

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

**ESTUDO DO PODER DE FREAMENTO
DE He, Li, Eu e Bi CANALIZADOS EM ALVOS DE Si CRISTALINO ¹**

Gustavo de Medeiros Azevedo

Tese realizada sob a orientação dos Drs. Moni Behar e Pedro L. Grande e apresentada ao Instituto de Física da UFRGS, em preenchimento parcial dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Porto Alegre
13 de Abril de 2000

¹ Trabalho financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico(CNPq)

Agradecimentos

Ao CNPq, pela concessão da bolsa de doutoramento.

Aos meus orientadores, Pedro e Moni, pela orientação e pelo entusiasmo com que conduziram este trabalho.

Ao meu amigo Johnny, por sua amizade e por todas as suas contribuições na realização desta tese.

Aos técnicos do implantador, Miro, Paulo, André e Henrique e ao Engenheiro Agostinho, pelo auxílio em todos os experimentos realizados neste trabalho.

A Júlio C. Martini, pela implementação do controle de temperatura no goniômetro utilizado nas implantações de Eu e Bi.

A todos os professores do Instituto de Física da UFRGS, em especial ao professor Henri Boudinov, que me deu as “dicas” para a instalação do MARLOWE e ao professor Joel P. de Souza, por ter me cedido inúmeras amostras de SIMOX.

Ao meu amigo Itamar, pelo incentivo e pelos cálculos *ab initio* do potencial interatômico Eu-Si.

A todos os colegas de graduação e Pós-Graduação do IF-UFRGS

A todos os funcionários do Instituto de Física, em especial à secretária Wanda e à bibliotecária Silvia, pela competência e dedicação.

Dedicatória

Este trabalho é dedicado à minha esposa e companheira, Leticia, e aos meus pais, Rômulo e Rosemary, que me deram o apoio e o estímulo necessários para que eu chegasse até aqui.

”If there is no solace in the fruits of our research, there is at least some consolation in the research itself. Men and women are not content to comfort themselves with tales of gods and giants, or to confine their thoughts to the daily affairs of life; they also build telescopes and satellites and accelerators, and sit at their desks for endless hours working out the meaning of the data they gather. The effort to understand the universe is the one of the very few things that lifts human life a little above the level of farce, and gives it some of the grace of tragedy.”

Steven Weinberg

Índice

1. Introdução	4
1.1 Organização do trabalho	5
2. A interação de íons com a matéria	6
2.1 Introdução	6
2.2 Alguns conceitos fundamentais	7
2.2.1 A aproximação de colisões binárias	7
2.2.2 A seção de choque de perda de energia	8
2.3 O poder de freamento nuclear	9
2.3.1 O potencial interatômico	10
2.3.2 O potencial FEG	12
2.3.3 O potencial ZBL	14
2.3.4 O conceito de universalidade	14
2.4 O poder de freamento eletrônico	15
2.4.1 Teoria de Bohr	15
2.4.2 Teoria de Bethe	18
2.4.3 Freamento de íons num gás de elétrons.	19
2.4.4 Teoria da resposta linear	19
2.5 O efeito de canalização	20
2.5.1 O modelo contínuo	22
2.5.2 Energia transversal	25
2.5.3 O ângulo crítico de canalização	26
2.5.4 O fluxo de partículas dentro do canal	27
3. Técnicas experimentais	30
3.1 Introdução	30
3.2 Implantação Iônica	30
3.3 Espectrometria de Retroespalhamento de Rutherford (RBS)	32
3.3.1 Introdução: Conceitos fundamentais	32
3.3.2 O fator cinemático	33
3.3.3 A seção de choque de espalhamento	35
3.3.4 Perda de energia	37
3.3.5 O Fator de Perda de Energia	38
3.3.6 Um exemplo de análise por RBS	39
3.4 Canalização	40

3.4.1	O procedimento de Canalização de um cristal de Si	42
4.	Procedimentos experimentais I: íons pesados	46
4.1	Introdução	46
4.2	Preparação de amostras	46
4.3	O procedimento de implantação em direção de canalização	47
4.4	Determinação das fluências de implantação	48
4.5	Obtenção dos perfis de implantação	50
4.6	Análise dos dados	52
5.	Resultados e discussões I: íons pesados.	53
5.1	Introdução: o efeito Z_1	53
5.2	O programa MARLOWE	57
5.3	Implantações de Bismuto	58
5.3.1	Escolha do potencial interatômico	60
5.3.2	Escolha do modelo de freamento eletrônico	61
5.3.3	Determinação da temperatura de Debye	61
5.3.4	Discussões	63
5.4	Implantações de Európio	64
5.4.1	O potencial interatômico Eu-Si	71
5.4.2	Cálculo <i>ab initio</i> do potencial Eu-Si	76
6.	Procedimentos experimentais II: íons leves	80
6.1	Perda de energia de íons leves	80
6.2	Medidas da perda de energia como função da energia do feixe	82
6.3	Análise de dados	82
6.4	Medidas da dependência da perda de energia com o ângulo de incidência do feixe.	85
7.	Resultados e discussões II: íons leves.	89
7.1	Introdução	89
7.2	Resultados das medidas da perda de energia de íons de He canalizados	90
7.2.1	Dependência com a energia	90
7.2.2	Dependência angular	93
7.3	Resultados das medidas da perda de energia de íons de Li canalizados	97
7.3.1	Dependência com a energia	97
7.3.2	Dependência angular	100
7.4	Discussão	100
7.4.1	Cálculo do fluxo de íons dentro do canal.	103
7.4.2	Determinação de $Q(b)$	106
7.4.3	Cálculo da perda de energia como função da energia do projétil	111
7.4.4	Cálculo da dependência angular da perda de energia	118

8. Conclusões	126
8.1 Íons pesados	126
8.2 Íons leves	128
A. A aproximação de colisões binárias e o programa MARLOWE	131
A.1 Introdução	131
A.2 Cinemática de colisões binárias	132
A.3 As integrais de espalhamento	135
A.3.1 Determinação do ângulo de espalhamento (Θ)	135
A.3.2 Determinação da Integral de tempo (τ) ou <i>Time Integral</i>	137
A.3.3 Determinação numérica das integrais de espalhamento	137
A.4 Vibrações térmicas	139
A.5 Potenciais Interatômicos	139
A.5.1 Potencial de Born-Mayer	140
A.5.2 Potencial de Molière	140
A.5.3 Potencial ZBL	140
A.5.4 Potencial AMLJ	141
A.6 Perda de energia eletrônica	141
A.6.1 O modelo de Firsov	141
A.6.2 O modelo de Robinson e Oen	142
A.7 Construção das trajetórias	143
A.7.1 Procedimento de procura dos alvos	143
A.7.2 Tratamento das colisões simultâneas	144
A.7.3 Trajetórias assintóticas	145
B. Cálculo de $Q(b)$: os modelos PCA e UCA	148
B.1 Introdução	148
B.2 O modelo PCA	149
B.2.1 Introdução de potenciais blindados no modelo PCA	152
B.3 O modelo UCA	157
C. Publicações relacionadas com este trabalho	159
C.1 Artigos Publicados	159
C.2 Artigos aceitos para publicação	159
C.3 Artigos submetidos	159
C.4 Artigos em preparação	159

Relação de Tabelas

4.1	Resumo das implantações realizadas neste trabalho.	50
6.1	Resumo das medidas de perda de energia canalizada realizadas neste trabalho.	85
6.2	Resumo das medidas da dependência angular da perda de energia canalizada.	86
7.1	Parâmetros de ajuste para os dados de perda de energia canalizada, realizados com a fórmula 7.1 (ref. [52]). Inserindo estes parâmetros na fórmula 7.1 juntamente com a energia do feixe em MeV's obtemos os valores da perda de energia em eV/Å.	100

Relação de Figuras

2.1	Tendência geral da perda de energia como função da velocidade do projétil.	7
2.2	Relação entre os vetores \vec{r} , \vec{r}_1 e \vec{r}_2	12
2.3	Definição do tempo de colisão	16
2.4	O modelo de transparência prevê ângulos críticos de canalização muito pequenos	21
2.5	Parte de uma trajetória de uma partícula canalizada mostrando uma seqüência de colisões binárias cuja trajetória resultante pode ser descrita em termos de um modelo contínuo.	23
2.6	Colisões de partículas canalizadas com uma coluna estática idealizada de átomos. A figura está fora de escala. Na verdade, várias centenas de átomos estão envolvidos na deflexão da trajetória do íon.	23
2.7	Representação artística do efeito de canalização de um íon viajando ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ de um cristal de Si [38].	24
2.8	Potencial contínuo para íons de He canalizados ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ do Si.	25
2.9	Resultados de simulações da probabilidade de encontro nuclear como função da profundidade para íons de He canalizados na direção $\langle 100 \rangle$ do Si.	28
2.10	Esquema mostrando a origem da focalização do fluxo de partículas canalizadas no centro do canal [10].	29
3.1	Esquema do arranjo experimental numa análise por RBS.	32
3.2	Representação esquemática de uma colisão elástica de um projétil de massa M_1 , velocidade v_0 e energia E_0 com um alvo inicialmente em repouso. Após a colisão, as velocidades e energias do projétil e do alvo são v_1 , E_1 e v_2 , E_2 , respectivamente. Todas as quantidades se referem ao referencial do laboratório.	33
3.3	Gráfico de $(dK/dM_2)^{-1}$ como função das massas do alvo para feixes de C e He. Para o feixe de He temos duas geometrias de retroespalhamento. Esta figura sugere que a resolução em massa do RBS deve melhorar com o aumento da massa do projétil e com o aumento do ângulo θ	35
3.4	Dependência da seção de choque de Rutherford com o ângulo de retroespalhamento (θ). Aqui, utilizamos $Z_1 = 4$, $Z_2 = 14$ e $E_0 = 1$ MeV na equação (3.5).	36
3.5	Esquema de um evento de retroespalhamento ocorrendo a uma profundidade x de uma amostra monoisotópica. Aqui, o feixe incidente, a direção de detecção e a normal da amostra são coplanares.	37
3.6	Exemplo de um espectro de RBS de uma amostra contendo impurezas.	40

3.7	Comparação dos espectros de RBS obtidos em direção aleatória (curva superior) e direção canalizada (curva inferior). Uma janela em energia é mostrada logo atrás do pico de superfície.	41
3.8	Razão χ como função do ângulo de inclinação Ψ (em graus) do feixe com relação ao eixo de canalização.	42
3.9	Célula cúbica do Si. Cada aresta do cubo tem 5,43 Å de comprimento . . .	43
3.10	Orientação dos planos atômicos em torno dos três eixos principais do Si: (a) $\langle 111 \rangle$, (b) $\langle 100 \rangle$ e (c) $\langle 110 \rangle$	44
3.11	(a) Contagens de RBS correspondentes à janela da figura 3.7 como função do ângulo azimutal (de rotação) ϕ , para um ângulo de inclinação θ de 6°. (b) Gráfico polar dos mínimos planares da parte (a). (c) Determinação dos valores de θ e ϕ para o alinhamento na direção $\langle 110 \rangle$ [8].	45
4.1	Espectros de RBS/C de amostras implantadas com Bi a 30 keV (a 350°C). Os espectros correspondentes a fluências entre $\phi = 1 \times 10^{14}$ e $\phi = 2 \times 10^{14}$ at/cm ² foram omitidos uma vez que são idênticos ao espectro de amostra virgem. . .	48
4.2	Razão mínima de contagens (χ_{min}) como função da fluência para implantações de Bi a 30 keV (350°C) na direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Aqui, pode-se inferir que a máxima fluência que pode ser implantada sem produzir uma quantidade mensurável de danos nas amostras de Si é de $\phi = 2 \times 10^{14}$ Bi/cm ²	49
4.3	Um exemplo típico de análise de RBS em direção canalizada (símbolos cheios) e direção aleatória (linha contínua). Nesta análise utilizamos um feixe de partículas alfa de 1.5 MeV. Repare que a análise em direção aleatória dificulta a observação da cauda do perfil devido à presença do <i>pile-up</i>	51
5.1	Alcances reduzidos como função de Z_1 . A linha sólida corresponde à relação universal obtida com o potencial ZBL. OS símbolos são os dados experimentais da ref. [57]. A linha tracejada serve apenas para guiar os olhos do leitor.	54
5.2	Poder de freamento reduzido como função de Z_1 . A linha sólida horizontal corresponde à relação universal obtida com o potencial ZBL. OS símbolos são os dados experimentais da ref. [62]. A linha tracejada serve apenas para guiar os olhos do leitor.	56
5.3	Perfis de concentração de íons de Bi implantados a 20, 30 e 40 keV ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Os círculos cheios são os dados experimentais e as linhas, simulações com o MARLOWE. A linha sólida, corresponde à simulação realizada utilizando o potencial ZBL e temperatura de Debye ($\Theta_D = 490$ K). A linha tracejada corresponde à simulação utilizando o potencial ZBL e $\Theta_D = 543$ K. Maiores detalhes no texto.	59
5.4	Esquema que demonstra que o perfil de implantação canalizada (linha sólida) pode ser entendido como uma soma de um perfil aleatório (linha pontilhada) com um perfil correspondente aos íons bem canalizados (linha tracejada). . .	60
5.5	Comparação entre as funções de blindagem $\Phi(r)$ como função da distância interatômica r (em Å) para o sistema Bi + Si. Potencial FEG (linha tracejada), Molière (linha pontilhada) e ZBL (linha contínua).	61

5.6	Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 15 e 20 keV ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Os símbolos são os dados experimentais e as linhas, simulações com o MARLOWE. A linha sólida, corresponde à simulação realizada utilizando o potencial ZBL e temperatura de Debye ($\Theta_D = 490$ K). A linhas tracejadas são os resultados das simulações com o potencial proposto nas equações 5.5 e 5.6.	65
5.7	Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 30, 40 e 50 keV ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Para maiores detalhes, veja legenda da figura 5.6 . . .	66
5.8	Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 20 e 30 keV ao longo da direção $\langle 111 \rangle$ do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6	67
5.9	Magnitude do efeito $Z_1 (M_{Z_1})$ como função da energia inicial do feixe. Círculos, quadrados e triângulos correspondem aos dados das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, respectivamente.	68
5.10	Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 15, 20 e 30 keV ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6 . . .	69
5.11	Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 40 e 50 keV ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6	70
5.12	Comparação dos dados de alcances de íons de Eu implantados em Si amorfo (círculos vazios)[67, 86] com resultados de simulações com o MARLOWE utilizando o potencial V_c (veja discussão no texto) das equações 5.5 e 5.6 (linha contínua). A linha tracejada corresponde às previsões do MARLOWE com o potencial ZBL e a linha pontilhada é o resultado da utilização do potencial cortado abruptamente (equação 5.3) com $R_c = 12 \times a_{ZBL}$	72
5.13	Comportamento típico do ângulo de espalhamento θ_{lab} como função do parâmetro de impacto b , calculado para o potencial cortado (linha tracejada) e para o potencial ZBL (linha contínua).	73
5.14	Gráficos da perda de energia e eletrônica ($Q(b)$) e nuclear ($T(b)$), numa colisão binária, como função do parâmetro de impacto. Para calcular $Q(b)$ e $T(b)$ utilizamos o modelo de Robinson e Oen e o potencial V_c , respectivamente.	75
5.15	Diferença relativa entre T_{ZBL} e T_{V_c} . Veja o texto para maiores detalhes.	76
5.16	Na parte (a) apresentamos a comparação do potencial ZBL (linha tracejada) com o potencial calculado pela teoria DFT e com o potencial V_c obtido a partir dos nossos dados experimentais (linha pontilhada). Na parte (b) mostramos o potencial DFT em detalhe. Como se pode ver, o potencial DFT fica negativo para $R \geq 1.4$ Å, o que sugere a formação de uma molécula em colisões de baixa energia.	78
6.1	Esquema de uma estrutura SIMOX.	80
6.2	Espectros de RBS aleatório e canalizado ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ de um alvo do tipo SIMOX medidos com íons de He^+ de 1.2MeV. Na figura, indicamos as regiões do espectro correspondentes ao sinal do Si da camada cristalina mais externa (Si-c), ao sinal do Si da camada enterrada de SiO_2 ($Si(SiO_2)$), ao sinal do oxigênio do SiO_2 ($O(SiO_2)$) e ao Si do substrato.	81

6.3	Espectro de RBS em amostra de SIMOX, em direção canalizada e aleatória com feixe de íons de He a 1.2 MeV. As setas indicam os canais correspondentes às energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO ₂ em cada geometria. As linhas sólidas representam resultados típicos do procedimento de ajuste utilizado para obter as energias correspondentes à interface.	83
6.4	Espectro de RBS em amostra de SIMOX, em direção canalizada e aleatória com feixe de íons de Li a 2 MeV. As setas indicam os canais correspondentes às energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO ₂ em cada geometria.	83
6.5	Espectros canalizados e aleatório, tomados com feixes de ⁴ He de 0.96 MeV, com $\Psi = 0, 0.4$ e 0.6° com relação à direção $\langle 100 \rangle$	87
6.6	Espectros canalizados e aleatório, tomados com feixes de ⁷ Li de 1.2 MeV com $\Psi = 0, 0.4$ e 0.6° com relação à direção $\langle 100 \rangle$. A linha sólida corresponde a um resultado dos ajustes descritos no texto.	88
7.1	Perda de energia de íons de ⁴ He canalizados nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. A linha contínua na metade superior da figura representa os dados experimentais da perda de energia de He em Si amorfo da ref. [52]. As linhas tracejadas são o resultado do ajuste dos dados experimentais com a fórmula 7.1.	91
7.2	Razão α para íons de He canalizados ao longo das direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ (símbolos). As linhas contínuas representam os dados experimentais da ref. [55] e as linhas tracejadas servem apenas para guiar os olhos do leitor.	92
7.3	Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Os símbolos vazios representam os dados experimentais da ref. [109].	94
7.4	Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 110 \rangle$ do Si. Os círculos vazios na metade superior da figura representam os valores experimentais da probabilidade de retroespalhamento próximo à superfície ($\chi(\Psi)$).	95
7.5	Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 111 \rangle$ do Si.	96
7.6	Perda de energia de íons de ⁷ Li canalizados nas direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. Os círculos cheios são os resultados do presente trabalho. Os quadrados vazios são os resultados experimentais da ref. [113] A linha contínua corresponde aos dados experimentais do IF-UFRGS para Li incidente em Si amorfo[111] e as linhas tracejadas são o resultado do ajuste dos nossos dados experimentais com a fórmula 7.1.	98
7.7	Razão α como função da energia para íons de Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ (símbolos). As linhas tracejadas servem apenas para guiar os olhos do leitor.	99
7.8	Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de Lítio de 1.2 MeV canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$ do Si.	101
7.9	Fluxo de partículas como função do ângulo de incidência do feixe Ψ	102
7.10	Disposição espacial das colunas de átomos paralelas às direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si.	104

7.11	Curvas de nível do potencial $U(x,y)$ (eV) para as direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si.	105
7.12	Comparação dos cálculos PCA e UCA com cálculos SCA para um íon de He^+ colidindo com um átomo de Si. As linhas tracejadas correspondem aos cálculos UCA . Os cálculos PCA estão representados pelas linhas contínuas e os cálculos SCA, pelos símbolos.	109
7.13	Comparação dos resultados de $Q_{loss}^+(b)$ obtidos com o o modelo UCA e com o método de canais acoplados	110
7.14	Comparação dos cálculos PCA e UCA (quadrados e círculos, respectivamente), com dados experimentais da perda de energia de He em Si amorfo da ref. [52] (linha contínua).	113
7.15	Comparação dos cálculos PCA (linha contínua) e UCA (linha tracejada) com dados experimentais da perda de energia de He canalizado ao longo das direções $\langle 100 \rangle$ [97, 54], $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ do Si. As linhas pontilhadas correspondem aos cálculos de canais acoplados das refs. [54, 105]	114
7.16	Comparação entre os dados experimentais de perda de energia de íons de Li incidentes em Si amorfo (linha contínua) e os cálculos PCA e UCA	116
7.17	Comparação entre os dados experimentais de perda de energia de íons de Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si e os cálculos baseados nos modelos PCA (linha contínua) e UCA (linha tracejada)	117
7.18	Dependência angular da perda de energia a 1.2 MeV, em torno da direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, calculadas com o modelo UCA (linha contínua). Os símbolos são os dados experimentais deste trabalho.	120
7.19	Dependência angular da perda de energia a 2.0 MeV, em torno das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ calculadas com o modelo UCA (linha contínua). Os símbolos são os dados experimentais deste trabalho.	121
7.20	Fluxo de íons de He sujeitos à canalização planar no plano $\{110\}$ do Si como função do ângulo de incidência do feixe	122
7.21	Resultados das estimativas de $Q(b)$ a partir dos dados experimentais.	123
7.22	Comparação do cálculo PCA com as estimativas de $Q(b)$ a partir dos dados experimentais (regiões hachuradas).	125
A.1	Trajetórias de espalhamento do projétil e de recuo do átomo alvo e suas respectivas assíntotas no sistema de referência do laboratório numa colisão binária com parâmetro de impacto p . Os círculos vazios representam as posições iniciais do projétil e do alvo. Os círculos cheios representam estas partículas no instante em que a distância de aproximação máxima (R) é atingida. Os valores de x e y indicados são os pontos de interseção das assíntotas das trajetórias com os eixos e com a reta $y = p$. Maiores detalhes no texto.	133
A.2	Esquema de uma colisão binária.	133
A.3	Relações entre as velocidades no ref. do C.M e do lab.	134
A.4	Definição das coordenadas $\varphi(t)$ e $r(t)$ que descrevem a colisão binária no referencial do centro de massa.	136

-
- A.5 Esquema que ilustra o procedimento de busca de alvos no MARLOWE. Veja o texto para maiores detalhes. Baseado na ref. [17] 144
- A.6 Comparação entre os tratamentos seqüencial e simultâneo de uma colisão de três corpos. O exemplo corresponde ao movimento de um átomo de Cu ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ dum cristal de Cu. Baseado na figura 5 da ref [72]. 145
- B.1 Representação esquemática da geometria de colisão, onde definimos o vetor r_T . O cilindro representa a densidade eletrônica do alvo integrada ao longo da direção de movimento do projétil. 150
- B.2 As funções $g(x)$ e $h(x)$ das equações B.6 e B.13 que descrevem os termos de dipolo e colisões quase livres, respectivamente. A linha pontilhada corresponde à função $g_s(x)$ para o potencial de Bohr (equação B.37) no caso limite ($\gamma = 1$) de um íon fortemente blindado. Para altas velocidades do projétil, as partes horizontais das funções têm uma considerável superposição. . . . 151

Resumo

RESUMO

Neste trabalho, foi realizado um estudo experimental sistemático da perda de energia de íons canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ de cristais de Si. Foram abordados dois aspectos distintos, porém correlatos, do problema. No primeiro tópico, estudamos o poder de freamento de íons pesados (Eu e Bi) com energias entre 15 e 50 keV, para os quais o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento nuclear. O segundo tópico está relacionado ao freamento de íons leves (He e Li) com energias no intervalo entre 0.3 e 8 MeV. Neste caso, os íons perdem energia, predominantemente, em colisões com elétrons.

O estudo do freamento dos íons pesados foi realizado de maneira indireta, pela comparação dos perfis de concentração de Eu e Bi implantados em direção canalizada com as previsões do programa MARLOWE, que simula a interação de feixes de íons com alvos sólidos. Nós observamos pela primeira vez, em implantações em direção canalizada, o chamado efeito Z_1 , ou seja, a deformação das núvens eletrônicas do projétil e do alvo em colisões binárias de baixa energia. Enquanto nossos dados para implantações de Bi são muito bem reproduzidas pelo MARLOWE, os perfis de Eu apresentam caudas mais profundas que as previstas por este programa. Além disso nós demonstramos que este comportamento é explicado por cálculos *ab initio* de estrutura molecular baseados na Teoria Funcional da Densidade (DFT).

Com relação os íons leves, a perda de energia foi obtida pela técnica de retroespalhamento Rutherford em amostras do tipo SIMOX, que consistem em uma camada de Si monocristalino de 200 nm sobre uma camada de 500 nm de SiO_2 enterrada numa matriz de Si $\langle 100 \rangle$. Com esta técnica nós realizamos medidas da perda de energia como função da energia e do ângulo de incidência do feixe com relação à direção de canalização. A análise teórica dos resultados foi realizada por intermédio de simulações das trajetórias canalizadas e de cálculos da dependência da perda de energia com o parâmetro de impacto. Estas comparações permitiram determinar o papel desempenhado pelos diversos mecanismos de perda de energia envolvidos no freamento dos íons canalizados.

ABSTRACT

In this work we have performed a systematic study of the energy loss of channeled ions along the $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ and $\langle 110 \rangle$ directions of Si single crystals. Two different, but related, topics of the problem were investigated. On the first topic we have studied the stopping powers of heavy ions (Eu and Bi) with energies ranging between 15 and 50 keV, for which the main slowing down mechanism is the nuclear stopping power. The second topic is related to the slowing down of light ions (He and Li) with energies ranging between 0.3 and 8 MeV. In this case, the projectile energy is lost mainly in electronic collisions.

The study of the slowing down of channeled heavy ions was performed in an indirect way, by comparing the depth profiles of Eu and Bi ions implanted under channeling conditions with calculations with the program MARLOWE which simulates the interactions of ion beams with solid targets. We have observed for the first time in channeling implantations the Z_1 effect, namely, the deformation of the periphery of the electronic clouds of the projectile and target in low energy atomic collisions. While our data for Bi implantations are very well reproduced by MARLOWE predictions the Eu profiles present long tails that go farther in the Si bulk than predicted by MARLOWE. Furthermore, we have demonstrated that this behavior is explained in terms of molecular structure *ab initio* calculations based on the Density Functional Theory (DFT).

Concerning the light ions, the stopping powers were measured by the Rutherford Backscattering technique with SIMOX samples that consist on a Si single crystal layer 200nm thick on the top of a 5000 nm thick SiO₂ layer buried on a Si $\langle 100 \rangle$ single crystal. With this technique we have measured both the energy and the angular dependency of the the channeling stopping power. The theoretical analysis of the results was performed by means of computer simulations of the channeled trajectories and in calculations of the impact parameter dependent energy loss. These comparisons allowed us to determine the relative role played by the energy loss processes under channeling conditions

Capítulo 1

Introdução

A passagem de um feixe de partículas carregadas através de um alvo sólido é, normalmente, um processo complicado onde é impossível prever exatamente a seqüência de colisões experimentadas por uma partícula do feixe. Em cada colisão, a interação da partícula do feixe com os átomos pode dar origem a uma série de fenômenos físicos que levam à redução da sua energia cinética. Por exemplo, podem ocorrer processos de excitação das camadas eletrônicas dos átomos do alvo e do projétil, troca de carga, reações nucleares, produção de raios-X, etc. A probabilidade de ocorrência de cada um destes processos depende do parâmetro de impacto nas colisões envolvendo as partículas do feixe e átomos individuais do alvo. Se o meio for amorfo, a seqüência de colisões experimentadas pelas partículas do feixe será completamente descorrelacionada e, conseqüentemente, a distribuição de parâmetros de impacto sondada por estas partículas será uniforme e independente da orientação relativa do feixe e do alvo. Nestas condições, as contagens de processos que dependam da interação do feixe com átomos individuais do alvo também serão independentes da direção do feixe. Por outro lado, quando o alvo é cristalino, a situação muda completamente de figura. Quando um feixe de íons incide paralelamente a um dos eixos principais de simetria de um cristal, as partículas do feixe experimentam uma seqüência de colisões em que ocorre uma pequena deflexão da trajetória. Portanto, estas colisões são fortemente correlacionadas à estrutura do cristal. O efeito líquido desta seqüência de colisões é que o íon passa a ser guiado pelo potencial eletrostático repulsivo devido às colunas de átomos que formam o cristal. Como resultado, a distribuição de parâmetros de impacto experimentada pelos íons do feixe muda drasticamente e conseqüentemente, dá origem aos efeitos direcionais mais conhecidos como **canalização de íons**[1, 2]. Em particular, a perda de energia de íons incidentes em direção de canalização sofre reduções drásticas quando comparada com uma incidência aleatória.

Neste trabalho foi realizado um estudo sistemático do poder de freamento de íons canalizados ao longo das três direções principais de simetria do Si: $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$. Foram abordados dois aspectos distintos do problema: por um lado, estudamos o freamento de íons pesados com energias de algumas dezenas de keV, onde o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento nuclear. Em particular, focalizamos na investigação do efeito Z_1 , que está relacionado a modificações no potencial interatômico devido à deformação das regiões periféricas das nuvens eletrônicas do projétil e do alvo, durante colisões de baixa energia. Nós fomos motivados pela idéia de que o efeito Z_1 deveria ser amplificado em implantações canalizadas. Neste estudo, os mecanismos de freamento foram investigados de maneira indireta, pela comparação de perfis de concentração de íons implantados em direções canalizadas com as previsões do programa MARLOWE. Por outro lado, também estudamos

a perda de energia de íons leves com energias entre algumas centenas de KeV's e alguns MeV's. Para estes íons, o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento eletrônico. Neste caso, a perda de energia dos íons canalizados foi obtida experimentalmente pela técnica de retroespalhamento Rutherford em estruturas tipo SIMOX. Com esta técnica, nós investigamos a dependência do poder de freamento com a energia inicial e com o ângulo de incidência do feixe. Os resultados destes experimentos foram interpretados por intermédio de cálculos, da dependência da perda de energia com o parâmetro de impacto, baseados na aproximação semi-clássica.

1.1 Organização do trabalho

Esta tese de doutoramento está organizada em sete capítulos, além desta introdução. No capítulo 2 apresentamos uma breve revisão da teoria de interação de íons com a matéria. As técnicas experimentais utilizadas são discutidas no capítulo 3. A partir do capítulo 4 e até o capítulo 7 a tese pode ser subdividida em 2 partes independentes, cuja ordem de leitura pode ser escolhida *ad libitum*. A primeira parte, que inclui os capítulos 4 e 5, se refere ao estudo do poder de freamento nuclear de íons pesados implantados em direções de canalização do Si. No capítulo 4, apresentamos em detalhes os procedimentos experimentais empregados e, no capítulo 5, os resultados e as discussões referentes a este estudo. A segunda parte inclui os capítulos 6 e 7, onde estudamos o poder de freamento eletrônico de íons leves canalizados no Si. No capítulo 6 descrevemos o procedimento experimental utilizado. No capítulo 7, apresentamos e discutimos os resultados experimentais obtidos. Finalmente, a tese tem seu ponto de convergência no capítulo 8, onde apresentamos um resumo de todas as conclusões deste trabalho. Esta tese inclui também três apêndices. O programa MARLOWE (que utilizamos para interpretar os perfis de implantação dos íons pesados) e a aproximação de colisões binárias são discutidos no apêndice A. No apêndice B, apresentamos os modelos PCA e UCA que descrevem a dependência da perda de energia eletrônica com o parâmetro de impacto. Estes modelos são baseados na aproximação semiclássica e foram utilizados para interpretar os resultados experimentais da perda de energia eletrônica dos íons leves canalizados. Finalmente, algumas publicações relacionadas com este trabalho estão incluídas no apêndice C.

Capítulo 2

A interação de íons com a matéria

2.1 Introdução

Os processos de perda de energia de íons vêm sendo estudados desde o início deste século, quando se observou que os fragmentos de fissão nuclear tinham sua velocidade reduzida ao penetrar na matéria. Desde então, este tópico tem atraído a atenção de alguns dos maiores físicos deste século como J. J. Thomson, E. Rutherford, N. Bohr[4], H. Bethe, F. Bloch, E. Fermi, J. Lindhard[5, 6, 7], entre outros ¹. Tal interesse foi despertado tanto pelas inúmeras aplicações (análise, modificação e produção de novos materiais por feixes de íons [8, 9, 10, 11, 12]) que requerem um conhecimento preciso dos mecanismos de interação íon-matéria, quanto pela possibilidade de se testar modelos e teorias nas áreas de Física atômica e de Física do estado sólido.

