe foi calculado o ângulo λ e feita a correção $d=d'\cos\lambda$, sendo d a espessura da janela de berílio e d' a distância percorrida pelo feixe dentro desse material, calculada com a expressão 5.22. O valor médio da espessura da janela de berílio usando o stopping power da base de dados do NIST (68) foi de 25,1 μ m para os espectros da irradiação do alvo de Ta e de 23,5 μ m para os espectros da irradiação do alvo de Ge. As incertezas dessas estimativas apresentam uma parte estatística, que é pequena, e uma parte sistemática que é difícil de ser estimada devido à correção da expressão 5.23. Devido a isso não foram dadas incertezas para as espessuras estimadas. A média desses dois valores foi de 24 μ m.

Esse resultado está de acordo com as espessuras de janela de berílio encontradas na literatura para detetores de Si(Li) (57) e com os valores típicos dos catálogos do fabricante desse equipamento (37), de 25,4 μm. O acordo com a espessura esperada é surpreendente, especialmente levando em conta a aproximação do ângulo mais provável pela expressão 5.23. O valor usado nos cálculos subsequentes para a espessura dessa janela foi o fornecido pelo fabricante, de 25,4 μm.

Ajuste dos parâmetros espessura, raio, camada morta do cristal e do contato frontal de ouro do detetor

Para avaliar a dependência da eficiência de pico absoluta com a espessura do contato frontal de ouro e da camada morta, usou-se o modelo descrito na seção 5.2. A eficiência de pico calculada em função desses parâmetros em algumas energias e espessuras do cristal está apresentada na figura 5.11. Não há uma dependência perceptível da eficiência com a espessura da camada morta, já no caso do contato frontal de ouro, há uma ligeira variação da eficiência na região de baixa energia.

O procedimento adotado foi usar como primeira aproximação para essas duas espessuras valores que são encontrados na literatura (52; 56; 57) para detetores de Si(Li) e fazer o ajuste para o raio e a espessura do detetor. No primeiro ajuste, usou-se a espessura do contato frontal de ouro igual a 0,05 µm e 0,01 µm para a espessura da camada morta. Esses

valores foram alterados posteriormente com base nos valores ajustados para o raio e a espessura do detetor.

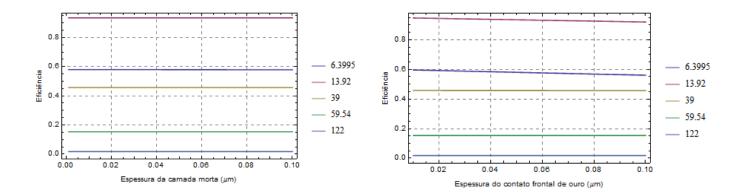


Figura 5.11: Eficiência de pico de um detetor de Si(Li) com um cristal de 4,9 mm de espessura e 4,9 mm de raio, nas energias discriminadas na legenda, em keV. a-) Dependência com a espessura da camada morta, com 0,05 μm para o contato frontal de ouro. (b) Dependência com a espessura do contato frontal de ouro, com camada morta de 0,01 μm.

Com os valores das espessuras da janela de berílio, contato frontal de ouro e camada morta, a expressão 5.12 foi ajustada aos dados experimentais tendo como parâmetros livres a espessura e o raio do cristal. Para tanto foi imposto o vínculo entre o raio r do detetor e o ângulo sólido de deteção Ω , $\Omega = \pi r^2/R^2$, onde R é a distância do detetor até a fonte, que para a geometria descrita era de R=24,0 cm. O ajuste foi feito usando o programa mathematica 9.0, mas não foi usada sua função de ajuste não linear nos parâmetros, com o intuito de evitar possíveis erros quanto à possiblidade de se encontrar um mínimo local ao invés de um mínimo global. O procedimento escolhido foi usar as curvas de nível da função de mérito Q para a eficiência de pico em um processo iterativo, com Q dado por:

$$Q = Q(z,r; dl, d_{Be}, d_{ar}, d_{Au}) = (\vec{e} - \vec{e})^{t} V^{-1} (\vec{e} - \vec{e})$$
 5.24

em que z e r correspondem à espessura e ao raio do cristal, dl à espessura da camada morta do Si, d_{Be} a espessura da janela de berílio, d_{Au} a espessura do contato frontal de ouro, d_{ar} a distância de ar entre a fonte e o detetor, \vec{e} corresponde à matriz coluna com os valores da eficiência de pico absoluta obtidos experimentalmente, \vec{e} à matriz coluna com os valores da eficiência de pico calculada pelo modelo, e V corresponde a matriz de variâncias e covariâncias dos dados de eficiência.

O ajuste inicial forneceu, com base nas curvas de nível, o raio e a espessura do detetor. Esses valores foram usados para ajustar, de forma independente, a espessura do contato frontal de ouro e da camada morta, tomando por base o valor das espessuras que minimizavam a soma dos quadrados dos resíduos ponderados, dada pela expressão 5.24. Por fim, esses valores foram fixados em um último ajuste para determinar as novas estimativas da espessura e do raio do detetor. A figura 5.12 mostra as curvas de nível do ajuste e a figura 5.13 o comportamento da soma dos quadrados dos resíduos ponderados Q com a camada morta e com a espessura do contato frontal de ouro usando o raio e a espessura do detetor determinados por meio da figura 5.12.

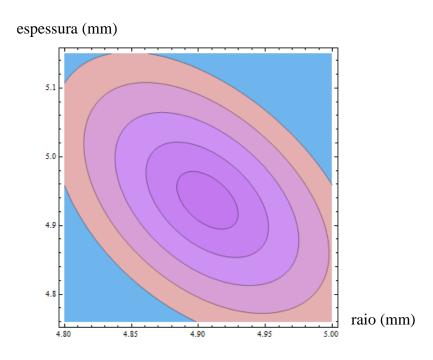


Figura 5.12: Curvas de nível da eficiência de pico. No eixo horizontal tem-se o raio do detetor e na vertical sua espessura.

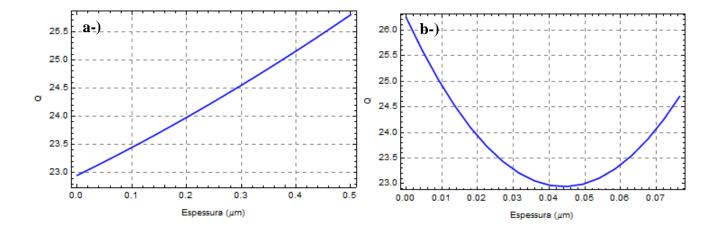


Figura 5.13: Dependência da função *Q* da expressão 5.24 com as espessuras: a-) da camada morta e b-) do contato frontal de ouro.

A figura 5.12 apresenta um mínimo bem definido para o ajuste do raio e da espessura do detetor. Na figura 5.13 a-) nota-se que a espessura da camada morta do detetor é compatível com zero. Esse resultado é citado por Hansen et al. (56) que comenta que o baixo valor do *yield* fluorescente do Si, $\omega_K \approx 0.04$, não permite medidas convenientes de espessuras de camada morta mais finas do que 1 μ m. Medidas típicas de espessura de camada morta para detetores de silício são menores do que 0,2 μ m e não exercem uma atenuação apreciável de fótons com energia maior do que 5 keV, dificultando assim a sua caracterização. Na figura 5.13 b-) nota-se que há um valor bem definido para a espessura do contato frontal de ouro que minimiza o valor da expressão 5.24 para o ajuste.

Com base na figura 5.13 e com o que se encontra na literatura (22; 56; 57) usou-se 0 (200) nm para a espessura da camada morta e 45,0(2,5) nm para o contato frontal de ouro. Essas incertezas foram estimadas com base no intervalo determinado pela variação de uma unidade no valor mínimo da função Q.

Para calcular a incerteza no valor da espessura e do raio a estimativa desses parâmetros foi usada para se escrever a matriz das variâncias e covariâncias do ajuste (29):

$$V_{\hat{\vec{a}}} = (X^t V^{-1} X)^{-1}$$
 5.25

sendo X a matriz das derivadas da função que descreve a eficiência de pico em relação ao raio e a espessura do detetor calculada nos respectivos valores estimados e V matriz de variâncias e covariâncias dos dados ajustados. Os valores obtidos para o ajuste foram z=4,94(2) mm e r=4,91(1) mm para a espessura e o raio do detetor, respectivamente, com $\chi^2_{red}=0,9934$. Cabe lembrar que o ajuste foi feito levando em conta a covariância entre os dados de eficiência de pico absoluta obtidos com a mesma fonte, a fim de evitar que o qui quadrado seja subestimado. A figura 5.14 traz os pontos experimentais junto com a curva ajustada e o respectivo gráfico dos resíduos reduzidos.

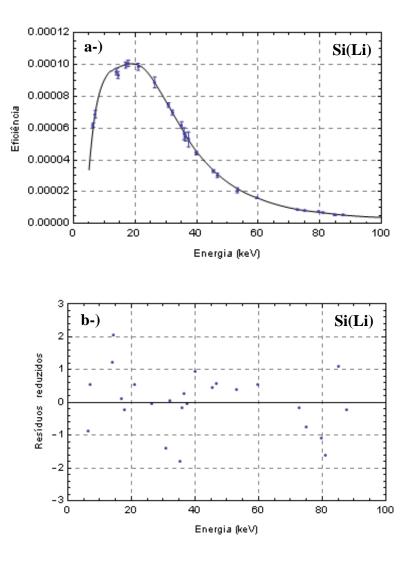


Figura 5.14: Calibração de eficiência de pico do detetor de Si(Li) em função da energia. a-) Dados experimentais e modelo. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela incerteza experimental.

Resultados para o detetor de HPGe

Para o caso do detetor de germânio usado no experimento, todas as grandezas de interesse envolvidas no modelo empregado eram conhecidas previamente e estão apresentadas na tabela 5.5. Assim, o ajuste foi feito apenas para o parâmetro associado ao ângulo sólido da medida.

Atenção especial teve que ser dada neste caso para a janela de alumínio da câmara de irradiação, uma vez que este detetor não foi colocado no vácuo. Para a região de baixa energia, a maior atenuação é por parte do alumínio e por isso sua espessura deve ser bem conhecida e levada em conta também no cálculo da matriz de variâncias e covariâncias dos dados experimentais. No caso deste trabalho, a espessura da janela de alumínio fornecida pelo fabricante teve que ser corrigida devido à deformação que ela sofre ao ser submetida ao vácuo da câmara, e que corresponde nas condições experimentais, a uma correção da ordem de 2% na espessura. Além disso, como todos os dados de eficiência de pico foram obtidos com a mesma janela de alumínio, a covariância entre esses dados teve que ser levada em conta no ajuste.

O resultado obtido para o ajuste foi de $\Omega/4\pi = 7,845(64)10^{-5}$ sendo que o qui quadrado reduzido do ajuste foi de $\chi^2_{red} = 1,28$ com probabilidade de ser excedido de 19%. A figura 5.15 traz os pontos experimentais junto com a curva ajustada e o respectivo gráfico dos resíduos reduzidos.

Tabela 5.5: Dimensões do detetor de germânio e espessura dos absorvedores

Grandeza	Medidas (mm)
Raio do cristal	8,0(1,6)
Espessura do cristal	10(1)
Camada morta de Si	0,002044(16)
Janela de Alumínio [*]	0,04876(97)
Ar	299,5(1,0)
Janela de Berílio	0,254(1)
Plástico	0,03(1)

*corrigida para a deformação pelo vácuo da câmara.

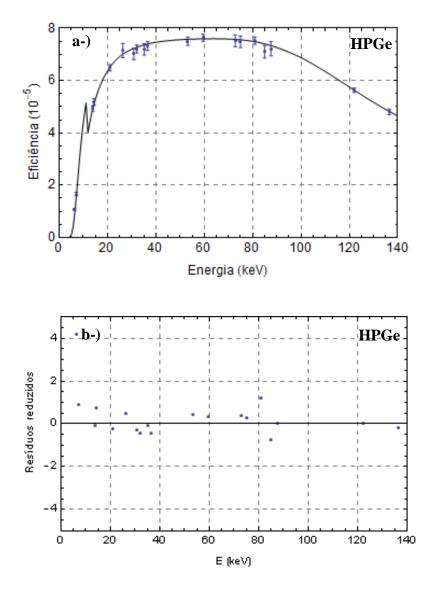


Figura 5.15: Calibração de eficiência de pico do detetor de HPGe em função da energia. a-) Dados experimentais e modelo. b-) Diferença entre o valor ajustado e o experimental, normalizado pela incerteza experimental.

5.3 Calibração da função resposta

Introdução

A função resposta de um detetor representa a probabilidade com que um fóton de energia E' produz um evento registrado no canal do espectro correspondente à energia E. Por meio da função resposta é possível obter o fluxo energético de fótons que deram origem a um

espectro e fazer previsões do número de contagens em um dado canal de um espectro multicanal. Em uma situação ideal, a função resposta é dada por $R(E,E') = \varepsilon(E')\delta(E-E')$, ou seja, em um detetor ideal o fóton incidente com energia E' só produziria efeito no canal do espectro correspondente a essa energia. Uma das dificuldades dessa etapa da calibração é encontrar a função que melhor se ajusta a cada uma das regiões de um espectro, uma vez que algumas destas regiões dependem da faixa de energia do fóton incidente, do detetor e da geometria do arranjo experimental.

Encontram-se na literatura vários trabalhos que tratam da função resposta, ora separados em tipos de detetores como nas referências (52; 69), que tratam da função resposta de detetores de Si(Li) especificamente, e (49; 70; 71), que tratam da função resposta de detetores de HPGe especificamente, ora de forma geral, não especificando a questão do detetor ou da energia como é o caso de (50). Em todos eles, porém, supõem-se que o pico de coleção completa de carga tem forma gaussiana, hipótese que também será usada neste trabalho, tanto no detetor de Si(Li) quanto no detetor HPGe.

Desenvolvimento do método

Para avaliar a resposta utilizada para ambos os detetores foram usados picos de raios X e gama das fontes de calibração 241 Am, 57 Co e 133 Ba.

Detetor de Si(Li)

A resposta usada para o detetor de Si(Li) foi análoga à das referências (42; 43), a gaussiana dada pela expressão 5.2 com o desvio padrão dado pela expressão 5.3. Não foi incluída na resposta a cauda do lado esquerdo do pico, que provém predominantemente de espalhamento a baixo ângulo, coleção incompleta de carga (50) e espalhamento nos arredores da fonte (72; 73), porque essa cauda não aparece de forma significativa nos picos com baixa estatística de contagem, como os obtidos tanto nos espectros irradiados quanto nas fontes de calibração.

Detetor de germânio

Para o detetor de germânio usou-se também uma forma gaussiana. Entretanto, nota-se nos espectros obtidos com esse detetor um degrau nítido à esquerda do pico, de modo que este foi incluído na função resposta, que passou a ser dada pela expressão:

$$R(E, E', \sigma(E'), h) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma(E')} \exp\left(-\frac{(E - E')^2}{2\sigma(E')^2}\right) + h \operatorname{erfc}\left(\frac{E - E'}{\sqrt{2}\sigma(E')}\right)$$
 5. 26

em que σ corresponde a dispersão da gaussiana ajustada ao pico de energia E' e h está relacionado à altura da função degrau e foi calibrado previamente com base nos espectros das fontes de calibração. A segunda parcela da soma é resultado da convolução de uma função degrau com uma gaussiana. Esse modelo de função resposta é uma simplificação do que se usa no programa Hypermet (50) para ajuste de picos, que, além dos fatores acima, leva em conta outros efeitos secundários que são observados nos espectros.

Como a região de interesse de energia deste trabalho está abaixo de 30 keV, para calibração do parâmetro h usou-se os picos de raios X K e o pico de raio gama de 14 keV do 57 Co, o pico de gama de 26 keV do 241 Am e os picos K_{α} e K_{β} que seguem o decaimento do 137 Cs. Os pontos obtidos foram ajustados com uma função constante.

Resultados

A tabela 5.6 traz os qui quadrados reduzidos dos ajustes dos picos de raios X e gama observados com o detetor de Si(Li) referentes à resposta gaussiana, e a figura 5.16, um exemplo de ajuste. A tabela 5.7 traz esses resultados para os espectros obtidos com o detetor HPGe e ajustados com a função resposta dada pela expressão 5.26 e a figura 5.17 um exemplo de ajuste para esse detetor.

Tabela 5.6: Valor do qui quadrado reduzido obtido para os ajustes dos picos de raios gama medidos com detetor de Si(Li) usando uma resposta gaussiana.

Descrição	Energia (keV)	χ^2_{red}
²⁴¹ Am	26,3442(2)	0,89
²⁴¹ Am	59,5409(1)	1,02
⁵⁷ Co	14,41295(31)	1,09
⁵⁷ Co	122,06065(12)	1,09
⁵⁷ Co	136,4735(29)	0,83
¹³³ Ba	53,1622(6)	1,13
¹³³ Ba	80,9979(11)	1,07
¹³³ Ba	79,6142(12)	1,07

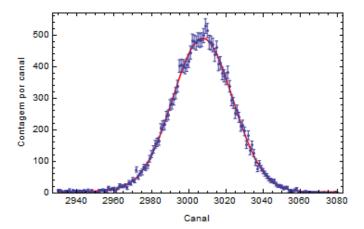


Figura 5.16: Ajuste da forma gaussiana ao pico de 26,34 keV da fonte de calibração ²⁴¹Am obtido com o detetor de Si(Li).

Tabela 5.7: Valor do qui quadrado reduzido obtido para os ajustes dos picos de raios gama medidos com detetor HPGe usando a resposta da expressão 5.26.

Descrição	Energia (keV)	χ^2_{red}
²⁴¹ Am	26,3442(2)	0,95
²⁴¹ Am	59,5409(1)	1,16
⁵⁷ Co	14,41295(31)	0,90
⁵⁷ Co	122,06065(12)	0,94
⁵⁷ Co	136,4735(29)	1,25
¹³³ Ba	53,1622(6)	1,04
¹³³ Ba	80,9979(11)	0,92
¹³³ Ba	79,6142(12)	0,92

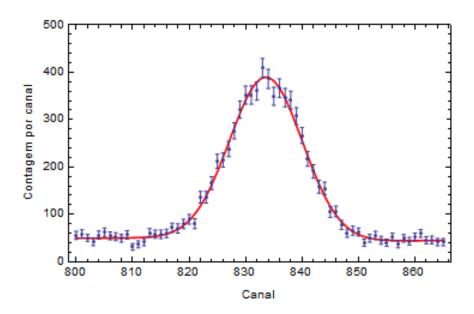


Figura 5.17: Ajuste da forma gaussiana ao pico de 26 keV da fonte de calibração ²⁴¹Am obtido com o detetor de HPGe.

A figura 5.18 traz a calibração da amplitude do degrau h em função da energia junto com a função ajustada, que forneceu h = 0.000312(61) canal⁻¹.

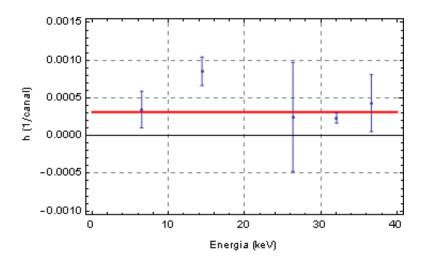


Figura 5.18: Calibração do parâmetro h da expressão 5.26. Os pontos experimentais foram ajustados com uma função constante. Dispersão em energia de 0,031669(2) keV/canal.

5.4 Discussão

As calibrações efetuadas das grandezas dos espectros de energia e dos picos de absorção total com os dados experimentais de fontes de calibração e modelos específicos tiveram sucesso em ambos os detetores usados.

A figura 5.1 mostra que o polinômio do segundo grau descreve bem os dados experimentais de calibração de energia tanto para o detetor de Si(Li) quanto para o detetor de HPGe na faixa de energia analisada.

Para a calibração da dispersão o modelo linear foi satisfatório para descrever os dados do detetor de Si(Li) como mostra a figura 5.2, porém para as medições realizadas com detetor HPGe foi necessário usar um polinômio do segundo grau. Esse resultado pode ser consequência do fato de que as medidas obtidas com o detetor HPGe foram mais longas do que as obtidas com o detetor de Si(Li): no primeiro caso elas chegaram a durar dias enquanto no segundo foram horas. Essas medidas mais longas podem sofrer maior influência de pequenas variações que podem ocorrer tanto no detetor quanto no ganho, necessitando de um polinômio de maior grau para descrevê-las.