O mecanismo fundamental de interação entre uma partícula eletricamente carregada e um meio material consiste na interação eletromagnética da partícula com os átomos e elétrons que constituem o meio. Quando um íon penetra na matéria esta interação eletromagnética se manifesta de várias maneiras. O campo elétrico devido ao íon incidente pode produzir excitações ou ionizações dos átomos do alvo. Reciprocamente, a interação com os átomos do alvo pode excitar ou ionizar o íon incidente bem como fazer com que o mesmo capture elétrons do meio. A interação também pode produzir excitações coletivas no alvo tais como plásmos e fônons bem como a criação de excitons e de centros de cor [13, 14, 15, 16]. As excitações e ionizações do projétil ou do alvo ocorrem às custas da transformação de parte da energia cinética do projétil em energia de excitação ou ionização. Em algumas situações o íon também pode ganhar energia, mas estes eventos são mais raros. Por conseguinte, a interação íon-matéria geralmente resulta no freamento progressivo do íon. Outro efeito que contribui para o freamento do projétil é a transferência de energia cinética para os átomos do alvo como um todo, colocando-os em movimento. Contrariamente aos processos de excitação e ionização descritos acima, neste caso os elétrons do íon e do átomo-alvo participam passivamente da colisão blindando a interação coulombiana entre o projétil e o alvo. A taxa de perda de energia por unidade de comprimento percorrido pelo íon é denominada **poder de freamento**. A parcela do poder de freamento correspondente aos processos de excitação e ionização é denominada **poder de freamento eletrônico**. A parcela devida à transferência de energia cinética aos átomos do alvo é denominada **poder de freamento nuclear**. Em muitas situações esta divisão em processos elásticos e

¹ Para uma revisão histórica do assunto, veja a ref.[3]

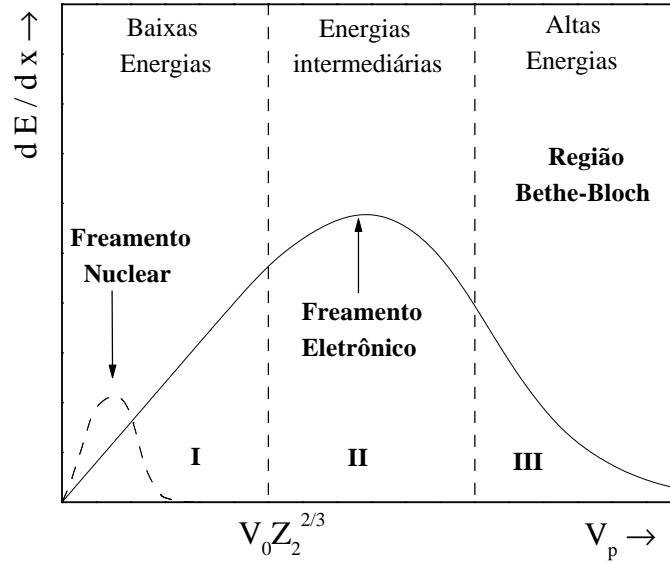


Fig. 2.1: Tendência geral da perda de energia como função da velocidade do projétil.

inelásticos independentes é conveniente e, embora não seja estritamente correta, é uma boa aproximação.

Ao longo do tempo, experimentos mostraram que a tendência geral da taxa de perda de energia, como função da velocidade do projétil, é a esquematizada na figura 2.1.

A figura 2.1 mostra que o poder de freamento nuclear só é importante quando a velocidade do projétil (v_p) é baixa comparada com a velocidade típica dos elétrons no átomo alvo ($v_p \ll v_e = v_0 Z_2^{2/3}$) onde v_0 e Z_2 são a velocidade de Bohr e o número atômico do alvo, respectivamente. Quando $v_p > v_e$ (regiões II e III da figura 2.1), o freamento é dominado pelo poder de freamento eletrônico. Na região III, o freamento eletrônico se deve a excitações e ionizações dos átomos do alvo. Na região I a interação com os elétrons do alvo pode ser entendida como a interação com um gás de elétrons, resultando num freamento friccional, proporcional à velocidade do íon. Na região II, o projétil tem velocidade alta o suficiente para excitar e ionizar os átomos do alvo, e baixa o suficiente para capturar elétrons. Nesta região o freamento do projétil resulta da atuação competitiva de todos os mecanismos de perda de energia.

2.2 Alguns conceitos fundamentais

2.2.1 A aproximação de colisões binárias

A interação de um íon com um alvo sólido ou gasoso pode ser entendida como um sucessão de colisões com átomos isolados do alvo. Esta aproximação é denominada **aproximação de colisões binárias** (BCA). Pode-se mostrar que a BCA é válida se, na colisão entre o

projétil e o alvo, a distância de aproximação máxima for menor que a distância interatômica típica no alvo [17]. Conclui-se que a BCA tem seu limite de validade controlado pela energia do projétil. Para a maioria dos pares íon-alvo, a BCA é válida se o projétil tiver energias acima de poucas dezenas de eV. Uma hipótese adicional à aproximação BCA é a de que as colisões binárias são bem descritas pela mecânica clássica, sendo possível associar a cada colisão conceitos clássicos como trajetórias bem definidas, por exemplo. A aplicabilidade da mecânica clássica foi abordada primeiramente por Bohr[4] e posteriormente por Lindhard [6] e Leibfried (veja discussão na ref. [17], por exemplo). Nestas referências demonstra-se que a mecânica clássica é aplicável ao estudo de colisões atômicas em sólidos no intervalo de energias que vai de cerca de 1 eV até a região dos MeV's.

2.2.2 A seção de choque de perda de energia

Os fenômenos relacionados ao freamento de um íon pela matéria são de natureza essencialmente estatística. Durante o processo de freamento, o íon sofre um grande número de colisões. Em cada colisão, tanto o estado do projétil (estado de carga, energia cinética) quanto o estado do alvo (flutuações na densidade local em alvos amorfos ou vibrações térmicas em alvos cristalinos) estarão sujeitos a flutuações estatísticas sendo impossível prever qual será a seqüência de colisões experimentada pelo íon durante seu freamento. No entanto, sabe-se da experiência que após percorrer uma distância Δx num alvo, um feixe de íons perde, em média, energia $\Delta \langle E \rangle$. Como conectar a informação a respeito do que acontece numa colisão isolada, com o valor $\Delta \langle E \rangle$ observado experimentalmente? A quantidade que faz esta conexão é a seção de choque de freamento.

No caso de termos um feixe uniforme de partículas incidindo sobre um alvo no qual os átomos estejam aleatoriamente distribuídos com uma densidade de N átomos/ cm^3 , o número médio $\langle N_i \rangle$ de colisões em que uma energia T_i seja transferida a um átomo do alvo, após percorrer uma distância Δx é dada por

$$\langle N_i \rangle = N \sigma_i \Delta x. \quad (2.1)$$

onde σ_i é a seção de choque diferencial para que seja transferida energia entre T_i e $T_i + dT_i$.

Desta maneira, a perda de energia média será:

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_i \langle N_i \rangle T_i = N \Delta x \sum_i \sigma_i T_i \quad (2.2)$$

Tomando o limite $\Delta x \rightarrow 0$, temos a taxa de perda de energia por unidade de comprimento percorrido:

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\langle \Delta E \rangle}{\Delta x} = \frac{dE}{dx} = N \int T \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT = NS(E). \quad (2.3)$$

A quantidade $S(E)$ é a **seção de choque de freamento**.

De fato, é possível demonstrar que as colisões das partículas de um feixe uniforme incidindo sobre um alvo sem estrutura obedecem à estatística de Poisson [18]. Por exemplo, a probabilidade P_i de ocorrer uma colisão com transferência de energia T_i é:

$$P_i = \exp(- \langle N_i \rangle) \frac{\langle N_i \rangle^{N_i}}{N_i!} \quad (2.4)$$

em torno do valor médio $\langle N_i \rangle = N\sigma_i\Delta x$. Neste caso é possível determinar a flutuação da perda de energia em torno do valor médio $\frac{dE}{dx}$, o *straggling*[18]:

$$\Omega^2 = \langle E - \langle E \rangle \rangle^2 = N\Delta x \int_0^\infty T^2 \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT \quad (2.5)$$

Nas situações que estudaremos neste trabalho sempre teremos uma relação unívoca entre a energia transferida e o parâmetro de impacto numa dada colisão. Nestas condições podemos reescrever a equação (2.3) como:

$$\frac{dE}{dx} = N \int_0^\infty T(b) 2\pi b db \quad (2.6)$$

onde $T(b)$ é a energia transferida como função do parâmetro de impacto (b) na colisão.

Nas seções a seguir, discutiremos as abordagens teóricas para freamento nuclear e eletrônico, considerando que sejam mecanismos independentes.

2.3 O poder de freamento nuclear

Como já comentamos antes, o freamento nuclear está relacionado a colisões elásticas (por hipótese) em que os elétrons do projétil e do alvo participam passivamente blindando a interação coulombiana entre os núcleos atômicos e parte da energia cinética inicial do projétil é transferida ao alvo.

Considerando uma colisão binária elástica de um projétil de energia cinética inicial E_0 com um alvo em repouso e aplicando as leis de conservação de momentum e energia, pode-se demonstrar que o projétil transfere uma energia T ao alvo,

$$T = T_{max} \sin^2(\Theta/2), \quad (2.7)$$

onde,

$$T_{max} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} E_0, \quad (2.8)$$

M_1 e M_2 são as massas do projétil e do alvo, respectivamente, e Θ é o ângulo de espalhamento no referencial do centro-de-massa (C.M.). Outra hipótese, como veremos adiante, é que o potencial que descreve a colisão binária é central. Nestas condições, o ângulo Θ numa colisão com parâmetro de impacto b é dado pela seguinte expressão [19]:

$$\Theta = \pi - 2b \int_{R_0}^\infty [r^2 g(r)]^{-1}, \quad (2.9)$$

onde

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \left(\frac{b}{r}\right)^2}, \quad (2.10)$$

e

$$E_r = \frac{M_2}{(M_1 + M_2)} E_0 \quad (2.11)$$

é a energia no referencial do C.M. A distância de aproximação máxima (R_0) é obtida resolvendo-se a equação $g(R_0) = 0$.

A seguir nós discutiremos o problema do cálculo do potencial interatômico que deve ser inserido na equação (2.9) a fim de que se possa determinar o poder de freamento nuclear.

2.3.1 O potencial interatômico

É de se esperar que o potencial interatômico que descreve uma colisão binária seja uma função complicada de vários parâmetros, tais como a velocidade projétil, a distância interatômica, e dos estados de carga do projétil e do alvo. Por isso, é comum se fazer aproximações a fim de se reduzir o número de parâmetros de que o potencial depende. Uma hipótese usual é assumir que qualquer dependência na velocidade do projétil seja desprezível, muito embora a blindagem proporcionada pelas nuvens eletrônicas em torno do íon e do alvo contenham características dinâmicas. Ou seja, estamos descorrelacionando a transferência de energia nuclear do freamento eletrônico. A validade dessas hipóteses é altamente questionável uma vez que, mesmo para baixas velocidades do projétil, onde se espera que as nuvens eletrônicas se ajustem adiabaticamente ao movimento dos núcleos, efeitos não adiabáticos devidos ao cruzamento de níveis eletrônicos podem resultar num rearranjo significativo do sistema eletrônico [20] tanto do projétil como do alvo. Em geral, se assume que a influência destes efeitos é desprezível na determinação dos mecanismos de espalhamento íon-átomo.

Fazer a hipótese de que a interação entre o projétil e o alvo é independente da velocidade relativa é equivalente a fazer a aproximação de Born-Oppenheimer [21] que consiste em supor que os elétrons numa molécula se movem no campo devido a núcleos fixos, uma vez que estes são muito mais pesados que os elétrons. A aproximação de núcleos fixos significa que a interação núcleo-núcleo corresponde a um termo constante na Hamiltoniana total do sistema e que o termo de energia cinética dos núcleos é nulo, reduzindo o problema inicial ao problema de se encontrar os auto-estados e auto-valores de energia da Hamiltoniana eletrônica que descreve o movimento dos elétrons no campo dos núcleos fixos:

$$H_{elec}\Phi_{elec} = \varepsilon_{elec}\Phi_{elec}, \quad (2.12)$$

onde $\Phi_{elec} = \Phi_{elec}(\{r_i\}; \{R_n\})$ é a função de onda eletrônica que depende explicitamente das coordenadas eletrônicas $\{r_i\}$ e parametricamente das coordenadas nucleares $\{R_n\}$. Portanto, a auto-energia do sistema eletrônico depende parametricamente das coordenadas nucleares: $\varepsilon_{elec} = \varepsilon_{elec}(\{R_n\})$. Sendo assim, a energia total para núcleos fixos deve ser a soma de ε_{elec} com o termo de repulsão núcleo-núcleo:

$$\varepsilon_{tot} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} + \varepsilon_{elec}. \quad (2.13)$$

Uma vez que se tenha resolvido o problema eletrônico, é possível resolver o movimento dos núcleos sob as mesmas hipóteses utilizadas para formular o problema eletrônico. Como os elétrons se movem muito mais rápido que os núcleos é razoável substituir a Hamiltoniana eletrônica pelo seu valor médio ($\langle \Phi_{elec} | H_{elec} | \Phi_{elec} \rangle$) na Hamiltoniana completa do problema. Isto transforma a Hamiltoniana completa numa Hamiltoniana que descreve o movimento dos núcleos no campo médio devido aos elétrons onde o termo ε_{tot} da equação (2.13) corresponde ao potencial que descreve o movimento dos núcleos:

$$V(R) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} + \varepsilon_{elec}(R) - \varepsilon_{elec}(R = \infty) \quad (2.14)$$

O termo constante $\varepsilon_{elec}(R = \infty)$ serve simplesmente para colocar o zero da energia potencial no infinito. $\varepsilon_{elec}(R) - \varepsilon_{elec}(\infty)$ é negativo, diminuindo assim a energia potencial eletrostática devida aos dois núcleos, correspondendo à ação da blindagem do sistema eletrônico.

Vemos então que o problema de calcular o potencial se reduz ao problema de determinar a energia do estado fundamental eletrônico da quase-molécula formada durante a colisão uma vez que os elétrons devem seguir adiabaticamente o estado fundamental da molécula durante a colisão posto que processos inelásticos não estão sendo considerados.

Várias abordagens podem ser utilizadas para o cálculo da energia do estado fundamental de uma molécula diatômica. Um deles é o método Hartree-Fock ou Dirac-Hartree-Fock [21, 22]. Este é o tipo mais preciso de cálculo que se pode fazer, podendo, em princípio, ser aplicado a qualquer par íon-átomo. Estes métodos podem tratar estados excitados e ionizações tanto do projétil quanto do alvo. No entanto, esta abordagem requer cálculos extensos de computador.

Uma outra abordagem muito utilizada baseia-se na teoria funcional da densidade (DFT). Na DFT pode-se demonstrar que todas as propriedades do estado fundamental de um sistema de muitos corpos são funcionais da densidade de partículas [23]. Em particular, Hohenberg e Kohn [24] mostraram que a energia do estado fundamental de um sistema de N elétrons sob a ação de um campo externo $V(\vec{r})$ é dada pelo seguinte funcional:

$$E[\rho] = F[\rho] + \int V(\vec{r})\rho(\vec{r})d^3\vec{r}, \quad (2.15)$$

onde o segundo termo do lado direito da equação (2.15) corresponde à energia potencial dos elétrons devido ao campo externo e o primeiro termo engloba as energias cinéticas dos elétrons e os termos de interação elétron-elétron (direta, troca e correlação).

O método utilizado para obter as propriedades do estado fundamental (energia total e densidade) consiste em minimizar $E[\rho]$ sujeito à condição que o número total de partículas seja conservada.

$$\delta(E[\rho] - \lambda N) = 0, \quad (2.16)$$

onde

$$N = \int \rho d^3\vec{r} \quad (2.17)$$

e λ é o multiplicador de Lagrange.

O problema com a DFT é que a forma exata do funcional $F[\rho]$ ainda é desconhecida sendo ainda hoje um tema de extensivas investigações [23]. No cálculo dos potenciais interatômicos, a aproximação que se faz para se obter $F[\rho]$ é a aproximação de densidade local ou LDA (*Local Density Approximation*). Nesta aproximação considera-se que o volume total do gás de elétrons esteja subdividido em células de volume ΔV . A hipótese fundamental é a de que em cada célula potencial $V(\vec{r})$ varia lentamente de maneira que possa ser considerado uma constante dentro da célula. Supõe-se também que existam elétrons o suficiente em cada célula para que se possa utilizar as propriedades de um gás de elétrons livres no equilíbrio estatístico.

No caso de um gás homogêneo de elétrons livres no estado fundamental, e energia cinética do gás contido numa célula de volume ΔV é [25]

$$E_k = c_k \rho^{\frac{5}{3}} \Delta V \quad (2.18)$$

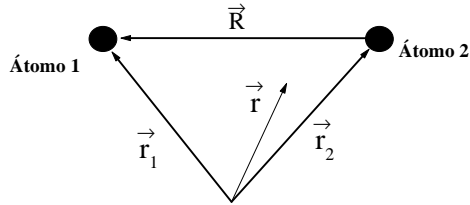


Fig. 2.2: Relação entre os vetores \vec{r} , \vec{r}_1 e \vec{r}_2

e a energia de troca é [26]:

$$E_{ex} = -c_{ex}\rho^{\frac{4}{3}}\Delta V, \quad (2.19)$$

onde $c_k = 21.88 \text{ eV } \text{\AA}^2$ e $c_{ex} = 10.64 \text{ eV } \text{\AA}$.

Desta maneira, a energia total do gás é obtida somando-se as contribuições de todas as células do gás:

$$E_{el}[\rho] = \int d^3\vec{r} \left\{ c_k \rho^{\frac{5}{3}}(\vec{r}) + \rho(\vec{r}) \left[V(\vec{r}) + \frac{1}{2} \int d^3\vec{r}' \frac{\rho(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right] - c_{ex} \rho^{\frac{4}{3}}(\vec{r}) \right\} \quad (2.20)$$

A minimização da equação (2.20) resulta na equação de Thomas-Fermi-Dirac. Fazendo $c_{ex} = 0$ obtém-se a equação de Thomas-Fermi [26, 27, 28].

2.3.2 O potencial FEG

O primeiro cálculo do potencial interatômico baseado em gás de elétrons livres utilizando a equação (2.20) com $c_{ex} = 0$ foi realizado por Firsov[29]. Neste cálculo, Firsov não minimizou diretamente o Funcional de Thomas-Fermi. Seu cálculo foi realizado supondo que a densidade eletrônica que minimiza o funcional de Thomas-Fermi é a simples superposição das densidades eletrônicas dos dois átomos de Thomas-Fermi que participam da colisão

$$\rho(\vec{r}) = \rho_{atomo_1}(|\vec{r} - \vec{r}_1|) + \rho_{atomo_2}(|\vec{r} - \vec{r}_2|) \quad (2.21)$$

onde os vetores \vec{r} , \vec{r}_1 e \vec{r}_2 estão exemplificados na figura 2.2. desprezando, portanto, qualquer polarização ou rearranjo das nuvens eletrônicas durante a colisão. No entanto, Firsov demonstrou que o valor para a energia total obtido nesta aproximação é, no máximo, 5% maior que o valor obtido minimizando diretamente o funcional da densidade total. Nesta aproximação, conhecida como **FEG** (“Free electron Gas”), $V(R)$ pode ser escrito como:

$$\begin{aligned}
 V(R) = & \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} + c_k \int d^3 r \left[(\rho_1 + \rho_2)^{5/3} - (\rho_1^{5/3} + \rho_2^{5/3}) \right] \\
 & - c_{ex} \int d^3 r \left[(\rho_1 + \rho_2)^{4/3} - (\rho_1^{4/3} + \rho_2^{4/3}) \right] \\
 & - e^2 \int d^3 r \left[\frac{Z_1 \rho_2}{|\vec{r} - \vec{r}_1|} + \frac{Z_2 \rho_1}{|\vec{r} - \vec{r}_2|} \right] \\
 & + e^2 \int \int d^3 r d^3 r' \left[\frac{\rho_1 \rho_2}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \right]
 \end{aligned} \tag{2.22}$$

A equação (2.22) mostra que na aproximação FEG, a energia de interação provém da interação coulombiana direta entre elétrons-núcleos, elétrons-elétrons e núcleos-núcleos. Além disso, a energia potencial aumenta graças ao aumento da densidade eletrônica na região em que as nuvens eletrônicas do projétil e do alvo se superpõem. Como resultado, aumentam as densidades de energia cinética e de troca do gás.

Firsov também apresentou o importante resultado que o potencial interatômico resultante da introdução das densidades Thomas-Fermi na equação (2.22) poderia ser escrito como[30]:

$$V(R) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} \varphi_{TF}(R/a_F) \tag{2.23}$$

onde φ_{TF} é a função de blindagem para o átomo de Thomas-Fermi e a_F é o comprimento de blindagem de Thomas Fermi definido por

$$a_F = \frac{0.8854 a_0}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}} \tag{2.24}$$

onde a_0 é o raio de Bohr (0.529 Å). Repare que o comprimento de blindagem de Firsov se reduz ao comprimento de blindagem de Thomas-Fermi de $Z_1 \gg Z_2$ ou $Z_2 \gg Z_1$.

A partir do trabalho de Firsov a prática comum na determinação do potencial interatômico tem sido utilizar funções de blindagem de potenciais intra-atômicos e ajustar a definição do comprimento de blindagem. Lindhard, por exemplo, sugeriu que potencial de Firsov fosse utilizado com um comprimento de blindagem dado por

$$a_L = \frac{0.8854 a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}. \tag{2.25}$$

Uma função de blindagem muito utilizada na interpretação de experimentos e em simulações do bombardeamento de íons acelerados em sólidos é a função de blindagem de Molière[17]:

$$\phi_{Molierre}(x) = \sum_{i=1}^3 a_i \exp(-b_i x) \tag{2.26}$$

onde $a_i = \{0.35, 0.55, 0.1\}$ e $b_i = \{0.3, 1.2, 6.0\}$.

O potencial da equação (2.23) utilizando a função de blindagem de Molière é denominado potencial Molière.

Embora seja muito utilizado, o potencial Molière é uma boa descrição para o potencial interatômico para distâncias interatômicas menores que 1 Å. Para grandes distâncias interatômicas, a comparação com potenciais *ab initio*, mostra que o potencial interatômico é superestimado pelo potencial de Molière.

Observou-se [27] que a utilização de densidades atômicas baseadas no funcional TFD não proporciona grande melhoria no potencial interatômico. No entanto a introdução de densidades eletrônicas atômicas obtidas pelo método Hartree-Fock resultam em melhores valores para a energia total de interação [31].

2.3.3 O potencial ZBL

Ziegler, Biersack e Littmark [3] (ZBL) procuravam uma expressão “universal” para o potencial interatômico que descrevesse a colisão binária entre todos os pares íon-alvo possíveis. Dos cerca de 10^4 pares possíveis eles selecionaram aleatoriamente 261 pares e calcularam o potencial interatômico no modelo FEG utilizando densidades eletrônicas HFS e a equação para o potencial, (2.22). Uma vez que as colisões são simétricas (íon e alvo são intercambiáveis), os 261 pares resultam na verdade em 522 pares, o que corresponde a cerca de 6% de todas as combinações possíveis.

O problema a seguir era encontrar um valor para o comprimento de blindagem para o qual as funções de blindagem tivessem uma aglutinação máxima em torno de um valor médio. Eles descobriram que isto seria possível com uma nova definição do comprimento de blindagem:

$$a_u = \frac{0.8854a_0}{(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}. \quad (2.27)$$

Com esta nova definição do comprimento de blindagem eles obtiveram um desvio $\sigma = 18\%$ dos comprimentos de blindagem em torno do valor de a_u . A função de blindagem média foi então ajustada pela seguinte função

$$\varphi_{ZBL}(x) = \sum_{i=1}^4 a_i \exp(-b_i x) \quad (2.28)$$

onde $a_i = \{0.028171, 0.28022, 0.50986, 0.18175\}$ e $b_i = \{0.20162, 0.40290, 0.94229, 3.1998\}$.

2.3.4 O conceito de universalidade

A adoção de potenciais interatômicos descritos por uma função de blindagem única [$\phi(r/a)$] e de um comprimento de blindagem (a) que depende exclusivamente dos números atômicos do projétil e do átomo-alvo simplifica muitíssimo a descrição do freamento nuclear por permitir a utilização de quantidades adimensionais universais para descrever a colisão. Por exemplo, definindo o comprimento de blindagem como unidade de comprimento e definindo

$$\epsilon = \frac{E_{cm}}{[Z_1 Z_2 e^2 / a]} \quad (2.29)$$

como unidade de energia adimensional, a integral de espalhamento pode ser escrita como:

$$\Theta = \pi - 2 \int_{x_0}^{\infty} \frac{b dx}{x^2 \sqrt{(1 - \phi(x)/\epsilon - (b/x)^2)}}, \quad (2.30)$$

e a seção de choque de freamento nuclear fica:

$$S_n(E) = \frac{\pi a^2 T_m E}{\epsilon} \sigma(\epsilon) \quad (2.31)$$

onde

$$\sigma(\epsilon) \equiv \epsilon \int_0^\infty \sin^2(\Theta/2) d^2b \quad (2.32)$$

é o poder de freamento reduzido, $b = p/a$, $x_0 = R_0/a$ e $x = r/a$; p e R_0 são o parâmetro de impacto e a distância de aproximação máxima na colisão, respectivamente, e r é a distância interatômica. Os parâmetros ϵ e b são denominados energia reduzida e parâmetro de impacto reduzido, respectivamente. A utilidade da introdução destas quantidades adimensionais reside no fato de colisões binárias com o mesmo valor de ϵ e b serem similares. Por exemplo, a colisão de Pb em Si a 100 keV com $p = 0,3 \text{ \AA}$ é *similar* à colisão de He com Rb a 600 keV com $p = 0,4 \text{ \AA}$ pois ambos sistemas possuem as mesmas variáveis adimensionais $\epsilon = 0,07$ e $b = 3$ e, portanto, terão o mesmo ângulo de espalhamento no centro de massa (Θ) e o mesmo poder de freamento reduzido.

Na situação em que se pode desprezar o poder de freamento eletrônico (baixas energias) o alcance, R , de um íon implantado com energia E_0 num meio amorfo de densidade atômica N é:

$$R = \int_0^{E_0} \frac{dE}{N S_n(E)} \quad (2.33)$$

e também pode ser escrito em termos de variáveis adimensionais:

$$\rho = \pi a^2 T_m N R = \int_0^{\epsilon_0} \frac{d\epsilon}{\sigma(\epsilon)}. \quad (2.34)$$

A variável adimensional ρ , chamada de alcance reduzido, é uma função monotônica de ϵ . Não depende da combinação específica íon-alvo, só da forma funcional da função de blindagem.

A similaridade entre colisões com os mesmos valores de ϵ e b permite antever que no regime de baixas energias, onde o freamento nuclear é predominante, os dados experimentais de alcances de íons implantados em materiais amorfos têm comportamento universal, isto é, graficando-se os alcances reduzidos (ρ) como função da energia reduzida (ϵ), os dados experimentais tendem a se aglutinar numa única curva no plano $\rho - \epsilon$.

O conceito de universalidade será importante mais adiante para discutirmos os resultados das implantações de íons pesados em direção canalizada.

2.4 O poder de freamento eletrônico

2.4.1 Teoria de Bohr

Em 1913, Bohr mostrou que a colisão de um íon de carga Z_p e velocidade V_p com um átomo pode ser descrita classicamente se $\chi \gg 1$ onde $\chi = \frac{2Z_p e^2}{\hbar V_p}$. Ele considerou que a colisão pode ser tratada como a colisão com elétrons em repouso se o tempo de interação for muito menor que o período de movimento orbital dos elétrons. Em termos da velocidade do projétil, o

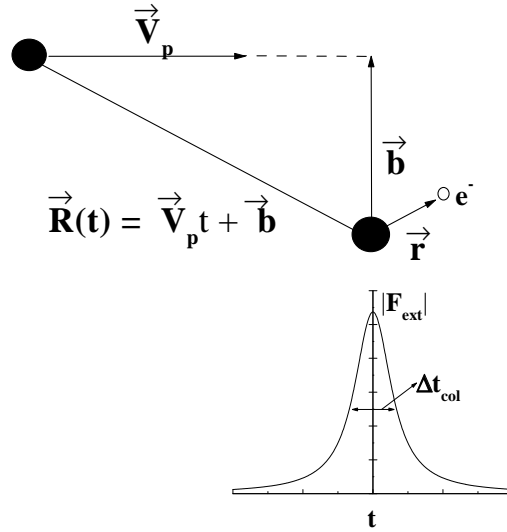


Fig. 2.3: Definição do tempo de colisão

elétron é considerado em repouso se $V_p \gg v_e$ onde v_e é a velocidade orbital do elétron. Caso contrário, se $V_p \ll v_e$, o tempo de interação será longo o suficiente para permitir o ajustamento adiabático dos elétrons do alvo, resultando em menor transferência de energia ao alvo. Uma boa medida do tempo de colisão é a duração da força coulombiana devida ao projétil na posição do alvo. Como se pode ver na figura 2.3, a força coulombiana na posição do alvo é proporcional a $\frac{1}{R^2}$. Sendo assim, a intensidade da força externa na posição do alvo será:

$$|F_{ext}| \sim \frac{V_p^2}{\left(\frac{b}{V_p}\right)^2 + t^2}. \quad (2.35)$$

Portanto, tempo de colisão é $\Delta t_{col} = \frac{b}{V_p}$. Assim, em termos do parâmetro de impacto, colisões com parâmetros de impacto $b \ll \frac{V_p}{\omega_0} \equiv b_0$, onde ω_0 é a frequência orbital do elétron e b_0 é o raio adiabático, podem ser consideradas colisões com elétrons livres. Para colisões com parâmetros de impacto maiores que o raio adiabático o efeito da ligação do elétron com o átomo tem que ser levado em conta. Para isto, Bohr considerou o alvo sendo um ensemble de osciladores harmônicos excitados pela interação com o campo coulombiano do projétil.

A energia transferida a um elétron livre, como função do parâmetro de impacto, pode ser facilmente obtida[32, 33]:

$$Q_{b < b_0}(b) = \frac{2(Z_p e^2)^2}{m_e V_p^2} \frac{1}{b^2 + \alpha^2} \quad (2.36)$$

onde $\alpha = \left(\frac{Z_p e^2}{m_e V_p^2}\right)^2$ de tal maneira que $Q(b=0) = 2m_e V_p^2$.

No caso de uma colisão com $b \gg b_0$, podemos supor que o íon tem trajetória retilínea

$\vec{R}(t) = \vec{V}_p t + \vec{b}$. O potencial de interação íon-elétron será dado por

$$V_{p-e} = \frac{-Z_p e^2}{|\vec{R} - \vec{r}|} \quad (2.37)$$

Como $|\vec{R} - \vec{r}| \gg r_0$ (onde r_0 é o raio do átomo), podemos utilizar a expansão de multipolos para simplificar a expressão para V_{p-e} :

$$V_{p-e} \approx \frac{-Z_p e^2}{R} + \vec{r} \cdot \vec{R} \frac{Z_p e^2}{R^3} \quad (2.38)$$

Sendo assim, a força dependente do tempo que atua no elétron será:

$$\vec{F}_{ext} = -\vec{\nabla}_{\vec{r}} V_{p-e} = \frac{Z_p e^2}{R^3} \vec{R} \quad (2.39)$$

Na aproximação de dipolo, a energia transferida ao átomo é dada por [32]:

$$Q(b) = \frac{1}{2m_e} |\tilde{F}_{ext}(\omega_0)|^2 \quad (2.40)$$

onde

$$\tilde{F}_{ext}(\omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F}_{ext} \exp(i\omega_0 t) dt. \quad (2.41)$$

Calculando-se a transformada de Fourier acima, obtém-se a seguinte expressão para a energia transferida:

$$Q(b)_{b>b_0} = \frac{2(Z_p e^2)^2}{m_e V_p^2 b^2} [x^2 K_1^2(x) + K_0^2(x)] \quad (2.42)$$

onde $x = \frac{\omega b}{V_p}$.

A equação acima diverge quando $b \rightarrow 0$ e, portanto, a seção de choque de freamento S_e também diverge. Bohr contornou o problema dividindo a integral em duas parcelas. Uma considerando colisões com $b < r_0$ e outra para colisões com $b > r_0$:

$$\left(\frac{dE}{dx} \right)_{Bohr} = N Z_t \left[\int_0^{r_0} 2\pi b Q_{b<b_0}(b) db + \int_{r_0}^{\infty} 2\pi b Q_{b>b_0}(b) db \right] \quad (2.43)$$

que resulta em

$$\left(\frac{dE}{dx} \right)_{Bohr} = \frac{4\pi N (Z_p e)^2 Z_t}{m_e V_p^2} \ln \left(\frac{1.123 m_e V_p^3}{Z_p \omega_0 e^2} \right) \quad (2.44)$$

que é independente da escolha de r_0 !

2.4.2 Teoria de Bethe

Em 1930, Bethe abordou o problema da perda de energia de íons em um meio material utilizando as idéias da mecânica quântica. Em contraste com a teoria de Bohr, que é baseada na perda de energia como função do parâmetro de impacto, a teoria de Bethe utiliza o momentum transferido aos elétrons como variável dinâmica, como veremos a seguir.

Seja uma colisão de um projétil de carga Z_t e energia W_0 com um átomo na qual o alvo seja levado do estado fundamental, de energia E_0 para um estado final de energia E_n . Seja $\sigma_{i \rightarrow f}$ a seção de choque total para que este evento ocorra. Nestas condições a seção de choque de freamento pode ser escrita como:

$$S_e = \sum_n (E_n - E_0) \sigma_{0 \rightarrow n} \quad (2.45)$$

onde o somatório é realizado sobre todos os estados ligados (excitações) e infinitos estados de contínuo (ionizações).

Se $\chi = \frac{2Z_p e^2}{\hbar V_p} \ll 1$, ou seja, se a interação do projétil com o alvo puder ser tratada como uma pequena perturbação, a seção de choque diferencial para ocorrer uma colisão na qual o projétil de momentum inicial \vec{K}_i tenha momentum final \vec{K}_f , transferindo momentum $\vec{q} = \vec{K}_f - \vec{K}_i$ ao elétron indo do estado inicial $|\phi_i\rangle$ ao estado final $|\phi_f\rangle$, é dada na primeira aproximação de Born pela seguinte expressão [26, 33]:

$$\frac{d\sigma_{i \rightarrow f}}{d\Omega} = \left(\frac{M_p}{2\pi}\right)^2 \frac{K_f}{K_i} |T_{if}|^2 \quad (2.46)$$

onde

$$T_{if} = \frac{-4\pi Z_p e^2}{q^2} \Gamma_{if}(\vec{q}) \quad (2.47)$$

e

$$\Gamma_{if}(\vec{q}) = \langle \phi_f | \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) | \phi_i \rangle \quad (2.48)$$

é o fator de forma da transição.

Da definição do vetor \vec{q} , temos $q^2 = K_i^2 + K_f^2 - 2K_i K_f \cos(\theta)$. Portanto, a seção de choque total, dada pela expressão $\int \frac{d\sigma_{i \rightarrow f}}{d\Omega} d\Omega$ pode ser escrita como

$$\sigma_{i \rightarrow f} = 8\pi \left(\frac{Z_p \mu}{\hbar^2}\right)^2 \frac{K_f}{K_i} \int_{q_{min}}^{q_{max}} dq \frac{q}{K_i K_f} \frac{|\Gamma_{if}(q)|^2}{q^2} \quad (2.49)$$

Seja a o raio do átomo. Então, \hbar/a corresponde ao momentum médio de um elétron do átomo alvo. Portanto se considerarmos transferências de momentum \vec{q} tais que $q \gg 1/a \equiv q_a$ o termo exponencial em $\Gamma_{if}(\vec{q})$ só oscilará rapidamente fazendo com que o elemento de matriz seja muito pequeno a menos que o estado final do elétron cancele tal oscilação, isto é, se $\phi_f \sim \exp(\vec{q} \cdot \vec{r})$ correspondendo a um elétron livre que absorveu momentum \vec{q} . Grandes momenta transferidos correspondem a colisões com parâmetro de impacto menores que r_0 na teoria de Bohr.

O momentum máximo que pode ser transferido ao elétron é, como vimos, $\hbar q_{max} = 2m_e V_p$. Para grandes momenta transferidos (maiores que q_a) podemos escrever

$$S_{e, q > q_a} = \frac{4\pi N Z_p^2 Z_T e^4}{m_e V_p^2} \ln \left(\frac{2m_e V_p}{\hbar q_a} \right) \quad (2.50)$$

onde utilizamos a regra de soma de Bethe no cálculo das integrais:

$$\sum_n (E_n - E_0) |\langle \phi_n | \exp(i\vec{q} \cdot \vec{r}) | \phi_0 \rangle|^2 = \left(\frac{\hbar q}{2m_e} \right)^2 \quad (2.51)$$

Considerando agora transferências de momentum menores que q_a , devemos determinar o momentum transferido mínimo, que seja compatível com a condição $V_p \gg v_e$ onde v_e é a velocidade média dos elétrons do alvo. Neste caso, $q_{min} = (E_n - E_0)/\hbar V_p$ [26, 33]. Para pequenos valores de q , a exponencial na eq. 2.48 pode ser expandida em série de Taylor até primeira ordem. Neste caso, pode-se demonstrar que

$$S_{e,q < q_a} = \frac{4\pi Z_p^2 Z_T e^4}{m_e V_p^2} \ln \left(\frac{\hbar q_a V_p}{\langle I \rangle} \right) \quad (2.52)$$

onde $\langle I \rangle$ é a média logarítmica da energia de excitação :

$$\ln \langle I \rangle = \sum_n f_{0 \rightarrow n} \ln (E_n - E_0) \quad (2.53)$$

e

$$f_{0 \rightarrow n} = \frac{2m_e}{\hbar^2 Z_t} (E_n - E_0) |\langle \phi_n | z | \phi_0 \rangle|^2 \quad (2.54)$$

é a força de oscilador generalizado na aproximação de dipolo, que satisfazem a regra de soma de Thomas-Reiche-Khun (veja por exemplo [34, pag 457]).

$$\sum_n f_{0 \rightarrow n} = 1 \quad (2.55)$$

Combinando as expressões 2.50 e 2.52 temos a fórmula de Bethe[35, 36, 26, 33]:

$$S_e = \frac{4\pi Z_p^2 Z_T e^4}{m_e V_p^2} \ln \left(\frac{2m_e V_p^2}{\langle I \rangle} \right) \quad (2.56)$$

2.4.3 Freamento de íons num gás de elétrons.

2.4.4 Teoria da resposta linear

O problema do freamento de um íon viajando com velocidade \vec{v} num gás de elétrons pode ser abordado da maneira que discutiremos a seguir.

A presença do íon corresponde à ação de um campo elétrico externo \vec{E}_{ext} no gás de elétrons. A resposta do gás à ação do campo externo vem na forma de um campo elétrico \vec{E}_{ind} . Na tentativa de blindar o campo externo os elétrons criam um campo, cuja transformada de Fourier é [37]

$$\tilde{E}_{ind}(\vec{k}, \omega) = \left[\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} - 1 \right] \tilde{E}_{ext}(\vec{k}, \omega) \quad (2.57)$$

A força que o gás de elétrons exerce no íon é o produto da carga do íon pelo campo induzido pelos elétrons na posição do íon, $\vec{x} = \vec{v}t$:

$$\vec{F} = Ze\vec{E}_{ind}(\vec{v}t, t) = \int \frac{d^3k}{(2\pi)^3} \frac{4\pi Z^2 e^2 \vec{k}}{k^2} Im \left[\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right] \quad (2.58)$$

Como $\frac{dE}{dx} = \frac{1}{v} \vec{F} \cdot \vec{v}$, temos

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2}{\pi} \left(\frac{Ze}{v} \right)^2 \int_0^{k_{max}} \frac{dk}{k} \int_0^{kv} \omega d\omega Im \left[\frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right] \quad (2.59)$$

As integrais sobre ω e k podem ser realizadas facilmente[37] se $v \ll v_f$ ou $v \gg v_f$. Se $v \ll v_f$

$$\frac{dE}{dx} = f(n_0) \frac{v}{v_f},$$

onde $f(n_0)$ é função da densidade do gás. Se $v \gg v_f$

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi n_0 Z^2 e^2}{m_e v} \ln \left(\frac{2m_e v^2}{\hbar \omega_p} \right),$$

onde $\omega_p = \left(\frac{4\pi e^2 n_0}{m_e} \right)^{\frac{1}{2}}$ é a frequência de excitação de plasmons.

Num trabalho de 1961, J. Lindhard e M. Scharff [7] publicaram, sem apresentar demonstração, uma expressão para a seção de choque de freamento eletrônica para baixas velocidades do projétil:

$$S_{LSS} = \xi_e 8\pi e^2 a_0 \frac{Z_1 Z_2 v}{Z_{eff} v_0} \quad (2.60)$$

onde $Z_{eff}^{\frac{2}{3}} = Z_1^{\frac{2}{3}} + Z_2^{\frac{2}{3}}$ e S_{LSS} é o poder de freamento **LSS**[7].

2.5 O efeito de canalização

Desde 1912, quando a estrutura cristalina foi revelada por experimentos de difração de raios-X, sabe-se que os átomos num cristal se organizam na forma famílias de planos e colunas de átomos que formam verdadeiros canais no cristal. Quando se examina um modelo cristalino do tipo formado por bastões e bolas, observa-se que, devido à organização dos átomos no cristal, existem direções de maior “transparência geométrica”, que são as direções principais de simetria. É de se esperar, portanto, que quando um feixe de íons incide sobre um cristal paralelamente a estas direções, as partículas do feixe tenham uma probabilidade maior de penetrar sem colidir com átomos da rede cristalina. Esta possibilidade foi sugerida pela primeira vez em 1912 por J. Stark[38] num trabalho sobre a interação de prótons com cristais. Neste trabalho, Stark considerou a possibilidade da existência de canais nos cristais e concluiu que os prótons que incidissem sobre alvos cristalinos ao longo de certas direções, interagiriam menos com o cristal em comparação com um alvo amorfo.

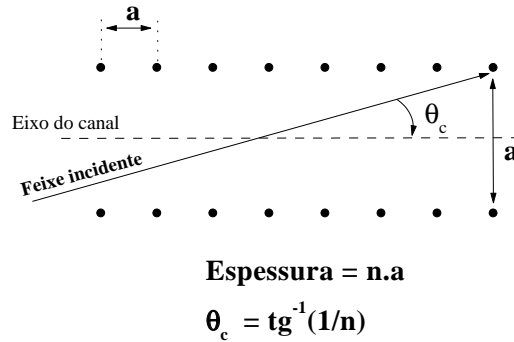


Fig. 2.4: O modelo de transparência prevê ângulos críticos de canalização muito pequenos

Naquela mesma época, W. H. e W. L. Bragg, que estudavam o caráter corpuscular dos raios-X, tentaram explicar o chamado padrão de Von Laue em termos da “canalização de fótons” ao longo de canais do cristal[38]. Para tanto, eles enviaram partículas, ao invés de fótons, ao longo destes canais e concluíram que a idéia de canalização não era boa para explicar os fenômenos de difração de raios-X por cristais. Devido ao sucesso das técnicas de difração de raios-X para elucidar o problema da estrutura cristalina e devido também à precariedade da tecnologia de produção de feixes de partículas carregadas naquela época, as idéias de Stark foram abandonadas até o início da década de 1960.

O fenômeno de canalização ressurgiu como uma sugestão independente a partir de 1963 quando Robinson e Oen [39], por intermédio de simulações em computador², perceberam que o tempo de computação das trajetórias de íons com direções de incidência próximas às direções principais de simetria de alvos cristalinos era anormalmente longo. A partir de então o fenômeno de canalização foi objeto de intensa investigação experimental [40, 41, 42, 43, 44, 45, 46] e teórica [6, 47, 48, 49]

O que há de notável com relação ao efeito de canalização é que as partículas penetram numa distância muito maior no cristal do que uma simples transparência geométrica poderia sugerir, ou seja, que o efeito *não é simplesmente decorrente do vôo em linha reta de alguns íons do feixe incidente ao longo do canal!* Se fosse este o caso, seria uma simples questão de geometria demonstrar que só haveria canalização se o ângulo de incidência do íon com relação à direção de canalização fosse menor que um determinado ângulo crítico que diminuiria com a espessura do cristal. O modelo de transparência está exemplificado na figura 2.4.

De fato, supondo-se um alvo fino cristalino que tenha da ordem de 1000 camadas de espessura ($n = 1000$), o ângulo crítico seria da ordem $0,06^\circ$. Como é difícil colimar um feixe com abertura angular tão pequena, segundo o modelo de transparência seria de se esperar que o efeito de canalização fosse pouco pronunciado neste caso e até mesmo impossível de detectar se o alvo fosse mais espesso. As evidências experimentais mostram, entretanto,

² Estas simulações foram realizadas com o precursor do programa MARLOWE, que utilizamos neste trabalho.

que o efeito é muito pronunciado, seja em cristais finos ou espessos. Por exemplo, o ângulo crítico para a probabilidade de retroespalhamento de um feixe de He de 1 MeV incidente sobre um cristal de Si ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ é de cerca de 1° .

A partir do que foi dito nos parágrafos acima, fica claro que outro modelo é necessário para explicar o efeito de canalização. O modelo de transparência falha porque considera que as partículas do feixe interagem com os átomos da rede como se fossem esferas rígidas, o que, obviamente, não é verdade. A interação se dá por intermédio de um potencial Coulombiano blindado, como os descritos no início deste capítulo. Como veremos a seguir, a existência de canais abertos no cristal e o potencial repulsivo devido às colunas de átomos que formam o canal são as condições necessárias e suficientes para explicar o efeito de canalização.

2.5.1 O modelo contínuo

O efeito de canalização pode ser explicado da seguinte maneira. Suponhamos que direção de incidência de um feixe de partículas carregadas sobre um alvo cristalino seja aproximadamente paralela à uma das direções principais de simetria do cristal. Ao encontrar a primeira camada de átomos da amostra, algumas partículas do feixe colidirão com os átomos da camada em eventos com pequeno parâmetro de impacto. Essas partículas sofrerão grandes deflexões em suas trajetórias e, portanto, sairão da condição de canalizadas. No entanto, a maioria ($\sim 98\%$) das partículas passará longe o suficiente dos átomos da primeira camada para que suas trajetórias praticamente não sejam defletidas na primeira colisão. Devido à estrutura ordenada do alvo, as partículas que não foram retroespalhadas na superfície colidirão com os átomos da segunda camada com um parâmetro de impacto muito semelhante ao da primeira colisão, sendo espalhadas num pequeno ângulo. e assim por diante, à medida que a partícula vai penetrando na amostra. Em outras palavras, a trajetória da partícula é uma seqüência de colisões binárias com pequenos ângulos de espalhamento e altamente correlacionadas à estrutura cristalina do alvo. Isto está ilustrado na figura 2.5 que mostra uma série de colisões seqüenciais com átomos numa coluna do cristal. Na figura 2.5 se pode observar que como efeito líquido da seqüência de colisões experimentada pela partícula incidente, ela é repelida pela coluna de átomos e tem como ângulo de saída o mesmo ângulo de entrada.

Como a interação com a coluna de átomos envolve colisões com muitos átomos, pode-se considerar um modelo em que a carga dos átomos que formam a coluna seja promediada ao longo da coluna. Assim, a interação da partícula com a coluna de átomos passa a ser descrita por um potencial contínuo $U(\rho)$ [1, 2, 10], onde ρ é a distância perpendicular da partícula à coluna e $U(\rho)$ é dado por

$$U(\rho) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{z^2 + \rho^2}) dz \quad (2.61)$$

onde d é a distância interatômica ao longo da direção de canalização, e $V(r)$ é o potencial interatômico que governa cada colisão binária. As variáveis envolvidas na equação (2.61) estão ilustradas na figura 2.6.

Para o potencial ZBL, o potencial contínuo é dado pela relação:

$$U(\rho) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{d} \mathcal{F} \left(\frac{\rho}{a_u} \right) \quad (2.62)$$

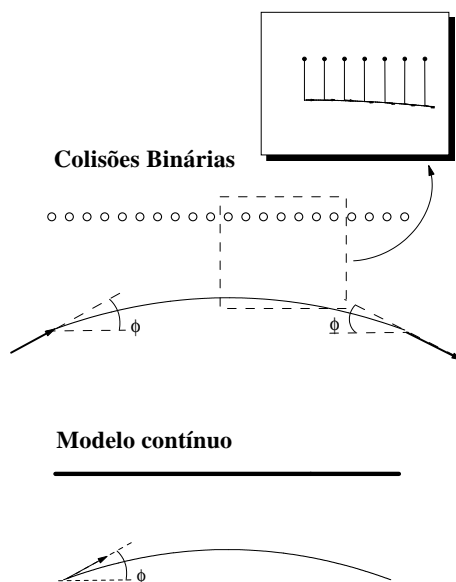


Fig. 2.5: Parte de uma trajetória de uma partícula canalizada mostrando uma seqüência de colisões binárias cuja trajetória resultante pode ser descrita em termos de um modelo contínuo.

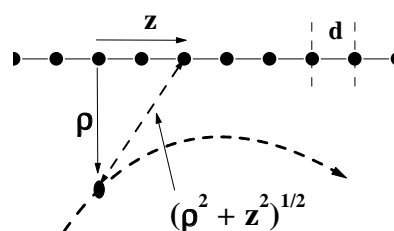


Fig. 2.6: Colisões de partículas canalizadas com uma coluna estática idealizada de átomos. A figura está fora de escala. Na verdade, várias centenas de átomos estão envolvidos na deflexão da trajetória do íon.

onde

$$\mathcal{F}\left(\frac{\rho}{a}\right) = \sum_{i=1}^4 a_i K_0\left(b_i \frac{\rho}{a}\right) \quad (2.63)$$

e K_0 é a função de Bessel modificada de ordem zero. Os íons do feixe interagem, em princípio, com todas as colunas de átomos do cristal. Sendo assim, uma partícula canalizada tem um movimento espiralado que é guiado por um potencial repulsivo que tende a “empurrar” a partícula na direção do centro do canal. Como resultado, as partículas canalizadas tendem a permanecer mais tempo na região central do canal. Portanto elas sondam uma distribuição de parâmetros de impacto que difere completamente da distribuição sondada num material sem estrutura. De fato, esta é a origem dos efeitos direcionais associados ao efeito de canalização.

Na figura 2.7 temos uma representação artística ilustrativa do efeito de canalização para um íon viajando ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ de um cristal de Si e na figura 2.8 temos um exemplo do potencial contínuo que governa as trajetórias canalizadas ao longo desta direção.

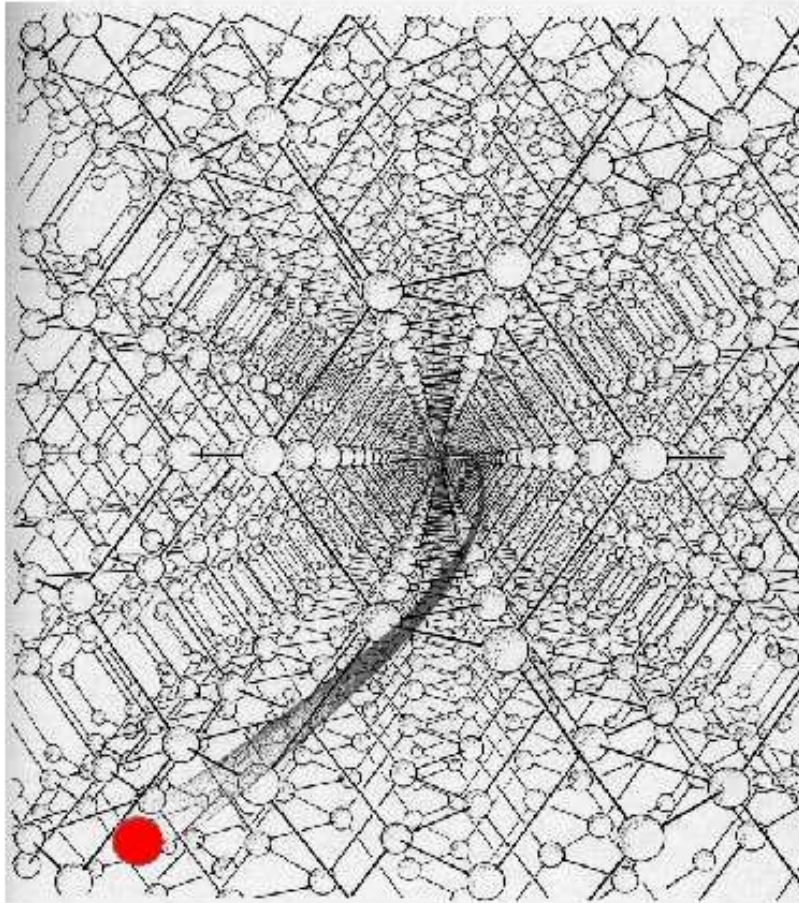


Fig. 2.7: Representação artística do efeito de canalização de um íon viajando ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ de um cristal de Si [38].

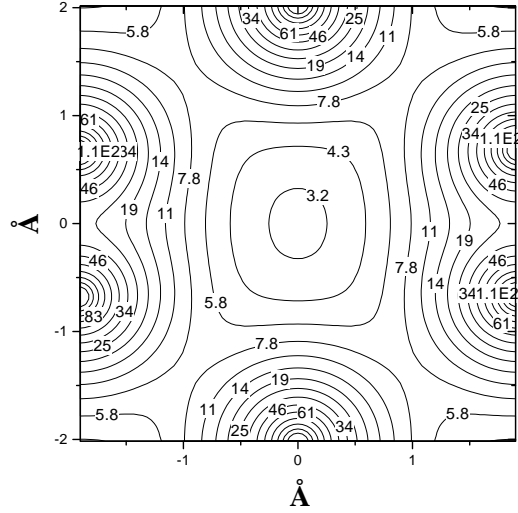


Fig. 2.8: Potencial contínuo para íons de He canalizados ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ do Si.

Até aqui, estivemos discutindo a chamada **canalização axial**, que ocorre quando o feixe interage coletivamente com as *colunas* de átomos do cristal. No entanto os íons do feixe podem interagir coletivamente com os *planos* atômicos do cristal. Neste caso temos a **canalização planar**. Analogamente ao caso axial também é possível obter um potencial contínuo:

$$U_p(\rho) = n \int_0^\infty 2\pi R dRV(\sqrt{\rho^2 + R^2}) = 2\pi n Z_1 Z_2 e^2 a \mathcal{F}_p\left(\frac{\rho}{a}\right) \quad (2.64)$$

onde, n é a densidade superficial de átomos no plano em questão.

Daqui em diante neste trabalho, a menos que se diga explicitamente o contrário, sempre que falarmos de canalização estaremos nos referindo ao caso da canalização axial.

2.5.2 Energia transversal

A hamiltoniana que descreve o movimento de um íon de massa M_1 submetido ao potencial contínuo devido às colunas de átomos do cristal é dada por

$$H = U(x, y) + \frac{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}{2M_1} \quad (2.65)$$

Esta hamiltoniana é cíclica na coordenada z . Por conseguinte, se desprezarmos efeitos dissipativos devido a processos de perda de energia, o momento ao longo da direção de canalização é uma constante de movimento, o que simplifica muitíssimo a determinação das trajetórias canalizadas. No modelo contínuo, basta determinar o movimento transversal das

partículas canalizadas. A hamiltoniana que descreve o movimento transversal é

$$H_{\perp} = U(x, y) + \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M_1}. \quad (2.66)$$

Uma vez que a energia potencial U não depende explicitamente da velocidade nem do tempo, a energia associada ao movimento transversal E_{\perp} , que denominaremos, daqui por diante, de **energia transversal**, é uma constante de movimento. Portanto, uma partícula canalizada que tenha energia transversal total E_{\perp} , tem seu movimento restrito a uma região do plano transversal de área $A(E_{\perp})$, definida pela condição $U(x, y) \leq E_{\perp}$.

2.5.3 O ângulo crítico de canalização

Quando as partículas canalizadas se aproximam muito das colunas de átomos, elas passam a interagir individualmente com os átomos da rede. Nestas condições, a partícula pode eventualmente sofrer uma colisão com grande ângulo de espalhamento e ser retirada da parcela canalizada do feixe, ou seja, ser **decanalizada**. Isto sugere a existência de uma distância de mínima aproximação entre a partícula canalizada e a coluna de átomos (r_{min}), para a qual o modelo contínuo e o conceito de canalização sejam válidos. A distância r_{min} corresponde a um ângulo crítico de incidência Ψ_c para o qual as partículas incidentes podem ser guiadas pelas colunas de átomos. O ângulo de incidência determina a energia cinética inicial no plano transversal:

$$E_{\perp}^c = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M_1} = E \sin^2(\Psi) \sim E\Psi^2, \quad (2.67)$$

onde E é a energia inicial do feixe.

Sendo assim o ângulo crítico pode ser definido igualando-se a energia transversal para uma partícula incidente com ângulo crítico ($E\Psi_c^2$) à energia transversal na distância de máxima aproximação, isto é,

$$E\Psi_c^2 = U(r_{min}) \rightarrow \Psi_c = \sqrt{\frac{U(r_{min})}{E}} \quad (2.68)$$

Lindhard [6] sugeriu uma estimativa para Ψ_{crit} :

$$\Psi_L = \sqrt{\frac{2Z_1Z_2e^2}{Ed}} \quad (2.69)$$

Assim o ângulo crítico pode ser escrito como

$$\Psi_c = \sqrt{\mathcal{F}\left(\frac{r_{min}}{a}\right)}\Psi_L \quad (2.70)$$

Lindhard [6], utilizando a aproximação de impulso, demonstrou que o modelo contínuo é válido se

$$E > \frac{1}{8}d^2U''(r_{min}) \quad (2.71)$$

onde ' denota a derivada com relação a ρ . Por outro lado, em simulações em computador, Morgan e Van Vliet [47] determinaram que $U''(r_{min}) \approx \frac{5E}{d^2}$. Finalmente, a solução numérica da equação (2.70) resulta [2]:

$$\frac{r_{min}}{a} \approx \frac{2}{3} \sqrt{\alpha} \left(1 - \frac{\sqrt{\alpha}}{19} + \frac{\alpha}{700} \right) \quad (2.72)$$

onde, $\alpha \equiv \frac{\Psi_c^2 d^2}{2a^2}$.

Num experimento de canalização, o ângulo crítico é determinado, como veremos no próximo capítulo, medindo-se a probabilidade de retroespalhamento próximo à superfície, como função do ângulo de incidência do feixe. O que se verifica é que a expressão 2.70 fornece a dependência correta com a energia do feixe e com a distância interatômica. Os valores de Ψ_c estão em acordo com os valores observados experimentalmente num nível de 20% [10].

2.5.4 O fluxo de partículas dentro do canal

Nesta seção nós utilizaremos o modelo contínuo para determinar a distribuição de partículas dentro do canal. Em particular, vamos demonstrar que o efeito de canalização transforma o fluxo de partículas do feixe, uniforme antes de penetrar o cristal, num fluxo fortemente focalizado no centro do canal. Este efeito é denominado *Flux Peaking*.

Na figura 2.9 apresentamos o resultado de simulações [48] da probabilidade de encontro nuclear (P_{EN}) como função da profundidade para íons de He de 1 MeV canalizados ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. A probabilidade de encontro nuclear é definida como sendo a probabilidade de que ocorra uma colisão com parâmetro de impacto menor que a amplitude de vibrações térmicas dos átomos da rede. Os resultados da figura 2.9 mostram que a P_{EN} apresenta fortes oscilações logo após a entrada do feixe na amostra, que vão sendo amortecidas à medida que o feixe penetra mais profundamente na amostra. A P_{EN} é proporcional à magnitude do fluxo de partículas próximo às colunas de átomos que formam o cristal. O comportamento fortemente oscilatório das trajetórias da fração canalizada do feixe, logo após a entrada no canal, faz surgir as oscilações observadas na P_{EN} . O amortecimento destas oscilações com o aumento da profundidade se deve à decanalização de parte do feixe inicialmente canalizado e à mistura de fases das trajetórias canalizadas, resultando num fluxo que tende a ficar estacionário.

Lindhard [6] sugeriu que o fluxo estacionário resulta de uma tendência ao equilíbrio estatístico no espaço de fase transversal das partículas canalizadas. Isto significa, segundo a definição de equilíbrio estatístico, que um íon com energia transversal E_{\perp} ocupará com igual probabilidade todos os pontos do seu espaço de fase acessível. Embora a hipótese de Lindhard não seja estritamente correta [49] ela fornece o único método para se determinar analiticamente o fluxo de partículas dentro do canal.

Num sistema em que a energia total é conservada (ensemble micro-canônico) a distribuição de partículas num ponto $\vec{\rho}$ do espaço é proporcional a

$$\int \delta(E - E_{\perp}) d\mathbf{p}, \quad (2.73)$$

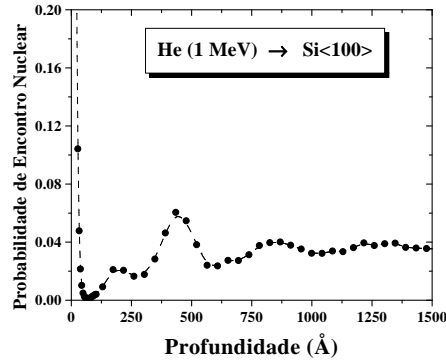


Fig. 2.9: Resultados de simulações da probabilidade de encontro nuclear como função da profundidade para íons de He canalizados na direção $\langle 100 \rangle$ do Si.

ou seja, é a integral sobre o espaço dos momenta restrita à condição de conservação de energia. No caso da canalização axial, o espaço dos momenta é bidimensional. Assim,

$$d\mathbf{p} = 2\pi p_{\perp} dp_{\perp} = 2\pi M dE_{\perp}. \quad (2.74)$$

Portanto, a probabilidade de encontrar uma partícula no ponto $\vec{\rho}$ é constante e independente do ponto observado. Normalizando a 1 a probabilidade total de encontrar a partícula em algum ponto da sua área acessível $A(E_{\perp})$, temos a seguinte expressão para a probabilidade de encontrar a partícula de energia transversal E_{\perp} no ponto $\vec{\rho}$ dentro do canal:

$$P(E_{\perp}, \vec{\rho}) = \begin{cases} \frac{1}{A(E_{\perp})} & \text{para } E_{\perp} \geq U(\vec{\rho}) \\ 0 & \text{para } E_{\perp} < U(\vec{\rho}) \end{cases} \quad (2.75)$$

A área $A(E_{\perp})$ é definida por uma linha equipotencial como as apresentadas na figura 2.8. Por exemplo, a equação (2.75) nos diz que as partículas com energia transversal igual a 5,8 eV (o que corresponde a um He de 1 MeV incidindo no centro do canal com um ângulo de incidência de $0,14^{\circ}$) tem igual probabilidade de ser encontrado em qualquer ponto do plano transversal interior à curva equipotencial $U(x, y) = 5,8$ eV.