Quanto à calibração de eficiência de pico absoluta, o modelo usado neste trabalho junto a análise dos espectros de irradiação dos alvos de tântalo e germânio permitiram uma completa caracterização do detetor de Si(Li) usado, tornando conhecido os valores de espessura da janela de berílio, contato frontal de ouro e camada morta, bem como o raio e a espessura do cristal de Si(Li). Além disso, o modelo de eficiência de pico empregado mostrou-se adequado para descrever os dados obtidos experimentalmente tanto para o detetor de Si(Li) quanto para o detetor de HPGe, incluindo a região abaixo da borda de absorção deste último. Com relação a esta, cabe lembrar que ela está na região de raios X *L* de elementos com alto número atômico, e conforme mostra a figura 5.15, exerce um efeito não desprezível na eficiência de pico do detetor, de modo que este efeito deverá ser levado em conta quando se trabalhar com esses raios X. O uso da função Voigt no ajuste dos parâmetros dos picos de raios X *K* obtidos com o Si(Li) foi de fundamental importância na calibração de eficiência desse detetor.

Para a calibração da função resposta tanto do detetor de Si(Li) quanto do detetor HPGe optou-se por um modelo simples, mas que deu conta do ajuste dos picos, como pode ser visto

nas tabelas 5.6 e 5.7, que apresentam um bom ajuste para todos os picos das fontes de calibração utilizados, tanto no detetor de Si(Li) quanto no de HPGe.

Capítulo 6

Determinação da seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} do elemento Ta

Neste capítulo, mostraremos o método de análise e os resultados obtidos para as seções de choque de produção de raios $X L_{\alpha}$, L_{β} e L_{γ} e para as seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 do elemento tântalo, bem como a comparação destes resultados com o modelo DWBA e com os dados experimentais existentes na literatura.

6.1 Introdução

Quando os elétrons penetram em uma película autossustentável de um dado elemento seguindo uma trajetória retilínea e sem perda de energia, o que é uma boa aproximação quando se trabalha com alvos finos, a seção de choque para a produção de uma linha de raio X pode ser escrita como:

$$\sigma_X(E) = \frac{4\pi}{NtN_o\epsilon(E_{nh})\Delta\Omega}N_X(E)$$
6.1

sendo que N corresponde à densidade de átomos no alvo, t à espessura do alvo, N_e e E correspondem ao número e à energia dos elétrons incidentes, respectivamente, $\epsilon(E_{ph})$ corresponde à eficiência intrínseca do detetor usado na energia da linha de raio X analisada E_{ph} , $\Delta\Omega$ ao ângulo sólido de deteção e $N_x(E)$ à intensidade da linha de raio X considerada. Do ponto de vista prático, o que se conhece experimentalmente é o produto Nt, expresso frequentemente em unidades de g/cm^2 do elemento de interesse do alvo e o produto $\epsilon(E_{ph})\frac{\Delta\Omega}{4\pi}$, que corresponde à eficiência de pico absoluta do detetor na energia E_{ph} .

Conforme mostra a expressão 6.1, para a determinação da seção de choque de uma determinada linha é necessário ter uma boa estimativa do número de contagens, junto com sua respectiva incerteza. A seção seguinte descreve a forma como foram obtidas as amplitudes das linhas de raios X L do tântalo junto a suas respectivas incertezas.

6.2 Ajuste dos picos de raios X L do tântalo

Comparação do ajuste dos picos com a função Voigt e a com a função Gaussiana

Conforme citado no capitulo 2, picos de raios X obtidos com detetores semicondutores são descritos pelo perfil Voigt, que corresponde à convolução de uma gaussiana com uma lorentziana. No capitulo 4 mostrou-se uma situação em que a função Voigt pode ser aproximada com boa precisão por uma gaussiana e outra situação, onde essa aproximação deixa de ser adequada. Para tanto se usou como critério o quociente entre a largura natural da lorentziana e o desvio padrão da gaussiana (21). No caso das linhas de raios X L do tântalo obtidas com o detetor de Si(Li) descrito no capítulo 3, esse quociente é da ordem de 0,04, de modo que se está entre o caso da gaussiana ser uma boa aproximação para a Voigt ($\Gamma/\sigma = 0,01$) e o caso onde essa aproximação deixa de ser adequada ($\Gamma/\sigma = 0,1$).

Para analisar a possibilidade de se aproximar a Voigt pela gaussiana para $\Gamma/\sigma=0.04$, os picos de raios X L_{α} obtidos nas várias irradiações foram ajustados com a função gaussiana e com a função de Voigt, implementada conforme descrito no capitulo 4, e analisou-se as

diferenças no qui quadrado do ajuste com ambas as funções. A tabela 6.1 traz o valor do qui quadrado dos ajustes para todas as irradiações.

Tabela 6.1: Valores do qui quadrado absoluto para o ajuste das linhas L_{α} do tântalo com a função gaussiana e com a função Voigt para as várias energias de irradiação. A função Voigt foi implementada conforme descrito no capítulo 4. O número de graus de liberdade para o ajuste com a gaussiana foi de 242 e com a Voigt de 241, uma vez que esta apresenta um parâmetro a mais a ser ajustado.

Energia (keV)	Gaussiana	Voigt
100	284,6	281,0
90	237,9	237,6
85	218,4	217,9
80	227,2	226,8
75	231,4	231,9
70	242,5	242,7
50	265,5	265,5

No caso do ajuste com a função Voigt aumenta-se um parâmetro a ser ajustado, que corresponde a largura natural da lorentziana, portanto nesta situação se diminui de uma unidade o número de graus de liberdade do ajuste, em relação ao ajuste com a função gaussiana. A tabela 6.1 mostra que diminuir em uma unidade o número de graus de liberdade, exceto para a energia de irradiação de 100 keV, levou a uma mudança de menos de uma unidade no valor do qui quadrado absoluto dos ajustes. Mesmo para o caso da irradiação de 100 keV, onde a diferença foi de 3,6, esse valor não chega a ser considerado como uma melhora significativa para a qualidade do ajuste (29).

Com base nesses resultados, optou-se por ajustar os picos de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} do Ta, figura 6.1, com uma função gaussiana. A forma como esse ajuste foi realizado será detalhada na seção seguinte.

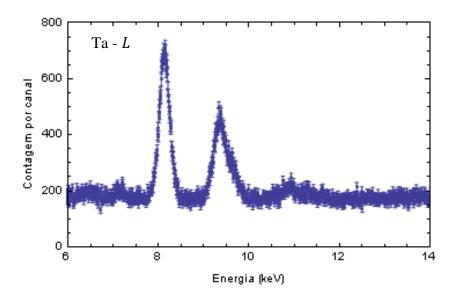


Figura 6.1: Região das linhas L do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV. A calibração de energia é de $E = -0.052 + 0.0088C - 8.20 \cdot 10^{-10}C^2$, com C em canal e E em keV.

Desenvolvimento do método

Os multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} foram ajustados separadamente e para cada um deles foi ajustada a posição do centróide de uma única linha do grupo, com as demais fixas em relação a esse parâmetro. Todas as amplitudes foram deixadas livres nos ajustes realizados.

O grupo L_{α} envolve as linhas $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$, entretanto, as linhas L_{η} e L_{l} estão próximas, figura 6.2, e por isso elas foram ajustadas na mesma rotina. Nesse caso deixou-se como parâmetro livre a posição do centróide da linha $L_{\alpha 1}$, com as demais fixas em relação a esta, nas energias experimentais relacionadas na referência (74):

$$E_{L_{\alpha 2}} = E_{L_{\alpha 1}} - 0.05824$$
 $E_{L_{\eta}} = E_{L_{\alpha 1}} + 0.28192$
 $E_{L_{l}} = E_{L_{\alpha 1}} - 0.97297$

para $E_{L_{\alpha 1}},\,E_{L_{\alpha 2}},\,E_{L_{\eta}}$ e $E_{L_{l}}$ em keV.

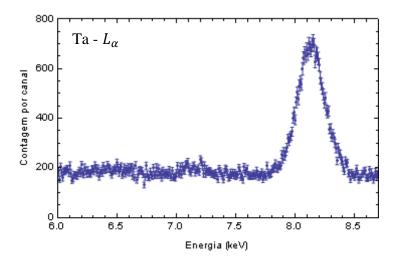


Figura 6.2: Região do multipleto L_{α} junto com as linhas L_{η} e L_{l} do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV. A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10^{-10}C^{2}$, com C em canal e E em keV.

De forma análoga se procedeu para o ajuste do grupo L_{β} , caso em que há uma série de linhas envolvidas no multipleto, das quais as mais intensas permitidas por transições dipolo são $L_{\beta 1}, L_{\beta 2}, L_{\beta 3}, L_{\beta 4}$ e $L_{\beta 6}$, figura 6.3. Para a linha $L_{\beta 6}$, as áreas ajustadas em todas as irradiações foram compatíveis com zero. Devido a isso se optou por fixar essa área em zero e refazer os ajustes somente com as linhas $L_{\beta 1}, L_{\beta 2}, L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 4}$.

Deixou-se como parâmetro livre a posição do centróide da linha $L_{\beta 3}$ e as demais foram fixas em relação a esta com os dados experimentais da referência (74), que forneceram as relações entre as energias:

$$E_{L_{\beta 1}} = E_{L_{\beta 3}} - 0.14443$$

$$E_{L_{\beta 2}} = E_{L_{\beta 3}} + 0.16427$$

$$E_{L_{\beta 4}} = E_{L_{\beta 3}} - 0.27502$$

$$E_{L_{\beta 6}} = E_{L_{\beta 3}} - 0.17222$$

todas em keV.

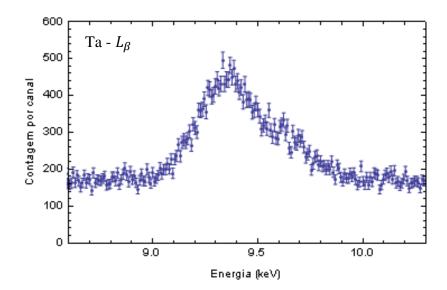


Figura 6.3: Região do multipleto L_{β} do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV. A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10^{-10}C^2$, com C em canal e E em keV.

Por fim, para o grupo L_{γ} , figura 6.4, as linhas ajustadas foram $L_{\gamma 1}, L_{\gamma 2}, L_{\gamma 3}$ e $L_{\gamma 5}$, sendo que se deixou como parâmetro livre a posição do centróide da linha $L_{\gamma 1}$. Os dados da referência (74) forneceram as relações, em keV:

$$E_{L_{\gamma 2}} = E_{L_{\gamma 1}} + 0.32177$$

$$E_{L_{\gamma 3}} = E_{L_{\gamma 1}} + 0.38235$$

$$E_{L_{\gamma 5}} = E_{L_{\gamma 1}} - 0.32473$$

Cabe destacar que, para as energias das linhas do multipleto L_{γ} , há grandes diferenças entre os valores experimentais e os calculados (74). Essas diferenças chegam a 68 eV para o caso da linha $L_{\gamma 1}$, equivalente, a aproximadamente sete canais nos espectros obtidos, o que é muito superior à incerteza experimental, que está em torno de três canais no caso do grupo L_{γ} . Para a linha $L_{\gamma 5}$, que apresenta baixa intensidade, a maioria dos ajustes resultou em uma

amplitude negativa, mas com incerteza tal que essa área era compatível com zero. O procedimento adotado foi fixar em sua posição uma amplitude nula e refazer os ajustes de amplitude somente para as outras três linhas restantes.

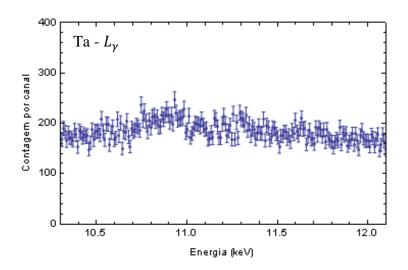


Figura 6.4: Região do multipleto L_{γ} do alvo de Ta irradiado com um feixe de elétrons de 100 keV. A calibração de energia é de $E=-0.052+0.0088C-8.20.10^{-10}C^2$, com C em canal e E em keV.

Como os espectros foram ajustados em canais, os deslocamentos de energia foram transformados em canais usando o coeficiente linear da calibração de energia descrita no capitulo 5: 8,781(5) eV/canal. A gaussiana usada no ajuste é a da equação 5.2, com dispersão dada pela equação 5.3.

A forma gaussiana adotada não é linear em todos os parâmetros. Esse tipo de ajuste costuma apresentar dificuldades, sendo frequentes as situações onde se encontra um mínimo local ao invés de um mínimo global. Para contornar essa situação, usou-se uma estratégia alternativa, análoga à adotada nos ajustes dos parâmetros do detetor de Si(Li), na seção 5.2. Foram fornecidos intervalos possíveis para o valor do parâmetro de posição a ser estimado e para o parâmetro que ajusta o desvio padrão e está relacionado com o ruído estatístico da equação 5.3, n^2 . O parâmetro da dispersão associado ao fator de Fano foi fixado em todos os ajustes com base na calibração prévia, apresentada no capítulo 5. Para cada valor destes intervalos se realizou um ajuste linear apenas para as estimativas dos parâmetros de amplitude

e de fundo. Os parâmetros de posição x_L e n^2 foram determinados com base nas curvas de nível de $Q(n^2, x_L)$, análogo à expressão 5.24, dado pela expressão:

$$Q(n^2, x_L) = (\vec{y} - \vec{\hat{y}})^t V_V^{-1} (\vec{y} - \vec{\hat{y}})$$
6.2

em que \vec{y} corresponde à matriz coluna com os dados de contagem experimental, $\vec{\hat{y}}$ à matriz coluna com os valores de contagem calculados para um dado valor de n^2 e x_L , e V_y corresponde a matriz de variâncias e covariâncias dos dados experimentais.

No caso das linhas pertencentes ao multipleto L_{γ} não foi possível ajustar o parâmetro do desvio padrão relacionado ao ruído estatístico n^2 , devido a pouca estatística desse grupo. Neste caso o procedimento adotado foi usar a estimativa deste parâmetro encontrada quando se ajustou as linhas do multipleto L_{β} .

A qualidade dos ajustes foi avaliada usando o valor do qui quadrado reduzido e a probabilidade do qui quadrado ser excedido. Para a irradiação de 60 keV todos os ajustes dos multipletos, L_{α} , L_{β} e L_{γ} resultaram em um qui quadrado reduzido alto e consequentemente, em uma probabilidade do qui quadrado ser excedido baixa, e por isso essa irradiação foi descartada. Para cada um dos três grupos ajustados, foi calculado o qui quadrado reduzido total, envolvendo todas as energias de irradiação, por meio da expressão:

$$\chi_T^2 = \frac{\sum_E \chi_E^2}{\sum_E ngl_E} \tag{6.3}$$

em que χ_E^2 corresponde ao qui quadrado para o ajuste da irradiação de energia E e ngl_E ao número de graus de liberdade para o correspondente ajuste.

Para a intensidade total de cada multipleto, somaram-se as contagens na região, subtraindo o fundo ajustado correspondente. Cabe lembrar que a estimativa da área do fundo deve ser feita a partir do ajuste deste e não pela soma das contagens na região à direita e à esquerda do pico, uma vez que essa estimativa só é adequada quando o fundo é linear. No

caso do multipleto L_{α} , o número total de contagens no pico está somando também as contagens da linha L_{η} , uma vez que ela está dentro deste multipleto. Esse fato, entretanto, não traz mudanças significativas, uma vez que as contagens na linha L_{η} foram da mesma ordem de grandeza da incerteza das contagens no multipleto L_{α} .

Resultados

As áreas ajustadas para as linhas do multipleto L_{α} bem como suas respectivas incertezas estão apresentadas na tabela 6.2, junto com os dados das linhas L_l e L_{η} . A figura 6.5 mostra as curvas de nível da função de mérito $Q(n^2, x_L)$ do ajuste do multipleto L_{α} para a irradiação de 90 keV e a figura 6.6 a curva ajustada junto aos pontos experimentais para essa irradiação.

Tabela 6.2: Áreas dos picos $L_{\alpha 1}$, $L_{\alpha 2}$, L_{l} e L_{η} obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de quatro gaussianas.

Energia (keV)	$L_{\alpha 1}$	$L_{\alpha 2}$	L_l	L_{η}	Total L_{α}
100	15380(437)	1716(429)	674(107)	129(154)	17582(249)
90	16010(469)	1503(463)	736(120)	326(174)	18224(276)
85	18646(564)	3179(562)	848(149)	0(218)	22314(338)
80	26049(643)	1083(638)	1173(176)	535(256)	28302(398)
75	29769(751)	3299(751)	1267(213)	695(308)	34452(477)
70	14009(533)	1103(534)	764(153)	285(220)	15929(332)
50	17753(605)	2562(607)	691(607)	143(252)	21110(388)

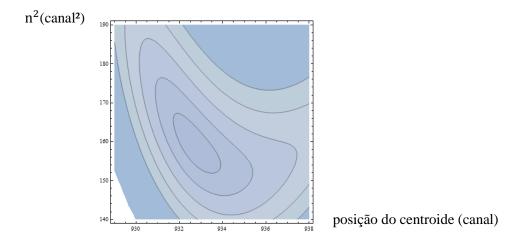


Figura 6.5: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros dos picos da irradiação do alvo de Ta para energia de 100 keV na região do multipleto L_{α} . No eixo horizontal está a posição do centróide da linha $L_{\alpha 1}$ e no eixo vertical o parâmetro n^2 da equação 5.3, cujos valores ajustados foram 932,8 e 159,4, respectivamente.

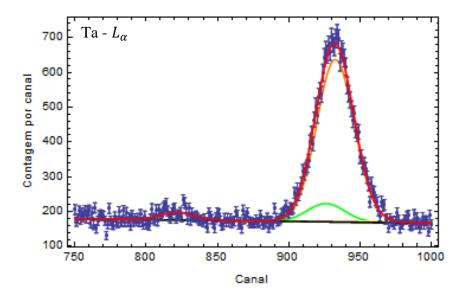


Figura 6.6: Ajuste dos parâmetros do grupo L_{α} junto com as linhas L_{η} e L_{l} do elemento Ta obtido com a irradiação de 100 keV. (Online) A curva laranja corresponde à linha $L_{\alpha 1}$, a curva verde a $L_{\alpha 2}$, a amarela a L_{η} , a roxa a L_{l} , a preta à componente contínua do espectro e a vermelha a soma de todas as linhas. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos correspondem às linhas L_{l} , $L_{\alpha 2}$, $L_{\alpha 1}$ e L_{η} . O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,98 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 58%.

O qui quadrado total de todas as irradiações, calculado com a expressão 6.3, para o ajuste do grupo L_{α} junto com as linhas L_{η} e L_{l} foi de 1,01, com a probabilidade do qui quadrado ser excedida de 38%.

A tabela 6.3 traz as áreas ajustadas para as linhas $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 4}$ pertencentes ao grupo L_{β} junto com suas respectivas incertezas. As figuras 6.7 e 6.8 referem-se ao ajuste dos parâmetros do grupo L_{β} na irradiação de 80 keV e mostram as curvas de nível da função $Q(n^2,x_L)$ e o espectro experimental junto ao ajustado para esta energia, respectivamente.

Tabela 6.3: Áreas dos picos $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 4}$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de quatro gaussianas.

Energia (keV)	$L_{\beta 1}$	$L_{\beta 2}$	$L_{\beta 3}$	$L_{\beta 4}$	Total $L_{oldsymbol{eta}}$
100	7579(314)	2940(173)	1403(267)	1644(221)	13931(272)
90	7995(344)	3391(193)	884(293)	1917(246)	14588(308)
85	9928(441)	4020(248)	2095(385)	1006(314)	17587(377)
80	12928(537)	5300(299)	1651(466)	1559(380)	22138(446)
75	14442(559)	5738(328)	1863(484)	2746(414)	25690(538)
70	14997(558)	6988(319)	1039(485)	1853(401)	25621(489)
50	18802(696)	7329(400)	3601(609)	1945(506)	32871(626)

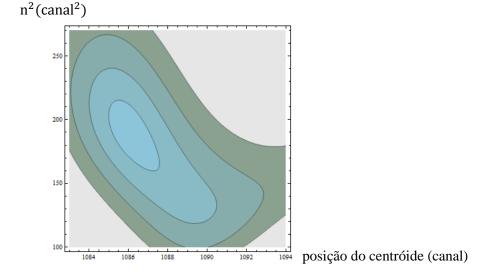


Figura 6.7: Curvas de nível de $Q(n^2, x_L)$, relação 6.2, para o ajuste dos parâmetros dos picos da irradiação do alvo de Ta com elétrons de 80 keV. No eixo horizontal está a posição do centróide da linha $L_{\beta 3}$ e no eixo vertical o parâmetro n^2 da equação 5.3. Os valores ajustados para esses parâmetros foram de 1086,1 e 189,7, respectivamente.