Estamos agora em condições de determinar o fluxo de partículas no caso da canalização axial. As áreas acessíveis às partículas incidentes são determinadas pelas suas energias transversais. Vamos assumir aqui que a incidência das partículas seja normal ao plano transversal. Neste caso, $E_{\perp} = U(r_{in})$, onde r_{in} é o ponto de impacto inicial no canal. Como indicado na figura 2.10, a soma das contribuições do fluxo constante de partículas com todas as energias transversais possíveis resulta num fluxo máximo no centro do canal. Como as partículas populam com igual probabilidade os pontos do seu espaço transversal acessível, o centro do canal é o ponto visitado com mais frequência, por ser acessível a todas as partículas canalizadas. Vemos então que a principal consequência do efeito de canalização consiste na focalização do feixe no centro do canal. Dito de outra maneira, o efeito de canalização modifica a estatística de colisões experimentada pelos íons do feixe, visto que, contrariamente ao que acontece num meio amorfo, colisões com grandes parâmetros de impacto são mais frequentes que colisões com pequenos parâmetros de impacto. Esta modificação no fluxo

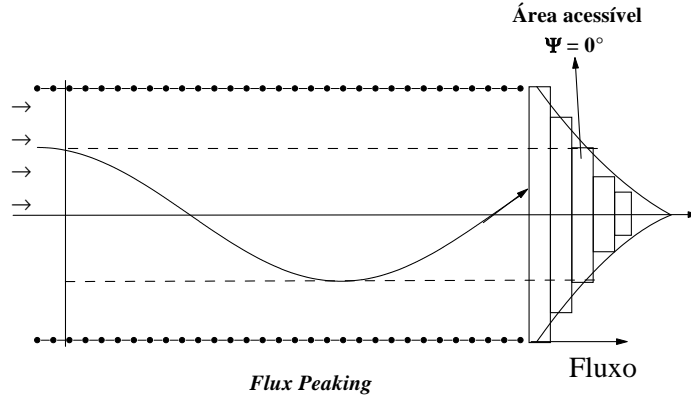


Fig. 2.10: Esquema mostrando a origem da focalização do fluxo de partículas canalizadas no centro do canal [10].

de partículas (na estatística de colisões) é a chave para compreendermos todos os efeitos direcionais associados à interação de feixes de íons com alvos cristalinos.

Por exemplo, a equação (2.6) que estudamos no início deste capítulo permite interpretar a seção de choque de freamento como o valor médio da energia transferida numa colisão com parâmetro de impacto b [$T(b)$] promediada sobre todos os parâmetros de impacto na situação em que um feixe uniforme incide sobre um único centro espalhador. Este é o caso quando o alvo é amorfo. Aqui cabe comentar que em situações em que o feixe incidente sobre um centro espalhador não seja uniforme, como no caso da canalização, a seção de choque de freamento tem que ser modificada:

$$\frac{dE}{dx} = N \int T(b) P(b) d^2b \quad (2.76)$$

onde $P(b)$ é a probabilidade de ocorrer uma colisão com parâmetro de impacto b . No caso de canalização, $P(b)$ está diretamente relacionada ao fluxo de partículas que acabamos de discutir. Claramente, no caso de um fluxo uniforme, a equação (2.76) se reduz à equação (2.6).

Capítulo 3

Técnicas experimentais

3.1 Introdução

Neste capítulo, discutiremos as técnicas experimentais utilizadas na realização deste trabalho. Primeiramente, discutiremos a técnica de implantação iônica, que consiste em introduzir controladamente impurezas num dado material. A seguir, estudaremos a técnica de Espectrometria de Retroespalhamento de Rutherford, que permite determinar as impurezas presentes numa amostra, bem como sua concentração e localização. Na seção final, apresentaremos a técnica de canalização, que consiste em explorar a dependência das interações íon-matéria com a orientação relativa de um feixe de íons incidente numa amostra cristalina.

3.2 Implantação Iônica

Uma das maneiras mais conhecidas de se alterar as propriedades físicas de diversos tipos de materiais é a introdução controlada de impurezas. Por exemplo, sabe-se que a introdução de N em matrizes de Fe produz nitretos de Ferro próximos à superfície o que altera as propriedades tribológicas do material: a quantidade de N introduzida vai determinar a fase dos Nitretos de Fe, resultando em amostras de Fe de diferentes durezas. Outro exemplo bem conhecido é o aço, cujas propriedades físicas dependem essencialmente da quantidade de C e H presentes nas ligas. Devemos citar ainda a dopagem de semicondutores, que é de fundamental importância na fabricação de dispositivos eletrônicos e circuitos integrados.

Até os anos sessenta a dopagem de semicondutores era realizada por difusão térmica dos dopantes. Isto era realizado colocando a amostra numa atmosfera gasosa ou depositando um filme com o dopante sobre a amostra e depois submetendo-a a altas temperaturas ($\sim 1000^\circ\text{C}$) por várias horas. Uma das desvantagens mais severas do processo de dopagem por este processo tem origem na natureza essencialmente isotrópica da difusão que torna difícil o controle da localização dos dopantes. Outra desvantagem é a limitação da concentração de dopantes ao limite de solubilidade do dopante na matriz semicondutora. A partir dos anos sessenta percebeu-se que a dopagem por implantação de íons contornava várias das dificuldades impostas pela dopagem por difusão. Atualmente, a técnica mais utilizada na dopagem de semicondutores é a implantação iônica [11].

A implantação iônica consiste simplesmente em incidir sobre a amostra um feixe dos íons que se quer introduzir no material. As implantações são caracterizadas pela energia dos íons incidentes e pela **fluência**, que corresponde ao número de íons implantados por

unidade de área da amostra.

O procedimento de implantação é bastante simples e pode ser resumido como a seguir. Primeiramente, alimenta-se uma fonte de íons com átomos correspondentes ao íon a ser implantado (na forma gasosa ou de vapor), onde os átomos serão ionizados. Os íons assim produzidos são extraídos da fonte com uma tensão que vai de 10 a 30 kV a fim de se produzir o feixe. Neste estágio, estão presentes no feixe íons de diversos estados de carga. A seguir o feixe passa por um imã separador de 90° , selecionando os íons que serão implantados. Passando pelo imã separador, o feixe entra no tubo de aceleração onde será acelerado por um potencial eletrostático que vai de 0 a 470 kV (no caso do implantador HVEE 500 do Instituto de Física da UFRGS). A focalização final do feixe é feita por lentes eletrostáticas. Após a aceleração e focalização, o feixe passa por um conjunto de placas defletoras paralelas verticais e horizontais cujas tensões variam com frequência de 1000 Hz possibilitando a varredura do feixe sobre uma área de 100×100 mm do alvo. Finalmente, a fluência implantada é monitorada por intermédio de quatro copos de Faraday localizados no perímetro do porta-amostras.

Algumas das principais características da técnica de implantação iônica que tornaram sua utilização amplamente difundida são[11]:

- Controle preciso da dose implantada ($\sim 5\%$);
- Possibilidade de se introduzir dopantes em concentrações acima do limite de solubilidade;
- Controle do perfil de implantação que pode ser ajustado pela energia do feixe;
- Embora o perfil de implantação de íons mono-energéticos tenha forma aproximadamente gaussiana, perfis de formas específicas podem ser produzidos pela superposição de implantações com energias diferentes;
- A implantação pode ser realizada à temperatura ambiente;
- Não existe contaminação química uma vez que os íons do feixe são selecionado em massa;
- Pode ser utilizada para formar compostos químicos (SiO_2 , silicetos, etc.) na profundidade que se desejar.

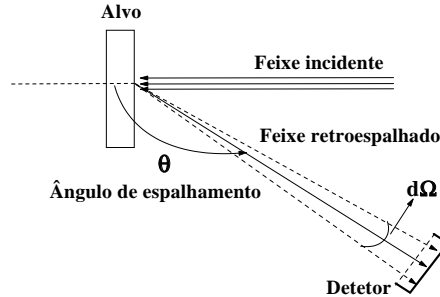


Fig. 3.1: Esquema do arranjo experimental numa análise por RBS.

3.3 Espectrometria de Retroespalhamento de Rutherford (RBS)

3.3.1 Introdução: Conceitos fundamentais

Quando se faz incidir um feixe de íons de alta energia sobre um alvo sólido, a grande maioria das partículas do feixe penetra no alvo com trajetórias aproximadamente retilíneas perdendo energia basicamente em processos inelásticos (perda de energia eletrônica). No entanto, algumas partículas do feixe passarão próximas dos núcleos atômicos sofrendo grandes modificações na direção de sua trajetória e na sua energia cinética, sendo eventualmente retroespalhadas. As experiências de análise por Espectrometria de Retroespalhamento de Rutherford (RBS) consistem em registrar a energia das partículas que são retroespalhadas pela amostra num ângulo sólido $d\Omega$ definido pela área de um detector de partículas. A figura 3.1 apresenta o arranjo experimental típico de um experimento de RBS.

Detetores de estado sólido são o tipo de detector de partículas usualmente utilizados em experimentos de RBS. Esses detetores produzem um sinal de tensão analógico, cuja magnitude é proporcional à energia da partícula detectada [50]. O sinal gerado pelo detector passa por um pré-amplificador e por um amplificador. O sinal amplificado é utilizado como entrada num analisador multicanal cuja função é processar e armazenar a informação proveniente do amplificador. O multicanal subdivide os sinais de tensão do amplificador em grupos cujas magnitudes correspondem a um certo intervalo de tensão. Cada intervalo de tensão é denominado canal. Cada canal é rotulado por um número inteiro. O canal 0 corresponde à menor energia que pode ser discriminada pelo sistema de detecção (E_{min}). O canal 1 corresponde ao intervalo de energias entre E_{min} e $E_{min} + \Delta E$ onde ΔE é o intervalo de energia correspondente a um canal. O i -ésimo canal corresponde ao intervalo entre $E_{min} + (i - 1)\Delta E$ e $E_{min} + i\Delta E$. Tipicamente, um multicanal tem 512 ou 1024 canais. A cada canal está associada uma posição de memória que registra quantas partículas foram detectadas com energias no intervalo correspondente ao canal. Quando uma partícula detectada produz um sinal de saída no amplificador correspondente ao intervalo de tensões de um determinado canal o valor desta posição de memória é incrementado de uma unidade. A representação gráfica do número de contagens em cada canal como função do número do

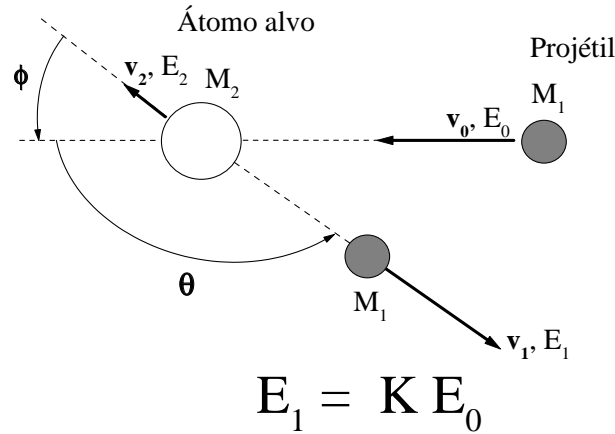


Fig. 3.2: Representação esquemática de uma colisão elástica de um projétil de massa M_1 , velocidade v_0 e energia E_0 com um alvo inicialmente em repouso. Após a colisão, as velocidades e energias do projétil e do alvo são v_1, E_1 e v_2, E_2 , respectivamente. Todas as quantidades se referem ao referencial do laboratório.

canal é o **espectro** de RBS.

Estudaremos a seguir os conceitos físicos que possibilitam, pela análise de um espectro de RBS, determinar quantitativamente quais são os elementos químicos presentes num alvo, em que quantidades estão presentes e como variam suas concentrações como função da profundidade nas proximidades da superfície do alvo.

3.3.2 O fator cinemático

Nas colisões que resultam em retroespalhamento, a distância de aproximação máxima entre as partículas do feixe e os núcleos atômicos do alvo é maior que as dimensões nucleares (~ 1 Fermi = 10^{-15} m) porém menor que o raio atômico típico ($\sim 0,5$ Å). Isto significa que a lei de força que governa estas colisões é a lei de Coulomb. Nestas condições, supondo que não ocorram reações nucleares, estas colisões são elásticas.

Quando uma partícula de massa M_1 , movendo-se com velocidade v_0 e tendo energia cinética E_0 , colide elasticamente com uma partícula de massa M_2 , o projétil emerge da colisão com energia E_1 e o átomo alvo ganha energia E_2 . Tal situação está esquematizada na figura 3.2.

Levando-se em conta a conservação de energia e de momentum na colisão, pode-se demonstrar [9, 8] que :

$$E_1 = K E_0, \tag{3.1}$$

onde

$$K(M_1, M_2, \theta) = \left\{ \frac{[1 - (M_1/M_2)^2 \sin^2(\theta)]^{1/2} + (M_1/M_2) \cos(\theta)}{1 + (M_1/M_2)} \right\}^2. \quad (3.2)$$

A constante K na equação (3.1) é denominada **fator cinemático**. Vemos que o fator K definido nas equações (3.1) e (3.2) depende das massas do projétil e do alvo e do ângulo de espalhamento na colisão. Num experimento de RBS, M_1 refere-se à massa dos íons que constituem o feixe analisador e M_2 é a massa do átomos-alvo presentes na amostra.

O fator K é a chave para se entender como a técnica de RBS tem a habilidade de reconhecer as massas dos átomos presentes numa amostra. Suponhamos que um feixe de íons de massa M_1 e de energia E_0 incide sobre uma amostra que contenha na sua superfície átomos de massas M_2 e M_3 onde $M_3 > M_2$. As equações (3.1) e (3.2) nos dizem que, para uma dado ângulo de retroespalhamento, as partículas retroespalhadas pelos átomos de massa M_2 e M_3 terão energias $K_{M_2}E_0$ e $K_{M_3}E_0$ respectivamente, onde $K_{M_2}E_0 < K_{M_3}E_0$. Portanto, pode-se estabelecer a massa dos átomos presentes na amostra medindo-se a energia dos íons retroespalhados.

A habilidade do RBS em diferenciar as massas dos átomos da amostra é determinada pela resolução em energia(δE) do sistema de detecção (detetor + amplificadores). A resolução em energia está relacionada à capacidade do sistema de detecção em diferenciar a energia das partículas que incidem sobre o detetor e pode ser formalmente definida como a largura a meia altura (FWHM) da resposta do sistema de detecção quando se faz incidir um feixe monoenergético sobre o detetor. Atualmente, a resolução em energia dos detetores de estado sólido está em torno de 12 keV para feixes de ^4He e em torno de 17 keV para feixes de ^7Li . Normalmente, a resolução dos detetores de estado sólido piora à medida que se aumenta a massa dos íons do feixe devido, principalmente, ao aumento do *straggling* na camada morta e na janela de entrada do detetor[50].

Para que a técnica de RBS consiga distingüir dois tipos de átomos cuja diferença de massas seja ΔM_2 , é necessário que a diferença ΔE_1 na energia dos feixes retroespalhados por estes átomos seja maior que δE . A resolução em energia determina, então, uma resolução em massa. Para uma dada geometria de retroespalhamento, a resolução em massa do RBS, δM_2 , é dada por:

$$\delta M_2 = \frac{\delta E}{E_0 \frac{dK}{dM_2}} \quad (3.3)$$

A resolução em massa pode ser melhorada das seguintes maneiras:

- Aumentando a energia do feixe E_0 ;
- Aumentando a massa do projétil, o que aumenta $\frac{dK}{dM_2}$, como pode ser visto na figura 3.3. No entanto, como já comentamos, o aumento da massa do projétil pode piorar a resolução em energia;
- Aumentando o ângulo θ . Veja figura 3.3

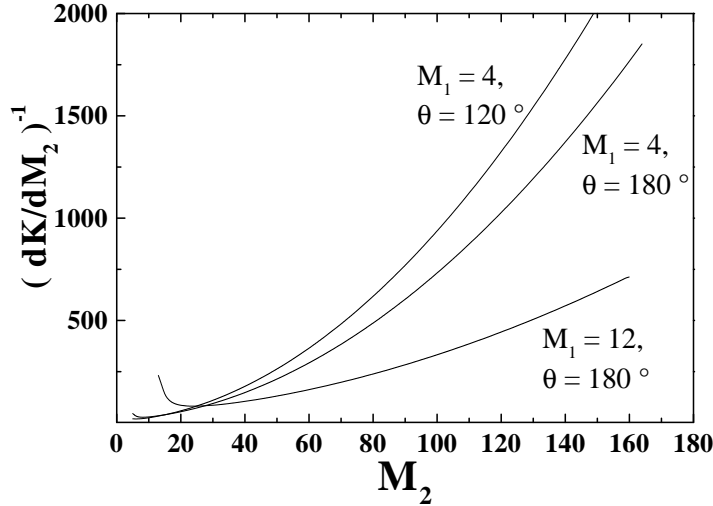


Fig. 3.3: Gráfico de $(dK/dM_2)^{-1}$ como função das massas do alvo para feixes de C e He. Para o feixe de He temos duas geometrias de retroespalhamento. Esta figura sugere que a resolução em massa do RBS deve melhorar com o aumento da massa do projétil e com o aumento do ângulo θ .

3.3.3 A seção de choque de espalhamento

Na seção anterior comentamos que a lei de Coulomb é a lei de força que governa as colisões que resultam em retroespalhamento. Nestas condições a seção de choque para que uma partícula seja espalhada no ângulo sólido $d\Omega$ definido pelo detector (veja figura 3.1) é a seção de choque de Rutherford [19]

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{C.M.} = \left[\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_r \sin^2(\Theta/2)}\right]^2, \quad (3.4)$$

onde $E_r = E_0 M_2 / (M_1 + M_2)$ é a energia no referencial do centro-de-massa, e é a carga do elétron e Z_1 e Z_2 são os números atômicos do projétil e do alvo respectivamente. No referencial do laboratório a seção de choque de Rutherford é escrita como:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Lab} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_0}\right)^2 \frac{4}{\sin^4(\theta)} \frac{[\lambda + \cos(\theta)]^2}{\lambda}, \quad (3.5)$$

onde $\lambda = \{1 - [(M_1/M_2) \sin(\theta)]^2\}^{1/2}$ e θ é o ângulo de espalhamento no referencial do laboratório.

Se um número total Q de partículas do feixe incidirem sobre um alvo fino de espessura t , o número dQ de partículas que serão retroespalhadas no angulo sólido $d\Omega$ definido pelo detector é dado pela expressão:

$$dQ = Q N t \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega, \quad (3.6)$$

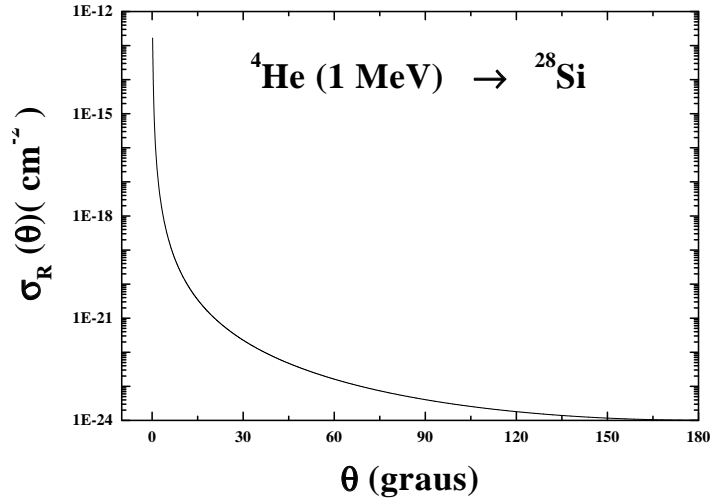


Fig. 3.4: Dependência da seção de choque de Rutherford com o ângulo de retroespalhamento (θ). Aqui, utilizamos $Z_1 = 4$, $Z_2 = 14$ e $E_0 = 1 \text{ MeV}$ na equação (3.5).

onde N é o número de átomos por unidade de volume no alvo.

A equação (3.6) nos diz que a probabilidade de que uma partícula seja detectada é proporcional a Nt (número de átomos por unidade de área do alvo) e proporcional à seção de choque de retroespalhamento. Esta proporcionalidade permite que a técnica de RBS consiga determinar as concentrações dos diferentes tipos de átomos presentes numa amostra desde que se consiga determinar o número de átomos do feixe que incidem sobre a amostra e o ângulo sólido compreendido pelo detetor e supondo que a energia do feixe e a geometria de retroespalhamento sejam bem conhecidas.

A equação (3.5) permite que se vislumbre algumas propriedades significativas da técnica de RBS:

- A seção de choque é proporcional a Z_1^2 , o que significa que a técnica é tanto mais sensível à detecção de um dado átomo no alvo quanto maior for o número atômico dos átomos do feixe;
- A seção de choque é proporcional a Z_2^2 , o que significa que para um dado projétil, a sensibilidade de detecção será maior para elementos mais pesados;
- A seção de choque é inversamente proporcional ao quadrado da energia do feixe, significando que a sensibilidade diminui quando se aumenta a energia do feixe;
- Observado a figura 3.4, que é a representação gráfica da equação (3.5), vemos que a sensibilidade diminui rapidamente quando se aumenta o ângulo θ .

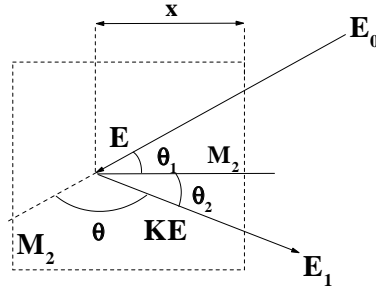


Fig. 3.5: Esquema de um evento de retroespalhamento ocorrendo a uma profundidade x de uma amostra monoisotópica. Aqui, o feixe incidente, a direção de detecção e a normal da amostra são coplanares.

3.3.4 Perda de energia

Nesta seção mostraremos como a energia das partículas retroespalhadas pode revelar em que profundidade da amostra ocorreu o retroespalhamento.

A figura 3.5 representa a situação em que uma partícula de energia E_0 e massa M_1 incidente sobre uma amostra monoisotópica constituída de átomos de massa M_2 , é retroespalhada numa profundidade x .

Podemos relacionar a energia E , que a partícula tem imediatamente antes desta ser retroespalhada, com o comprimento de trajetória de entrada $[x/\cos(\theta_1)]$ pela equação:

$$x/\cos(\theta_1) = - \int_{E_0}^E \left[\frac{dE}{dx}(E) \right]^{-1} dE, \quad (3.7)$$

onde $\left[\frac{dE}{dx}(E) \right]$ é a perda de energia por unidade de comprimento percorrido pelas partículas do feixe no material da amostra.

Imediatamente após o retroespalhamento, a partícula incidente terá energia KE . De maneira análoga ao que fizemos acima, podemos relacionar o comprimento da trajetória de saída com a energia da KE :

$$x/\cos(\theta_2) = - \int_{KE}^{E_1} \left[\frac{dE}{dx}(E) \right]^{-1} dE, \quad (3.8)$$

onde E_1 é a energia com que a partícula retroespalhada será detectada.

Das equações (3.7) e (3.8) vemos que, para se relacionar a energia detectada E_1 com a profundidade x em que ocorreu o retroespalhamento, é necessário encontrar o valor E da energia da partícula incidente imediatamente antes de ser retroespalhada. O problema é que o valor de E não é acessível experimentalmente, enquanto E_0 e E_1 são. Portanto, deve-se tentar relacionar x com as quantidades experimentalmente acessíveis E_0 e E_1 . Existem pelo menos duas maneiras de se conseguir isto:

- Resolvendo numericamente a equação (3.7) para determinar a correspondência entre E e x e, a seguir, resolver a equação (3.8), para relacionar x com E_1 ;

- Supondo que $\left[\frac{dE}{dx}(E)\right]$ seja constante ao longo dos caminhos de entrada e de saída. Como veremos a seguir, essa aproximação faz com que E seja eliminado das equações (3.7) e (3.8).

3.3.5 O Fator de Perda de Energia

Quando se supõe que $\frac{dE}{dx}$ seja constante ao longo dos percursos de entrada e saída, as equações (3.7) e (3.8) se reduzem a

$$E = E_0 - \frac{x}{\cos(\theta_1)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} \quad (3.9)$$

e

$$E_1 = KE - \frac{x}{\cos(\theta_2)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{saida} \quad (3.10)$$

respectivamente. Eliminando E das equações (3.9) e (3.10), temos:

$$KE_0 - E_1 = \left[\frac{K}{\cos(\theta_1)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} + \frac{1}{\cos(\theta_2)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{saida} \right] x. \quad (3.11)$$

A equação (3.11) pode ser reescrita como

$$KE_0 - E_1 = [S] x, \quad (3.12)$$

onde

$$[S] = \left[\frac{K}{\cos(\theta_1)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} + \frac{1}{\cos(\theta_2)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{saida} \right] \quad (3.13)$$

é o **fator de perda de energia ou fator S**.

Agora, o problema de se associar uma escala de profundidade às energias detectadas se resume a calcular o fator [S]. Existem duas aproximações que simplificam muito o cálculo do fator [S].

Para retroespalhamentos em regiões próximas à superfície da amostra, a variação da energia das partículas do feixe no percurso de entrada é pequena. Neste caso, o cálculo do fator S pode ser realizado avaliando a perda de energia no percurso de entrada, na energia E_0 : $\left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{E_0} \right]$. A perda de energia no percurso de saída é avaliada na energia KE_0 : $\left[\left(\frac{dE}{dx} \right)_{saida} = \left(\frac{dE}{dx} \right)_{KE_0} \right]$. Neste caso,

$$[S_0] = \left[\frac{K}{\cos(\theta_1)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{E_0} + \frac{1}{\cos(\theta_2)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{KE_0} \right]. \quad (3.14)$$

Esta aproximação é denominada **aproximação de superfície**.

Quando a profundidade em que ocorre o retroespalhamento torna-se apreciável, uma alternativa à aproximação de superfície consiste em avaliar as perdas de energia na energia média dos percursos de entrada e de saída. Neste caso,

$$[\bar{S}] = \left[\frac{K}{\cos(\theta_1)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\bar{E}_{entrada}} + \frac{1}{\cos(\theta_2)} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{\bar{E}_{saida}} \right]. \quad (3.15)$$

Na **aproximação de energia média**, supõe-se que

$$\bar{E}_{entrada} = \frac{1}{2}(E + E_0) \quad (3.16)$$

e

$$\bar{E}_{saida} = \frac{1}{2}(E_1 + KE). \quad (3.17)$$

O valor de E nas equações (3.16) e (3.17) é desconhecido. Uma maneira de contornar este problema é considerar que a perda de energia total $\Delta E = KE_0 - E_1$ esteja dividida simetricamente entre os caminhos de entrada e de saída. Desta maneira, $E \simeq E_0 - \frac{1}{2}\Delta E$ e os valores $\bar{E}_{entrada}$ e \bar{E}_{saida} são

$$\bar{E}_{entrada} \simeq E_0 - \frac{1}{4}\Delta E \quad (3.18)$$

e

$$\bar{E}_{saida} \simeq E_1 + \frac{1}{4}\Delta E, \quad (3.19)$$

respectivamente. Esta aproximação é denominada **aproximação de energia média simétrica**.

3.3.6 Um exemplo de análise por RBS

Vamos finalizar esta seção apresentando um exemplo de espectro de RBS no qual os conceitos de fator cinemático, secção de choque e fator $[S]$ são utilizados para sua interpretação.

Na parte superior da figura 3.6 apresentamos o esquema de um experimento de RBS no qual um feixe de íons de energia E_0 incide sobre uma amostra constituída de átomos de massa M_2 . Nesta amostra também estão presentes átomos de massa $M_3 \gg M_2$, distribuídos em profundidade num perfil de concentração gaussiano, próximos à superfície. Na discussão a seguir, vamos supor que as concentrações das impurezas de massa M_3 são baixas o suficiente para que a perda de energia das partículas do feixe na amostra não seja alterada pela presença das impurezas. A parte inferior da figura 3.6 mostra o espectro de RBS que seria obtido neste experimento.

A máxima energia com que uma partícula de massa M_2 pode ser detectada (retroespalhamento na superfície) é K_2E_0 . No caso da impureza, este valor de energia corresponde a K_3E_0 . O valor K_iE_0 é denominado *edge* do sinal das partículas de massa M_i .

Como $M_3 \gg M_2$ podemos observar que os sinais correspondentes aos dois tipos de átomos presentes na amostra se apresentam completamente separados no eixo horizontal (eixo das energias detectadas), já que $K_3E_0 \gg K_2E_0$ e as impurezas estão localizadas próximas à superfície.

A figura 3.6 também indica que a diferença nos fatores cinemáticos resulta em escalas de profundidade diferentes para os dois elementos: $K_2E_0 - E_1 = [S_2]x$ e $K_3E_0 - E_2 = [S_3]x$, onde $[S_i]$ é o fator S correspondente ao átomo de massa M_i .

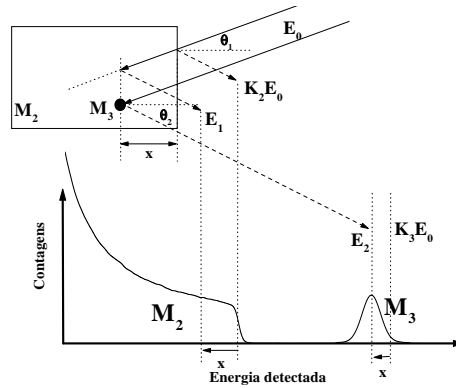


Fig. 3.6: Exemplo de um espectro de RBS de uma amostra contendo impurezas.

Outro aspecto interessante da figura 3.6 é que o sinal dos átomos da matriz da amostra aumenta à medida que diminui a energia detectada. Isto decorre do aumento quadrático da seção de choque de Rutherford com a diminuição da energia do feixe (veja a equação (3.5)). De fato, pode-se demonstrar que o número de contagens $H(E_1)$ no canal correspondente à energia detectada E_1 é dado pela relação [9]:

$$H(E_1) = \sigma(E)\Omega NQ \frac{\varepsilon}{[S_2(E)] \cos(\theta_1)} \frac{dE/dx|_{K_2E}}{dE/dx|_{E_1}}. \quad (3.20)$$

Aqui, ε é o intervalo de energia correspondente a um canal, $\sigma(E)$ é seção de choque avaliada na energia imediatamente antes do retroespalhamento, Ω é o ângulo sólido compreendido pelo detetor, N é a densidade atômica da amostra e Q é o número total de partículas do feixe que incidem sobre a amostra.

A equação (3.20) pode ser interpretada da seguinte maneira: à medida que o feixe penetra na amostra, a energia (E) dos projéteis diminui, aumentando a seção de choque de retroespalhamento σ . Este efeito tem a tendência de aumentar o número de contagens $H(E_1)$. Por outro lado, a perda de energia por unidade de comprimento (dE/dx) também varia com a energia do projétil. Conseqüentemente, o efeito da variação de (dE/dx) com a energia do feixe pode amplificar ou conta-balançar o efeito da variação de σ . Especificamente, quando (dE/dx) aumenta com a diminuição da energia, a presença do fator $[S]$ no denominador da equação (3.20) faz com que a altura do espectro diminua com a diminuição da energia detectada! Por outro lado, a contribuição da razão $\frac{dE/dx|_{K_2E}}{dE/dx|_{E_1}}$ é de menor importância.