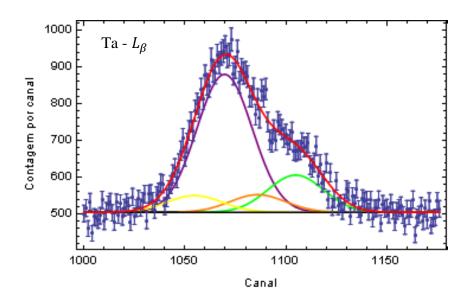


Figura 6.8: Ajuste dos parâmetros do grupo L_{β} do elemento Ta obtido com a irradiação de 80 keV. (Online) A curva roxa corresponde à linha $L_{\beta 1}$, a cor verde a linha $L_{\beta 2}$, a curva laranja a linha $L_{\beta 3}$, a curva amarela a linha $L_{\beta 4}$, a curva preta corresponde à componente contínua do espectro e a vermelha a soma de todas as linhas. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos correspondem as linhas $L_{\beta 4}$, $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 2}$. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 1,14 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 9,7%.

O qui quadrado reduzido total de todas as irradiações para o ajuste do grupo L_{β} , calculado com a expressão 6.3, foi de 1,009 com a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 41%.

Por fim, a tabela 6.4 traz as áreas junto com suas respectivas incertezas para os ajustes realizados no grupo L_{γ} . Conforme já citado, devido à baixa estatística, para esse grupo não foi possível ajustar o parâmetro do desvio padrão n^2 da equação 5.3, com isso o único parâmetro ajustado foi a posição do centróide da linha $L_{\gamma 1}$. A figura 6.9 traz a curva da dependência do qui quadrado com a posição do pico a ser ajustado e que foi usada para determiná-lo, para a irradiação de 85 keV e a figura 6.10 traz os pontos experimentais junto com a curva ajustada.

Tabela 6.4: Áreas dos picos $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio do ajuste de uma função que é soma de três gaussianas.

Energia (keV)	$L_{\gamma 1}$	$L_{\gamma 2}$	$L_{\gamma 3}$	Total L_{γ}
100	1420(120)	0(276)	617(289)	1466(260)
90	1698(146)	1(352)	841(367)	1426(297)
85	1915(179)	323(422)	466(441)	2419(368)
80	2285(214)	35(514)	1232(536)	3062(437)
75	2625(253)	185(579)	566(601)	3889(529)
70	1112(173)	314(391)	0(405)	1219(369)
50	1722(216)	142(512)	439(536)	2129(452)

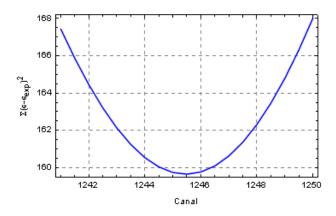


Figura 6.9: Dependência da função de mérito $Q(x_L)$ com a posição da linha $L_{\gamma 1}$ a ser ajustada para o alvo de Ta na irradiação de 85 keV. O valor estimado foi de 1245,5.

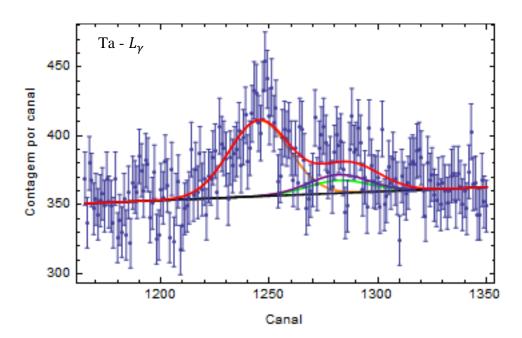


Figura 6.10: Ajuste dos parâmetros do grupo L_{γ} do Ta obtido com a irradiação de 85 keV. (Online) A curva laranja corresponde a linha $L_{\gamma 1}$, a curva verde a linha $L_{\gamma 2}$, a curva roxa a linha $L_{\gamma 3}$, a cor preta corresponde ao fundo e a cor vermelha a soma de todas as linhas. (Impresso) Da esquerda para direita os picos correspondem às linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,89 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 83%.

O qui quadrado reduzido total de todas as irradiações para o ajuste do grupo L_{γ} , calculado com a expressão 6.3, foi de 0,98 com probabilidade de ser excedido de 70%.

Com a finalidade de avaliar a qualidade de todos os ajustes envolvidos nos três grupos, olhou-se para o qui quadrado reduzido do total de ajustes realizados para os grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} , o que resultou em um total de 4130 graus de liberdade. O valor do qui quadrado reduzido nesse caso foi de 1,00075 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido foi de 48%.

6.3 Espessura do alvo irradiado

O alvo de Ta irradiado quebrou-se ao final da irradiação, de modo que sua espessura não pode ser determinada diretamente. Entretanto, conforme descrito no capítulo 3, durante o processo de fabricação há um conjunto de alvos que são evaporados da mesma forma, devendo ter, portanto, a mesma espessura. Para o caso particular do Ta, quatro dos sete alvos preparados por uma evaporação única deveriam ter espessuras semelhantes. Assim, a espessura do alvo irradiado foi tomada como sendo o valor médio das espessuras dos outros três alvos. O valor obtido para a espessura e sua correspondente incerteza, conforme já apresentado na seção 3.1, foi de:

$$5.7(2) \,\mu\text{g/cm}^2 = 1.89(8)10^{16} \,\text{átomos/cm}^2$$
 3.1

6.4 Carga incidente no alvo

Introdução

Para calcular a seção de choque de uma dada linha de raio X é preciso conhecer a quantidade de elétrons que incidem no alvo durante o processo de irradiação. Para o caso de

feixe contínuo como o nosso, a única maneira de se determinar a carga no alvo é por meio do copo de Faraday, conforme descrito no capítulo 3.

Procedimento de obtenção da carga

A medida da carga incidente no alvo foi feita através da carga coletada no copo de Faraday, por meio do procedimento descrito na seção 3.2, a fim de corrigir a divergência que o feixe sofre ao passar pelo alvo, com uma série de dez medidas com e sem alvo, todas com duração de 10 s.

Esses resultados foram usados para corrigir a carga coletada no copo de Faraday em cada irradiação.

Resultados

A tabela 6.5 apresenta os valores da carga incidente no copo de Faraday ao final de cada irradiação e a figura 6.7, o gráfico da fração de carga que o copo de Faraday coleta quando o alvo está presente, obtida pela média dos dez valores do quociente da carga coletada com e sem o alvo para cada energia de irradiação. Com esses dados é possível obter o valor da carga incidente no alvo em cada irradiação.

Tabela 6.5: Carga coletada no copo de Faraday ao final de cada irradiação com as energias identificadas na primeira coluna.

Energia (keV)	Irradiação 1 (10 ⁻⁶ C)	Irradiação 2(10⁻⁶C)
100	3,4408	3,4484
90	3,2077	3,3162
85	3,9021	4,0844
80	4,7928	4,4140
75	5,5944	5,7516
70	4,4758	5,5516
50	4,0824	4,0798

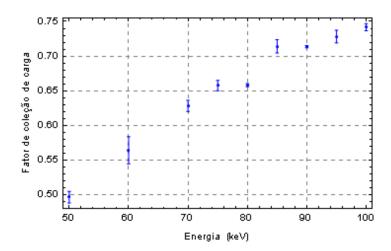


Figura 6.11: Valor médio do quociente entre a carga coletada no copo de Faraday com e sem o alvo para as dez medidas de 10 s feitas de cada situação (com e sem alvo) em cada uma das energias de irradiação.

6.5 Correção para tempo de carga e tempo de espectro

Devido à presença de um tempo morto de deteção de fótons não nulo durante todas as irradiações, o tempo em que o espectro de raios X foi obtido difere, em geral, do tempo de coleção da carga. Essa diferença deve ser levada em conta na análise de modo que os dois, carga e espectro, correspondam ao mesmo fenômeno. Uma maneira de se fazer isso é corrigir as contagens do espectro para o tempo de coleção de carga, ou corrigir a carga para o tempo de coleção do espectro ou tratar os dois como uma corrente de fótons e uma corrente de carga, o primeiro caso sendo o quociente das contagens do espectro pelo tempo em que o espectro foi coletado e o segundo, o quociente entre a carga registrada e o intervalo de tempo em que ela foi medida. Todas essas formas são equivalentes e tem a finalidade apenas de considerar as contagens feitas e a carga coletada no mesmo intervalo de tempo.

Chamando de tempo vivo o tempo de observação dos espectros de raios X e de tempo de relógio o tempo de obtenção das cargas, para se ter equivalência entre ambos, considerouse na expressão 6.1 não a intensidade do pico e o número de elétrons incidentes, mas sim o quociente da intensidade da linha pelo tempo vivo e o quociente do número de elétrons incidentes no alvo pelo tempo de relógio, o que leva à expressão:

$$\sigma_X(E) = \frac{4\pi N_X(E)}{Nt N_e \epsilon(E_{ph}) \Delta \Omega} \frac{T_R}{T_V}$$

$$6.4$$

em que T_R corresponde ao tempo de relógio e T_V corresponde ao tempo vivo.

A diferença entre o tempo vivo e o tempo de relógio se deve ao tempo morto não nulo durante todas as irradiações. Entretanto, verificamos que somente em parte dessa diferença o detetor esteve realmente inativo e não foi capaz de detetar uma carga, o restante se devendo a ruídos inerentes ao sistema de aquisição dos dados que são interpretados pelo instrumento como tempo morto, mas não o inabilitam para a observação de um evento. Segundo as especificações do fornecedor do espectrômetro (75), para o DSPEC usado o tempo morto por pulso é dado por:

$$3 \times (Rise\ time) + 2 \times (Flattop\ Width)$$
 6.5

Durante todas as irradiações com o alvo de Ta o *rise time* do detetor foi mantido em $4.0 \, \mu s$ e o *flattop width* em $1.0 \, \mu s$. A figura $6.12 \, traz$ um esquema do pulso, identificando o *rise time (RT)* e o *flattop width (FT)*. Convém notar que esse pulso V(t) esquematizado é puramente numérico, resultado de integração e diferenciação numérica do pulso do préamplificador digitalizado em alta frequência, ou seja, em nenhum circuito eletrônico circula um pulso como o que está esquematizado na figura 6.12. Multiplicando o resultado da expressão $6.5 \, \text{pela}$ quantidade de pulsos registrados no espectro durante toda a medida se obtém o intervalo de tempo em que o detetor não pode coletar nenhuma carga.

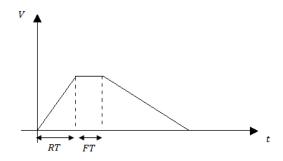


Figura 6.12: Esquema do pulso V(t) resultado da integração e diferenciação numérica do pulso do pré-amplificador digitalizado em alta frequência, evidenciando o rise time (RT) e o flattop width (FT).

O procedimento adotado foi definir um "tempo vivo deduzido" que corresponde à diferença entre o tempo de relógio e o intervalo de tempo em que o detetor esteve inativo. O tempo vivo final foi considerado como sendo a média entre o tempo vivo do instrumento e o "tempo vivo deduzido" e a incerteza desse tempo vivo final foi estimada pela diferença entre o tempo vivo deduzido e o tempo vivo final dividido por quatro. O tempo de relógio foi suposto ter incerteza nula. A tabela 6.6 apresenta os valores finais do tempo vivo e do tempo de relógio usados em cada irradiação, junto com suas respectivas incertezas.

Tabela 6.6: Valores usados para o tempo vivo e o tempo de relógio do espectrômetro na expressão 6.5. O valor do tempo vivo foi deduzido com base nas especificações do fornecedor (75) para o tempo morto do digitalizador (DSPEC). O tempo de relógio foi suposto com incerteza nula. Todas essas medidas foram obtidas com um tempo vivo prefixado em 600 s.

	Irradiação 1		Irradiação 2	
Energia (keV)	$t_R(s)$	$t_V(s)$	$t_R(s)$	$t_V(s)$
100	635,36	601,11(56)	635,66	601,12(56)
90	638,00	601,19(59)	639,32	601,24(62)
85	651,32	601,81(91)	653,16	601,91(96)
80	667,52	602,7(1,3)	662,52	602,4(1,2)
75	682,02	603,7(1,8)	684,42	603,8(1,9)
70	668,98	602,7(1,3)	644,36	602,2(1,1)
50	630,88	600,34(17)	631,00	600,35(18)

6.6 Resultados

Os valores de intensidade dos picos, número de elétrons incidentes no alvo e espessura descritos nas seções 6.2, 6.3 e 6.4 junto ao modelo de eficiência de pico absoluta descrito no capítulo 5 foram usados na expressão 6.4 para obter as seções de choque de produção de raios X para as linhas $L_{\alpha 1}$, $L_{\alpha 2}$, L_{l} , $L_{\eta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$, $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$, bem como para obter a seção de choque de produção de raios X para os grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} .

As figuras de 6.13 a 6.23 apresentam os resultados experimentais para as seções de choque de produção de raios X das linhas $L_{\alpha 1}$, $L_{\alpha 2}$, L_{l} , $L_{\eta 1}$, $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$, $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$. Em todos os casos é feita a comparação com os cálculos teóricos com base na aproximação de Born de ondas distorcidas (26; 27), usando para isso as equações 2.46 a 2.54 e os parâmetros atômicos: *yields* fluorescentes ω_{i} e coeficientes de Coster-Kronig f_{ij} obtidos da referência (19), probabilidades de transições da camada L para a camada K, obtidas das referências (28; 76) e probabilidades de transições entre as subcamadas da camada L, obtidas da referência (77). Na tabela 6.7 apresenta-se o quociente σ_{Ll}/σ_{La} para todas as energias irradiadas.

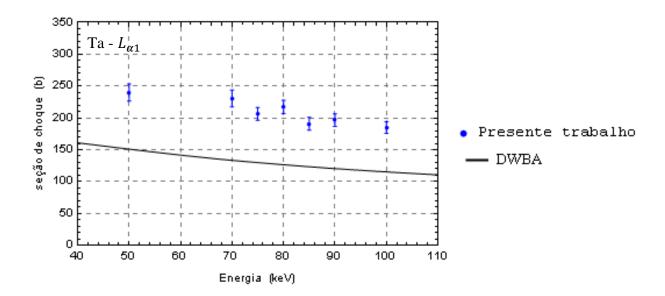


Figura 6.13: Resultados da seção de choque de produção de raios X $L_{\alpha 1}$ para o elemento Ta em função da energia do feixe de elétrons. Os pontos azuis correspondem aos resultados deste trabalho e a linha preta aos cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27).

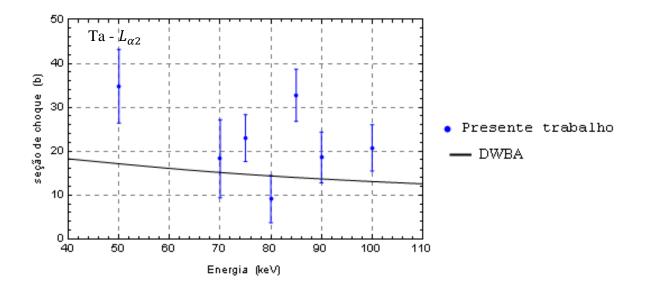


Figura 6.14: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\alpha 2}$.

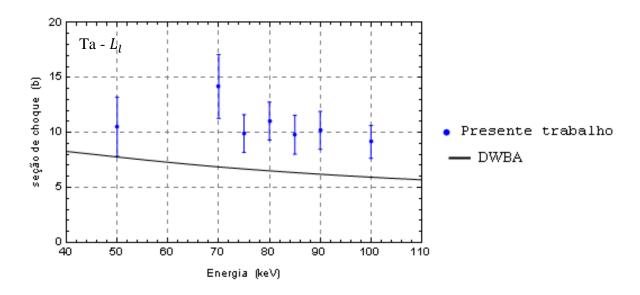


Figura 6.15: Mesmo que a figura 6.13, para raios $X L_l$.

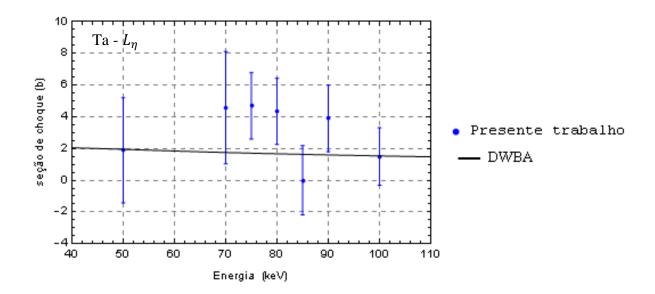


Figura 6.16: Mesmo que a figura 6.13, para raios $X L_n$.

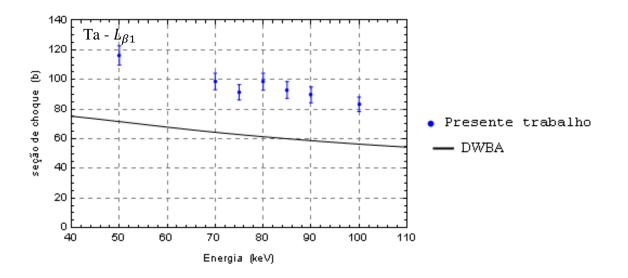


Figura 6.17: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\beta 1}$.

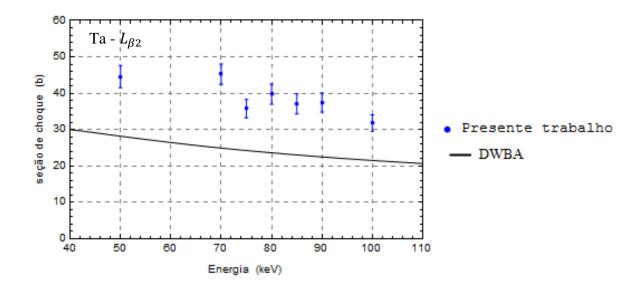


Figura 6.18: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\beta 2}$.

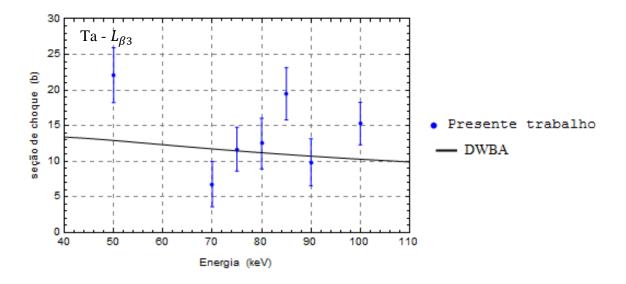


Figura 6.19: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\beta 3}$.

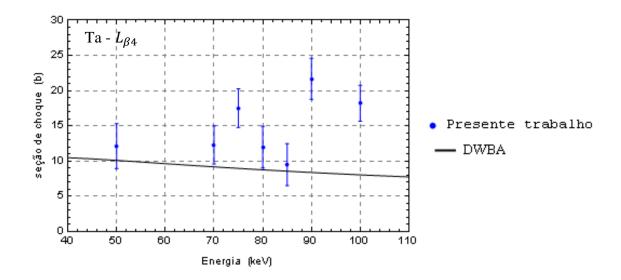


Figura 6.20: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\beta 4}$.

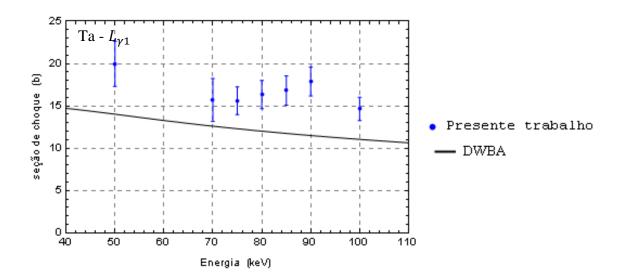


Figura 6.21: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\gamma 1}$.

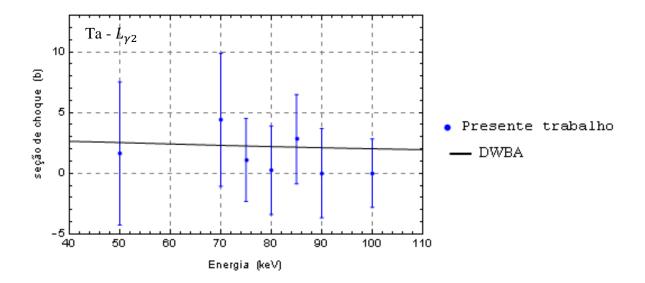


Figura 6.22: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\gamma 2}$.

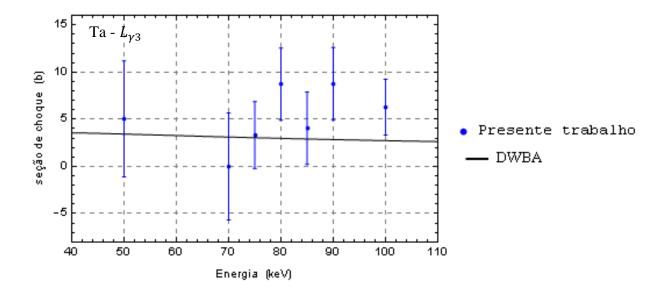


Figura 6.23: Mesmo que a figura 6.13, para raios X $L_{\gamma 3}$.

Tabela 6.7: Quociente entre as seções de choque de produção de raios X σ_{Ll} e $\sigma_{L\alpha}$ para cada uma das energias irradiadas. O valor obtido a partir dos resultados da referência (77) para esse quociente é de 0,0462(1).

Energia (keV)	$\sigma_{L_l}/\sigma_{L_lpha}$
100	0,043(7)
90	0,045(8)
85	0,043(8)
80	0,046(7)
75	0,041(7)
70	0,054(11)
50	0,036(9)

A tabela 6.8 traz os valores obtidos para a seção de choque de produção de raios X para os multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} junto com suas respectivas incertezas e as figuras 6.24, 6.25 e 6.26 os gráficos desses dados junto com os cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e com os únicos dados experimentais encontrados na literatura para o elemento Ta (10; 78).

Tabela 6.8: Seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para o elemento Ta. O número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor, em unidades do dígito menos significativo.

Energia (keV)	$\sigma_{L_{\alpha}}(10^2 \mathrm{\ b})$	$\sigma_{L_{eta}}(10^2\mathrm{b})$	$\sigma_{L_{\gamma}}(10^{1}\mathrm{b})$
100	2,12(9)	1,53(7)	1,5(3)
90	2,25(10)	1,63(8)	1,5(3)
85	2,29(10)	1,64(8)	2,1(3)
80	2,37(10)	1,68(8)	2,2(3)
75	2,40(11)	1,62(8)	2,3(3)
70	2,63(13)	1,68(8)	1,7(5)
50	2,86(14)	2,03(9)	2,5(5)

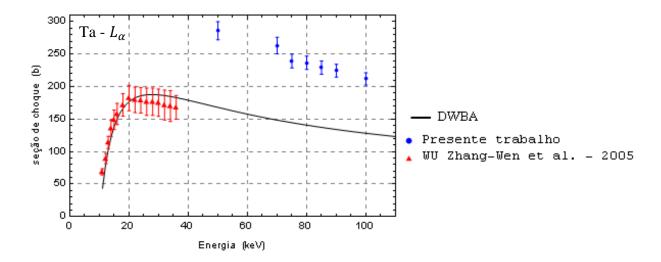


Figura 6.24: Seção de choque de produção de raios X para o grupo L_{α} do Ta. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e os pontos vermelhos (triângulos) representam os dados da referência (10).

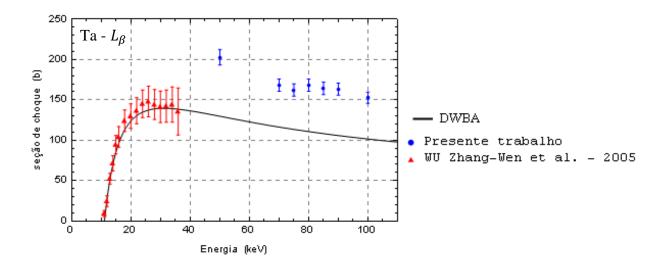


Figura 6.25: Mesmo que 6.24, para o grupo L_{β} do Ta.

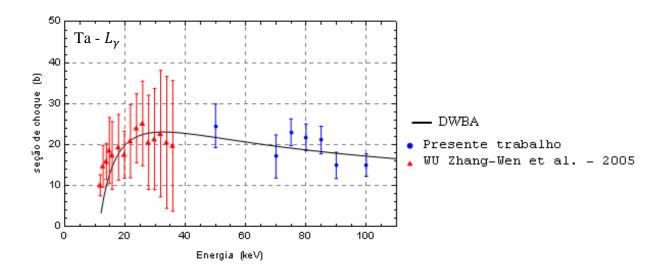


Figura 6.26: Mesmo que 6.24, para o grupo L_{γ} do Ta.

As figuras 6.13, 6.15 e 6.16 mostram que o procedimento empregado para o ajuste do multipleto L_{α} permitiu separar as linhas $L_{\alpha 1}$, L_{l} e L_{η} com boa precisão, o mesmo ocorrendo para as linhas $L_{\beta 1}$ e $L_{\beta 2}$ do grupo L_{β} e para a linha $L_{\gamma 1}$ do grupo L_{γ} , como mostram as figuras 6.17, 6.18 e 6.21. No caso das linhas $L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 4}$ não foi possível separá-las com boa precisão como mostram as figuras 6.19 e 6.20. A tabela 6.7 mostra que o quociente $\sigma_{L_{l}}/\sigma_{L_{\alpha}}$ é constante, considerando as barras de erro, para todas as energias de irradiação, e compatível com o valor obtido a partir dos resultados da referência (77).

Para as seções de choque de produção de raios X dos multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} , as incertezas relativas foram da ordem de 4%, 5% e 19%, respectivamente, sendo que a incerteza deste último foi maior, sobretudo, devido baixa estatística dos espectros. No caso da seção de choque de produção de raios X L_{l} , a incerteza é da ordem de 19% e, para a linha L_{η} , de 56%. Cabe destacar que para estas duas últimas não foi encontrado nenhum dado na literatura na faixa de energia deste trabalho.

Os dados obtidos para o Ta foram comparados com os da referência (10). Nesse trabalho as medidas são realizadas com um detetor de Si(Li) com resolução de 180 eV em 5,9 keV. A faixa de energia dos elétrons vai de 11 a 35 keV. O alvo consiste de um filme fino de Ta depositado sobre um substrato grosso de carbono, sendo a espessura do primeiro de 19,7 µg/cm² e do segundo de 4,07 mg/cm². As correções devido ao uso do substrato grosso foram feitas com base no modelo de bipartição do transporte de elétrons (15). Os dados dessa

referência apresentam incertezas da ordem de 10% para o multipleto L_{α} , de 16% para L_{β} e de 47% para L_{γ} .

Observando as figuras 6.24, 6.25 e 6.26 nota-se que os resultados deste trabalho estão aproximadamente 70% acima dos cálculos baseados no modelo DWBA para o grupo L_{α} , para o grupo L_{β} eles estão cerca de 40% acima, e no caso do grupo L_{γ} eles são consistentes.

Comparando os dados deste trabalho com os resultados da referência (10), nota-se que para os multipletos L_{α} e L_{β} eles ficam acima, e para o grupo L_{γ} , todos os pontos são consistentes, dentro das barras de erro.

6.7 Seção de choque das subcamadas L_1 , L_2 e L_3

Introdução

As expressões de 2.44 até 2.54 do capítulo 2 relacionam a seção de choque de produção de raios X com a seção de choque de ionização de cada uma das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , sendo que os coeficientes envolvidos nas expressões são o *yield* fluorescente de cada uma das subcamadas envolvidas, os coeficientes de Coster-Kronig, as taxas de transição entre as subcamadas da camada L e as taxas de transição entre as camadas L e K. Em todas essas expressões, as seções de choque de ionização atômica das subcamadas aparecem com uma dependência linear nos parâmetros, de modo que o MMQ pode ser usado para determiná-las e garante as propriedades ótimas de não tendenciosidade e variância mínima.

Usou-se o MMQ com a matriz de planejamento construída com base nessas expressões para determinar a seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , conforme apresentado na seção 2.3. A incerteza nos parâmetros atômicos foi propagada e adicionada de forma quadrática às incertezas dos dados experimentais. A seção seguinte descreve a metodologia empregada no ajuste.

Desenvolvimento do método

A seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 foi estimada usando-se a expressão 2.56 com a matriz de planejamento X construída com base nas equações 2.44 – 2.54. Os parâmetros atômicos que entraram na matriz X, entretanto, apresentam incertezas que devem ser propagadas para as incertezas dos parâmetros ajustados. Isso foi feito por meio da expressão:

$$V_f = V_{\vec{o}} + F V_p F^t \tag{6.6}$$

sendo que V_p é a matriz de variâncias e covariâncias dos parâmetros atômicos, $V_{\vec{a}}$ é a matriz de variâncias e covariâncias dos parâmetros ajustados, dada pela expressão 2.57, e F é a matriz retangular com as derivadas da seção de choque de ionização atômica da subcamada i em relação a cada um dos parâmetros atômicos envolvidos, sendo que estas derivadas foram calculadas numericamente. As estimativas das incertezas das seções de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 foram obtidas por meio da expressão 6.6.

Os valores dos *yields* fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o Ta, junto com suas respectivas incertezas, foram obtidos da referência (19) e estão apresentados na tabela 6.9. Os valores para as intensidades das transições radiativas foram obtidos da referência (76) e estão apresentados na tabela 6.10. Os valores para as intensidades das transições Auger foram interpolados da referência (28) e estão apresentados na tabela 6.11. As incertezas dos dados da referência (76) são da ordem de 2% (20) e a fração da contribuição Auger (segunda parcela das expressões 2.41, 2.42 e 2.43) apresenta incerteza da ordem de 15% (28). A tabela 6.12 traz os valores finais das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 junto com suas respectivas incertezas. Os valores para as intensidades das transições radiativas entre as subcamadas da camada *L* junto com suas respectivas incertezas foram obtidos da referência (77) e são apresentados na tabela 6.13.

Tabela 6.9: Valores dos *yields* fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o elemento Ta obtidos da referência (19).

Parâmetros	Z = 73	Incertezas
ω_1	0,137	15%
ω_2	0,258	5%
ω_3	0,243	5 a 3%
f_{12}	0,18	20%
f_{13}	0,28	10 - 5%
f_{23}	0,134	15%
f'_{13}	0,0026	-

Tabela 6.10: Taxas de emissão das transições radiativas da camada L para a camada K para o elemento Ta em unidades de eV/ \hbar por decaimento de elétrons da camada p. Os dados foram obtidos da referência (76).

Transição	Z = 73
KL2	10,36
KL3	18,06
Total	35,85

Tabela 6.11: Intensidades de transições Auger da camada L para a camada K para o elemento Ta em unidades de eV/\hbar . Os dados foram obtidos da referência (28).

Transições	Z = 73
KL1L1	0,0680242
KL1L2	0,0730701
KL1L3	0,143191
KL2L2	0,0103425
KL2L3	0,245954
KL3L3	0,138418
Total	0,679

Tabela 6.12: Intensidades das transições da camada *L* para a camada *K* obtidos com os dados das tabelas 6.9 e 6.10 por meio das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 para o elemento Ta.

Transições	Z = 73
nKL1	0,0096(14)
nKL2	0,2929(67)
nKL3	0,513(11)

Tabela 6.13: Intensidades das transições entre as subcamadas da camada L para o elemento Ta em unidades de eV/ \hbar . Os valores foram obtidos da referencia (77). A incerteza apresentada pela referência para esses valores é de 0,2%.

Transição	Z = 73
$L_3 - M_5$	0,8506
$L_3 - M_4$	0,09655
L_3-M_1	0,04378
$L_2 - M_1$	0,02928
L_2-M_4	1,074
$L_3 - N_5$	0,1588
$L_1 - M_3$	0,3154
$L_1 - M_2$	0,2465
L_2-N_4	0,2102
$L_1 - N_2$	0,06176
$L_1 - N_3$	0,08386
Total L ₁	0,74387
Total L ₂	1,326874
Total L ₃	1,1838513

Resultados

A tabela 6.14 traz os valores obtidos para as seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 do Ta junto com suas respectivas incertezas e as figuras 6.27, 6.28 e 6.29 comparam esses resultados com os cálculos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e com os únicos dados experimentais encontrados na literatura (79).

Tabela 6.14: Seção de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 para o elemento Ta. O número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor.

Energia (keV)	$\sigma_{L_1}(10^2\mathrm{b})$	$\sigma_{L_2}(10^2 \mathrm{b})$	$\sigma_{L_3}(10^2 \mathrm{b})$
100	3,21(61)	3,26(31)	8,83(61)
90	3,06(62)	3,76(34)	9,82(67)
85	2,74(60)	3,84(35)	9,81(67)
80	2,44(57)	4,06(35)	10,71(70)
75	2,77(57)	3,73(33)	10,13(66)
70	1,86(49)	4,26(35)	12,37(79)
50	3,3(1,8)	4,94(77)	12,09(1,1)

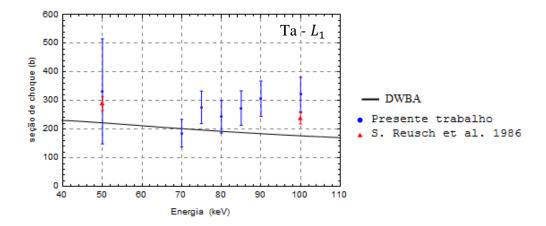


Figura 6.27: Seção de choque de ionização da subcamada L_1 para o Ta. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27) e os pontos vermelhos (triângulos) os dados da referência (79).

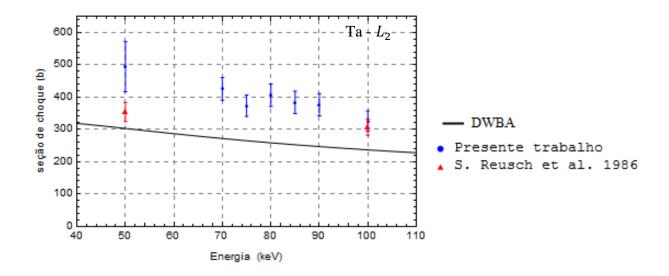


Figura 6.28: Mesmo que 6.27, para subcamada L_2 .

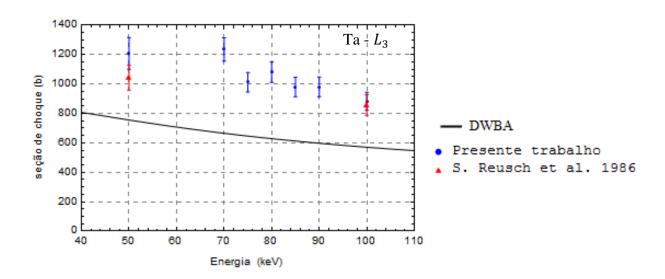


Figura 6.29: Mesmo que 6.27, para subcamada L_3 .

As incertezas das seções de choque das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 ajustadas foram da ordem de 16%, 7% e 5%, respectivamente, sem levar em conta as incertezas dos parâmetros atômicos. Com a propagação das incertezas desses últimos as incertezas para subcamadas L_1 , L_2 e L_3 passam para 22%, 10% e 7%, respectivamente.

Para a subcamada L_1 os dados são distantes do modelo não só quantitativamente, mas também qualitativamente no que se refere à forma da curva descrita por eles. Esses dados, entretanto, são afetados por incertezas grandes, uma vez que a seção de choque de ionização

da subcamada L_1 é determinada principalmente pelas linhas $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ que não foram resolvidas com boa precisão. Para a subcamada L_2 os dados ficaram cerca de 60% acima do modelo DWBA e para a subcamada L_3 cerca de 64% acima. Para as três subcamadas, entretanto, os dados foram consistentes com os da referência (79), cujas medidas apresentam incertezas da ordem de 9% para L_1 e de 8% para L_2 e L_3 .

6.8 Discussão

Neste capítulo, apresentamos os resultados experimentais do alvo de Ta para as seções de choque de produção de raios X dos grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} bem como para as linhas mais intensas de cada um desses multipletos: $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$ para o grupo L_{α} ; $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$ para o grupo L_{β} ; e $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ para o grupo L_{γ} e para as linhas L_{l} e L_{η} . Também foram apresentadas as seções de choque de ionização das subcamadas L_{1} , L_{2} e L_{3} para este elemento.

Conforme foi apresentado na seção 6.2 para os espectros obtidos com o detector empregado não foi necessário o ajuste com a função Voigt, entretanto, caso os espectros apresentassem maior estatística de contagem ou tivessem sido obtidos com detetor de melhor resolução, como o novo detetor do laboratório (aproximadamente 130 eV na energia de 5,9 keV), o ajuste com a função Voigt seria necessário. Os espectros de emissão de raios X foram ajustados com uma forma gaussiana, sendo que em cada multipleto foi ajustado a posição de um único centróide, as demais sendo fixas em relação a esta. Todas as amplitudes foram deixadas livres nos ajustes. O procedimento empregado apresentou resultado satisfatório, uma vez que o qui quadrado reduzido de todos os ajustes realizados, que envolveu 4130 graus de liberdade, foi de 1,00075 e apresentou uma probabilidade de qui quadrado ser excedido de 48%. Uma das dificuldades associada aos ajustes das linhas foi a baixa estatística, principalmente na região do multipleto L_{γ} , não permitindo ajustar as linhas $L_{\gamma 44'}$ e $L_{\gamma 5}$, que correspondem as transições $L_1 - O_{3,2}$ e $L_2 - N_1$, respectivamente.

O número de elétrons incidentes no alvo foi obtido por meio da carga coletada no copo de Faraday, fazendo a devida correção para a dispersão do feixe ao passar pelo alvo. Também

foi feita a correção do tempo vivo, com base nas informações fornecidas pelo manual do DSPEC para o tempo morto do detetor.

Os resultados obtidos apresentaram incertezas da ordem de 4%, 5% e 19% para os multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} , respectivamente. Quando comparados com a aproximação de Born de ondas distorcidas, os resultados ficaram substancialmente acima nos grupos L_{α} e L_{β} , sendo que essa diferença é maior no caso do grupo L_{α} . Para o grupo L_{γ} os resultados foram consistentes com a DWBA.

Usando o MMQ foi possível obter a seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 a partir dos dados de seção de choque de produção de raios X, sendo que elas foram determinadas com incertezas da ordem de 22%, 10% e 7% para as subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , respectivamente. Quando não se leva em conta a incerteza dos parâmetros atômicos, essas incertezas são de 16%, 7% e 5%, para as subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , respectivamente, deixando claro que melhoras nas medidas de seções de choque de ionização atômicas requerem medidas dos parâmetros atômicos mais precisas.

A incerteza para a seção de choque de ionização da subcamada L_1 foi cerca de três vezes superior a das outras subcamadas. Uma das justificativas para este resultado vem do fato de que as principais linhas envolvidas na seção de choque dessa subcamada, a saber, $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ foram as linhas separadas com pior precisão, além disso, dos três *yields* fluorescentes das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 , ω_1 é o que apresenta maior incerteza, sendo ela da ordem de 15%.

Capítulo 7

Determinação da seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} do elemento Au

Neste capitulo serão apresentados o método de análise e os resultados obtidos para as seções de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} do ouro e a seção de choque de ionização das subcamadas atômicas L_1 , L_2 e L_3 desse elemento, bem como a comparação dos resultados com o modelo DWBA e com os dados experimentais existentes.

7.1 Introdução

As seções de choque das linhas L_{α} , L_{β} e L_{γ} do ouro foram obtidas da mesma maneira usada no caso do tântalo, por meio da expressão 6.4. Optou-se, entretanto, por fazer a apresentação destes resultados em um capítulo separado porque as medidas foram realizadas com arranjos experimentais diferentes, com geometrias e detetores distintos. Enquanto para o Ta foi usado um detetor de Si(Li), para o ouro se usou um detetor de HPGe, de modo que a metodologia de ajuste dos picos de raios X foi diferente para os dois casos. A seção seguinte descreve a forma como foram obtidas as áreas das linhas de raios X L do ouro.