3.4 Canalização

O fenômeno de canalização, cujos aspectos teóricos foram discutidos no capítulo anterior, encontra inúmeras aplicações práticas quando associado a técnicas experimentais de análise e modificação de materiais. Associado à técnica de implantação iônica, o fenômeno de canalização permite implantar íons minimizando os danos produzidos nas amostras durante

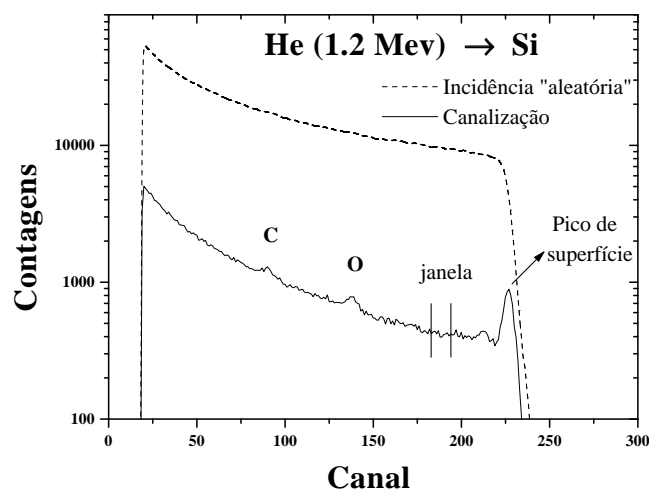


Fig. 3.7: Comparação dos espectros de RBS obtidos em direção aleatória (curva superior) e direção canalizada (curva inferior). Uma janela em energia é mostrada logo atrás do pico de superfície.

a implantação. De fato, uma das primeiras evidências experimentais do fenômeno de canalização foi obtida em 1963 por G. Piercy [40], que observou que íons de Kr de 40 keV implantados em cristais de Al apresentavam penetrações nas amostras muito maiores que as observadas em alvos amorfos. No entanto, é associado a técnicas de análise de materiais, como o RBS, que a técnica de canalização encontra seu maior campo de aplicações [10, 8, 9, 2]. Entre as inúmeras aplicações do fenômeno de canalização como técnica de análise de materiais podemos citar, determinação da distribuição de defeitos num cristal, estudos de camadas epitaxiais, camadas superficiais e interfaces, localização de defeitos e impurezas e medição de danos produzidos por irradiação [10].

Na figura 3.7 apresentamos um exemplo de espectro de RBS obtido em geometria de canalização. A característica mais evidente do espectro canalizado é a forte diminuição do número de contagens de partículas retroespalhadas em comparação com o espectro obtido em direção “aleatória”¹ Esta redução ocorre devido ao efeito de focalização do feixe dentro do canal que faz com que a probabilidade de uma colisão de retroespalhamento seja fortemente reduzida. A razão $\chi = H_c/H_a$ entre as alturas do espectro canalizado e do espectro aleatório na região próxima à superfície é denominada razão mínima de contagens ou χ_{min} . Para feixes de He com energias de cerca de 1 MeV em amostras de Si, o valor típico do χ_{min} é de 3 a 4%.

Outra característica bastante evidente no espectro canalizado é a presença do pico de superfície, que pode ser considerado a “impressão digital” da canalização axial. A presença do pico de superfície se deve ao retroespalhamento do feixe pelas primeiras (de 5 a 10) camadas atômicas, onde o fluxo inicial de partículas do feixe ainda é uniforme.

¹ Uma direção aleatória corresponde a uma orientação do alvo que resulta num espectro idêntico ao que seria obtido com uma amostra de Si amorfo.

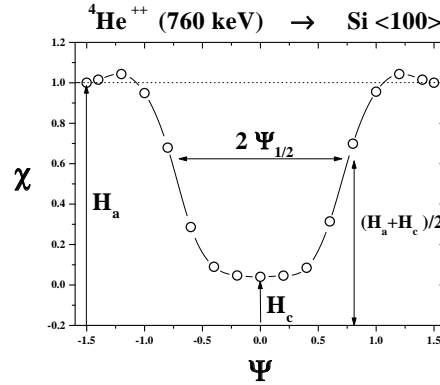


Fig. 3.8: Razão χ como função do ângulo de inclinação Ψ (em graus) do feixe com relação ao eixo de canalização.

Um parâmetro que serve para caracterizar a canalização é o semi-ângulo $\Psi_{1/2}$ que corresponde à meia largura a meia altura (HWHM) do valor da razão χ como função do ângulo de inclinação Ψ do feixe com relação à direção de canalização. Um exemplo da determinação de $\Psi_{1/2}$ é mostrada na figura 3.8. $\Psi_{1/2}$ está relacionado ao ângulo crítico de canalização introduzido no capítulo anterior e, portanto, é inversamente proporcional à raiz quadrada da energia do feixe. Para íons de He com energias da ordem de MeV canalizados em Si, $\Psi_{1/2}$ é da ordem de 1° . $\Psi_{1/2}$ também depende do canal, uma vez que o ângulo crítico varia como $\sim d^{-1/2}$, onde d é o espaçamento interatômico ao longo da direção de canalização.

3.4.1 O procedimento de Canalização de um cristal de Si

O arranjo experimental em um experimento de canalização é muito semelhante ao arranjo utilizado num experimento comum de RBS. A única diferença é que a amostra, tem que ser montada sobre um goniômetro para que se possa alinhar os eixos cristalográficos da amostra com a direção do feixe.

A fim de se obter feixes com divergências angulares adequadas (cerca de $0,03^\circ$, ou menos) são utilizados colimadores com 2 a 3 mm de diâmetro e separados por distâncias da ordem de 2 a 3 metros após a seção de aceleração do feixe.

Para que se possa realizar o alinhamento do cristal é importante um bom conhecimento de sua estrutura cristalina. O cristal do Si é uma rede FCC com parâmetro de rede $d = 5,43 \text{ \AA}$, e com uma base formada por 2 átomos de Si com deslocamentos $\vec{d}_1 = \frac{d}{4}(0,0,0)$ e $\vec{d}_2 = \frac{d}{4}(1,1,1)$ em relação aos pontos da rede. Na figura 3.9, a seguir, apresentamos uma célula cúbica da rede do Si. Na figura 3.10, estão apresentadas as disposições dos planos atômicos observados quando se olha o modelo da figura 3.9 ao longo das três direção principais do Si. Como veremos no exemplo a seguir, o conhecimento desses planos é de grande utilidade no procedimento de canalização.

Vamos ilustrar o procedimento de canalização mostrando com se alinha um cristal de Si cuja superfície é normal ao eixo $\langle 110 \rangle$. O primeiro passo do procedimento de canalização é tomar um espectro de RBS com o goniômetro inclinado num pequeno ângulo, tipicamente cerca de 6° , de tal maneira que o feixe incida sobre o alvo inclinado cerca de 6° com relação

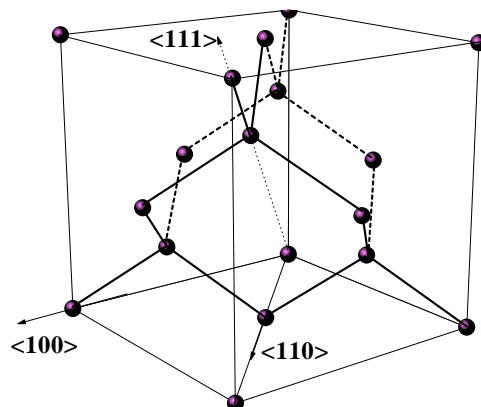


Fig. 3.9: Célula cúbica do Si. Cada aresta do cubo tem $5,43 \text{ \AA}$ de comprimento

ao eixo $\langle 110 \rangle$. O espectro “aleatório”² é obtido como se mostra na curva superior da figura 3.7 e seleciona-se uma janela de energias logo abaixo do *edge* do Si. As contagens de RBS nesta janela, normalizadas pelo número de íons incidentes na amostra, são registradas para vários valores do ângulo azimutal (ϕ), que é incrementado em passos de 1 a 2 graus, como mostrado na parte (a) da figura 3.11. Os ângulos ϕ que apresentam grandes reduções nas contagens de RBS correspondem ao alinhamento do feixe ao longo de direções planares. No Si, as reduções de contagens nas direções planares pode chegar a 30 % das contagens aleatórias. Repare que na figura 3.7 a janela foi ajustada tomando-se o cuidado de evitar a região do pico de superfície.

Os ângulos correspondentes aos planos encontrados com o procedimento descrito acima são graficados num gráfico polar, como mostrado na figura 3.11(b). O procedimento acima é então repetido para outros ângulos de inclinação do feixe (por exemplo $\theta = 5^\circ$), os ângulos correspondentes aos planos atômicos são graficados no diagrama polar e os pontos são conectados por linhas retas. Estas linhas representam os planos $\{110\}$, $\{100\}$ e dois planos $\{111\}$, que se intersectam no eixo $\langle 110 \rangle$ (veja figura 3.10. Os ângulos θ e ϕ do nosso diagrama polar correspondem aos ângulos nos quais devemos posicionar o goniômetro para se conseguir o alinhamento na direção $\langle 110 \rangle$. Na figura 3.11(b) vemos que esses ângulos correspondem a $\phi = 60^\circ$ e $\theta = 0.9^\circ$.

A fim de se fazer o ajuste fino dos ângulos θ e ϕ que resultam no melhor alinhamento do cristal, realiza-se uma varredura angular variando-se o ângulo θ em pequenos passos (de cerca de $0,1^\circ$), com o ângulo ϕ fixo em 60° . O resultado é uma curva como a da figura 3.11(c). O ajuste fino do ângulo ϕ pode então ser realizado fixando θ no valor mínimo 0.9° da figura 3.11(c) e realizando uma varredura similar no ângulo ϕ .

O passo final é a verificação da canalização, tomando-se um espectro de RBS a fim de verificar o aparecimento do pico de superfície e o valor do χ_{min} .

² Uma direção aleatória corresponde a uma orientação do alvo que resulta num espectro idêntico ao que seria obtido com uma amostra de Si amorfo.

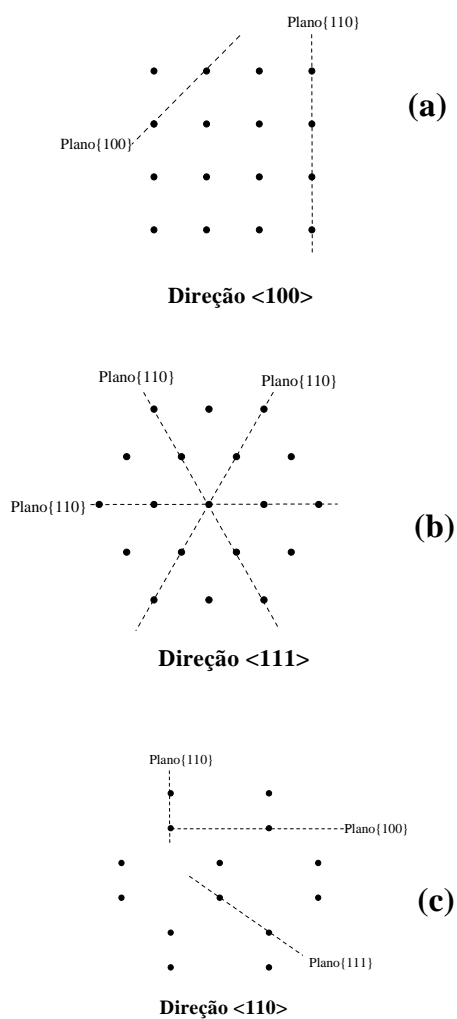


Fig. 3.10: Orientação dos planos atômicos em torno dos três eixos principais do Si: (a) $\langle 111 \rangle$, (b) $\langle 100 \rangle$ e (c) $\langle 110 \rangle$.

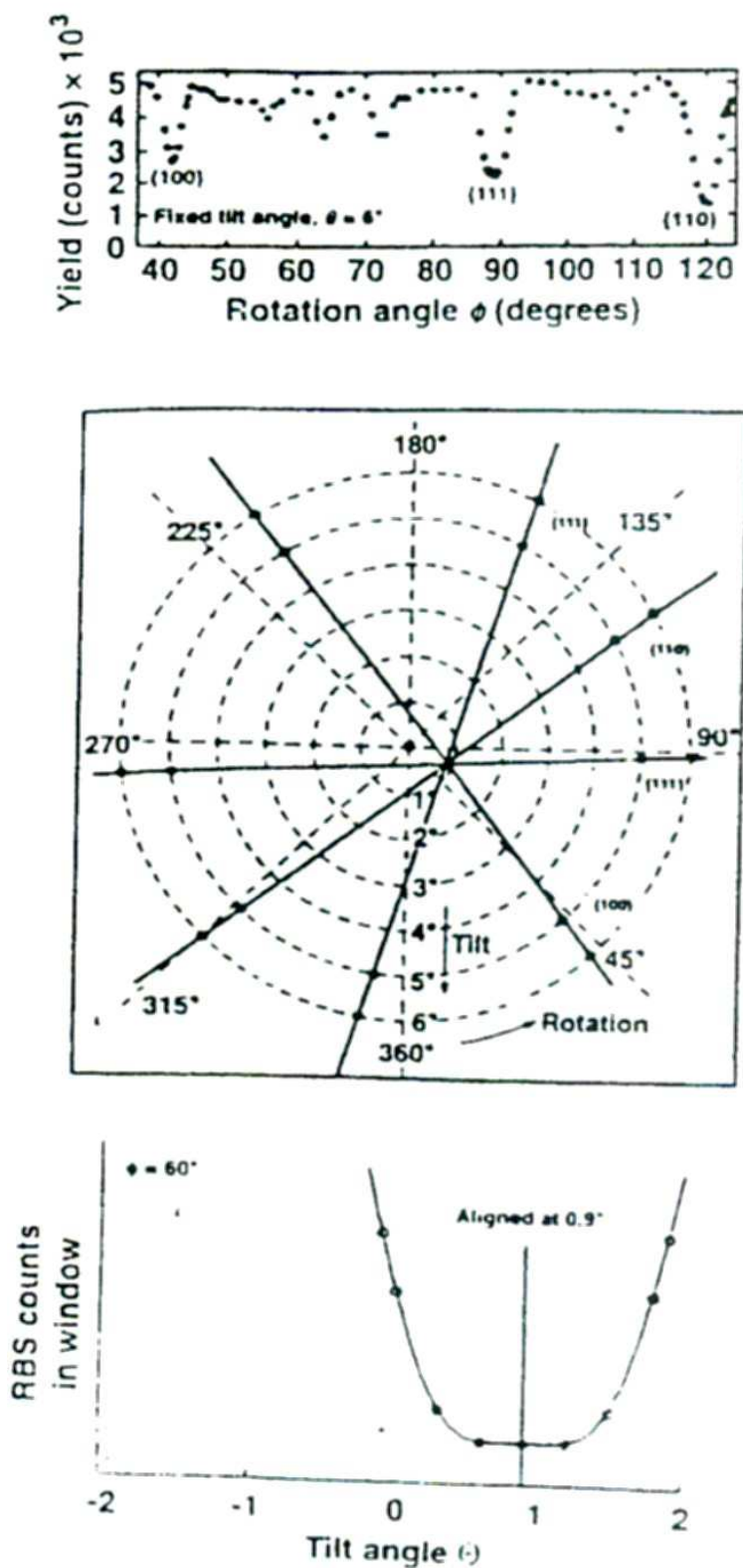


Fig. 3.11: (a) Contagens de RBS correspondentes à janela da figura 3.7 como função do ângulo azimutal (de rotação) ϕ , para um ângulo de inclinação θ de 6° . (b) Gráfico polar dos mínimos planares da parte (a). (c) Determinação dos valores de θ e ϕ para o alinhamento na direção $\langle 110 \rangle$ [8].

Capítulo 4

Procedimentos experimentais I: íons pesados

4.1 Introdução

Na primeira parte deste trabalho, estudamos a perda de energia de íons pesados (^{153}Eu e ^{209}Bi) de baixa energia canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. O estudo do poder de freamento dos íons pesados foi realizado indiretamente pela determinação do perfil de profundidade dos íons implantados em condição de canalização. Para reter os perfis de concentração resultantes das implantações, utilizamos a técnica de RBS. Nas seções a seguir, descreveremos em detalhes os procedimentos experimentais utilizados.

4.2 Preparação de amostras

Nas implantações de íons pesados em direção canalizada, foram utilizadas amostras de silício monocristalino, com superfícies perpendiculares às direções $\langle 100 \rangle$ ou $\langle 111 \rangle$. As amostras tinham como dimensões típicas $2,5 \text{ cm}^2$ de área e $1,5 \text{ mm}$ de espessura. Antes de cada implantação, as amostras passaram pelo processo padrão de limpeza em microeletrônica, realizado nas seguintes etapas:

- Fervura da amostra numa solução contendo 20% água oxigenada (H_2O_2) e 80 % de ácido sulfúrico (H_2SO_4) a 60°C , durante 10 minutos, a fim de remover gorduras e partículas orgânicas depositadas sobre a superfície.
- Lavagem em água deionizada corrente durante 5 minutos, a fim de remover resíduos ácidos.
- Banho em solução com 50 % de ácido fluorídrico (HF) e álcool isopropílico. A função do HF é remover a camada de SiO_2 nativo ($\sim 30\text{\AA}$) existente sobre a superfície da amostra. O álcool isopropílico tem a função de passivar os *dangling bonds* da superfície, retardando o crescimento do SiO_2 nativo.
- Lavagem da amostra em álcool isopropílico
- Secagem da amostra com um jato de gás inerte (nitrogênio ou argônio).

4.3 O procedimento de implantação em direção de canalização

Imediatamente depois do processo de limpeza, as amostras eram montadas num goniômetro de três eixos com $0,005^\circ$ de precisão e a câmara de implantação evacuada. O vácuo final durante as implantações era da ordem de 10^{-6} Torr. Todas as implantações foram realizadas no implantador de 500 kV do IF-UFRGS.

O alinhamento das amostras foi realizado pela técnica de RBS/Canalização discutida no capítulo anterior. Para isto, utilizamos feixes de partículas alfa ($^4\text{He}^{2+}$) de 800 keV. Antes de incidir sobre a amostra, o feixe de partículas alfa passa por dois colimadores de cerca de 3mm de diâmetro separados por uma distância de cerca de 3 metros, resultando num feixe de divergência angular de $0,03^\circ$. As partículas retroespalhadas eram detectadas por um detetor de barreira de superfície localizado a 165° com relação à direção do feixe. O aparato experimental utilizado nos permitiu alinhar a amostra em condição de canalização com precisão melhor que $0,1^\circ$.

Para as implantações na direção $\langle 100 \rangle$ ($\langle 111 \rangle$) utilizamos amostras de Si $\langle 100 \rangle$ ($\langle 111 \rangle$). Nestes casos, a direção de canalização era paralela à normal da superfície da amostra e à direção do feixe. Para as implantações na direção $\langle 110 \rangle$ utilizamos amostras de Si $\langle 100 \rangle$. Portanto, neste último caso, em direção canalizada, a normal da superfície da amostra estava inclinada num ângulo de 45° com relação à direção do feixe.

A implantação de íons pesados em Si apresenta uma dificuldade experimental básica: íons pesados produzem defeitos na matriz de Si, mesmo quando implantados a baixas fluências. Por outro lado, a implantação de fluências muito baixas dificulta a determinação dos perfis de profundidade por RBS. Uma solução para contornar essas dificuldades é realizar as implantações com a amostra aquecida. Nestas condições os defeitos pontuais (vacâncias e intersticiais) produzidos pela implantação possuem uma maior mobilidade, aniquilando-se, se a temperatura da amostra for suficientemente alta. Este efeito é denominado recozimento dinâmico e tem como resultado a recristalização da amostra durante a implantação, permitindo que se implante uma fluência muito maior sem que a amostra seja apreciavelmente danificada. Por esta razão, todas as implantações foram realizadas a 350°C . O goniômetro utilizado nas implantações permite o aquecimento e o controle automático de temperatura com precisão de $\pm 2^\circ\text{C}$.

Uma vez atingida a temperatura de implantação, o alinhamento da amostra com a direção de canalização era verificado uma vez mais a fim de contornar qualquer eventual efeito de dilatação das peças do goniômetro durante o aquecimento.

A etapa seguinte no procedimento de implantação é a redução da energia do feixe de partículas alfa (inicialmente a 800 keV) até a energia da implantação (15 a 50 keV). A seguir, troca-se o feixe de He para o feixe do íon que se deseja implantar (Bi ou Eu).

Durante as implantações, a divergência angular do feixe era de cerca de $0,3^\circ$ (devido à varredura eletrostática na linha de implantação). As densidades de corrente do feixe típicas durante as implantações foram de cerca de 50 nA/cm^2 para feixes de Bi e de 10 a 15 nA/cm^2 nas implantações de Eu. A fluência implantada, medida por quatro copos de Faraday localizados na periferia da amostra implantada, foi controlada com precisão relativa de $\pm 10\%$.

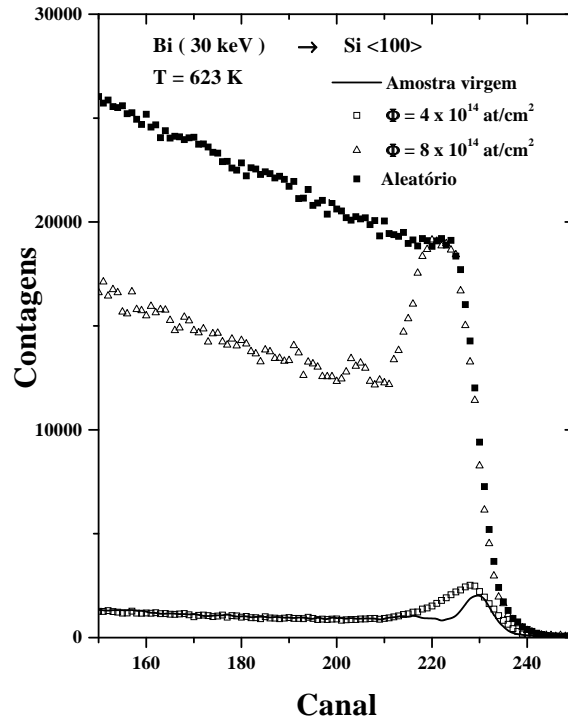


Fig. 4.1: Espectros de RBS/C de amostras implantadas com Bi a 30 keV (a 350°C). Os espectros correspondentes a fluências entre $\phi = 1 \times 10^{14}$ e $\phi = 2 \times 10^{14}$ at/cm² foram omitidos uma vez que são idênticos ao espectro de amostra virgem.

4.4 Determinação das fluências de implantação

A eficiência do processo de recozimento dinâmico na recristalização da amostra é função tanto da temperatura quanto da fluência de implantação. Portanto, nós determinamos, para cada energia de implantação, a máxima fluência de Bi ou Eu que pode ser implantada na amostra sem que esta apresente sinais de estar danificada. Para isto, implantamos Bi e Eu com fluências crescentes na direção $\langle 100 \rangle$ a 350°C em diversas amostras. Em seguida, realizamos experimentos de RBS em condição de canalização (RBS/C) e determinar a razão mínima de contagens (χ_{min}) próximo ao pico de superfície a fim de verificar a densidade de defeitos resultantes das implantações.

Na figura 4.1 estão apresentados os espectros de RBS/C correspondentes a amostra virgem e amostras implantadas com Bi a 30 keV (a 350°C) para fluências entre $\phi = 1 \times 10^{14}$ e $\phi = 8 \times 10^{14}$ Bi/cm². Nós observamos que, até $\phi = 2 \times 10^{14}$ Bi/cm², não existem diferenças entre os espectros implantados e de uma amostra virgem. Nestes casos, os valores do χ_{min} eram iguais (dentro dos erros experimentais) a 4%. No entanto, quando as fluências implantadas são aumentadas para $\phi = 4 \times 10^{14}$ Bi/cm², a situação muda. O χ_{min} aumenta

para 8%, indicando que uma quantidade mensurável de defeitos foi criada no substrato de Si, apesar da alta temperatura de implantação. Esta tendência se torna ainda mais evidente quando a fluência de implantação atinge o valor de $\phi = 8 \times 10^{14}$ Bi/cm². Neste caso, uma amorfização completa de uma camada de cerca de 400 Å foi obtida, como pode ser verificado na figura 4.1. Na figura 4.2 estão graficados os valores da razão mínima de contagens χ_{min} da figura 4.1 como função da fluência implantada. Uma inspeção da figura 4.2 permite concluir que $\phi = 2 \times 10^{14}$ Bi/cm² é a fluência máxima de Bi que pode ser implantada a 30 keV em condição de canalização (a 350°C) sem que as amostras apresentem sinais de estarem danificadas. Este procedimento foi repetido para cada energia de implantação e curvas semelhantes à da figura 4.2 foram obtidas tanto para as implantações de Bi quanto para as implantações de Eu. Um resumo das condições de implantação realizadas, com as direções, energias e íons implantados, pode ser encontrado na tabela 4.1

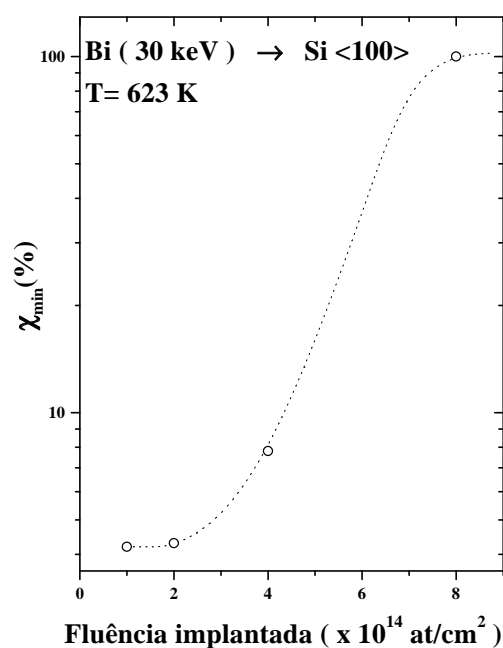


Fig. 4.2: Razão mínima de contagens (χ_{min}) como função da fluência para implantações de Bi a 30 keV (350°C) na direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Aqui, pode-se inferir que a máxima fluência que pode ser implantada sem produzir uma quantidade mensurável de danos nas amostras de Si é de $\phi = 2 \times 10^{14}$ Bi/cm².

Tab. 4.1: *Resumo das implantações realizadas neste trabalho.*

íon	energia (keV)	direção	fluência $\times 10^{14}$ at/cm ²
Bi	20	$\langle 100 \rangle$	2
Bi	30	$\langle 100 \rangle$	2
Bi	40	$\langle 100 \rangle$	1
Eu	15	$\langle 100 \rangle$	1
Eu	20	$\langle 100 \rangle$	1
Eu	30	$\langle 100 \rangle$	1
Eu	40	$\langle 100 \rangle$	1
Eu	50	$\langle 100 \rangle$	0.8
Eu	20	$\langle 111 \rangle$	1
Eu	30	$\langle 111 \rangle$	1
Eu	15	$\langle 110 \rangle$	1
Eu	20	$\langle 110 \rangle$	1
Eu	30	$\langle 110 \rangle$	1
Eu	40	$\langle 110 \rangle$	1
Eu	50	$\langle 110 \rangle$	0.8

4.5 Obtenção dos perfis de implantação

Os perfis de concentração das amostras implantadas foram obtidos pela técnica de RBS. As análises foram realizadas utilizando feixes de íons de He com energias de 800 keV e 1.5 MeV produzidos tanto pelo implantador de íons quanto pelo acelerador Tandetron. Nestas análises, as partículas retroespalhadas eram medidas por detectores de barreira de superfície localizados a 165 e 170° com relação à direção do feixe, no implantador e no Tandetron, respectivamente. A resolução em energia dos sistemas de detecção utilizados (detetor + eletrônica) foi sempre melhor que 12 keV. Durante as medidas de RBS o vácuo da câmara de análise foi mantido em torno de 10^{-7} Torr por intermédio de uma armadilha (*trap*) criogênica de N₂ líquido.

Nós enfrentamos dois tipos de dificuldades experimentais na determinação dos perfis de implantação. Em primeiro lugar, as fluências implantadas resultaram em baixas concentrações de pico (tipicamente $10^{18} - 10^{19}$ át /cm³) que, por sua vez, resultam em taxas de contagens muito baixas. Em segundo lugar, as implantações em direção canalizada conseguem introduzir os íons implantados em profundidade muito maiores do que as implantações ordinárias. Como resultado, os espectros apresentam caudas na direção do *bulk* do material, que têm que ser separadas do sinal do Si.

Contornar estas dificuldades não é uma tarefa simples. Para aumentar a taxa de contagens, deveríamos, em princípio, aumentar a corrente do feixe. No entanto, o aumento da taxa de contagens vem acompanhado do aumento da taxa de empilhamento (*pile-up*)¹ o

¹ O *pile up* consiste em contagens espúrias no espectro resultantes da chegada praticamente simultânea de 2 partículas no detetor, que o sistema de detecção interpreta como uma única partícula com energia igual à soma das energias das partículas em questão. É fácil mostrar que o *pile-up* pode ser descrito

que dificulta a determinação das caudas dos perfis implantados.

Com relação ao problema da separação do sinal do Si da cauda do perfil de implantação poderíamos, em princípio, aumentar a energia do feixe analisador. No entanto este recurso tem duas desvantagens. Em primeiro lugar, a redução da seção de choque de Rutherford (que diminui ainda mais a taxa de contagens) e, em segundo lugar, a diminuição da resolução em profundidade, visto que, na faixa de energias empregadas nas análises, o poder de freamento do He diminui com o aumento da energia.

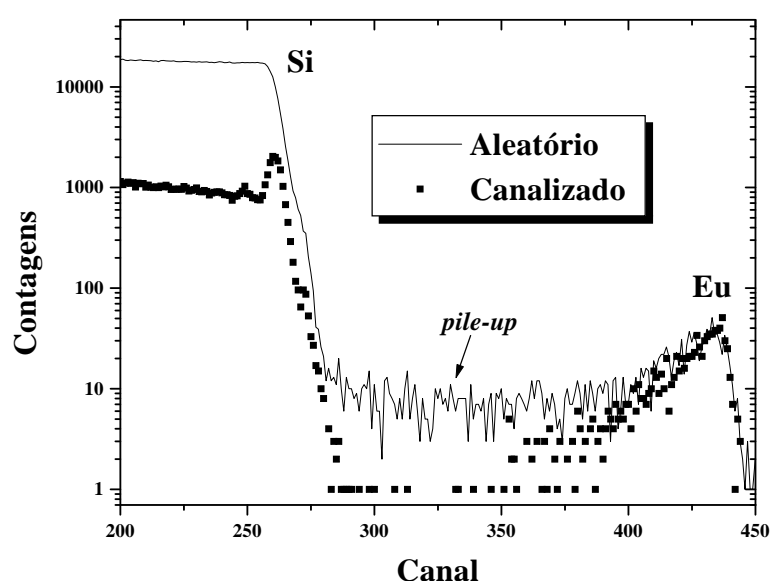


Fig. 4.3: Um exemplo típico de análise de RBS em direção canalizada (símbolos cheios) e direção aleatória (linha contínua). Nesta análise utilizamos um feixe de partículas alfa de 1.5 MeV. Repare que a análise em direção aleatória dificulta a observação da cauda do perfil devido à presença do *pile-up*.