7.2 Ajuste dos picos de raios X L do ouro

Comparação do perfil Voigt com o Gaussiano

Para avaliar a possibilidade de aproximar por uma forma gaussiana os picos das linhas de raio X L do Au obtidos com o detetor de germânio descrito nos capítulos 3 e 5 se usou o mesmo critério apresentado na seção 6.2 para o alvo de Ta. Nesse caso, a razão entre a largura natural da lorentziana e o desvio padrão da gaussiana, resposta do detetor, Γ/σ , calculado na energia do pico L_{α} do ouro é de 0,028, que está mais próximo da região onde a aproximação da Voigt pela gaussiana é considerada adequada, conforme discutido no capítulo 4. A cargo de avaliar essa aproximação, os picos de raios X L_{α} do Au foram ajustados com a função gaussiana e com o perfil Voigt. A tabela 7.1 traz os valores do qui quadrado absoluto dos ajustes com ambas as funções para todas as energias irradiadas.

Tabela 7.1: Valores do qui quadrado absoluto para os ajustes dos parâmetros das linhas L_{α} do Au com a função gaussiana e com a função Voigt para as várias energias de irradiação. A função Voigt foi implementada conforme descrito no capítulo 4. O número de graus de liberdade foi de 86 para o ajuste com a gaussiana e de 85 para o ajuste com a Voigt.

Energia (keV)	Gaussiana	Voigt
100	99,3	100,7
90	94,7	95,5
80	79,2	78,2
70	74,0	74,6
65	75,7	76,3
60	116,1	115,7
55	103,9	104,3
50	68,4	67,1

Os valores da tabela 7.1 mostram que também para o caso do Au na energia do pico L_{α} diminuir de uma unidade o número de graus de liberdade do ajuste fez o qui quadrado absoluto variar de no máximo 1,4, que não chega a ser considerada uma melhora significativa na qualidade do ajuste (29). Com base nesses resultados optou-se por ajustar os picos de raios X dos multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} , figura 7.1, com uma função gaussiana. A forma como esse ajuste foi realizado será detalhada na seção seguinte.

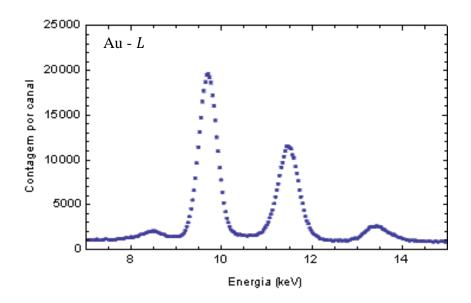


Figura 7.1: Multipleto L do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 keV. A dispersão em energia é de 32 eV/canal.

Desenvolvimento do método

Ajuste dos parâmetros da componente contínua do espectro

O ajuste dos parâmetros dos espectros de raios X pode ser dividido em duas partes, uma relacionada à forma dos picos de raios X e outra, à da componente contínua do espectro, que devem ser convolucionadas com a resposta do detetor. No caso de espectros obtidos com detetores HPGe, uma prática comum na literatura é ajustar o fundo com um polinômio do primeiro ou do segundo grau (50). Entretanto, na região de interesse deste trabalho, de 7,5 a 14 keV aproximadamente, a forma do espectro de fundo, figura 7.2, depende de duas características, uma que vem do *bremsstrahlung* e que cresce na região de baixa energia e outra, que vem da eficiência do detetor de germânio, cuja energia da borda de absorção *K* é de

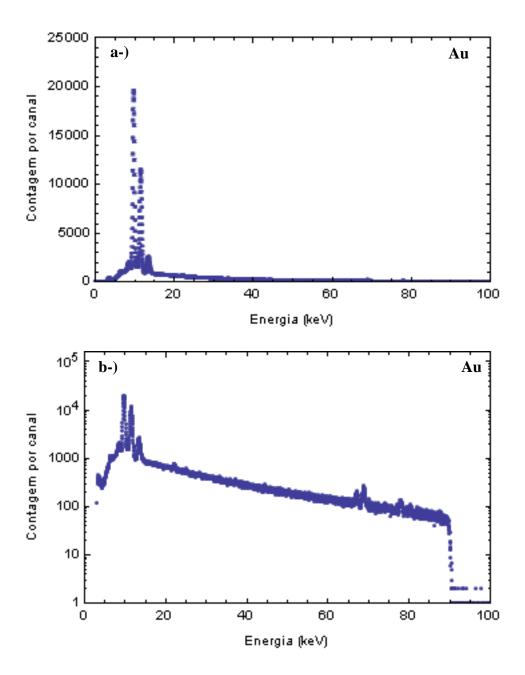


Figura 7.2: a-) Espectro do alvo de Au irradiado com um feixe de 90 keV. b-) Mesmo que em a-), mas com destaque para a componente contínua do espectro. A dispersão em energia é de 32 eV/canal.

11,1 keV, gerando uma descontinuidade na eficiência do detetor neste ponto, como pode ser visto na figura 5.15. Embora nenhuma das linhas de raios X do Au tenha energia exatamente igual à da borda de absorção K do germânio, esse efeito deve ser levado em conta no ajuste dos parâmetros da parte continua do espectro, uma vez que este é contínuo e, portanto, passa por essa energia. A figura 7.3 apresenta o espectro de um alvo de carbono, com espessura de

aproximadamente 20 μg/cm², irradiado com energia de 50 keV na região de descontinuidade da eficiência de pico do detetor. Como não há picos de raios X para esse caso é possível observar a influência no espectro de fundo da descontinuidade da curva de eficiência na energia da borda de absorção do germânio.

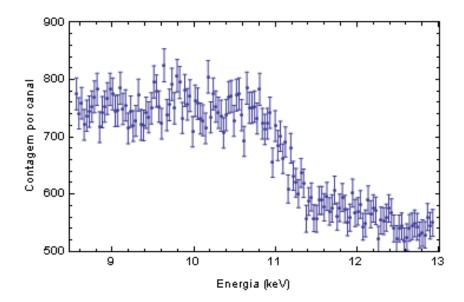


Figura 7.3: Espectro de um alvo de carbono irradiado com um feixe de elétrons de 50 keV na região da borda de absorção *K* do germânio. A dispersão em energia é de 32 eV/canal.

A fim de dar conta tanto do *bremsstrahlung* quanto da eficiência o modelo proposto para ajustar a componente contínua do espectro foi:

$$y(E, E_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} (\phi(E')e(E'))R(E, E', \sigma(E_0), h)dE' + a + b(E - E_0)$$
 7.1

sendo que E_0 corresponde à energia do ponto central na região de ajuste, a e b são os coeficientes do polinômio linear a ser ajustado, $R(E,E',\sigma(E_0),h)$ corresponde à função resposta do detetor, dada pela expressão 5.26, $\sigma(E_0)$ à dispersão da gaussiana calculada no ponto E_0 calibrado conforme descrito na seção 5.1, e(E') à eficiência do detetor, obtida por meio da expressão 5.12 e $\phi(E') = \frac{1}{E'}$.

A primeira parcela da expressão 7.1 foi introduzida para dar conta do *bremsstrahlung*, representado pelo termo $\phi(E')$, da descontinuidade da eficiência e(E') e da resposta gaussiana do detetor $R(E,E',\sigma(E_0),h)$. Para escolher a função $\phi(E')$ que levasse em conta o *bremsstrahlung* foram feitos ajustes com as funções $\frac{1}{E'}$, $\frac{1}{E'^2}$ e $\frac{1}{\sqrt{E'}}$, com o intuito de avaliar a influência do expoente da função no ajuste. Entretanto, os ajustes obtidos apresentaram qui quadrados absolutos com diferenças menores do que um, de modo que se optou pela forma mais simples $\frac{1}{E'}$, que é a esperada pela expressão 2.59 e usada na expressão 2.61. A eficiência e(E') na expressão 7.1 foi apresentada no capítulo 5.

Para o ajuste do fundo dos grupos L_{α} e L_{β} foi somado à expressão 7.1 a contribuição do escape K_{α} e K_{β} do germânio obtida por meio da expressão 5.14.

Na região do multipleto L_{γ} , a componente contínua do espectro não apresenta grandes variações devido ao *bremsstrahlung*, uma vez que ele está em uma região de maior energia, e a eficiência não apresenta mais nenhuma descontinuidade, de modo que foi utilizado simplesmente um polinômio do segundo grau para ajustá-lo.

Ajuste dos picos

Cada um dos três multipletos foi ajustado separadamente, sendo que as linhas L_l e L_η foram ajustadas na mesma rotina do multipleto L_α . Devido a resolução insuficiente do detetor na região de interesse, 452 eV na energia de 5,9 keV, e também a forma mais complicada do fundo nesta região, não foi possível separar as linhas $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$ do multipleto L_α e as linhas $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$ e $L_{\beta 4}$ do multipleto L_β . Já para o multipleto L_γ foi possível separar as linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$, usando para tanto a mesma metodologia empregada no capítulo 6 para ajuste dos picos do Ta, conforme será descrito logo abaixo. Em todos os ajustes realizados as amplitudes foram deixadas livres.

Para o multipleto L_{α} junto com as linhas L_{l} e L_{η} apresentado na figura 7.4, ajustou-se os parâmetros de uma função que é soma de seis gaussianas mais o fundo dado pela expressão 7.1, sendo que duas dessas gaussianas foram incluídas para dar conta dos pequenos picos de raios X K_{α} e K_{β} do cobre, material de que era constituído o colimador do detetor, conforme

descrito no capítulo 3. As posições dos centroides foram fixas em relação à linha $L_{\alpha 1}$, com base nos dados experimentais da referência (74), que forneceram:

$$E_{L_{\alpha 2}} = E_{L_{\alpha 1}} - 0,08539$$

$$E_{L_{\eta}} = E_{L_{\alpha 1}} + 0,59497$$

$$E_{L_{l}} = E_{L_{\alpha 1}} - 1,21941$$

$$\operatorname{Cu} \begin{cases} E_{K_{\alpha}} = E_{L_{\alpha 1}} - 1,6756 \\ E_{K_{\beta}} = E_{L_{\alpha 1}} - 0,7722 \end{cases}$$

para $E_{L_{\alpha 1}}$, $E_{L_{\alpha 2}}$, $E_{L_{\eta}}$ e $E_{L_{l}}$ em keV.

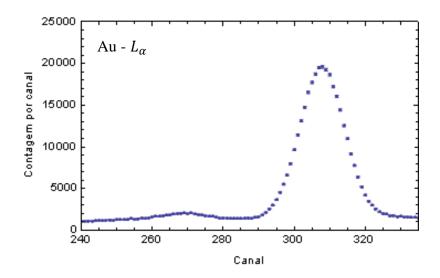


Figura 7.4: Região do multipleto L_{α} junto com as linhas L_{η} e L_{l} do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 keV. A calibração de energia é de $E=-0.053+0.032C-6.61.10^{-9}C^{2}$, com E em keV e C em canal.

Para o multipleto L_{β} apresentado na figura 7.5, as tentativas de ajustes dos parâmetros das linhas $L_{\beta 1}$, $L_{\beta 2}$, $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$ e $L_{\beta 6}$ junto com o fundo correspondente resultaram ora em áreas negativas não compatíveis com zero, ora em um fundo com componentes negativas, o que não tem significado físico. Devido a isso se fez apenas o ajuste do fundo com a expressão 7.1

somada ao escape correspondente. A área de todo o multipleto L_{β} foi obtida pela soma do número de contagens no espectro subtraído do fundo ajustado. Neste caso, o ajuste da componente contínua do espectro foi feito incluindo a região do grupo L_{α} junto com a linha L_{l} , de modo a se ter mais informação sobre esse para o ajuste.

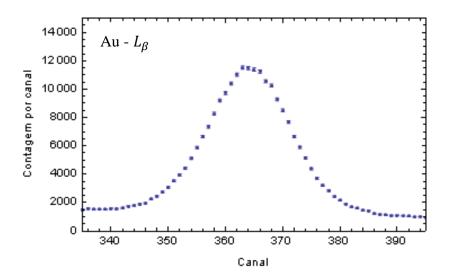


Figura 7.5: Região do multipleto L_{β} do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 keV. A calibração de energia é de $E=-0.053+0.032C-6.61.10^{-9}C^2$, com $E=0.053+0.032C-6.61.10^{-9}C^2$ com E=0.053+0.032C-6.032

No multipleto L_{γ} , figura 7.6, foram ajustados os parâmetros das linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$, $L_{\gamma 3}$ e $L_{\gamma 5}$, e a posição do centróide da linha $L_{\gamma 1}$ foi deixada como parâmetro livre. Os dados da referência (74) forneceram as relações, em keV:

$$E_{L_{\gamma_2}} = E_{L_{\gamma_1}} + 0.32791$$

$$E_{L_{\gamma 3}} = E_{L_{\gamma 1}} + 0.42731$$

$$E_{L_{\gamma 5}} = E_{L_{\gamma 1}} - 0.40736$$

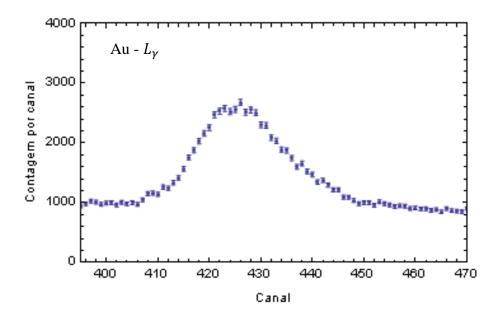


Figura 7.6: Região do multipleto L_{γ} do alvo de Au irradiado com um feixe de elétrons de 90 keV. A calibração de energia é de $E=-0.053+0.032C-6.61.10^{-9}C^2$, com $E=0.053+0.032C-6.61.10^{-9}C^2$ com E=0.053+0.032C-6.032 com E=0.053+0.032 com

No caso da linha $L_{\gamma 5}$, que apresenta baixa intensidade, a maioria dos ajustes resultou em uma amplitude negativa, mas com incerteza tal que essa área era compatível com zero. O procedimento adotado foi fixar em sua posição uma amplitude nula e refazer o ajuste de amplitude somente para as outras três linhas restantes.

Tanto no caso das linhas L_l e L_η como para as linhas do multipleto L_γ , os espectros foram ajustados em canais, assim os deslocamentos de energia foram transformados em canais usando o coeficiente linear da calibração de energia descrita no capítulo 5, 0,032 keV/canal. A forma gaussiana usada no ajuste é a da equação 5.26. Todas as amplitudes foram deixadas livres nos ajustes.

A estratégia usada foi análoga à usada para o alvo de Ta. Foram fornecidos intervalos possíveis para o valor do parâmetro de posição a ser estimado e para o parâmetro do desvio padrão do pico gaussiano da resposta e que está relacionado com o ruído estatístico, n^2 , da equação 5.3. O parâmetro do desvio padrão associado ao fator de Fano foi fixado em todos os ajustes com base na calibração prévia realizada, apresentada no capítulo 5, bem como o coeficiente que acompanha o termo do segundo grau. Cabe destacar que foi usada a mesma calibração do desvio padrão tanto para regiões com energia abaixo da borda de absorção do

germânio quanto para regiões com energia acima. Conforme Santos et al. (80), esta é uma aproximação razoável em detetores de germânio.

Para cada valor desses intervalos, se realizou um ajuste linear apenas para as estimativas dos parâmetros de amplitude e de fundo, sendo que a amplitude do degrau h foi fixada para cada ajuste com base na calibração prévia, apresentada no capítulo 5. Os parâmetros de posição e n^2 do desvio padrão foram determinados com base nas curvas de nível do ajuste.

Resultados

As áreas ajustadas para as linhas $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$ do multipleto L_{α} utilizando a metodologia descrita acima resultaram em valores cujas razões $L_{\alpha 2}/L_{\alpha 1}$ apresentaram variações além das incertezas para cada uma das irradiações, o que não é esperado fisicamente, uma vez que a intensidade relativa das linhas não deveria variar de forma tão brusca com a energia da irradiação. Tal resultado pode ser atribuído à separação incorreta das linhas $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$, já que a resolução do detetor nessa região é cerca de duas vezes pior do que o que se tinha para o detetor de Si(Li). Devido a isso se optou por não separar as linhas do grupo L_{α} , sendo sua área obtida pela soma das contagens no espectro subtraída do fundo ajustado. Para as áreas das linhas L_{l} e L_{η} junto com suas respectivas incertezas foram usados os valores obtidos do ajuste.

A figura 7.7 mostra as curvas de nível do ajuste das linhas L_l e L_η para a irradiação de 90 keV, a figura 7.8 as linhas ajustadas e a figura 7.9 o fundo ajustado nesta região, com cada uma das três contribuições, a saber, o escape dado pela expressão 5.14, o polinômio do primeiro grau e o termo do *bremsstrahlung* convolucionado com a eficiência e com a gaussiana dados pela expressão 7.1.

Tabela 7.2: Áreas do grupo L_{α} e das linhas L_{l} e L_{η} obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio do ajuste de uma função gaussiana.

Energia (keV)	L_{lpha}	L_l	L_{η}
100	302827(686)	11820(425)	4421(725)
90	297678(660)	11506(401)	3446(665)
80	263510(630)	9497(386)	3027(668)
70	93366(372)	3476(233)	1133(398)
65	97879(374)	3831(235)	1529(403)
60	142097(461)	5400(295)	2022(521)
55	372858(757)	14927(472)	4262(814)
50	604161(994)	25319(633)	7333(1099)

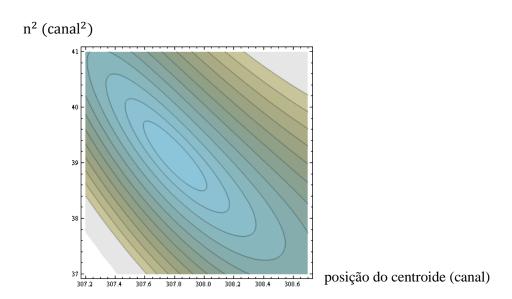


Figura 7.7: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros das linhas L_l e L_η da irradiação do alvo de Au para energia de 90 keV. No eixo horizontal está a posição do centróide da linha $L_{\alpha 1}$ e no eixo vertical o parâmetro n^2 da equação 5.3. Nessa situação os valores ajustados para esses parâmetros foram de 307,9 e 39,0, respectivamente.

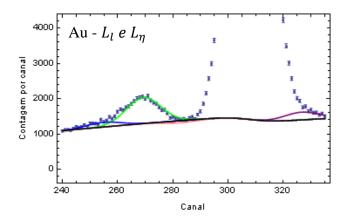


Figura 7.8: Ajuste dos parâmetros das linhas L_{η} e L_{l} do elemento Au obtido com a irradiação de 90 keV. (Online) A cor verde corresponde ao ajuste da linha L_{l} e a cor roxa da linha L_{η} . As cores azul e rosa correspondem ao ajuste das linhas de raios X K_{α} e K_{β} do cobre, respectivamente, e a cor preta ao fundo. (Impresso) Da esquerda para a direita os picos correspondem as linhas K_{α} do Cu, L_{l} do Au, K_{β} do Cu e L_{η} do Au. O qui quadrado reduzido do ajuste foi de 0,83 e a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 87%.

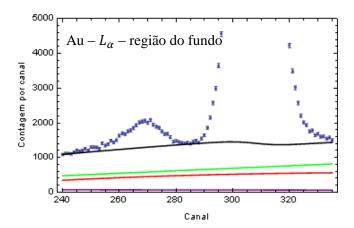


Figura 7.9: Ajuste da componente contínua do espectro na região do grupo L_{α} junto com as linhas L_{η} e L_{l} do elemento Au obtido com a irradiação de 90 keV. (Online) A cor preta corresponde à soma de todas as componentes do fundo. A cor vermelha corresponde ao polinômio do primeiro grau, a verde, ao termo do *bremsstrahlung* convolucionado com a eficiência e com a gaussiana, ambos da expressão 7.1, e a roxa ao escape dado pela expressão 5.14. (Impresso) De cima para baixo as linhas correspondem à soma de todas as componentes do fundo, ao termo do *bremsstrahlung* convolucionado com a eficiência e com a gaussiana, ao polinômio do primeiro grau, ambos da expressão 7.1, e ao escape dado pela expressão 5.14.

O qui quadrado total de todas as irradiações para as linhas L_{η} e L_{l} , calculado por meio da expressão 6.3, foi de 0,99 com a probabilidade de ser excedido de 58%.

A tabela 7.3 traz as áreas obtidas para o multipleto L_{β} e a figura 7.10 traz o fundo ajustado para a irradiação de 65 keV conforme descrito na seção anterior na região dos grupos L_{α} e L_{β} e que foi usado na determinação da área do grupo L_{β} .

Tabela 7.3: Áreas do grupo L_{β} obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio da soma das contagens subtraída do fundo ajustado na região correspondente.

Energia (keV)	L_{eta}	
100	198098(616)	
90	195444(584)	
80	172257(560)	
70	59015(333)	
65	61183(336)	
60	89976(410)	
55	239469(670)	
50	387599(888)	

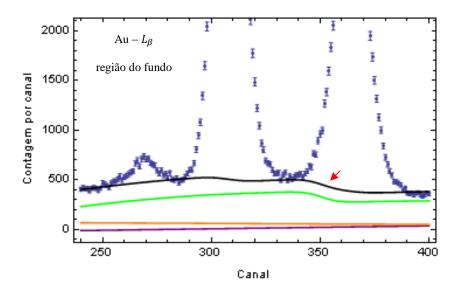


Figura 7.10: Ajuste dos parâmetros da componente contínua do espectro na região do grupo L_{α} e L_{β} do elemento Au obtido com a irradiação de 65 keV. (Online) A cor preta corresponde a soma de todas as componentes do fundo. A cor verde corresponde ao bremsstralung multiplicado pela eficiência, a cor roxa corresponde ao polinômio do primeiro grau, ambos dados pela expressão 7.1 e a cor laranja ao escape dado pela expressão 5.14. (Impresso) De cima para baixo as linhas correspondem a soma de todas as componentes do fundo, ao bremsstralung multiplicado pela eficiência, ao escape e ao polinômio do primeiro grau. A seta vermelha indica a região da descontinuidade da eficiência consequência da borda de absorção do germânio. A calibração de energia fornece 32 eV/canal.

Por fim, a tabela 7.4 traz as áreas das linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ ajustadas no multipleto L_{γ} , a figura 7.11 traz as curvas de nível obtidas para o ajuste da irradiação de 90 keV e a figura 7.12 o gráfico das linhas separadas junto com o fundo ajustado.

O qui quadrado total de todas as irradiações para o ajuste do grupo L_{γ} , calculado com a expressão 6.3, foi de 0,96 com a probabilidade do qui quadrado ser excedido de 75%.

Tabela 7.4: Áreas das linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ obtidas dos espectros experimentais nas diversas irradiações por meio do ajuste de uma função gaussiana.

Energia (keV)	$L_{\gamma 1}$	$L_{\gamma 2}$	$L_{\gamma 3}$	L_{γ}
100	52218(719)	12744(1432)	6592(1450)	74049(673)
90	50771(663)	7797(1336)	8023(1337)	68440(580)
80	21529(430)	4737(855)	3327(859)	30464(399)
70	7810(297)	1279(611)	1204(613)	10679(242)
65	8064(258)	1364(503)	1198(508)	11011(241)
60	11366(319)	1900(627)	2047(633)	15866(297)
55	31262(555)	5705(1116)	4653(1123)	42934(485)
50	26754(542)	1346(1078)	5345(1092)	34694(466)

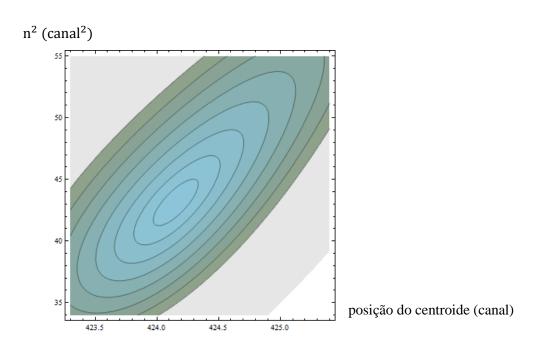


Figura 7.11: Curvas de nível para o ajuste dos parâmetros das linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ da irradiação do alvo de Au para energia de 90 keV. No eixo horizontal está a posição do centróide da linha $L_{\gamma 1}$ e no eixo vertical o parâmetro n^2 da equação 5.3. Nessa situação os valores ajustados para esses parâmetros foram de 424,2 e 43,7, respectivamente.

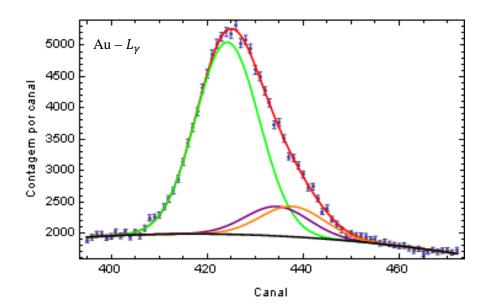


Figura 7.12: Ajuste dos parâmetros do multipleto L_{γ} do elemento Au obtido com a irradiação de 90 keV. (Online) A cor vermelha corresponde a soma do fundo e das três linhas ajustadas, a preta ao fundo, a verde a linha $L_{\gamma 1}$, a roxa a linha $L_{\gamma 2}$ e a cor laranja a linha $L_{\gamma 3}$. O fundo foi ajustado com um polinômio do segundo grau. (Impresso) Da esquerda para direita os picos correspondem as linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$. O qui quadrado do ajuste foi de 1,03 com probabilidade de ser excedido de 41%.

7.3 Espessura do alvo irradiado

A espessura do alvo de ouro usado neste experimento foi determinada por meio do ajuste do *bremsstrahlung* dos espectros (14; 41). Os valores obtidos para a espessura e sua correspondente incerteza foram de:

$$8.0(1.0) \mu g/cm^2 = 2.45(12)10^{16} \text{ átomos/cm}^2$$
 3.2

7.4 Carga incidente no alvo

Introdução

Embora a geometria do arranjo experimental bem como o detetor empregado tenham sido diferentes do que se usou para o experimento com o alvo de tântalo, o mesmo tipo de feixe foi usado nos dois casos de modo que a mesma metodologia foi empregada para a coleção de carga nos dois experimentos. Devido a isso serão apresentados nesta seção apenas os resultados para a coleção de carga. Para detalhes do procedimento ver as seções 3.2 e 6.4.

Resultados

A tabela 7.5 apresenta os valores da carga incidente no copo de Faraday ao final de cada irradiação e a figura 7.13 o gráfico do fator de coleção de carga, obtido pela média dos dez valores do quociente da carga coletada com e sem o alvo para as energias de 100, 65 e 50 keV. Os valores do fator de coleção de carga para as demais energias foram interpolados dos dados apresentados na figura 7.13.

Tabela 7.5: Carga coletada no copo de Faraday ao longo de cada irradiação com as energias identificadas na primeira coluna. Para cada uma das energias de 55 e 65 keV só foi feita uma irradiação.

Energia (keV)	Irradiação 1 (10⁻⁴C)	Irradiação 2(10⁻⁴C)
100	2,658	2,776
90	2,495	2,512
80	1,077	0,953
70	0,597	1,078
65	0,561	-
60	0,838	0,820
55	2,196	-
50	1,584	1,594

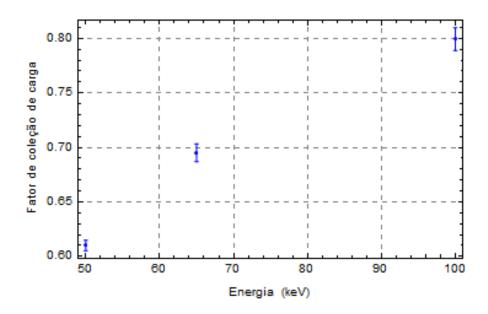


Figura 7.13: Valor médio do quociente entre a carga coletada no copo de Faraday com e sem o alvo para as dez medições de 10 s feitas de cada situação (com e sem alvo) para as energias de 50, 65 e 100 keV.

7.5 Correção para tempo de carga e tempo de espectro

O espectrômetro digital DSPEC utilizado no experimento com o alvo de Au foi o mesmo do experimento com o alvo de Ta, de modo que a mesma metodologia foi usada para a correção do tempo de carga e o tempo de espectro.

Durante todas as irradiações com o alvo de Au, o *rise time* do detetor foi mantido em 4,0 μs e o *flattop width* em 0,5 μs. Estes valores foram usados na expressão 6.5 para determinar o intervalo de tempo em que o detetor não pode fazer nenhuma medida.

A tabela 7.6 apresenta os valores finais do tempo vivo e do tempo de relógio usados em cada irradiação, junto com suas respectivas incertezas.

Tabela 7.6: Valores obtidos para o tempo vivo e o tempo de relógio do espectrômetro. O valor do tempo vivo foi deduzido com base nas especificações do fornecedor (75) para o tempo morto do detetor. O tempo de relógio foi suposto sem incerteza. Para cada uma das energias de 65 e 55 keV foi feita uma única irradiação. Todas essas medidas foram obtidas com um tempo vivo prefixado e igual a 600 s.

	Irradiação 1		Irradiação 2	
Energia (keV)	$t_R(s)$	$t_V(s)$	$t_R(s)$	$t_V(s)$
100	624,0	600,25(12)	628,16	600,34(17)
90	619,48	600,19(09)	619,9	600,20(10)
80	609,46	600,09(04)	608,56	600,07(03)
70	606,44	600,03(02)	611,56	600,09(04)
65	606,4	600,05(03)	-	-
60	609,32	600,07(03)	609,42	600,06(03)
55	636,14	605,8(2,9)	-	-
50	621,56	600,23(11)	624,76	600,23(11)

7.6 Resultados

Os valores de intensidade dos picos, número de elétrons incidentes no alvo e espessura descritos nas seções 7.2, 7.3 e 7.4 junto ao modelo de eficiência de pico absoluta descrito no capítulo 5 foram usados na expressão 6.4 para obter os valores das seções de choque de produção de raios X para as linhas L_l , L_{η} , $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$, bem como para obter a seção de choque de produção de raios X para os grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} . As figuras 7.14 e 7.15 apresentam os dados para a seção de choque de produção de raios X L_l e L_{η} , respectivamente, e as figuras 7.16, 7.17 e 7.18 apresentam os resultados para a seção de choque de produção de raios X para as linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$, respectivamente.

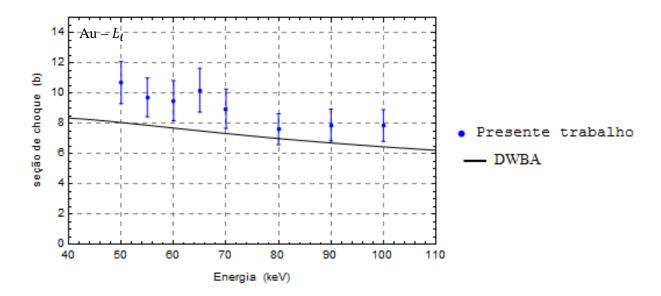


Figura 7.14: Resultados da seção de choque de produção de raios X L_l para o elemento Au em função da energia do feixe de elétrons. Os pontos azuis correspondem aos resultados deste trabalho, e a linha preta aos cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas (26; 27).

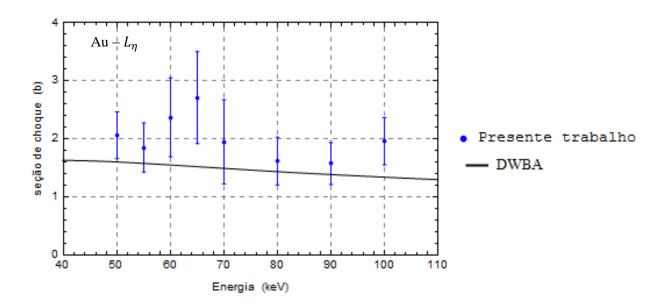


Figura 7.15: Mesmo que em 7.13 para a linha L_{η} .

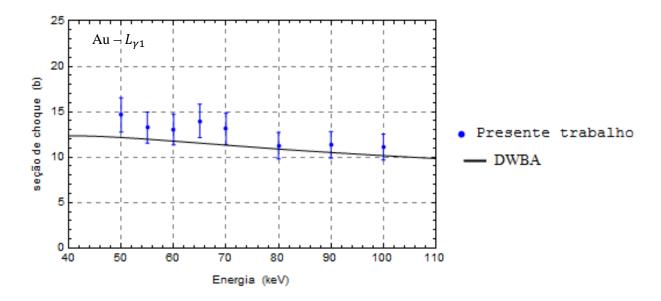


Figura 7.16 Mesmo que em 7.13 para a linha $L_{\gamma 1}$.

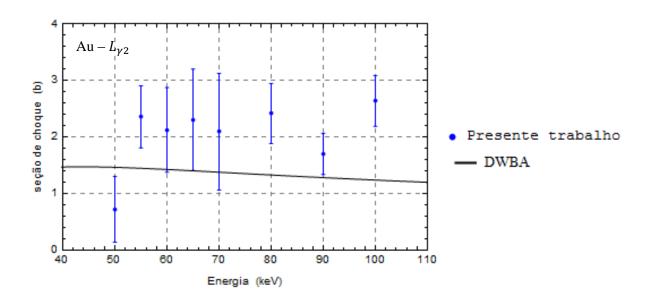


Figura 7.17: Mesmo que em 7.13 para a linha $L_{\gamma 2}$.

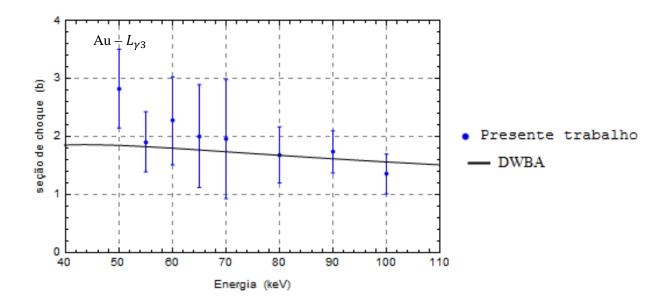


Figura 7.18: Mesmo que em 7.13 para a linha $L_{\gamma 3}$.

A tabela 7.7 traz os valores obtidos para a seção de choque de produção de raios X para os multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} junto com suas respectivas incertezas e as figuras 7.19, 7.20 e 7.21 os gráficos desses resultados junto com os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, e com dados experimentais encontrados na literatura para o elemento Au (8; 9; 16; 17). A tabela 7.8 traz o quociente $\sigma_{Ll}/\sigma_{L\alpha}$.

As figuras 7.14 e 7.15 mostram que o procedimento empregado para o ajuste das linhas L_l e L_η permitiu separá-las com boa precisão, o mesmo ocorrendo para as linhas $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ do grupo L_{γ} , como mostram as figuras 7.16, 7.17 e 7.18.

No caso das linhas $L_{\alpha 1}$, $L_{\alpha 2}$ e para as linhas do grupo L_{β} , não foi possível separá-las, entretanto a seção de choque para o grupo L_{α} bem como para o grupo L_{β} apresentaram precisão da ordem de 13%, como mostram as figuras 7.19 e 7.20, o que é razoável. A tabela 7.8 mostra que o quociente $\sigma_{L_l}/\sigma_{L_{\alpha}}$ é constante, considerando as barras de erro, para todas as energias de irradiação, e compatível com o valor obtido a partir dos resultados da referência (77).

As seções de choque dos multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} foram determinadas com incertezas da ordem de 13% para os três casos. Para as seções de choque das linhas L_l e L_{η} as incertezas foram da ordem de 14% e 26%, respectivamente.

Tabela 7.7: Seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para o elemento Au. O número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor.

Energia (keV)	$\sigma_{L_{\alpha}}(10^2 \mathrm{b})$	$\sigma_{L_{eta}}(10^2\mathrm{b})$	$\sigma_{L_{\gamma}}(10^{1}\mathrm{b})$
100	1,50(19)	1,07(14)	1,55(20)
90	1,52(19)	1,09(14)	1,51(19)
80	1,57(20)	1,12(14)	1,57(20)
70	1,79(23)	1,24(16)	1,77(23)
65	1,94(25)	1,32(17)	1,89(24)
60	1,86(24)	1,29(17)	1,80(23)
55	1,81(23)	1,27(16)	1,80(23)
50	1,90(24)	1,33(17)	1,87(24)

Tabela 7.8: Quociente entre as seções de choque de produção de raios X σ_{Ll} e $\sigma_{L\alpha}$ para cada uma das energias irradiadas. O valor obtido a partir dos resultados da referência (77) para esse quociente é de 0,0504(1).

Energia (keV)	$\sigma_{L_l}/\sigma_{L_lpha}$
100	0,053(7)
90	0,052(7)
80	0,049(7)
70	0,050(7)
65	0,053(7)
60	0,051(7)
55	0,054(7)
50	0,056(7)

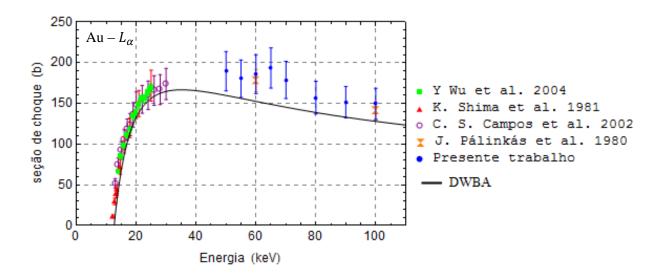


Figura 7.19: Seção de choque de produção de raios X L_{α} para o Au. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos), verdes (quadrados), roxos (círculos vazios) e laranjas (ampulhetas) representam os dados experimentais das referências (16; 9; 8; 17), respectivamente.

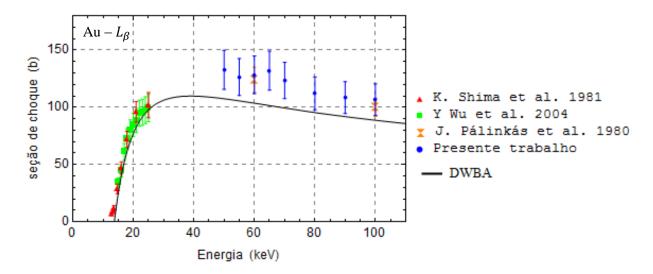


Figura 7.20: Seção de choque de produção de raios X L_{β} para o Au. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos) são da referência (16), os verdes (quadrados) da referência (9) e os pontos laranja (ampulhetas) da referência (17).

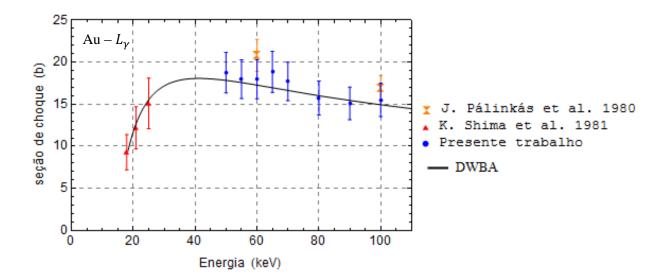


Figura 7.21: Seção de choque de produção de raios $X L_{\gamma}$ para o Au. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (triângulos) são da referência (16) e os pontos laranja (ampulhetas) da referência (17).

As medidas com alvo de Au foram comparadas com os dados das referências (8; 9; 16; 17). Shima et al. (16) traz dados para a seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para o Au, bem como a seção de choque de ionização da subcamada L_3 . As medidas vão desde a energia do limiar de ionização da camada L até 30 keV. Elas foram obtidas com um detetor de Si(Li) com resolução de 180 eV para a energia do raio X K_{α} do Mn. Usou-se alvo de Au fino depositado sobre substrato fino de carbono, sendo de 7 µg/cm² a espessura do ouro e de $4-8 \,\mu\text{g/cm}^2$ para o substrato de carbono. As medidas obtidas apresentaram incertezas da ordem de 12% para L_{α} , 15% para L_{β} e de 21% para L_{γ} . Y. Wu et al. (9) registram medidas de seções de choque de produção de raios X L_{α} e L_{β} do Au. A faixa de energia vai de 15 a 25 keV. As medidas foram obtidas com um detetor de Si(Li) com resolução de 190 eV para o raio X K_{α} do $^{55}{\rm Mn}$. O alvo de Au tinha espessura de 11,1 ${\rm \mu g/cm^2}$ e foi depositado sobre um substrato grosso de Al. As correções para o uso do substrato grosso foram feitas por meio de simulações Monte Carlo. Os dados para o grupo L_{α} apresentaram incertezas da ordem de 3% e para o grupo L_{β} da ordem de 12 %. Campos et al. (8) apresenta as medidas de seção de choque de produção de raios $X L_{\alpha}$ para os elementos W, Pt e Au na faixa de energia de 10-30 keV. As medidas foram obtidas simultaneamente por um detetor de Si(Li) e por quatro espectrômetros dispersivos de comprimento de onda (WD). Foram

utilizados alvos finos (para o Au a espessura foi de $13.7~\mu g/cm^2$) depositados sobre substrato grosso de carbono, sendo que as correções para o uso do substrato grosso foram feitas por meio de simulações Monte Carlo. As incertezas obtidas para o grupo L_{α} do Au foram da ordem de 11%. Por fim, Pálinkás et al. (17) traz medidas de seção de choque de produção de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para alvos de Au, Pb e Bi, com a energia do feixe de elétrons variando de 60 até 600 keV. Os alvos utilizados tinham espessuras entre 20 e $200~\mu g/cm^2$, e eram auto sustentáveis ou depositados sobre um backing de carbono com espessura de $2~\mu g/cm^2$. Os alvos com espessuras superiores a $80~\mu g/cm^2$ foram usados somente para energias acima de 300~keV. As medidas foram realizadas com um detetor de Si(Li) com FWHM de 194~eV na energia de 5.9~keV. Os dados de L_{α} e L_{β} apresentaram incertezas da ordem de 8.0% e de L_{γ} da ordem de 9.0~%.