A fim de minimizar problemas com o *pile-up* e poder distingüir melhor as caudas dos perfis, a solução de compromisso encontrada foi realizar medidas em direção canalizada. Na figura 4.3 temos um exemplo típico das nossas análises por RBS em direção canalizada e aleatória. Como pudemos verificar, os perfis obtidos em direção canalizada resultam idênticos aos obtidos numa análise em direção aleatória sem, no entanto, estarem contaminados pelo *pile-up*. Além disso, correntes muito baixas (em torno de 15 nA) foram utilizadas e utilizamos amplificadores com sistema de rejeição eletrônica de *pile-up*.

Devido às baixas fluências implantadas e às baixas correntes utilizadas, o tempo típico necessário para obter cada espectro variava de 4 a 12 horas, dependendo da concentração de pico. Nas condições de vácuo e de corrente utilizadas nas análises, espera-se que uma camada de hidrocarbonetos de cerca de 20 Å se deposite sobre a amostra em cada hora [51].

matematicamente como a convolução do espectro consigo mesmo. Por esta razão, a taxa de *pile-up* aumenta com o quadrado da corrente do feixe.

Para minimizar este efeito, a posição de incidência do feixe sobre a amostra era modificada periodicamente.

4.6 Análise dos dados

Na conversão da escala horizontal do espectro, de canais para profundidade, utilizamos a aproximação de superfície e o método de integração numérica descritos no capítulo anterior. A comparação dos dois métodos demonstrou que o erro relativo na determinação da profundidade pela aplicação da aproximação de superfície é da ordem de apenas 1,5% e 3,0%, para profundidades acima de 3000 Å, nas medidas em direção canalizada e aleatória, respectivamente. Nas nossas análises utilizamos os valores experimentais da perda de energia de íons de He em silício amorfo das refs. [52, 53] e os valores experimentais de perda de energia canalizada nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ da refs. [54] e [55], respectivamente. Na análise dos dados referentes à direção $\langle 111 \rangle$, também foram utilizados os dados de perda de energia de íons He canalizados na direção $\langle 111 \rangle$ obtidos neste trabalho. A maior fonte de erros nas nossas análises tem origem nas incertezas experimentais nos valores da perda de energia, que são da ordem de 5%.

Na conversão da escala vertical dos espectros, de contagens para concentrações, levamos em conta a variação da seção de choque de Rutherford como função da profundidade na amostra. O perfil final era obtido impondo que a área sob o perfil corresponda à fluência total implantada.

Capítulo 5

Resultados e discussões I: íons pesados.

5.1 Introdução: o efeito Z_1

Durante o final da década de 1970 e toda a década de 1980, diversos grupos estiveram empenhados no estudo experimental sistemático de alcances de íons implantados em alvos de Si amorfo [56, 57, 58, 59, 60, 61]. O quadro que emergiu deste esforço indica que, para uma grande faixa de energias incidentes (em termos da energia reduzida, $10^{-4} \leq \epsilon \leq 1$) os dados experimentais têm comportamento aproximadamente universal [56], isto é, num gráfico dos alcances reduzidos como função da energia reduzida, os dados experimentais correspondentes a vários íons diferentes tendem a se aglutinar numa única curva no plano $\rho - \epsilon$ (veja as definições de ρ e ϵ nas páginas 14-15). Um comportamento aproximadamente universal também foi observado para os alcances reduzidos como função do número atômico do projétil (Z_1), em implantações com energias reduzidas fixas. Como já discutimos no capítulo 2, este comportamento universal é o esperado caso o potencial interatômico seja descrito, para todos os pares possíveis íon-alvo, por uma função de blindagem única e por um comprimento de blindagem que dependa monotonicamente dos números atômicos do projétil e do alvo.

No entanto, estes estudos também revelaram que no regime de baixas energias ($\epsilon \leq 0,015$) o gráfico dos alcances reduzidos como função de Z_1 apresenta oscilações em torno do valor predito pela curva universal [57, 58, 59]. Estas oscilações, apresentadas na figura 5.1, são conhecidas na literatura como efeito Z_1 . O efeito Z_1 apresenta duas características importantes, que discutiremos a seguir.

Em primeiro lugar, observou-se que elas são correlacionadas com a periodicidade da estrutura de camadas eletrônicas do projétil. Num dado período da tabela periódica, à medida que se aumenta Z_1 , mantendo-se fixo o valor de ϵ , observa-se que os alcances diminuem enquanto o sub-nível p é preenchido, até um valor mínimo quando o sub-nível p fica completo (gases nobres). Se prosseguirmos aumentando Z_1 , passamos ao período seguinte da tabela periódica. Observa-se então que os alcances passam a aumentar novamente, tendo máximos nos metais de transição (sub-camada d incompleta) ou nos lantanídeos e actinídeos (sub-camadas $4f$ e $5f$ incompletas, respectivamente) [57, 58, 59, 60, 61, 62, 63]. A correlação entre o poder de freamento e a estrutura eletrônica pode ser bem ilustrada pela figura 5.2. Nesta figura, estão graficados os valores do poder de freamento nuclear reduzido como função de Z_1 ,

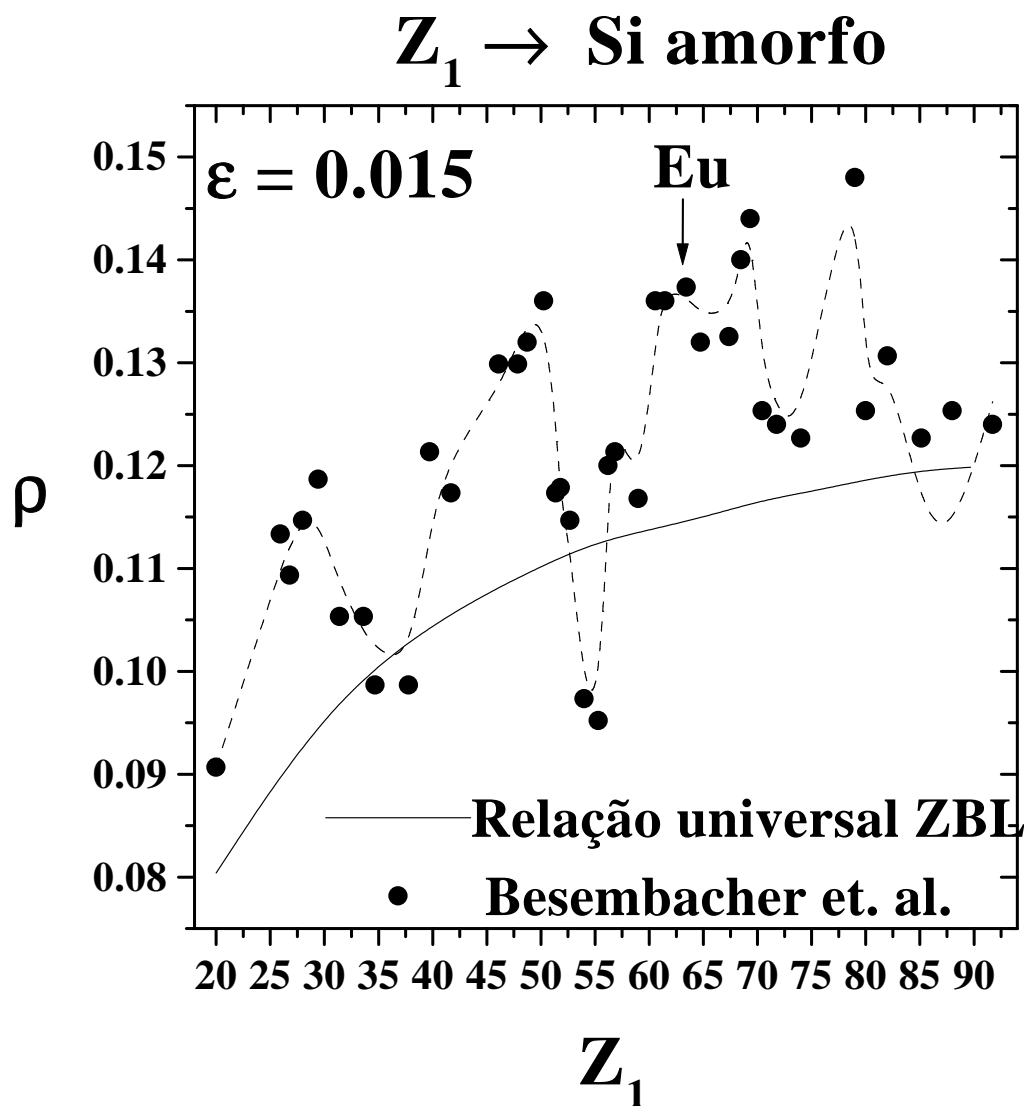


Fig. 5.1: Alcances reduzidos como função de Z_1 . A linha sólida corresponde à relação universal obtida com o potencial ZBL. OS símbolos são os dados experimentais da ref. [57]. A linha tracejada serve apenas para guiar os olhos do leitor.

para uma energia reduzida fixa ($\epsilon = 0,04$) em alvos gasosos de H_2 . A linha sólida horizontal corresponde ao poder de freamento nuclear predito pela relação universal. Obser-se que, o poder de freamento aumenta à medida que o subnível 5p é preenchido (In-Xe). O poder de freamento tem um máximo no Césio ($[Xe]6s^1$) e cai abruptamente quando a camada 6s fica completa. A seguir, a partir so La, o poder de freamento tende a cair abaixo da relação universal.

Demonstou-se também que o efeito Z_1 tem uma forte correlação com o raio iônico do projétil [60, 62]. O sucesso desta correlação empírica pode ser entendido considerando-se que os volumes atômicos refletem a periodicidade das camadas eletrônicas o que, de fato, parece modular o efeito Z_1 .

Uma vez que o freamento nuclear corresponde a mais de 90% do poder de freamento total quando $\epsilon \leq 0.015$, as observações acima sugerem que as oscilações nos alcances reduzidos refletem a influência da estrutura de camadas eletrônicas individuais do projétil na determinação do potencial interatômico. Esta idéia foi investigada por vários autores [64, 65]. Eles calcularam o potencial interatômico pelo modelo FEG utilizando densidades eletrônicas **atômicas** realistas (obtidas por métodos *ab-initio*) para vários pares íon-alvo, a fim de se incorporar o efeito da estrutura de camadas. A comparação dos alcances previstos por estes autores com dados experimentais [66, 67] demonstrou que o cálculo do potencial por modelos estatísticos que incorporem particularidades da estrutura de camadas eletrônicas do íon e do alvo não é suficiente para explicar o efeito Z_1 .

Outra característica importante do efeito Z_1 é que a amplitude das oscilações decresce com o aumento da energia do projétil, sendo desprezível para ϵ acima de ~ 0.2 . O fato das oscilações serem amortecidas à medida que a energia do projétil aumenta e o fato da introdução de densidades atômicas realistas nos cálculos FEG não explicar o efeito Z_1 , indicam que a origem do efeito reside na incapacidade dos potenciais interatômicos baseados em modelos estatísticos em descrever colisões a baixas energias.

Em colisões violentas a energia de interação resulta principalmente da superposição das regiões internas das distribuições eletrônicas do projétil e do alvo, o que justifica a utilização de potenciais interatômicos baseados no modelo estatístico [63]. Em colisões de baixa energia e em colisões com grande parâmetro de impacto, somente as regiões periféricas das distribuições eletrônicas se superpõem. Na verdade, se o tempo de colisão for longo o suficiente (o que é verdade em colisões de baixa energia), se espera a formação de uma quase-molécula às custas do rearranjo dos elétrons das camadas externas do projétil e do alvo. A distribuição de elétrons resultante da formação da quase-molécula certamente será diferente da mera superposição das nuvens eletrônicas do íon e do alvo o que indica que o modelo FEG pode ser inadequado para descrever colisões atômicas de baixa energia.

As observações acima colocaram em xeque o cálculo do potencial via o modelo FEG e o procedimento usual de se descrever o potencial interatômico em termos de uma função de blindagem única e de um comprimento de blindagem que depende monotonicamente dos números atômicos do projétil e do alvo.

Por exemplo, em experimentos de colisões atômicas de vários íons ($6 \leq Z_1 \leq 54$) [63] com átomos de Xe no estado gasoso, demonstrou-se que colisões em que a distância de aproximação máxima (r_0) entre o íon e o alvo é menor que $1,5 a_0$ ($a_0 \equiv$ raio de Bohr) são bem descritas por potenciais individuais obtidos pelo modelo FEG em combinação com densidades eletrônicas atômicas realistas. Caso contrário, o efeito Z_1 fica fortemente

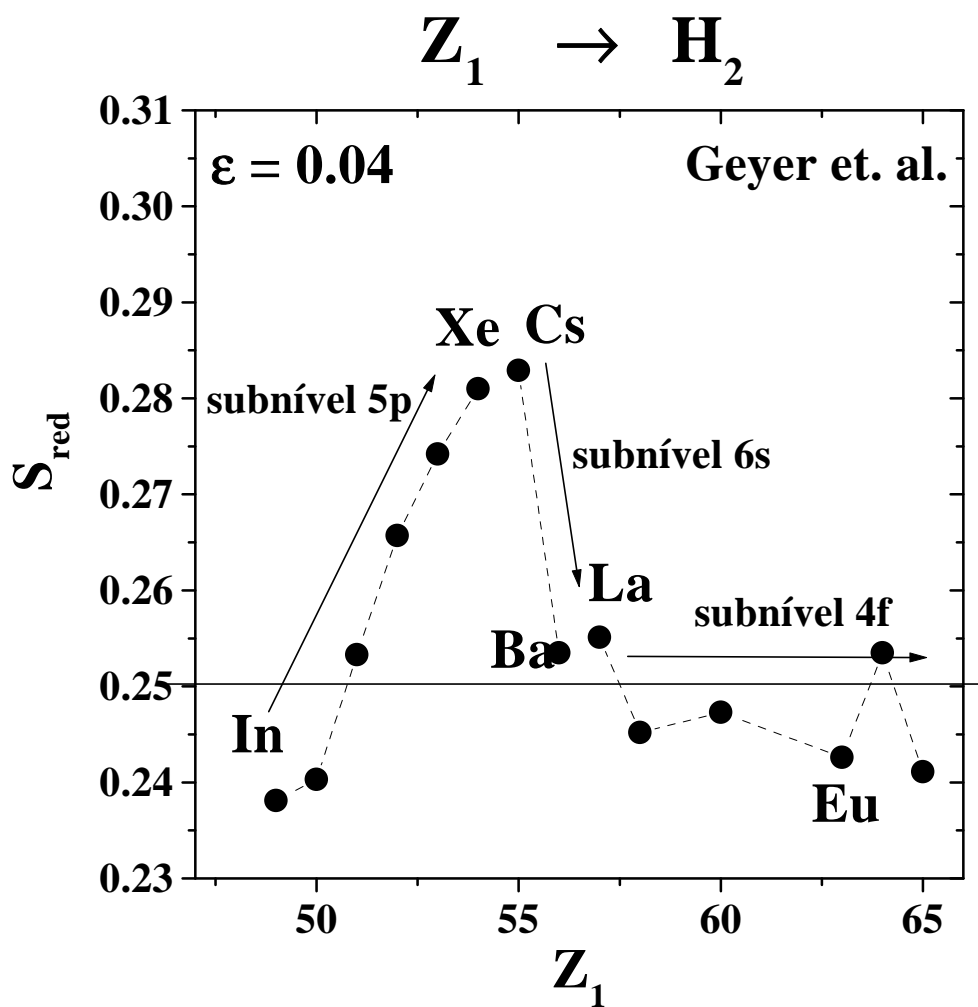


Fig. 5.2: Poder de freamento reduzido como função de Z_1 . A linha sólida horizontal corresponde à relação universal obtida com o potencial ZBL. OS símbolos são os dados experimentais da ref. [62]. A linha tracejada serve apenas para guiar os olhos do leitor.

pronunciado e os potenciais estatísticos falham na descrição das colisões, corroborando com a idéia de que modificações das densidades eletrônicas nas periferias do projétil e do alvo dão origem ao efeito Z_1 .

Finalmente, devemos enfatizar que as oscilações características do efeito Z_1 são um fenômeno bastante geral para eventos envolvendo colisões atômicas de baixa energia. Além dos experimentos realizados na referência [63], medidas do poder de freamento de íons em células gasosas contendo H_2 também apresentaram efeito Z_1 [62]. Em sólidos, além do Si, o efeito Z_1 também foi observado no Ge. No entanto, não se observou efeito Z_1 em alvos metálicos [56, 59]¹ nem em compostos isolantes como SiO_2 [68] e Al_2O_3 [60].

Neste capítulo, nós investigaremos a manifestação do efeito Z_1 em implantações de íons pesados (Bi e Eu), de baixa energia, em condição de canalização no Si. Nossa motivação é a seguinte. De acordo com o que discutimos no capítulo 2, o efeito líquido da seqüência de colisões correlacionadas experimentadas pelos átomos do feixe quando este incide sobre um alvo cristalino em condição de canalização, é a focalização do feixe no centro do canal (*Flux Peaking*). Por outro lado, da discussão acima ficou claro que o efeito Z_1 resulta da deformação das regiões periféricas das nuvens eletrônicas em colisões a baixas energias ou com grandes parâmetros de impacto. Sendo assim, espera-se que o efeito Z_1 seja amplificado em condição de canalização, onde as colisões com grandes parâmetros de impacto são majoritárias.

Em trabalhos anteriores do nosso grupo, realizados com o intuito de testar as predições do procedimento ZBL para os alcances de íons implantados em Si amorfo, foi demonstrado que estas predições estão em acordo com os dados experimentais num nível de 10% para a maioria dos íons implantados [61]. O Bismuto é um exemplo de bom acordo teórico-experimental. No entanto, no mesmo trabalho, verificou-se que em alguns casos o efeito Z_1 se manifestava de maneira significativa, produzindo grandes desvios ($\sim 60\%$) dos dados experimentais com relação à curva universal. Um desacordo especialmente marcante foi observado nos dados dos íons de Európio. Tendo isto em mente, investimos na investigação experimental dos perfis de Bi e Eu implantados em direção canalizada. A seguir apresentaremos e discutiremos os dados experimentais relativos a implantações canalizadas de íons de Bi e Eu no Si. Primeiramente apresentaremos os dados relativos ao Bi e a seguir, apresentaremos os dados relativos ao Eu.

A interpretação dos resultados será realizada pela comparação dos perfis de implantação experimentais com resultados de simulações com o programa MARLOWE [69, 70, 71, 72, 73], que se encontra discutido em detalhes no apêndice A. A seguir, apresentaremos apenas suas linhas gerais.

5.2 O programa MARLOWE

O MARLOWE foi desenvolvido para a simulação de colisões atômicas em sólidos cristalinos. A idéia central do programa é a aproximação de colisões binárias [72], que é utilizada para construir as trajetórias envolvidas nas cascatas de colisões. As colisões binárias são

¹ Nos metais, a camada mais externa do projétil será substituída por uma distribuição de elétrons não ligados que blindo o campo do íon. Como esta distribuição é sempre esférica, temos como resultado uma função de blindagem universal e, portanto, um cancelamento das oscilações do efeito Z_1 [59].

governadas por um potencial coulombiano blindado (ZBL, Molière, AMLJ, Born-Meyer). O modelamento do freamento inelástico também pode ser escolhido entre diversas possibilidades: freamento não-local (independente do parâmetro de impacto b), freamento local (dependente de b) ou mesmo freamento local e não-local combinados. A dependência da perda de energia inelástica com o parâmetro de impacto em cada colisão binária pode ser escolhida entre os modelos de Firsov [74] e de Robinson e Oen[75]. Em todos os casos, pode-se escolher normalizar a seção de choque de freamento tanto pela seção de choque da teoria LSS [7] quanto pela seção de choque do modelo de Firsov.

No MARLOWE, as vibrações térmicas são simuladas atribuindo-se deslocamentos aleatórios dos átomos com relação às suas posições de equilíbrio, segundo uma distribuição gaussiana. A amplitude desses deslocamentos é dada pelo modelo de Debye-Waller [17]. O possível efeito das correlações espaciais [76] entre átomos vizinhos não é levado em conta no modelo uma vez que este já foi demonstrado ser um efeito de menor importância [77].

Recentemente, o programa foi modificado para levar em conta o desenvolvimento temporal das colisões binárias [69]. Esta versão (versão 13 c) foi a utilizada neste trabalho.

5.3 Implantações de Bismuto

Os perfis de concentração de íons Bi implantados na direção $\langle 100 \rangle$ do Si a 20, 30 e 40 keV estão apresentados na figura 5.3 como círculos cheios. Nesta figura, os círculos vazios representam os perfis de concentração de Bi implantado em direção aleatória. A comparação entre os perfis de implantação canalizada e aleatória coloca em evidência alguns fatos. Em primeiro lugar, os máximos de concentração dos perfis resultantes das implantações canalizadas (R_p^c) são mais profundos que os máximos observados nas implantações aleatórias (R_p). Um exame mais detalhado destes dados experimentais mostra que, tipicamente, $R_p^c \approx 1,5 \times R_p$. Em segundo lugar, a largura a meia altura dos perfis canalizados ($FWHM_c$) é de duas (20 keV) a três (40 keV) vezes maior que a largura dos perfis aleatórios ($FWHM_r$). Em terceiro lugar, enquanto os perfis aleatórios são gaussianos, os perfis canalizados são nitidamente assimétricos, apresentando caudas pronunciadas em direção ao interior da amostra.

Os três aspectos apresentados pelos dados experimentais que mencionamos acima podem ser entendidos considerando-se que, após penetrar na amostra, o feixe fica subdividido em duas parcelas. A primeira parcela corresponde aos íons que, ao encontrar as primeiras camadas de átomos na superfície da amostra, sofrem colisões que resultam em grandes deflexões nas suas trajetórias. Como resultado, estes íons viajam como se estivessem numa amostra amorfa e param mais próximos à superfície. A segunda parcela corresponde aos íons bem canalizados, que perdem menos energia devido ao *Flux peaking* e, por isso, penetram mais fundo na amostra. De fato, este comportamento é observado nas simulações com o MARLOWE. Na figura 5.4 a linha sólida corresponde à previsão do MARLOWE para o perfil de implantação de Bi a 20 na direção $\langle 100 \rangle$ do Si. A linha pontilhada corresponde à previsão do MARLOWE para implantação numa amostra amorfa. A linha tracejada foi obtida subtraindo-se a linha pontilhada da linha sólida. Esta figura demonstra que cerca de 30 % das trajetórias são aleatórias e 70% bem canalizadas. Ela demonstra também que os íons que param próximos à superfície têm, majoritariamente, trajetórias aleatórias e que a cauda do perfil se deve aos íons bem canalizados. Por outro lado, na região do máximo

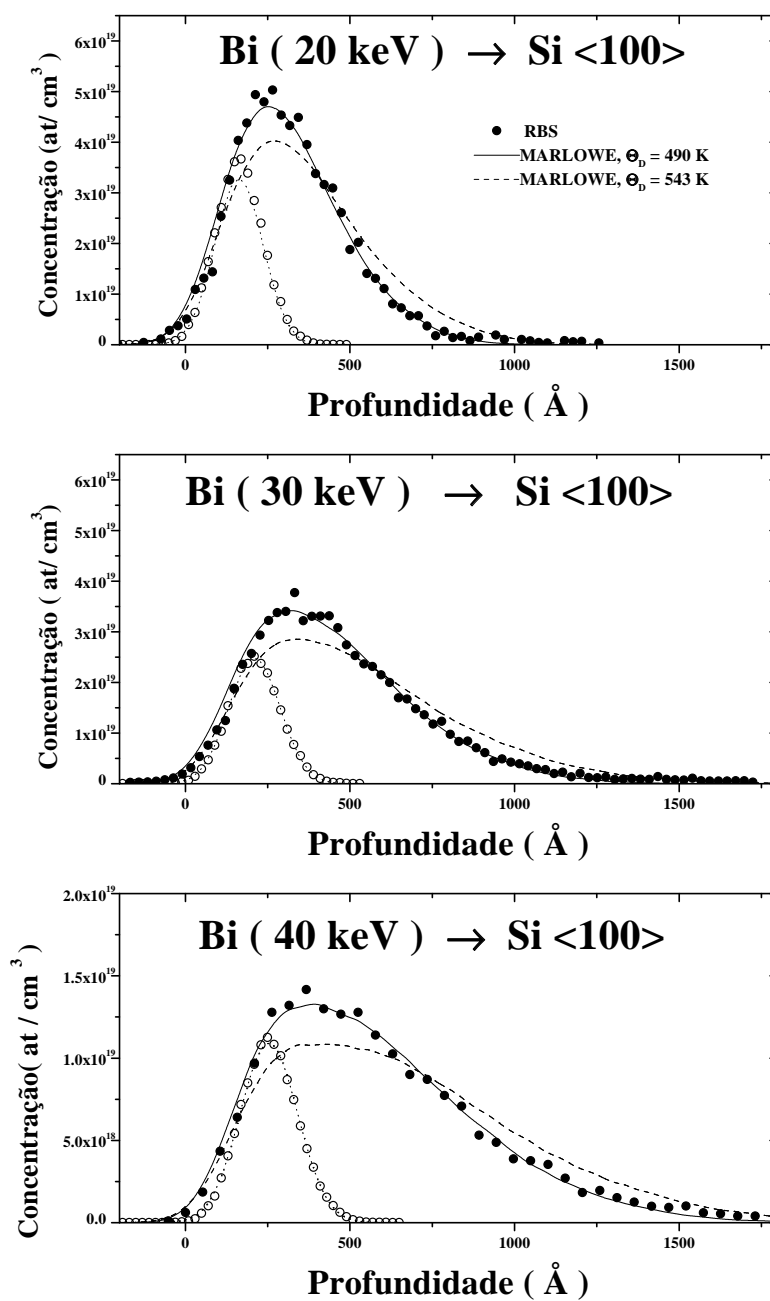


Fig. 5.3: Perfis de concentração de íons de Bi implantados a 20, 30 e 40 keV ao longo da direção <100> do Si. Os círculos cheios são os dados experimentais e as linhas, simulações com o MARLOWE. A linha sólida, corresponde à simulação realizada utilizando o potencial ZBL e temperatura de Debye ($\Theta_D = 490$ K). A linha tracejada corresponde à simulação utilizando o potencial ZBL e $\Theta_D = 543$ K. Maiores detalhes no texto.

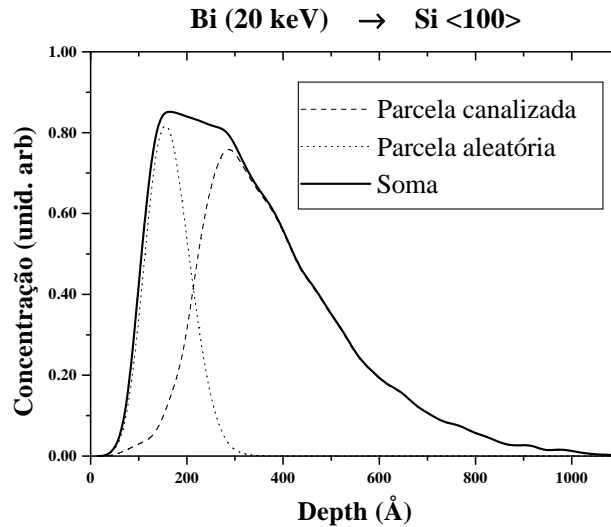


Fig. 5.4: Esquema que demonstra que o perfil de implantação canalizada (linha sólida) pode ser entendido como uma soma de um perfil aleatório (linha pontilhada) com um perfil correspondente aos íons bem canalizados (linha tracejada).

do perfil, as duas frações do feixe contribuem equitativamente. Com este cenário em mente, podemos explicar que as larguras dos perfis aumentam com a energia devido à diferença na perda de energia experimentada pelas duas frações.

Como já comentamos acima, as simulações com o MARLOWE envolvem a escolha de diferentes modelos de perda de energia inelástica, do potencial interatômico e da temperatura de Debye, entre outros parâmetros de entrada. A escolha do potencial interatômico determina o freamento nuclear. Por outro lado, quanto maior a temperatura de Debye, menor a amplitude de vibração dos átomos da rede em torno de suas posições de equilíbrio. Portanto, a temperatura de Debye controla a taxa de decanalização dos íons implantados. Sendo assim, é necessário que se proceda de forma criteriosa na escolha dos diversos parâmetros envolvidos nas simulações para que se possa fazer observações conclusivas a respeito do papel desempenhado por cada um desses parâmetros na determinação dos perfis de implantação. Nos parágrafos a seguir nós discutiremos os critérios utilizados para a escolha dos parâmetros utilizados nas nossas simulações com o MARLOWE.

5.3.1 Escolha do potencial interatômico

Nós baseamos a escolha do potencial interatômico no modelo FEG. Como já comentado anteriormente, o potencial calculado no modelo FEG coincide com a parte repulsiva dos potenciais interatômicos calculados por métodos mais sofisticados (método Hartree-Fock molecular)[22]. Desta maneira, calculamos o potencial correspondente ao par Bi-Si utilizando o modelo FEG. Na figura 5.5 comparamos a função de blindagem do modelo FEG com as funções de blindagem para os potenciais de Molière e ZBL. Como se pode observar, a função de blindagem ZBL é muito semelhante à função de blindagem FEG. No entanto,

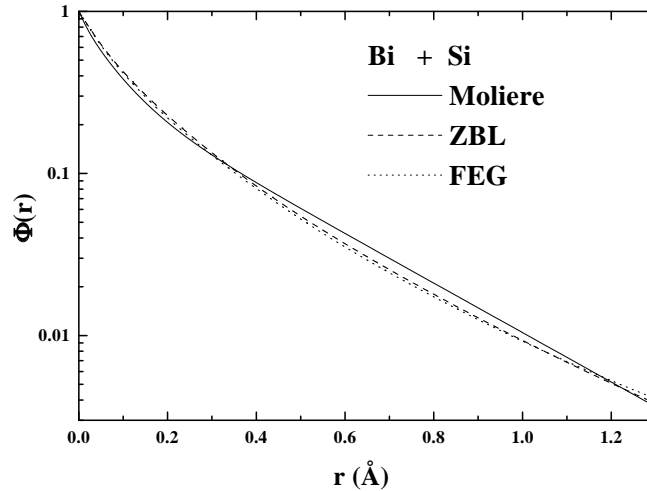


Fig. 5.5: Comparação entre as funções de blindagem $\Phi(r)$ como função da distância interatômica r (em Å) para o sistema Bi + Si. Potencial FEG (linha tracejada), Molière (linha pontilhada) e ZBL (linha contínua).

ambas diferem significativamente da função de blindagem de Molière, em particular para distâncias interatômicas entre 0.5 e 0.9 Å onde o potencial de Molière superestima a intensidade da interação íon-alvo. Da figura 5.5 podemos concluir que devemos utilizar o potencial ZBL nas nossas simulações e que o potencial de Molière deve superestimar o freamento nuclear.

5.3.2 Escolha do modelo de freamento eletrônico

Nós implantamos Bi com energias entre 20 e 40 keV. Nesta faixa de energias espera-se que o freamento eletrônico dê uma contribuição pequena ao poder de freamento total. De fato, isto foi verificado em nossas simulações. Nós testamos três modelos diferentes: O modelo local de Robinson e Oen, o modelo não-local e a combinação de freamento local e não-local. Os modelos foram utilizados em combinação com seções de choque de freamento ZBL e LSS. Embora estes modelos sejam completamente diferentes nas suas abordagens e a seção de choque de freamento ZBL seja duas vezes maior que a seção de choque de freamento LSS, as simulações com os diferentes modelos conseguiram reproduzir razoavelmente os dados experimentais. No que segue nós utilizaremos o modelo local de Robinson e Oen em conjunto com a seção de choque de freamento ZBL já que a adoção deste modelo resultou num acordo teórico-experimental levemente melhor que os outros modelos testados.