Observando as figuras 7.19, 7.20 e 7.21 nota-se que os resultados deste trabalho estão cerca de 16% acima dos cálculos baseados no modelo DWBA para o grupo L_{α} , para o grupo L_{β} eles estão cerca de 17% acima e no caso do grupo L_{γ} eles são consistentes com o modelo. Comparando os dados deste trabalho com os resultados das referências (16; 9), nota-se que para os grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} eles ficam acima nos dois casos, mas eles são consistentes com os dados das referências (17; 8).

7.7 Seção de choque das subcamadas L_1 , L_2 e L_3

Introdução

Medidas de seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 são muito mais escassas do que medidas de seção de choque de produção de raios X. Para o elemento Au encontrou-se na literatura, para a faixa de energia deste trabalho, os dados de Green et al. (81), Salem et al. (5), Shima et al. (16), Davis et al. (82), Pálinkás et al. (17) e Schneider et al. (83). Destes dados, entretanto, somente a referência (17) traz as medidas de σ_{L1} , σ_{L2} e σ_{L3} , os demais trazem resultados para σ_{L3} e/ou σ_{L2} .

Os resultados de Green et al. (81) são para energias desde o limiar de ionização até aproximadamente 50 keV. Os valores de Salem et al. (5) foram obtidos a partir das medidas

de intensidade das linhas L_{β_1} e $L_{\beta_{2,15}}$ para a faixa de energia desde o limiar de ionização até quatro vezes o valor deste. Shima et al. (16) obteve seus resultados a partir das medidas de L_{α} e para energias abaixo do limiar de ionização das subcamadas L_1 e L_2 , onde σ_{L1} e σ_{L2} são nulos e a dedução de σ_{L3} sai direto da medida de $\sigma_{L\alpha}$, como mostra a expressão 2.40. Davis et al. não traz informações sobre como foram obtidos os dados de σ_{L3} nem sobre como foi tratado a componente contínua dos espectros, uma vez que suas medidas foram feitas com um detetor de Ge(Li), cuja energia da borda de absorção K está na região do multipleto L. Schneider et al. (83) obtém seus resultados de σ_{L3} usando para σ_{L1} e σ_{L2} valores obtidos a partir de modelos teóricos. Pálinkás et al. (17) usa medidas de seção de choque de produção de raios X L_{α} , $L_{\gamma 1}$ e $L_{\gamma 2,3,6}$ para obter os valores de σ_{L1} , σ_{L2} e σ_{L3} .

Metodologia

Usou-se o MMQ com a matriz de planejamento construída com base nas expressões 2.44 - 2.54 do capítulo 2 para determinar a seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 de forma análoga ao que foi descrito na seção 6.7 para o caso do Ta. Como não foi possível separar as linhas $L_{\alpha 1}$ e $L_{\alpha 2}$, nem as linhas do multipleto L_{β} , a matriz de planejamento foi construída usando a soma das equações 2.44 e 2.45 para o grupo L_{α} e a soma das equações 2.48, 2.49, 2.50 e 2.51 para o grupo L_{β} .

A incerteza dos parâmetros atômicos foi propagada por meio de derivadas numéricas e adicionada de forma quadrática às incertezas dos dados experimentais, conforme a expressão 6.6. A seção seguinte apresenta os resultados obtidos. Para detalhes do procedimento adotado ver seções 2.3 e 6.7.

Os valores dos *yields* fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o Au, junto com suas respectivas incertezas, foram obtidos da referência (19) e estão apresentados na tabela 7.9. Os valores para as intensidades das transições radiativas foram obtidos da referência (76) e estão apresentados na tabela 7.10. Os valores para as intensidades das transições Auger foram interpolados da referência (28) e estão apresentados na tabela 7.11. As incertezas dos dados da referência (76) são da ordem de 2% (20) e a fração da contribuição Auger (segunda parcela das expressões 2.41, 2.42 e 2.43) apresenta incerteza da ordem de 15% (28). A tabela 7.12 traz os valores finais das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 junto com suas

respectivas incertezas. Os valores para as intensidades das transições radiativas entre as subcamadas da camada L junto com suas respectivas incertezas foram obtidos da referência (77) e são apresentados na tabela 7.13.

Tabela 7.9: Valores dos *yields* fluorescentes e dos coeficientes de Coster-Kronig para o elemento Au obtidos da referência (19).

Parâmetros	Z = 79	Incertezas
ω_1	0,107	15%
ω_2	0,334	5%
ω_3	0,320	5 a 3%
f_{12}	0,14	20%
f_{13}	0,53	10 - 5%
f_{23}	0,122	15%
f'_{13}	0,0028	-

Tabela 7.10: Taxas de emissão das transições radiativas da camada L para a camada K para o elemento Au em unidades de eV/ \hbar por decaimento de elétrons da camada p. Os dados foram obtidos da referência (76).

Transição	Z = 79
KL2	14,48
KL3	24,64
Total	49,68

Tabela 7.11: Intensidades de transições Auger da camada L para a camada K para o elemento Au em unidades de eV/\hbar . Os dados foram obtidos da referência (28).

Transições	Z = 79
KL1L1	0,0674573
KL1L2	0,0727861
KL1L3	0,142113
KL2L2	0,0104603
KL2L3	0,247234
KL3L3	0,138111
Total	0,678162

Tabela 7.12: Intensidades das transições da camada *L* para a camada *K* obtidos com os dados das tabelas 7.9 e 7.10 por meio das expressões 2.41, 2.42 e 2.43 para o elemento Au.

Transições	Z = 79
nKL1	0,0069(10)
nKL2	0,2943(67)
nKL3	0,5025(68)

Tabela 7.13: Intensidades das transições entre as subcamadas da camada L para o elemento Au em unidades de eV/\hbar . Os valores foram obtidos da referencia (77). A incerteza apresentada pela referência para esses valores é de 0,2%.

Transição	Z = 79
$L_3 - M_5$	1,221
$L_3 - M_4$	0,1389
$L_3 - M_1$	0,06861
L_2-M_1	0,04323
$L_2 - M_4$	1,574
$L_3 - N_5$	0,2416
$L_1 - M_3$	0,4339
$L_1 - M_2$	0,3745
L_2-N_4	0,3288
$L_1 - N_2$	0,09703
$L_1 - N_3$	0,1226
Total L ₁	1,09683
Total L ₂	1,9942128
Total L ₃	1,7444407

Resultados

A tabela 7.14 traz os valores obtidos para as seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 do Au junto com suas respectivas incertezas e as figuras 7.22, 7.23 e 7.24 comparam esses resultados com os cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas e com os dados encontrados na literatura (82; 17; 83; 16; 81; 5).

As incertezas das seções de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 foram da ordem de 22%, 12% e 12%, respectivamente, quando não se leva em conta a incerteza dos

parâmetros atômicos envolvidos no ajuste. Fazendo a propagação de incerteza desses parâmetros usando a expressão 6.6 esses valores passam para 28%, 14% e 16%.

Os dados de seção de choque de ionização das subcamadas L_1 e L_2 foram compatíveis com os cálculos baseados no modelo DWBA, enquanto que os resultados para a subcamada L_3 ficaram cerca de 20% acima desse modelo. Quando comparados com os dados existentes da literatura, as figuras 7.22, 7.23 e 7.24 mostram que nossos resultados concordam com os dados de Pálinkás et al. (17) para as medidas de σ_{L1} , σ_{L2} e σ_{L3} e de Green et al. (81) para as medidas de σ_{L2} e σ_{L3} . Para os resultados de σ_{L3} os dados deste trabalho também são consistentes com as medidas de Davis et al. e substancialmente acima das medidas de Schneider et al.

Tabela 7.14: Seção de choque de ionização das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 para o elemento Au. O número entre parênteses representa a incerteza associada ao valor.

Energia (keV)	$\sigma_{L_1}(10^2 \mathrm{b})$	$\sigma_{L_2}(10^2\mathrm{b})$	$\sigma_{L_3}(10^2 \mathrm{b})$
100	1,58(36)	1,92(25)	5,01(77)
90	1,59(34)	1,89(25)	5,09(77)
80	1,82(43)	1,87(26)	5,00(79)
70	1,89(72)	2,17(33)	5,88(98)
65	1,97(65)	2,37(34)	6,5(1,0)
60	2,06(58)	2,20(32)	6,14(98)
55	1,93(46)	2,19(30)	6,16(93)
50	1,63(49)	2,50(31)	6,8(1,0)

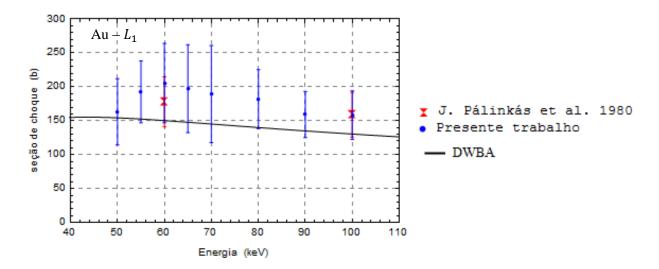


Figura 7.22: Seção de choque de ionização da subcamada L_1 para o Au. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os cálculos teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas e os pontos vermelhos (ampulhetas) aos dados da referência (17).

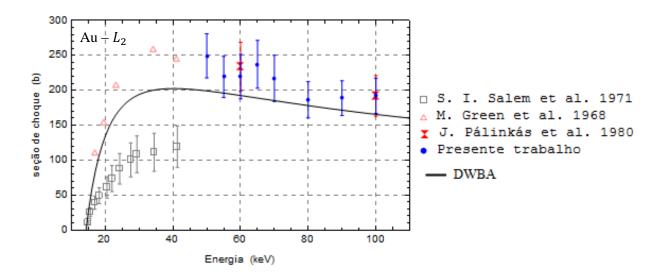


Figura 7.23: Seção de choque de ionização da subcamada L_2 para o Au. Os pontos azuis (círculos) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos vermelhos (ampulhetas) aos dados da referência (17), os rosa (triângulos vazios) da referência (81) e os cinzas (quadrados vazios) da referência (5).

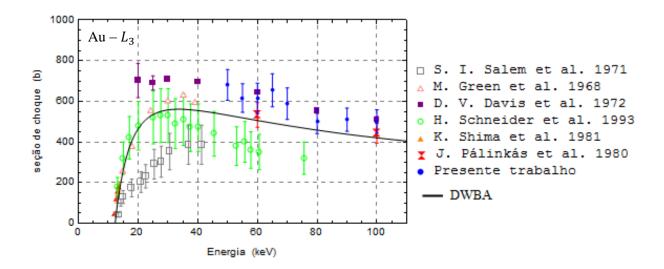


Figura 7.24: Seção de choque de ionização da subcamada L_3 para o Au. Os pontos azuis (círculos cheios) representam os resultados deste trabalho, a linha contínua representa os resultados teóricos baseados na aproximação de Born com ondas distorcidas, os pontos laranja (triângulos cheios) são da referência (16), os pontos roxos (quadrados cheios) da referência (82), os pontos verdes (círculos vazios) são da referência (83), os vermelhos (ampulhetas) da referência (17), os cinzas (quadrados vazios) da referência (5) e os pontos rosa (triângulos vazios) da referência (81).

7.8 Discussão

Neste capítulo, apresentamos os resultados experimentais das medidas das seções de choque de produção de raios X dos grupos L_{α} , L_{β} e L_{γ} bem como das linhas L_{l} e L_{η} , $L_{\gamma 1}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$ e da seção de choque de ionização das subcamadas L_{1} , L_{2} e L_{3} .

Para o ajuste dos espectros de emissão de raios X usou-se uma forma gaussiana, sendo que para cada multipleto foi ajustado a posição de um único centróide, os demais sendo fixos em relação a este. Todas as amplitudes foram deixadas livres nos ajustes. A componente contínua exigiu atenção especial neste experimento por envolver forte contribuição do *bremsstrahlung* e por apresentar uma descontinuidade devido à borda de absorção K do germânio, sendo estes dois fatores mais evidentes na região dos multipletos L_{α} e L_{β} . Além deste ponto, também foi necessário incluir no ajuste os picos de raios X K_{α} e K_{β} do cobre. Uma vez que o colimador utilizado era de cobre, raios X provenientes dele conseguiram

chegar ao detetor e por isso precisaram ser incluídos no ajuste. Entretanto, apesar de não poderem ser ignorados, essas áreas foram da ordem de 1% da área do grupo L_{α} , de modo que elas não comprometeram os picos de raios X L do Au. O fundo ajustado pareceu razoável fisicamente e permitiu a determinação das áreas dos picos de interesse de forma satisfatória. A resolução insuficiente do detetor para separar as linhas de cada multipleto L, junto com a descontinuidade da eficiência devido a borda de absorção K do germânio foram as principais dificuldades dos ajustes das linhas, deixando claro que detetores de HPGe não são adequados para medidas de raios X L, sendo mais adequado neste caso o uso de detetores de Si(Li)

O número de elétrons incidentes no alvo foi obtido por meio da carga coletada no copo de Faraday, fazendo-se a devida correção para a carga que não chega ao copo, em consequência da dispersão do feixe ao passar pelo alvo. Para as energias em que não se mediu o fator de coleção de carga, fez-se uma interpolação dos dados existentes. Também foi feita a correção do tempo vivo, com base nas informações fornecidas pelo manual do espectrômetro digital DSPEC para o tempo morto do mesmo.

Os resultados obtidos, quando comparados com a aproximação de ondas distorcidas, ficaram acima desse modelo para os multipletos L_{α} e L_{β} , e foram consistentes com ele para o grupo L_{γ} .

Os valores medidos para as seções de choque de produção de raios X foram usados para obter as estimativas das seções de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 fornecendo resultados com incertezas da ordem de 28% para σ_{L1} , de 14% para σ_{L2} e 16% para σ_{L3} e consistentes com as medidas de Pálinkás et al. (17) e de Green et al. (81). Quando não se leva em conta as incertezas dos parâmetros atômicos essas incertezas são de 22%, 12% e 12%, respectivamente, mostrando que, assim como no caso do Ta, medidas de seção de choque de ionização atômica mais precisas envolvem medidas de parâmetros atômicos também mais precisas.

De modo análogo ao que se verificou para o Ta, a incerteza na seção de choque da subcamada L_1 foi cerca de duas vezes a incerteza das outras subcamadas.

Capítulo 8

Conclusão

O objetivo deste trabalho de dissertação era medir as seções de choque de raios X L_{α} , L_{β} e L_{γ} para elementos de número atômico alto com precisão da ordem de 10%. Para isso foi necessário estudar parâmetros tanto atômicos quanto instrumentais, sendo alguns deles pouco conhecidos. Ao final do trabalho foi possível determinar não só a seção de choque L_{α} , L_{β} e L_{γ} , com precisão da ordem de 10%, mas também de algumas das linhas que compõem estes multipletos, além de conseguirmos obter medidas para as linhas L_{l} e L_{η} , para os alvos de Au e Ta. Além disso, também foi possível obter medidas de seção de choque de ionização das subcamadas atômicas para os dois alvos estudados, sendo que estas medidas apresentaram precisão superior ou da mesma ordem de grandeza dos poucos dados encontrados na literatura sobre o assunto.

As discussões de cada uma das etapas deste trabalho já foram incorporadas ao final de cada capítulo, de modo que será apresentado aqui um resumo das conclusões principais.

Os detetores empregados para a deteção dos raios X, junto com sua eletrônica, são os principais responsáveis por modificar a forma dos picos. A função resposta introduz uma contribuição gaussiana aos picos de raios X, de modo que eles passam a ser descritos pela função que resulta da convolução de uma gaussiana com uma lorentziana, que é a função Voigt. Além disso, a diferença da eficiência do detetor com a energia acarreta modificações diferentes na intensidade dos espectros para cada região de energia.

Foi apresentado e implementado um algoritmo que possibilitou utilizar a função Voigt com precisão e tempo de cálculo razoáveis, permitindo uma descrição dos picos de raios X mais precisa do que quando se faz pelo ajuste com uma gaussiana ou mesmo por uma pseudo-Voigt, principalmente no ajuste de picos de raios X K de elementos com alto número atômico (capítulo 4).

A calibração de eficiência para ambos os detetores foi feita utilizando o modelo analítico de Seltzer (61) que forneceu valores de eficiência com boa precisão, além de permitir a caracterização do detetor de Si(Li) utilizado (capitulo 5).

Os resultados para as seções de choque de produção de raios X dos multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} bem como para as linhas L_{l} e L_{η} para o alvo de Ta apresentaram incertezas da ordem de 4%, 5% e 19%, 19% e 56%, respectivamente. Não foi encontrado na literatura medidas de seção de choque de produção de raios X para as linhas L_{l} e L_{η} deste elemento. A incerteza para as medidas de L_{γ} foi cerca de quatro vezes maior do que para L_{α} e L_{β} devido a pouca estatística desse multipleto nos espectros obtidos. Esses resultados foram comparados com a aproximação de Born de ondas distorcidas e com o único conjunto de dados encontrado na literatura para energias próximas. Os resultados, quando comparados com os cálculos baseados na aproximação de Born de ondas distorcidas, ficaram cerca de 67% acima no multipleto L_{α} , 37% acima no grupo L_{β} , e para o grupo L_{γ} , eles foram consistentes com o modelo. Para as medidas de seção de choque de ionização atômica das subcamadas L_{1} , L_{2} e L_{3} , as incertezas foram da ordem de 16%, 7% e 5%, respectivamente. Os resultados obtidos para essas seções de choque se mostraram consistentes com o único conjunto de dados experimentais encontrado na literatura.

As seções de choque de produção de raios X para o alvo de Au apresentaram incertezas da ordem de 13% para os três multipletos L_{α} , L_{β} e L_{γ} , e de 14% e 26%, para as linhas L_l e L_{η} , respectivamente. Quando comparados com a aproximação de Born de ondas distorcidas os resultados de L_{α} e L_{β} ficam cerca de 16% e 17%, respectivamente, acima da curva prevista pelo modelo, enquanto os resultados de L_{γ} foram consistentes com o modelo. As medidas de seção de choque de ionização atômica das subcamadas L_1 , L_2 e L_3 apresentaram incertezas da ordem de 28%, 14% e 16%, respectivamente, e foram consistentes com os resultados experimentais das referências (17; 81).

Das dificuldades relacionadas aos ajustes dos espectros obtidos com ambos os detetores foi possível concluir que detetores de HPGe não são adequados para medidas de seção de choque de raios X L, uma vez que a borda de absorção K do germânio está na região das linhas de raios X L de elementos com alto número atômico, e mesmo para elementos de baixo número atômico, o *bremsstrahlung* representa uma parcela importante do espectro na região de baixa energia, com forte contribuição do escape do germânio, cuja forma é

complicada, dificultando assim, o ajuste dos picos de raios X característicos obtidos com esse detetor. A estatística de contagem dos espectros também desempenha papel crucial no ajuste. Espectros com mais estatística tiveram os parâmetros ajustados com menores incertezas, além disso, estatísticas altas permitem ajustar linhas de baixa intensidade, principalmente no caso das linhas mais fracas do multipleto L_{γ} .

Tanto no caso do Ta quanto no do Au, os resultados da seção de choque de ionização da subcamada L_1 apresentaram incertezas cerca de duas a três vezes maiores do que a das outras subcamadas. Esse resultado vem do fato de que essa seção de choque depende das seções de choque de produção de raios X das linhas $L_{\beta 3}$, $L_{\beta 4}$, $L_{\gamma 2}$ e $L_{\gamma 3}$, que não conseguiram ser resolvidas com boa precisão, e por isso apresentaram incertezas altas. Além disso, o parâmetro ω_1 também é afetado por uma incerteza cerca de três vezes superior a incerteza de ω_2 e ω_3 .