5.3.3 Determinação da temperatura de Debye

Na literatura, há relatos de medidas da temperatura de Debye do silício (Θ_D) variando num intervalo entre 490 e 640 K. Por exemplo, resultados extraídos de medidas do calor

específico indicam um valor de Θ_D em torno de 640 K [13]. Medidas posteriores, baseadas em reflexões de Bragg (espalhamento elástico) de raios-X [78] indicaram um valor de 543 ± 8 K para Θ_D . Este valor foi utilizado como referência [1] durante três décadas. Novas medidas [79], baseadas em reflexões de Bragg, também indicaram $\Theta_D = 531$ K. Posteriormente, este resultado foi confirmado em medidas baseadas em espalhamento elástico de nêutrons [80]. No entanto, os autores da ref. [79] também demonstraram que medidas de reflexões de raios-X de mais alta ordem (espalhamento inelástico) sugerem um valor mais baixo para Θ_D , em torno de 500 K.

Outro método muito utilizado para a determinação de Θ_D é a canalização de elétrons [81, 82, 83]. O valor de Θ_D obtido por esta técnica está entre 500 K [81, 82] e 519 K [83]. Mais recentemente, a interpretação de experimentos de canalização de íons de He (RBS) [84] e B (implantação) [85] por simulações em computador mostraram que o valor adequado de Θ_D para descrever as vibrações térmicas dos átomos da rede no cristal de Si é de 490 K.

É interessante observar que o valor de Θ_D depende da técnica experimental utilizada. As diferenças observadas entre as medidas de raios-X e as medidas de calor específico não chegam a ser surpreendentes. Na verdade, embora a temperatura de Debye obtida em medidas de calor específico (Θ_{CE}) e a temperatura de Debye obtida em medidas de reflexão de raios-X (Θ_{Rx}) sejam quantidades relacionadas às vibrações térmicas da rede, elas são quantidades diferentes. Nas medidas de Θ_{CE} , supõe-se que o espectro de frequências de vibração seja parabólico: $\sigma(\omega) \sim \omega^2$ (aprox. de Debye), o que só é válido para baixas frequências. Por outro lado, as medidas de espalhamento de raios-X não se faz nenhuma hipótese acerca do espectro de frequências. Estas medidas dão informação direta do alargamento da distribuição de carga dos elétrons em torno dos íons da rede devido às vibrações térmicas. A única hipótese é que os elétrons vibrem juntamente com os íons da rede (aprox. de Born-Oppenheimer). A seção de choque de espalhamento de raios-X é proporcional ao fator de Debye-Waller:

$$\frac{d\sigma}{dEd\Omega} \propto e^{-2W} \quad (5.1)$$

onde W é proporcional à média do quadrado da amplitude de vibração térmica, $\langle u^2 \rangle$ que, por sua vez, é inversamente proporcional ao quadrado de Θ_{Rx} . Sendo assim, como observaram Batterman e Chipman [78], os valores de temperatura de Debye obtidos pelo método do Calor específico não fornece, necessariamente, o valor de temperatura de Debye que descreve a amplitude de vibração térmica dos átomos da rede. De fato, eles demonstraram isto explicitamente, calculando o fator de Debye-Waller do Ge a partir do espectro de frequências obtido experimentalmente por outros autores. Eles observaram que o valor obtido por estes cálculos estava em excelente acordo com as suas medidas do fator de Debye-Waller do Ge, obtidas a partir de espalhamento de Raios-X. Com o mesmo espectro de frequências, eles calcularam o calor específico do Ge, e o valor de Θ_{CE} obtido por este cálculo se estava em excelente acordo com o valor experimental de Θ_{CE} de 640 K. Portanto, Batterman e Chipman demonstraram, explicitamente, que o valor da temperatura de Debye depende do tipo de medida.

Com relação às discrepâncias observadas entre as medidas de espalhamento elástico e inelástico de raios-X, sabe-se que reflexões Raios-X de mais alta ordem (inelásticas) são determinadas principalmente pelos elétrons internos do Si [81]. Considerando que estes elétrons devem acompanhar o movimento dos núcleos, os resultados das referências [79] e

[78] sugerem que os elétrons internos têm amplitudes de vibração maiores que os elétrons mais externos do Si [83]. Além disso, enquanto o método de canalização de elétrons é sensível tanto às oscilações dos elétrons quanto dos núcleos da rede, métodos que empregam feixes de íons são mais sensíveis às oscilações nucleares. Baseados nas observações acima, nós decidimos adotar o resultado extraído de experimentos de canalização de íons [84] e [85] ($\Theta_D = 490$ K) nas nossas simulações.

5.3.4 Discussões

Além dos perfis de implantação de Bi na direção $\langle 100 \rangle$ do Si, na figura 5.3 também são apresentadas as predições do MARLOWE, convoluídas com a resolução do sistema de detecção, a fim de que se possa fazer corretamente a comparação com os dados experimentais. Nessas simulações, representadas pelas linhas contínuas, utilizamos o potencial interatômico, o modelo de freamento eletrônico e o valor para Θ_D escolhidos segundo os critérios descritos acima. Como se pode perceber, o acordo entre as simulações e os dados experimentais pode ser considerado excelente, o que dá suporte à seleção de parâmetros de entrada do MARLOWE que fizemos.

A fim de investigar a sensibilidade das simulações à escolha do valor da temperatura de Debye, realizamos simulação com $\Theta_D = 543$ K [78] mantendo fixos os parâmetros dos poderes de freamento eletrônico e nuclear. Os resultados dessas simulações estão apresentados na figura 5.3 como linhas tracejadas. Como se percebe, a utilização de $\Theta_D = 543$ K resulta num acordo pobre entre as simulações e os perfis experimentais. Embora as posições dos máximos das distribuições sejam bem previstas, as caudas (que correspondem aos íons bem canalizados) são fortemente superestimadas. Aqui, vale a pena comentar que a nossa escolha de parâmetros de entrada também conseguem reproduzir os dados de implantação de Bi em alvos de Si amorfo das referências [67], [61] e [86]. Este fato dá um suporte extra à nossa seleção do potencial interatômico e do modelo de freamento inelástico já que, obviamente, implantações em Si amorfo devem ser insensíveis ao valor da temperatura de Debye. Estas observações permitem concluir que o valor da temperatura de Debye que melhor reproduz a amplitude de vibração térmica dos átomos do alvo de Si em experimentos de canalização é $\Theta_D = 490$ K. Além do mais, como este é o mesmo valor obtido em experimentos de canalização de íons em baixas temperaturas [84] e na temperatura ambiente [85], podemos concluir que o valor $\Theta_D = 490$ K é válido para um grande intervalo de temperaturas.

Outro aspecto digno de nota é o fato de que se utilizarmos o potencial de Molière e $\Theta_D = 543$ K como parâmetros de entrada no MARLOWE também obtemos um bom acordo entre os resultados das simulações e os dados experimentais. No entanto, pelo que se discutiu acima, podemos concluir que este acordo é fortuito e se deve ao fato de que a diminuição da amplitude de vibração térmica com o aumento de Θ_D (e, conseqüentemente, diminuição da taxa de decanalização) é compensada pelo fato de que o potencial de Molière superestima o poder de freamento nuclear.

Neste ponto é conveniente tecer algumas conclusões a respeito das implantações de Bi em Si. O bom acordo teórico-experimental obtido entre as predições do MARLOWE baseadas no potencial ZBL (com $\Theta_D = 490$ K) e os dados de implantação em direção canalizada [87] e em Si amorfo [67, 61, 86] indicam que não há efeito Z_1 para o caso do Bi-Si. Por outro lado, a sensibilidade das predições do MARLOWE ao valor da Temperatura de Debye e

os resultados obtidos por outros autores [84, 85] nos permitem afirmar que, em simulações computacionais de canalização de íons em Si, o valor adequado de Θ_D é 490 K.

5.4 Implantações de Európio

Tendo em mente os resultados de estudos anteriores do nosso grupo, que mostraram a existência do efeito Z_1 nos alcances de íons de Eu de baixas energias implantados em Si amorfo passamos a investir no estudo sistemático das implantações de Eu em direções canalizadas do Si. Nós investigamos a dependência do efeito Z_1 com a energia inicial dos íons e com a direção de implantação. Para isto, realizamos implantações com energias entre 15 e 50 keV ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si.

Na figuras 5.6, 5.7 e 5.8 apresentamos os resultados dessas implantações ao longo das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ do Si. Os perfis do Eu implantado apresentam as mesmas características que já ressaltamos no caso do Bi. As distribuições têm máximos mais profundos e são mais largas que as distribuições observadas em alvos amorfos. Além disso, apresentam as caudas características das implantações canalizadas. Nestas figuras temos também as previsões do MARLOWE convoluídas com a resolução do sistema de detecção, representadas pelas linhas contínuas. Na realização destas simulações a escolha dos parâmetros de entrada do MARLOWE foi baseada nos mesmos critérios utilizados no caso do Bismuto. Novamente, utilizamos o potencial ZBL, o freamento eletrônico (não local) em conjunto com a seção de choque de freamento eletrônico ZBL e $\Theta_D = 490$ K para a temperatura de Debye do Si. A inspeção das figuras mostra que, embora a posição dos máximos seja bem reproduzida pelas simulações, elas não conseguem reproduzir as caudas dos dados experimentais, que são mais profundas. Isto indica que a perda de energia dos íons bem canalizados está sendo superestimada nas simulações o que parece indicar a manifestação do efeito Z_1 .

Convém salientar que outros efeitos poderiam contribuir para o aparecimento de caudas espúrias nos dados experimentais. Por exemplo, pelo fato de estarmos realizando implantações a 350°C , seria possível que a difusão dos átomos de Eu implantados na amostra promovesse um rearranjo do perfil de implantação resultando nas caudas observadas. A fim de testar esta possibilidade, nós realizamos o seguinte experimento: após a determinação do perfil de implantação da amostra implantada com Eu a 20 keV, nós realizamos o recozimento desta amostra durante 45 minutos (tempo típico de duração das implantações de Eu) a 350°C . Em seguida, realizamos nova determinação do perfil de implantação. A comparação do perfil da amostra como implantada com o perfil da amostra após o recozimento não apresentou diferenças significativas entre os perfis correspondentes. O resultado deste experimento permitiu descartar a hipótese de que as caudas observadas nos perfis de Eu sejam resultantes de efeitos de difusão devido à temperatura de implantação.

Outro efeito que poderia contribuir para o aparecimento das caudas é o efeito de empilhamento (*Pile-up*) durante as medidas de RBS. No entanto, como já mencionamos no capítulo anterior, tomamos todas as precauções cabíveis contra este efeito: as medidas de RBS foram realizadas em direção canalizada, com feixes de baixas correntes e utilizamos sistemas eletrônicos de rejeição de empilhamento.

Supondo que as caudas observadas não sejam devidas a efeitos espúrios decorrentes da implantação ou da análise por RBS, elas sugerem a manifestação do efeito Z_1 em direção

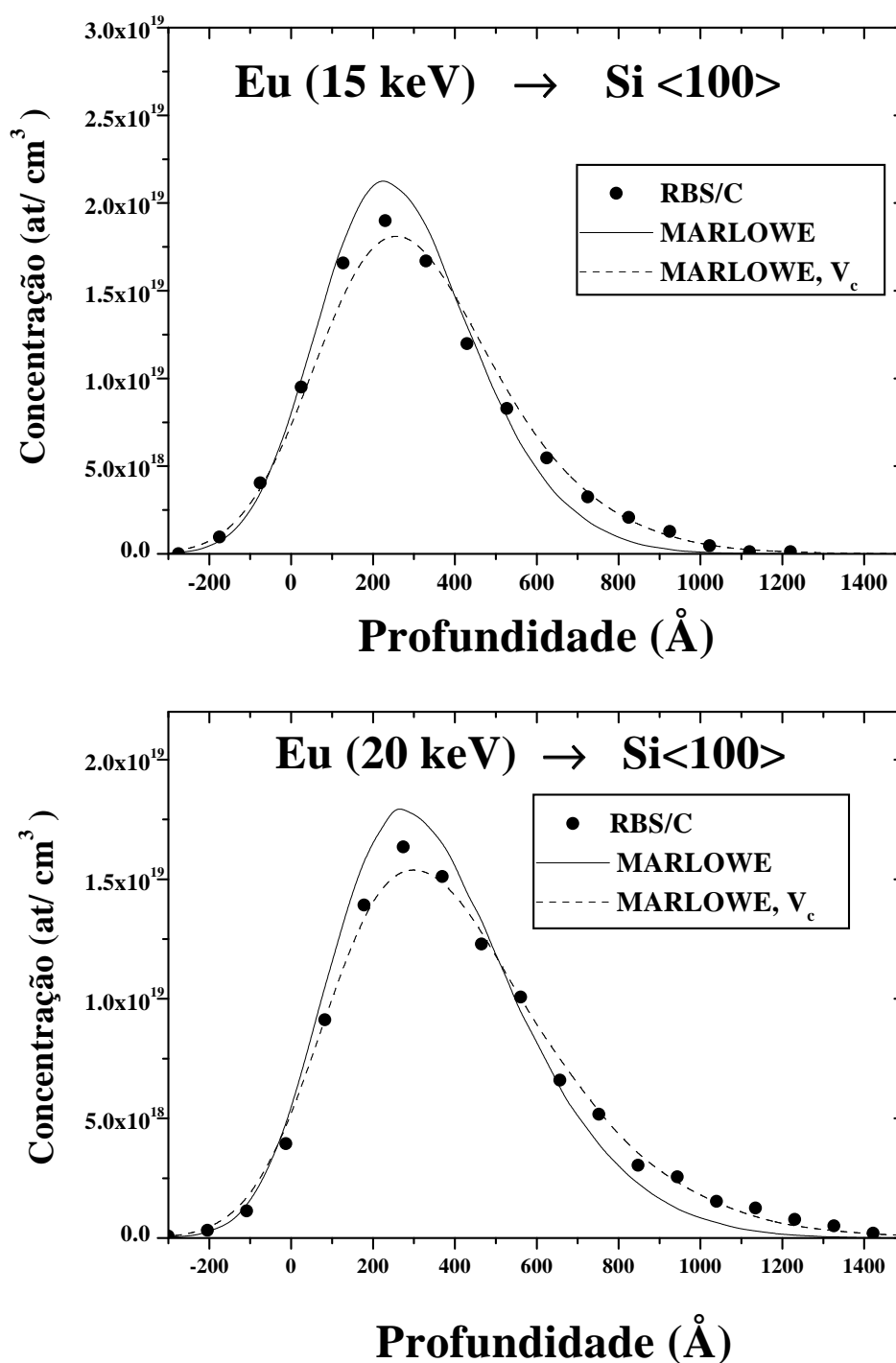


Fig. 5.6: Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 15 e 20 keV ao longo da direção <100> do Si. Os símbolos são os dados experimentais e as linhas, simulações com o MARLOWE. A linha sólida, corresponde à simulação realizada utilizando o potencial ZBL e temperatura de Debye ($\Theta_D = 490$ K). A linhas tracejadas são os resultados das simulações com o potencial proposto nas equações 5.5 e 5.6.

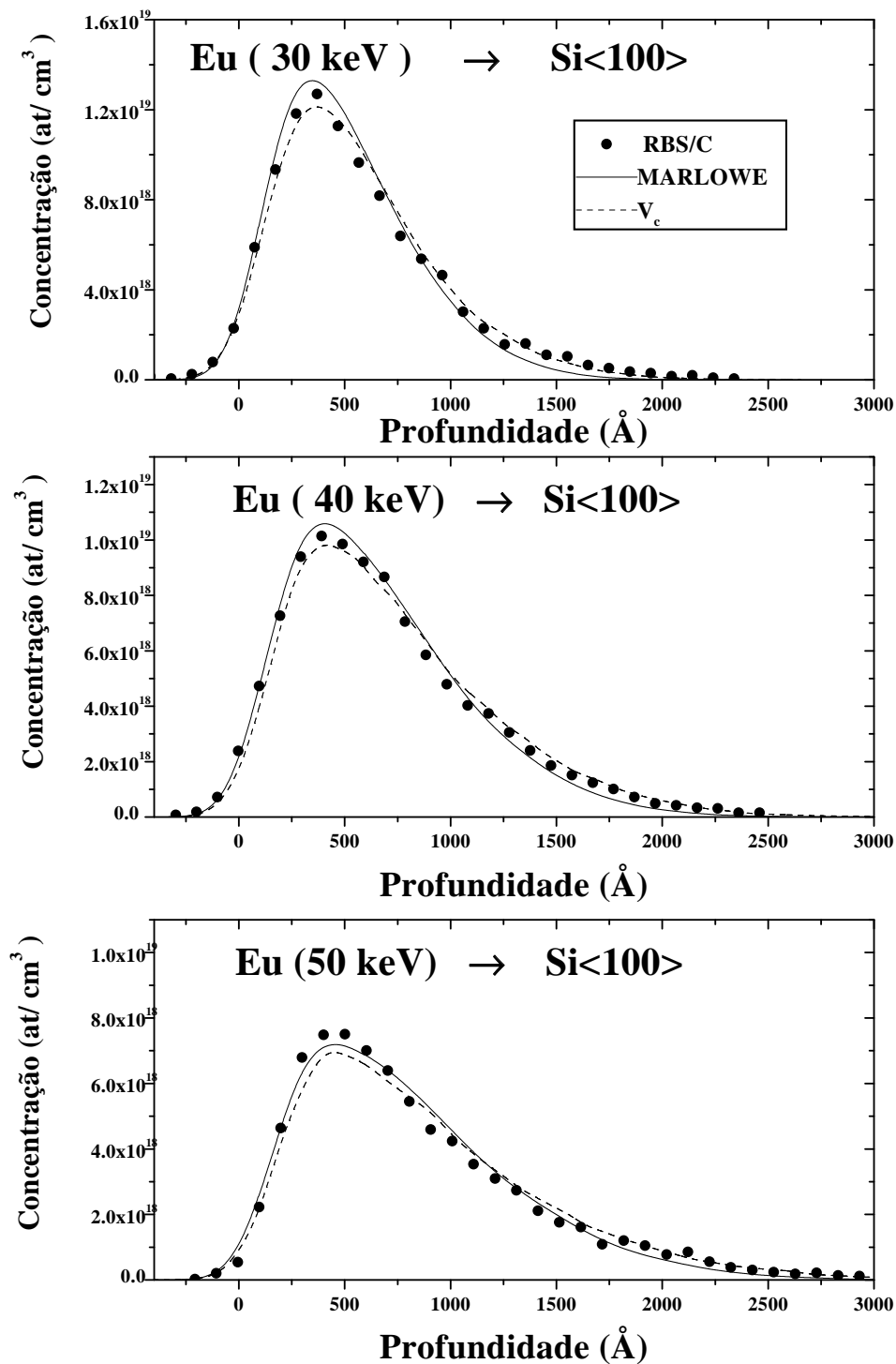


Fig. 5.7: Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 30, 40 e 50 keV ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Para maiores detalhes, veja legenda da figura 5.6

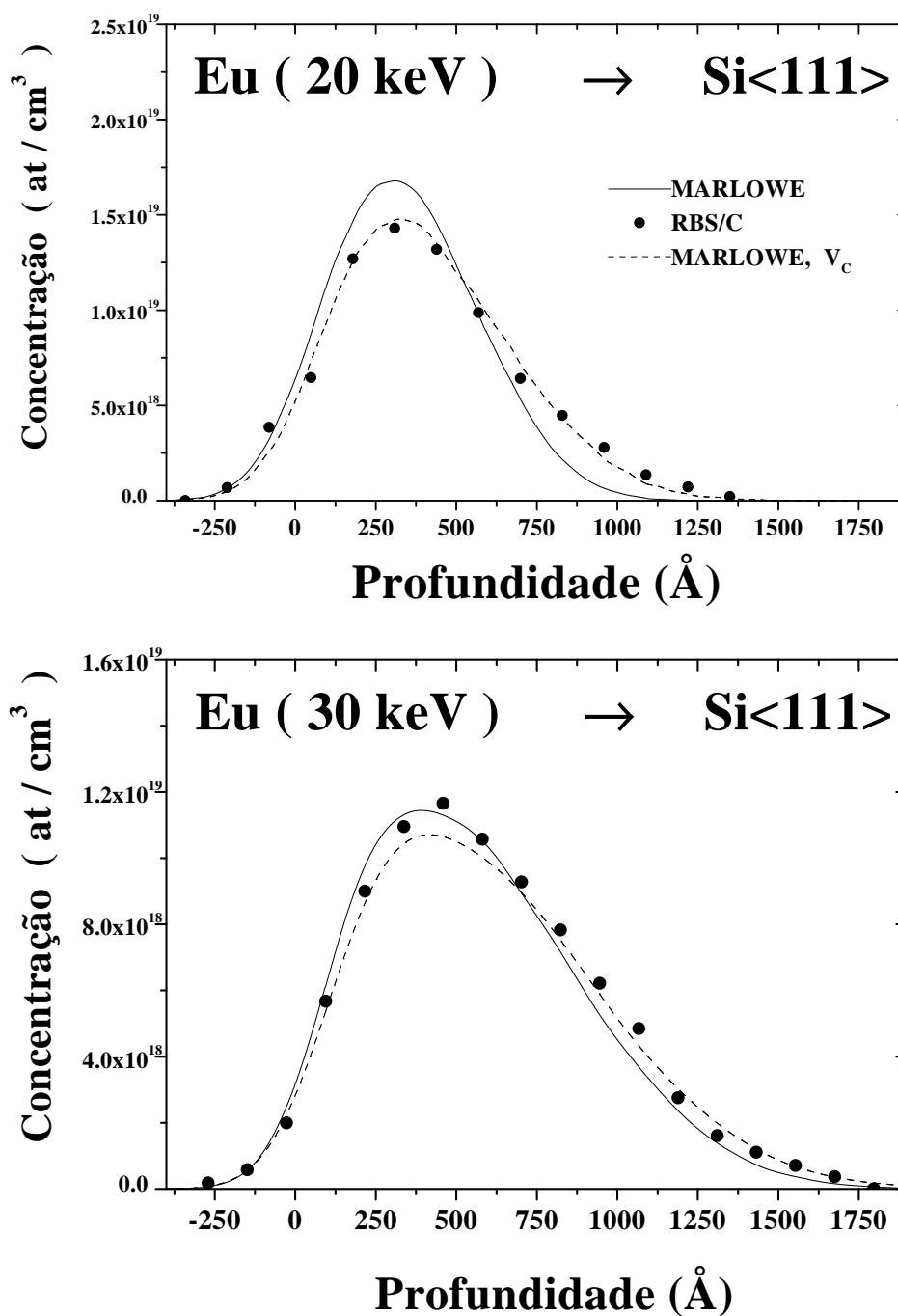


Fig. 5.8: Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 20 e 30 keV ao longo da direção <111> do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6

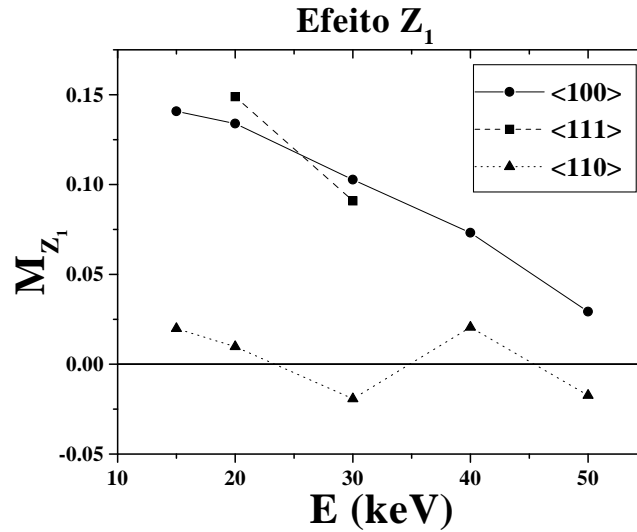


Fig. 5.9: Magnitude do efeito Z_1 (M_{Z_1}) como função da energia inicial do feixe. Círculos, quadrados e triângulos correspondem aos dados das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, respectivamente.

canalizada. Outra característica presente nos resultados das direções $\langle 100 \rangle$ $\langle 111 \rangle$ e que corrobora com a interpretação de que as caudas resultam do efeito Z_1 , é que as diferenças entre as simulações e os dados experimentais tendem a diminuir com o aumento da energia inicial dos íons implantados.

Caracterizando os perfis por suas larguras a um quinto da altura máxima (FWFM), o efeito Z_1 pode ser quantificado se definirmos sua magnitude (M_{Z_1}) como a diferença relativa entre a FWFM experimental ($FWFM_{exp}$) e a FWFM da simulação ($FWFM_{ZBL}$):

$$M_{Z_1} = \frac{FWFM_{exp} - FWFM_{ZBL}}{FWFM_{ZBL}} \quad (5.2)$$

Na figura 5.9 apresentamos a magnitude do efeito Z_1 como função da energia inicial do feixe. Os dados da direção $\langle 100 \rangle$ (círculos) mostram claramente a tendência de queda de M_{Z_1} com o aumento da energia. Além disso, a comparação dos resultados da direção $\langle 111 \rangle$ (quadrados) com os resultados da direção $\langle 100 \rangle$ indicam que o efeito Z_1 se manifesta com igual magnitude (dentro dos erros experimentais) nas duas direções. Isto se explica facilmente se levarmos em conta que, embora a geometria dos canais ao longo dessas duas direções seja bem diferente, a “área” dos canais é praticamente igual. Por exemplo, o parâmetro de impacto máximo sondado pelos íons que viajam no centro do canal é bem semelhante nas duas direções: $\sim 1.4 \text{ \AA}$ na direção $\langle 100 \rangle$ e 1.5 \AA (em média) na direção $\langle 111 \rangle$. Seguindo nesta mesma linha de raciocínio, nós poderíamos esperar então que nas implantações na direção $\langle 110 \rangle$ (canal mais aberto do Si) o efeito Z_1 se manifestasse de maneira mais intensa que nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 100 \rangle$ já que nesta direção um íon viajando no centro do canal tem parâmetro de impacto médio de cerca de 2.2 \AA .

Nas figuras 5.10 e 5.11 temos os perfis de implantação de Eu ao longo da direção $\langle 110 \rangle$. É instrutivo confrontar os dados dessa direção com os dados da direção $\langle 100 \rangle$. Tomemos, por

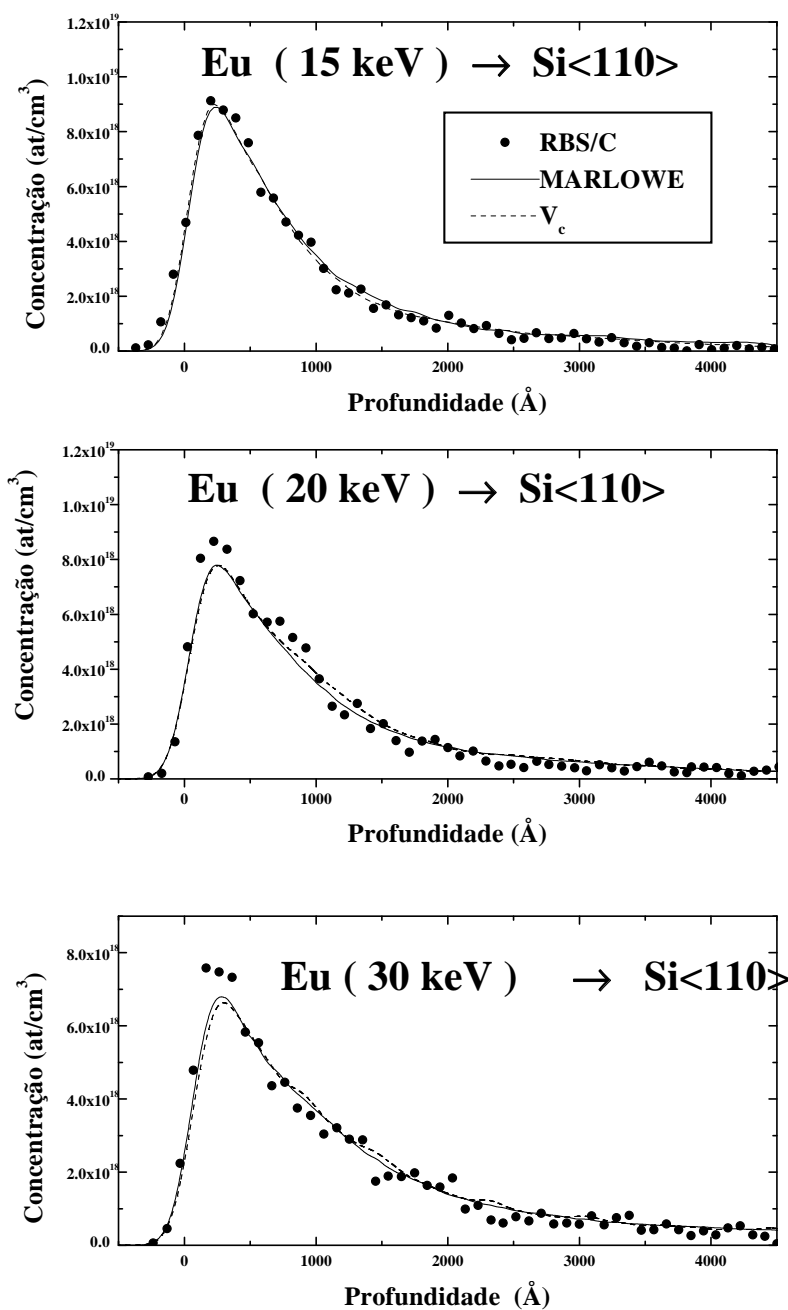


Fig. 5.10: Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 15, 20 e 30 keV ao longo da direção <110> do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6

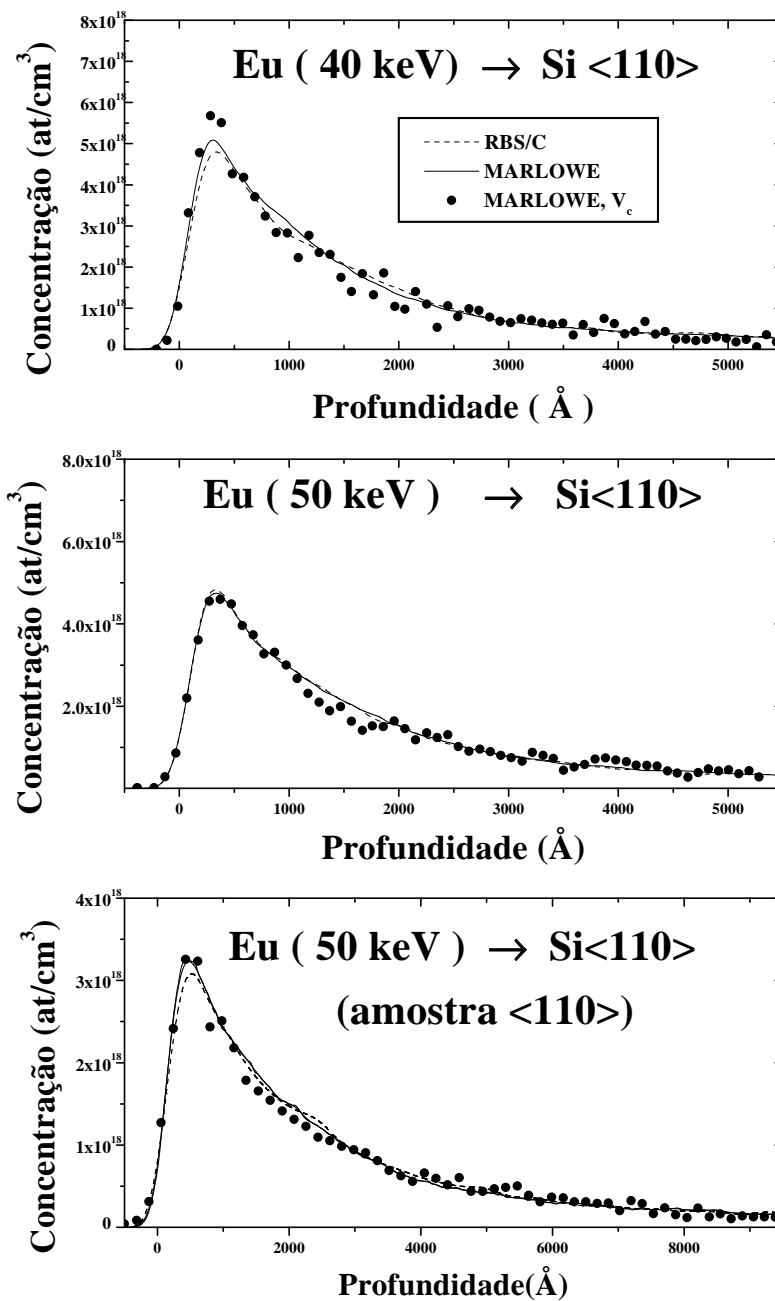


Fig. 5.11: Perfis de concentração de íons de Eu implantados a 40 e 50 keV ao longo da direção <110> do Si. Para maiores detalhes veja legenda da figura 5.6

exemplo, as implantações a 15 keV. Nesta energia, o alcance observado em alvos amorfos corresponde a 180 Å [67]. A profundidade máxima alcançada pelos íons implantados na direção $\langle 100 \rangle$ é de 1200 Å. Já na direção $\langle 110 \rangle$, a profundidade máxima corresponde a 4000 Å! Aqui, vale lembrar que as implantações na direção $\langle 110 \rangle$ foram realizadas inclinando-se amostras $\langle 100 \rangle$ numa ângulo de 45° com relação à direção do feixe. Portanto, a distância total percorrida pelos íons implantados na direção $\langle 110 \rangle$ corresponde a $\sqrt{2} \times$ profundidade, ou seja, os 4000 Å de profundidade máxima corresponde a um trajeto de cerca de 5700 Å! Estas observações demonstram uma forte redução do poder de freamento para íons canalizados na direção $\langle 110 \rangle$.