No que se refere à qualidade das medidas de seção de choque de ionização atômica, segue dos resultados obtidos que valores mais precisos necessitam, entre outras coisas, de medidas dos parâmetros atômicos com incertezas menores, uma vez que elas contribuem consideravelmente para a incerteza da medida de seção de choque de ionização atômica.

Ambos os alvos utilizados foram de número atômico alto e na região de energia de 5 a 10 vezes superior à energia de ionização da camada *L*. Novas medidas realizadas com energias próximas a borda de absorção e com elementos de número atômico intermediário poderiam ser úteis para auxiliar na compreensão das diferenças observadas entre os dados experimentais e a aproximação de Born de ondas distorcidas.

O projeto que segue este trabalho de mestrado irá olhar para a distribuição angular dos raios X. Propomos medir a distribuição angular de raios X L obtidos por meio de impacto de elétrons com energias de 10 a 100 keV, produzidos pelo injetor do acelerador Microtron, em elementos de número atômico variado. Caso essa distribuição seja anisotrópica, determinaremos experimentalmente o grau de alinhamento dos íons resultantes com precisão relativa da ordem de 10%. Pretendemos realizar medidas para alvos de diferentes elementos com espessura variada, de modo a entender melhor os processos concorrentes que afetam as medições. Algumas teorias preveem alinhamento sempre que o momento angular total J do estado da vacância for maior do que 1/2, enquanto outras concluem que a distribuição angular é isotrópica, independentemente do valor de J. Os dados experimentais encontrados

na literatura referem-se, em sua grande maioria, ao alinhamento por impacto de prótons ou à fotoionização e são escassos e contraditórios, com autores que encontram uma forte anisotropia na distribuição angular e um parâmetro de alinhamento alto, e outros que encontram uma distribuição angular isotrópica. A explicação quantitativa desse fenômeno, ou da sua ausência, e da consequente distribuição angular da emissão dos raios X constituirão um teste particularmente sensível do modelo de estrutura atômica.

Bibliografia

- 1. Nagashima, Y., Saito, F., Itoh, Y., Goto, A., Hyoto, T.. Measurement of a Cu K-Shell and Ag L-Shell Ionization Cross Sections by Low-Energy Positron Impact. *Physical Review Letters*. 2004, Vol. 92, n° 22.
- 2. **Webster, D. L., Hansen, W. W., Duveneck, F. B..** Probabilities of K-electron ionization of silver by cathode rays. *Physical Review.* 1933, Vol. 43, pg. 839-858.
- 3. **Clark, J. C..** A measurement of the absolute probability of K-electron ionization of silver by cathode rays. *Physical Review.* 1935, Vol. 48, pg. 30-42.
- 4. **Green, M..** The angular distribution of characteristic x radiation and its origin within a solid target. *Proceedings of the Physical Society.* 1964, Vol. 83, pg. 435-451.
- 5. Salem, S. I., Moreland, L. D.. LII and LIII Ionizations Cross Sections in Gold at very Low Energies. *Physics Letters*. 1971, Vol. 37A, pg. 161-162.
- 6. **Moy, A., Merlet, C., Llovet, X., Dugne, O.** Measurements of absolute L- and M- subshell x-ray production cross sections of Pb by electron impact. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular, and Optical Physics.* 2013, Vol. 46, n° 115202.
- 7. **Merlet, C., Llovet, X., Salvat, F..** Measuremets of absolute K-shell ionization cross sections and L-shell x-ray production cross sections of Ge by electron impact. *Physical Review A*. 2004, Vol. 69, n°032708.
- 8. **Campos, C. S., Vasconcellos, M. A. Z., Llovet, X., Salvat, F..** Measurements of L-shell x-ray production cross sections of W, Pt, and Au by 10-30 keV electrons. *Physical Review A*. 2002, Vol. 66, n° 012719.
- 9. Wu, Y., An, Z., Liu, M. T., Duan, Y., M., Tang, C. H., Luo, Z. M.. Measurements of L-shell x-ray production cross-sections of Au anf Ag by low energy electron impact. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2004, Vol. 37, pg. 4527-4537.
- 10. Zhang-Wen, WU, Cheng-Jun, GOU, Daí-Lun, YANG, Zhu, NA, Xiu-Feng, PENG, Fu-Qing, HE, Zheng-Ming, LUO. L- shell x-ray production cross sections of Ta and Tm by

- electron imparct near the threshold region. *Chinese Physics Letter.* 2005, Vol. 22, pg. 2538-2541.
- 11. **Merlet, C., Llovet, X., Fernández-Varea, J. M.**. Absolute K- shell ionization cross sections La and Lb1 x-ray production cross sections of Ga and As by 1.5-30 keV electrons. *Physical Review A*. 2006, Vol. 73, n° 062719.
- 12. **Wu, Y., An, Z., Duan, Y. M., Liu, M. T., Tang, C. H..** Measurements of Lalpha, Lbeta x-ray production cross sections of Pb by 16-40 keV electron impact. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics.* 2007, Vol. 40, pg. 735-742.
- 13. **Llovet, X., Powell, C. J., Salvat, F., Jablonski, A.** Cross Sections for Inner-Shell Ionization by Electron Impact. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. 2014, Vol. 43, n° 013102.
- 14. **Jahnke, Viktor.** Medida da seção de choque de ionização da camada atômica K por impacto de elétrons. s.l. : Universidade de São Paulo, 2012.
- 15. **Zhengming, L., Changhuan, T., Zhu, A., Fuqing, H., Xiufeng, P., Xianguan, L..** Selenium and yttrium K-shell ionization cross sections by impact eletrons. *Physical Review A*. 2001, Vol. 63, n° 034702.
- 16. **Shima, K., Nakagawa, T., Umetani, K., Mikumo, T..** Threshold behavior of Cu-, Ge-, Ag-K-, and Au-L3-shell ionization cross sections by electrons impact. *Physical Review A*. 1981, Vol. 24, pg. 72-78.
- 17. **Pálinkás, J., Schlenk, B.**. L-subshell ionization cross sections for Au, Pb, and Bi by 60-600 keV electron impact. *Zeitschrift für Physik A: Atoms and Nuclei*. 198, Vol. 297, pg. 29-33.
- 18. **Eisberg, R., Resnick, R..** Física quântica: átomos, moléculas, sólidos, núcleos e partículas. s.l.: Campus, 1994.
- 19. **Krause, M. O..** Atomic Radiative and Radiationless yields fot K and L shells. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. 1979, Vol. 8, pg. 307-327.
- 20. Crasemann, B.. Atomic Inner-Shell Processes. s.l.: Academic Press, 1975.

- 21. **Wegrzynek, D., Markowicz, A., Cuevas, A. M..** Evaluation of the energy-dispersive x-ray spectra of high-Z elements using Gaussian and Voigt peak shape profiles. *X-Ray Spectrometry*. 2001, Vol. 30, pg. 403-412.
- 22. **Knoll, G. F..** Radiation Detection and Measurement. s.l.: John Wiley & Sons, Inc.
- 23. **Jenkins, R., Manne, R., Robin, R., Senemaud, C..** Nomenclature system for x ray spectroscopy. *Pure and Applied Chemistry.* 1991, Vol. 63, pg. 735-746.
- 24. **Messiah**, **A.**, **Potter**, **J.**. *Quantum Mechanics*. s.l.: North-Holland Publishing Company Amsterdam., 1981.
- 25. **Fano**, **U.** Differencial inelastic scatterring of relativistic charged particles. *Physical Review*. 1956, Vol. 102, pg. 385-387.
- 26. **Bote, D.** Colisiones de partículas cargadas. Modelos de interacción y algotitmos numéricos. *Tese de Doutoramento*. s.l.: Universitat de Barcelona, 2010.
- 27. **Bote, D., Salvat, F., Jablonski, A., Powell, C. J.** Cross sections for ionization of K, L and M shells of atoms by impact of electrons and positrons with energies up 1 GeV: Analytical formulas. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. 2009, Vol. 95, pg. 871-909.
- 28. **Rao, P. V..** Atomic Vacancy Distributions Produced by Inner-shell Ionization. *Physical Review A*. 1972, Vol. 5, pg. 997-1012.
- 29. Vanin. V. R., Gouffon, P., Helene, O. Análise estatística de medidas em ciências exatas. 2012. Notas de aula.
- 30. Jackson, J. D.. Classical Electrodynamics. s.l.: John Wiley & Sons, Inc., 1998.
- 31. **Salvat, F., Fernández-Varea, J. M., Sempau, J., Llovet, X.** Monte Carlo simulation of bremsstrahlung emission by electrons. *Radiation Physics and Chemistry*. 2006, Vol. 75, pg. 1201-1219.
- 32. Salvat, F., Fernández-Varea, J. M., Sempau, J. PENELOPE, a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport. Barcelona: Universidade de Barcelona, 2008.

- 33. **Seltzer, S. M., Berger, M. J..** Bremsstrahlung spectra from electron interactions with screened atomic nuclei and orbital electrons. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B.* 1985, Vol. 12, pg. 95-134.
- 34. **Seltzer, S. M., Berger, M. J..** Bremsstrahlung energy spectra from electrons with kinetic energy 1 keV 10 GeV incident on screened nuclei and orbital electrons of neutral atoms with Z=1-100. *Atomic Data Nuclear Data Tables*. 1986, Vol. 35, pg. 345-418.
- 35. Maidana. N. L., Vanin, V. R., Jahnke, V., Godoy, W., Martins, M. N., Pino, N. L., Brualla, L.. Peripheric dead layers in HPGe x-ray detectors measurement. *2012 Internacional Symposium on radiation Physics*. 2012. Rio de Janeiro.
- 36. Maidana, N. L., Vanin, V. R., Jahnke, V., Fernández-Varea, J. M., Martins, M. N., Brualla, L.. Efficiency calibration of x-ray HPGe detectors for photons with energies above the Ge K binging energy. *Nuclear Instruments and Methods in Physic Research A*. 2013, Vol. 729, pg. 371-380.
- 37. **A65-B32-MAESTRO-32-MCA.** Ortec Catalogues. [Online] 2013. [Citado em: 20 de Maio de 2103.] http://pubs.usgs.gov/of/2003/of03-029/HTML/Software.html.
- 38. INTDS International Nuclear target Development Society. [Online] 2013. [Citado em: 15 de Maio de 2013.] http://www.intds.org.
- 39. Laboratório de Materiais e Feixes Iônicos. [Online] 2013. [Citado em: 30 de Agosto de 2013.] http://www2.if.usp.br/~lamfi/multiuso.htm.
- 40. **Mayer, Matej.** SIMNRA User's Guide. Max-Planck-Institut f□ur Plasmaphysik. [Online] 2002. [Citado em: 12 de Março de 2013.] http://www2.if.usp.br/~lamfi/guia-simnra.pdf.
- 41. Fernández-Varea, J., M., Jahnke, V., Maidana, N., L., Malafronte, A.A., Vanin, V. R.. K-shell ionization cross sections of Au e Bi by electron impact measured from threshold to 100 keV. *Artigo aceito para publicação em Journal of Physical Chemistry B.* 2014.
- 42. **Espen, P. V., Nulles, H., Adams, F..** A computer analysis of x-ray fluorescence spectra. *Nuclear Instruments and Methods.* 1977, Vol. 142, pg. 243-250.
- 43. **Espen, P. V., Nulles, H., Adams, F..**. A method for the accurate description of the full-energy peaks in non-linear least-squares analysis of x-ray spectra. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, Vol. 145, pg. 579-582.

- 44. **Limandri, S. P..** Estudio de parámetros atômicos y moleculares en espectroscopía de rayos x. Aplicación a La cuantificación sin estándares. *Tese de doutoramento*. s.l.: Universidad Nacional de Córdoba, 2011.
- 45. **Kielkopf, J. F.** New approximation to the Voigt function with applications to spectral-line profile analysis. *Journal of the Optical Society of America*. 1973, Vol. 63, pg. 987-995.
- 46. **Drayson, S.** Note Rapid Computation of the Voigt Profile. *Journal of Quantitative Spectrometry & Radiative Transfer.* 1976, Vol. 16, pg. 611-614.
- 47. **Limandri, S. P., Bonetto, R. D., Di Rocco, H. O., Trincavelli, J. C..** Fast and accurate expression fot the Voigt function. Application to the determination of uranium M line widhts. *Spectrochimica Acta Part B.* 2008, Vol. 63, pg. 962-967.
- 48. **Roston, G. D., Obaid, F. S.** Exact analytival formula for Voigt spectral line profile. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer.* 2005, Vol. 94, pg. 255-263.
- 49. Zevallos-Chávez, J. Y., Cruz, M. T. F., Martins, M. N., Likhachev, V. P., Zamboni, Z. B., Camargo, S. P., Genezini, S. A., Medeiros, J. A. G., Hindi, M. M.. Response function of a germanium detector to photon energies between 6 and 120 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2001, Vol. 457, pg. 212-219.
- 50. **Phillips, G. W., Marlow, K. W..** Automatic analysis of gamma-ray spectra from germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods*. 1976, Vol. 137, pg. 525-536.
- 51. **Krause, M. O., Oliver, J. H..** Natural Widths of Atomic K and L Levels, Kα X-ray Lines and Several KLL Auger Lines. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. 1979, Vol. 8, pg. 329-338.
- 52. **Scholze, M., Procop, M..** Modelling the response function of energy dispersive X-ray spectrometers with silicon detector. *X-ray Spectrometry*. 2009, Vol. 38, pg. 312-321.
- 53. Gao, F., Campbell, L. W., Devanathan, R., Xie, Y., Corrales, L. N., Peurrung, A., J., Weber, W. J.. Monte Carlo method for simulating gama ray interaction with materials: A case study on Si. *Nuclear instruments & methods in physics research A*. 2007, Vol. 579, pg. 292-296.

- 54. Gao, F., Campbell, L. W., Devanathan, R., Xie, Y. L., Zhang, Y., Peurrung, A. J., Weber, W. J.. Gamma ray interation in Ge: A Monte Carlo Simulation . *Nuclear instrumentas & methods in physics research B.* 2007, Vol. 255, pg. 286-290.
- 55. Laboratoire National Henri Becquerel. [Online] [Citado em: 30 de Agosto de 2013.] http://www.nucleide.org.
- 56. Hansen, J.S., McGeorge, J. C., Nix, D., Schmidt-Ott, W. D., Onus, I., Fink, R.W.. Accurate efficiency calibration and properties of semiconductor detectors for low-energy photons. *Nuclear Instruments and Methods*. 1973, Vol. 106, pg. 365-379.
- 57. **Gallagher, W. J., Cipolla, S. J..** A model-based efficiency calibration of Si(Li) detector in the energy region from 3 to 140 keV. *Nuclear Instruments and Methods*. 1974, Vol. 122, pg. 405-414.
- 58. **Campbell, J. L., Jorch, H. H., Thompson, J. A.** Parametric representation of x-ray detector efficiency curves. *Nuclear Instruments and Methods*. 1977, Vol. 140, pg. 167-173.
- 59. **Cipolla, S. J., Gallagher, W. J.** Constrained model-based representation of x ray detector efficiency curves. *Nuclear Instruments and methods*. 1979, Vol. 161, pg. 161-162.
- 60. **O'Meara, J. M., Campbell, J. L..** Corrections to the conventional approach to Si(Li) detector efficiency. *X-Ray Spectrometry*. 2004, Vol. 33, pg. 146-157.
- 61. **Seltzer, S. M..** Calculated response of intrinsic germanium detectors to narrow beams of photons with energies up to~300 keV. *Nuclear Instruments and Methods*. 1981, Vol. 188, pg. 133-151.
- 62. **Scofield, J. H.** Theoretical photoionization cross sections from 1 to 5000 keV. *Lawrence Livermore laboratory*. 1973, pg. 1-373.
- 63. Hubbel, J. H..Veigele, W. J., Briggs, E. A., Brown, R. T., Cromer, D. T., Howerton, R. J.. Atomic form factors, Incoherent scattering functions, and photon scattering cross sections. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. 1975, Vol. 4, pg. 1269-1290.
- 64. **Hubbel, J. H..** Photon mass attenuation and energy-absortion coefficients from 1 keV to 20 MeV. *Journal Applied Radiation and Isotopes*. 1982, Vol. 33, pg. 1269-1290.

- 65. Bambynek, W., Crasemann, B., Fink, R. W., Freund, H. U., Mark, H., Swift, C. D., Price, R. E., Rao, P. V.. X-ray flourescence yields, Auger and Coster-Kronig Transition Probabilities. *Reviews of Modern Physics*. 1972, Vol. 44, pg. 716-813.
- 66. **Unterweger, M. P..** Half-life measurements at the National Institute of Standards and Technology. *Applied Radiation and Isotopes*. 2002, Vol. 56, pg. 125-130.
- 67. **Landau, L.** On the energy loss of fast particles by ionization. *Journal of Physics U.S.S.R.* 1944, Vol. 8, pg. 417-424.
- 68. Nist Physical Reference Data. [Online] [Citado em: 30 de Agosto de 2013.] http://www.nist.gov.
- 69. **Scholze, M., Procop, M..** Measurement of detection efficiency and response functions for an Si(Li) x-ray spectrometer in the range 0.1-5 keV. *X-Ray Spectrometry*. 2001, Vol. 30, pg. 69-76.
- 70. **Lépy, M. C., Plagnard, J., Ferreux, L..** Study of the response function of the a HPGe detector for low-energy X-rays. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 2003, Vol. 505, pg. 290-293.
- 71. **Lee, M. C., VerGhese e Gardner, R. P..** Extension of the semiempirical germanium detector response function to low energy gamma ray. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.* 1987, Vol. 2692, pg. 430-438.
- 72. **Majer, M., Budanec, M., Jerbic-Zorc, G., Pasic, S., Uróic, M., Vukovic, B., Ilakovoc, K..** Effects of near-source photon scattering at energy of 60 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.* 2004, Vol. 524, pg. 227-235.
- 73. **Majer, M., Uroic, M., Bokulic, T., Pasic, S., Vukovic, B., Ilakovic, K..** Effects of near-source Comptomscaterring in low-energy γ-ray spectra. *Nuclear InstrumentsandMethods in PhysicsResearch A.* 2005., Vol. 555, pg. 243-250.
- 74. **Deslattes, R. D., Kessler, E. G. Jr., Indelicato, P., Billy, L., Lindroth, E., Anton, J.** X-ray transition energies: new approach to a comprehensive evaluation. *Reviews of Modern Physics*. 2003, Vol. 75, pg. 35-99.
- 75. DSPEC jr 2.0 Digital Gamma-Ray Spectrometer. Hardware User's Manual.

- 76. **Scofield, J. H..** Exchange corrections of K emission rates. *Physical Review A*. 1974, Vol. 9, pg. 1041-1049.
- 77. **Campbell, J. L., Wang, J. X..** Interpolated Dirac-Fock Values of L-Subshell x-ray emission rates including overlap and exchange effects. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*. 1989, Vol. 43, pg.281-291.
- 78. **Fernández-Varea, J. M., Segui. S., Dingfelder, M..** Lalpha, Lbeta and Lgama x-ray production cross sections of Hf, Ta, W, Re, Os, Au,Pb, and Bi by electron impact: Comparison of distorted-wave calculations with experimental . *Physical Review A.* 2011, Vol. 83, n° 022702.
- 79. **Reusch, S., Genz, H., Löw, W., Richter, A.** A method to determine L-subshell ionization cross sections for medium and heavy elements. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*. 1986, Vol. 3, pg. 379-389.
- 80. **Santos, J. M. F., Monteiro, C. M. B.** The response of high-purity germanium detectors to X-rays with energy in the region of the Ge K-absortion edge. *Applied Radiation and Isotopes*. 2001, Vol. 55, pg. 331-334.
- 81. **Green, M., Cosslett, V. E..** Measurements of K, L and M shell x-ray production efficiencies. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 1968, Vol. 1, pg. 425-436.
- 82. **Davis, D. V., V. D. Misttry, Quarles, C. A..** Inner shell ionization of copper, solver and gold by electron bombardment. *Physics letters*. 1972, Vol. 38A, pg. 169-170.
- 83. **Schneider, H., Tobehn, I., Ebel, F., Hippler, R.**. Absolute cross sections for inner shell ionization by lepton impact. *Physical Review letters*. 1993, Vol. 71, pg. 2707-2709.