Uma das conseqüências deste aumento da profundidade é a diminuição das concentrações de Eu implantado na matriz de Si. Por exemplo, a concentração máxima observada na implantação a 15 keV na direção $\langle 110 \rangle$ é de 10^{19} átomos /cm³, aproximadamente a metade da concentração máxima verificada para a direção $\langle 100 \rangle$. Este é um fator que dificulta a determinação dos perfis de implantação por RBS, tendo como resultado as flutuações observadas nos dados experimentais da direção $\langle 110 \rangle$.

Embora esperássemos grandes diferenças entre os dados experimentais da direção $\langle 110 \rangle$ e as simulações com o MARLOWE, uma inspeção das figuras 5.10 e 5.11 revela um bom acordo teórico-experimental. O mesmo pode ser verificado por um exame da figura 5.9. Dentro dos erros experimentais, $M_{Z_1} = 0$ na direção $\langle 110 \rangle$. Portanto, a explicação de que caudas observadas nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ são resultado do efeito Z_1 parece ser inconsistente com os resultados da direção $\langle 110 \rangle$. O efeito Z_1 está ausente justamente nas condições experimentais em que se esperaria que ele se manifestasse com maior intensidade.

Como veremos a seguir, os dados experimentais são perfeitamente coerentes entre si e com a explicação das caudas das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ em termos do efeito Z_1 . A noção de que o efeito Z_1 deve ser mais pronunciado nas direções mais abertas do cristal é que não é completamente correta. Nas direções mais abertas o freamento eletrônico representa uma maior parcela do poder de freamento total, o que atenua o efeito Z_1 .

5.4.1 O potencial interatômico Eu-Si

Como vimos anteriormente, o efeito Z_1 resulta de alterações no potencial interatômico devido à formação de quase-moléculas durante colisões de baixa energia. Nos parágrafos a seguir vamos mostrar como o potencial interatômico tem que ser modificado para explicar o efeito Z_1 observado nos nossos dados experimentais. Para isto, vamos tentar encontrar um potencial interatômico que, introduzido no MARLOWE, reproduza as caudas observadas nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ e ao mesmo tempo mantenha o bom acordo teórico-experimental observado na direção $\langle 110 \rangle$. Além disso, este potencial tem que ser capaz de explicar o efeito Z_1 observado nos dados de alcances de Eu implantado em Si amorfo [67, 61, 86].

Na busca do potencial em questão, tomamos como ponto de partida trabalhos anteriores do nosso grupo [67, 61, 86]. Nestes trabalhos, na tentativa de se conciliar o efeito Z_1 observado em medidas de alcances de vários elementos ($29 \leq Z_1 \leq 83$) em Si amorfo com as predições da teoria ZBL, sugeriu-se que o potencial ZBL fosse “cortado” a partir de uma distância interatômica $R = R_c$, isto é, sugeriu-se que o potencial interatômico fosse dado

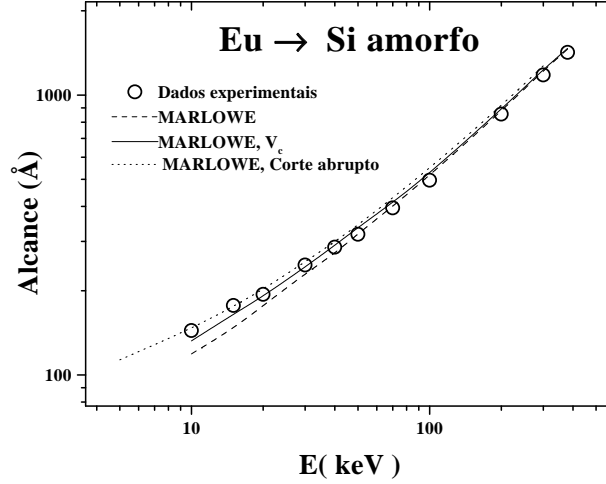


Fig. 5.12: Comparação dos dados de alcances de íons de *Eu* implantados em *Si* amorfo (círculos vazios)[67, 86] com resultados de simulações com o MARLOWE utilizando o potencial V_c (veja discussão no texto) das equações 5.5 e 5.6 (linha contínua). A linha tracejada corresponde às previsões do MARLOWE com o potencial ZBL e a linha pontilhada é o resultado da utilização do potencial cortado abruptamente (equação 5.3) com $R_c = 12 \times a_{ZBL}$.

pela relação:

$$\begin{cases} V(R) = V_{ZBL} & \text{para } R \leq R_c \text{ e} \\ V(R) = 0 & \text{para } R > R_c \end{cases} \quad (5.3)$$

Obviamente, o corte no potencial é uma maneira simples de simular a redução na energia de interação íon-alvo devido à formação da quase-molécula. Verificou-se que este procedimento consegue reproduzir razoavelmente as oscilações Z_1 quando R_c é igual à soma dos raios iônicos do projétil e do alvo. No caso específico do par *Eu-Si*, verificou-se que o valor R_c que resulta num bom acordo teórico-experimental é $R_c = 12 a_{ZBL}$, onde a_{ZBL} é o comprimento de blindagem ZBL para o par *Eu-Si*. De fato, o mínimo da curva de potencial numa molécula diatômica ocorre numa distância interatômica próxima à soma dos raios iônicos dos átomos da molécula.

Com estes resultados em mente, nós realizamos as modificações pertinentes a fim de se introduzir o corte do potencial ZBL no MARLOWE. Os resultados das simulações com o potencial cortado mostraram que, de fato, a introdução do corte consegue explicar o efeito Z_1 apresentado pelos dados de alcances em *Si* amorfo como mostra a figura 5.12. No entanto, nas simulações de implantação em direção canalizada, verificamos que a introdução do potencial cortado resulta num completo desacordo teórico-experimental. Embora o freamento nuclear seja reduzido pela introdução do corte, as simulações subestimam fortemente os alcances dos íons implantados em direção canalizada.

Na figura 5.13 mostramos o cálculo do ângulo de espalhamento em função do parâmetro de impacto para o potencial ZBL (linha contínua) e para o potencial cortado (linha trace-

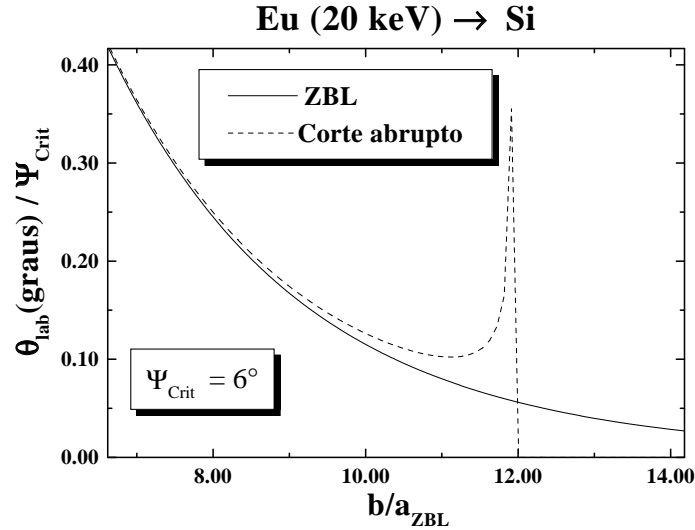


Fig. 5.13: Comportamento típico do ângulo de espalhamento θ_{lab} como função do parâmetro de impacto b , calculado para o potencial cortado (linha tracejada) e para o potencial ZBL (linha contínua).

jada). No eixo vertical, temos a razão entre o ângulo de espalhamento no CM e o ângulo crítico para canalização (Ψ_{crit}), que é da ordem de 6° a 20 keV.

Lembrando que a seção de choque total de espalhamento é dada pela expressão

$$\sigma_T = \frac{b}{\sin(\Theta)} \left| \frac{db}{d\Theta} \right| \quad (5.4)$$

a figura 5.13 indica que a seção de choque diverge na região do corte ($b/a_{ZBL} \sim 11.$) Esta divergência na seção de choque é denominada efeito arco-íris [19]. No nosso caso, o efeito arco-íris tem origem no fato de que um corte abrupto no potencial resulta numa força que diverge na região do corte. Como o ângulo em que a seção de choque diverge é de $0,6$ graus. Embora este ângulo seja menor que o ângulo crítico para canalização, as colisões sucessivas perdem a correlação com a estrutura cristalina do alvo. Desta maneira, a introdução do potencial cortado nas simulações produz um efeito de decanalização, o que explica o desacordo com os dados de implantação canalizada. Embora o efeito arco-íris também esteja presente nas implantações em Si amorfo, ele não é tão relevante neste caso, pois as colisões sucessivas sofridas pelo projétil são descorrelacionadas e o papel do corte consiste simplesmente em reduzir o poder de freamento nuclear.

A fim de contornar o problema do efeito arco-íris, nós tentamos implementar um corte não-abrupto no potencial ZBL. Isto foi realizado utilizando a seguinte proposta para o potencial Eu-Si :

$$V_c(r) = V_{ZBL} \times \frac{1}{\left[1 + \exp\left(\frac{r-R_c}{\Delta \times R_c}\right) \right]}. \quad (5.5)$$

O potencial V_c (equação 5.5) tem um único parâmetro livre (Δ) e tem a propriedade

de ser idêntico ao potencial ZBL para $r < R_c$ e cair a zero suavemente para $r > R_c$. O parâmetro Δ controla a “suavidade” do corte. Após realizarmos as modificações pertinentes no MARLOWE para introduzir o potencial V_c no programa, ajustamos o parâmetro Δ a fim de obtermos um bom acordo teórico com todos os dados experimentais disponíveis. Nós verificamos que os parâmetros que resultam no melhor acordo teórico-experimental para todos os dados são os descritos na equação 5.6:

$$\begin{cases} R_c = 12 \times a_{ZBL} \\ \Delta = 0.2 \end{cases} \quad (5.6)$$

Nas figuras 5.12, 5.6, 5.7, 5.8 5.10 e 5.11 as linhas tracejadas correspondem às predições do MARLOWE após a introdução do potencial V_c definido pelos parâmetros da equação 5.6. Nestas simulações, utilizamos o modelo de freamento eletrônico local de Robinson e Oen e a seção de choque de freamento eletrônico ZBL.

A figura 5.12 mostra que a introdução do potencial V_c no MARLOWE consegue explicar os dados de alcances de íons de Eu em Si amorfo. Por outro lado, as figuras 5.6, 5.7 e 5.8 mostram que o potencial V_c consegue explicar as caudas observadas nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$. Além disso, as figuras 5.10 e 5.7 apresentam o resultado altamente relevante de que as predições do MARLOWE com o potencial V_c para a direção $\langle 110 \rangle$ resultam num acordo teórico-experimental tão bom quanto o acordo observado nas simulações com o potencial ZBL discutido anteriormente.

A introdução do novo potencial nas simulações corresponde a uma redução da seção de choque de freamento nuclear. Como a seção de choque de freamento eletrônico não foi modificada, aumenta o percentual de freamento eletrônico no poder de freamento total. A fim de testar o papel desempenhado pelo freamento eletrônico nas simulações com o novo potencial, realizamos novas simulações onde variamos os modelos de perda de energia inelástica e mantivemos fixos os parâmetros do potencial interatômico. Nós verificamos que as simulações dos alcances em Si amorfo são pouco sensíveis à perda de energia inelástica. No entanto, as simulações das implantações na direção $\langle 110 \rangle$ são bastante sensíveis ao modelo de freamento eletrônico. Por exemplo, a utilização do modelo não-local resulta num forte desacordo com os dados experimentais.

A sensibilidade ao modelamento da perda de energia eletrônica pode ser entendida por um exame da figura 5.14 onde estão graficadas a perda de energia inelástica (Q) e a energia transferida ao alvo (T), numa colisão binária, como função do parâmetro de impacto. Para calcular $Q(b)$ e $T(b)$ utilizamos o modelo de Robinson e Oen e o potencial V_c , respectivamente. Como se pode observar, a perda de energia nuclear é predominante em colisões com pequeno parâmetro de impacto enquanto a perda de energia inelástica é predominante em colisões distantes. Estes cálculos revelam que, apesar das baixas energias dos projéteis, o freamento eletrônico tem um papel importante na perda de energia em direção canalizada, principalmente nas direções mais abertas.

Outro aspecto importante é revelado se quantificarmos o efeito Z_1 pela diferença entre $T(b)$ calculado com o potencial ZBL e $T(b)$ calculado com o potencial V_c . Na figura 5.15 temos $\Delta T = (T_{ZBL} - T_{V_c}) / [T_{ZBL} + Q(b)]$ em função do parâmetro de impacto. A análise desta figura permite duas conclusões. Em primeiro lugar, como já esperávamos, o efeito da introdução do potencial V_c é maior para colisões de baixas energias e praticamente desaparece

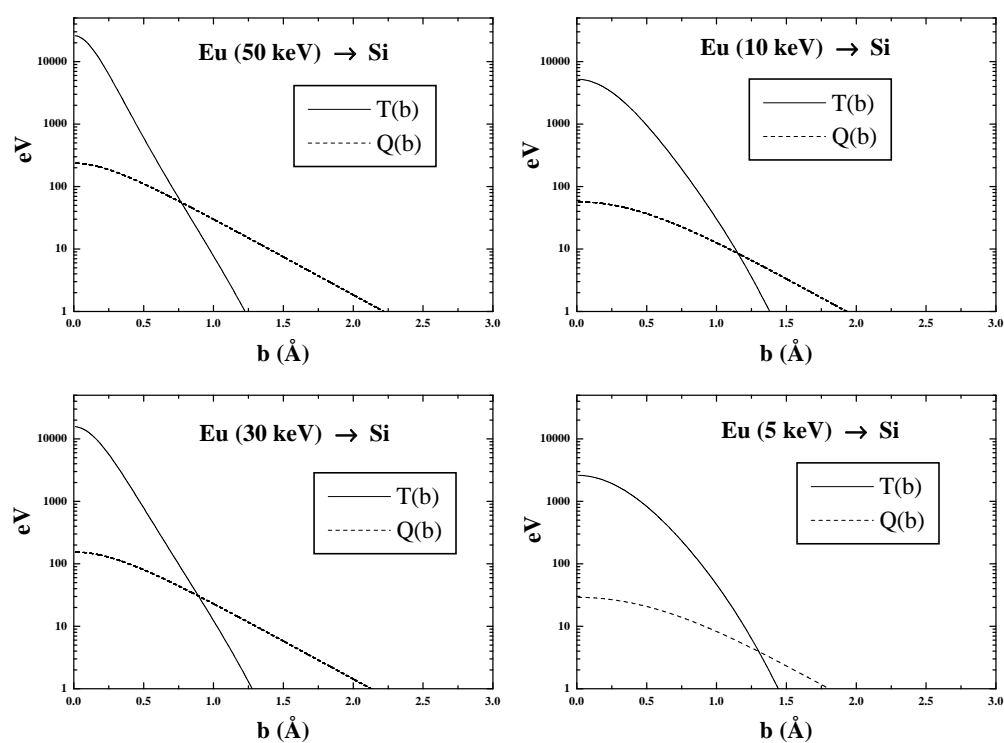


Fig. 5.14: Gráficos da perda de energia e eletrônica ($Q(b)$) e nuclear ($T(b)$), numa colisão binária, como função do parâmetro de impacto. Para calcular $Q(b)$ e $T(b)$ utilizamos o modelo de Robinson e Oen e o potencial V_c , respectivamente.

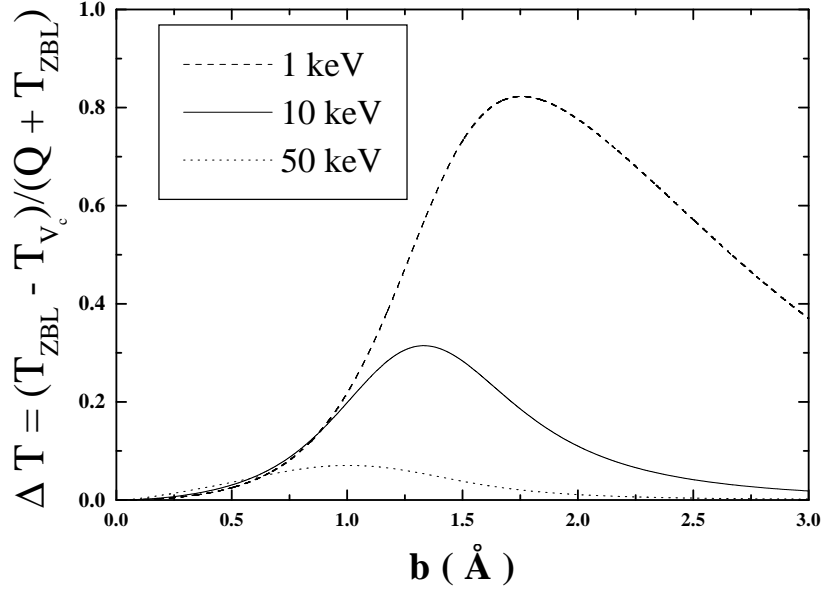


Fig. 5.15: Diferença relativa entre T_{ZBL} e T_{V_c} . Veja o texto para maiores detalhes.

para colisões com energias acima de 50 keV. Em segundo lugar, estes cálculos demonstram que, para uma energia fixa, ΔT tem um máximo para colisões com um parâmetro de impacto bem definido, que varia entre $\sim 1 \text{ \AA}$ a 50 keV e $1,7 \text{ \AA}$ a 1 keV. Este comportamento tem origem na prevalência do freamento eletrônico em colisões distantes e significa que, em canais muito abertos como o canal $\langle 110 \rangle$, o efeito Z_1 é amortecido. Portanto, nossa idéia inicial de que o efeito Z_1 deve ser mais pronunciado nas direções mais abertas do cristal não é estritamente correta. De fato, estes resultados indicam que o efeito Z_1 deve ser máximo nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$, o que é plenamente confirmado pelos nossos dados experimentais.

5.4.2 Cálculo *ab initio* do potencial Eu-Si

Embora a introdução no MARLOWE do modelo de potencial proposto na equação 5.5 com os parâmetros da equação 5.6 tenha o grande mérito de descrever consistentemente dados obtidos em condições experimentais bastante diversas, esta abordagem fornece apenas uma descrição fenomenológica dos resultados experimentais sem, contudo, fornecer uma explicação mais bem fundamentada para os mecanismos físicos que levam ao aparecimento do efeito Z_1 . A fim de se ganhar uma melhor compreensão desses e testar a acurácia do potencial que obtivemos a partir dos nossos dados experimentais, nós compararemos o potencial V_c com o potencial Eu-Si obtido a partir de cálculos *ab-initio* de estrutura molecular. Nestes cálculos consideramos que o sistema eletrônico da molécula pode ser dividido em elétrons internos dos átomos (elétrons de caroço) e elétrons de valência. A hipótese básica é que se pode considerar que os elétrons do caroço estão congelados e que só os elétrons de valência se rearranjam para formar a quase-molécula. Estas idéias são

implementadas com a hipótese de que a energia do sistema eletrônico de valência pode ser obtida considerando que os elétrons do caroço simplesmente blindam o campo dos núcleos, dando origem a um potencial efetivo de caroço (*Effective Core Potentials* - ECPs)[88, 89, 90, 91]. Para descrever os elétrons de caroço, utilizamos uma base descrita por ECPs que tem 8 elétrons para descrever o caroço do Si [90] e 46 para descrever o caroço de Eu [91]. Os elétrons de valência foram descritos por funções gaussianas centradas nos núcleos.

Para obter o potencial interatômico, a energia do sistema eletrônico de valência, $\varepsilon_{val}(R)$, foi calculada utilizando a teoria funcional da densidade (DFT) baseada no método auto-consistente de Kohn-Sham [92, 93]. Este é um método híbrido Hartree-Fock-DFT conhecido como B3LYP por utilizar o funcional de *exchange* de três parâmetros de Becke (B3) [94] em conjunto com o funcional de correlação de Lee, Yang e Parr (LYP) [95]. Estes cálculos foram realizados utilizando o programa GAUSSIAN 94 [96]. O cálculo da energia eletrônica dos elétrons do caroço, $\varepsilon_{core}(R)$, foi realizado utilizando o modelo FEG. Finalmente, o potencial interatômico era obtido da expressão usual:

$$V(R) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} + \varepsilon_{core}(R) + \varepsilon_{val}(R). \quad (5.7)$$

Na parte (a) da figura 5.16 nós comparamos o potencial DFT obtido *ab initio* com o potenciais ZBL e V_c que obtivemos a partir dos nossos dados experimentais. Na parte (b) mostramos os potenciais em detalhe. Na parte (a) vemos que o potencial DFT é idêntico ao potencial ZBL para distâncias interatômicas menores que 0,6 Å. No entanto, o potencial DFT mostra que o potencial ZBL superestima fortemente a energia de interação para distâncias interatômicas maiores que $R > 1,0$ Å. De fato, na parte (b) vemos que o potencial DFT fica negativo quando $R > 1,4$ Å e tem um mínimo de cerca de -25 eV em $R = 2$ Å o que indica a formação de uma molécula Eu-Si! Em outras palavras, o cálculo DFT mostra que ocorre um rearranjo dos elétrons periféricos do projétil e do alvo dando origem a uma redução na energia de interação.

Seria altamente desejável introduzir potencial DFT no MARLOWE e comparar suas previsões com os nossos dados experimentais. Infelizmente, o fato do potencial DFT apresentar uma parte atrativa faz com que sua introdução no MARLOWE não seja trivial porque a implementação da BCA na versão do programa que estamos utilizando, só considera a possibilidade de potenciais puramente repulsivos. As modificações necessárias à introdução do potencial DFT estão sendo realizadas no momento.

No entanto, podemos tecer algumas conclusões interessantes comparando o potencial V_c , com o potencial DFT. A figura 5.16 mostra que, quando comparados ao potencial ZBL, ambos os potenciais apresentam a mesma tendência de redução da energia de interação. Em particular, para distâncias interatômicas menores que 1,2 Å os dois potenciais são idênticos. Este fato dá um suporte teórico importante ao nosso procedimento fenomenológico de corte do potencial. Por outro lado, para distâncias interatômicas maiores que 1,2 Å, o potencial V_c é maior que o potencial DFT. No entanto, as energias de interação neste caso são da ordem, ou menores, que 10 eV. No ref. do laboratório, esta energia corresponde a uma colisão (a parâmetro de impacto zero) com energia igual ou menor que 50 eV. Os íons de Eu estão praticamente termalizados quando atingem energias tão baixas. Portanto, as diferenças entre os potenciais V_c e DFT para distâncias interatômicas maiores que 1.2 Å devem ter pouca importância. Espera-se então, que a introdução do potencial DFT no MARLOWE

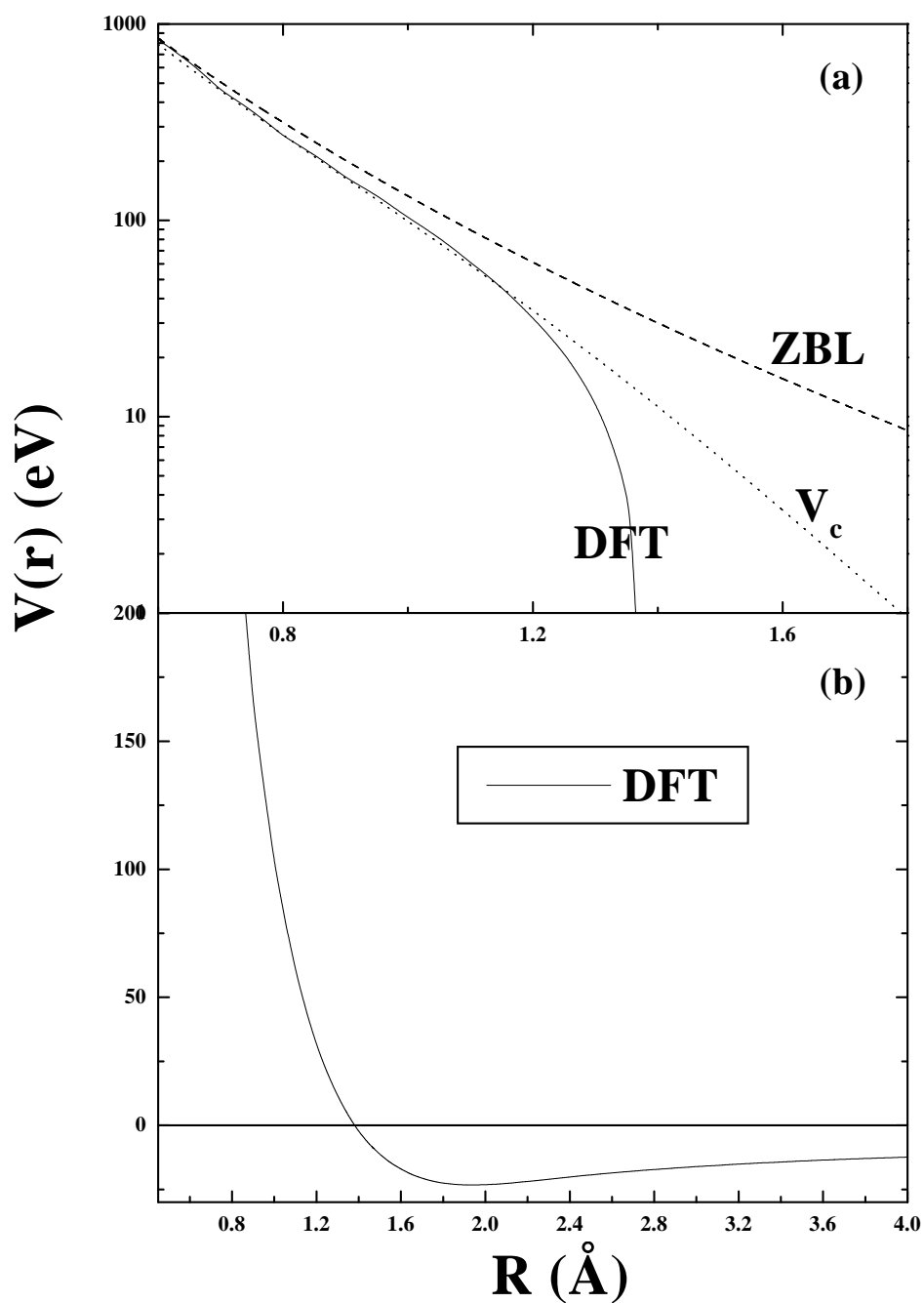


Fig. 5.16: Na parte (a) apresentamos a comparação do potencial ZBL (linha tracejada) com o potencial calculado pela teoria DFT e com o potencial V_c obtido a partir dos nossos dados experimentais (linha pontilhada). Na parte (b) mostramos o potencial DFT em detalhe. Como se pode ver, o potencial DFT fica negativo para $R \geq 1.4$ Å, o que sugere a formação de uma molécula em colisões de baixa energia.

reproduza nossos dados experimentais tão bem quanto o potencial V_c . Estas observações, juntamente com o fato do potencial DFT apresentar uma região atrativa permitem concluir que o efeito Z_1 , de fato, decorre do rearranjo dos elétrons periféricos do projétil e do alvo o que dá origem a uma redução na energia de interação durante as colisões de baixa energia.

Capítulo 6

Procedimentos experimentais II: íons leves

6.1 Perda de energia de íons leves

As medidas da perda de energia de íons de ^4He e ^7Li foram realizadas utilizando a técnica de retroespalhamento em alvos de SIMOX (Separation by IMplanted OXygen). As amostras de SIMOX empregadas neste estudo consistem em uma camada de 2000 Å de silício $\langle 100 \rangle$ monocristalino sobre uma camada de 5000 Å de SiO_2 amorfo. A camada de SiO_2 , por sua vez, está sobre uma outra camada de silício $\langle 100 \rangle$ monocristalino. Na figura 6.1 apresentamos um esquema da estrutura SIMOX. A interface da primeira camada

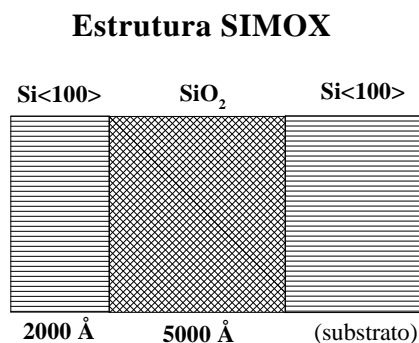


Fig. 6.1: Esquema de uma estrutura SIMOX.

cristalina com a camada de SiO_2 apresenta rugosidade da ordem de 20 Å determinados a partir de experimentos de TEM (*Transmission Electron Microscopy*). Esta característica faz com que a interface seja um marcador extremamente conveniente para as medidas de perda de energia em direção canalizada. Como veremos a seguir, a perda de energia em direção canalizada pode ser obtida diretamente da energia das partículas retroespalhadas na interface em direção canalizada. De fato, resultados de medidas anteriores da perda de energia de íons de ^4He e ^{10}B canalizados na direção $\langle 100 \rangle$ do Si [97, 54, 98, 99, 100]

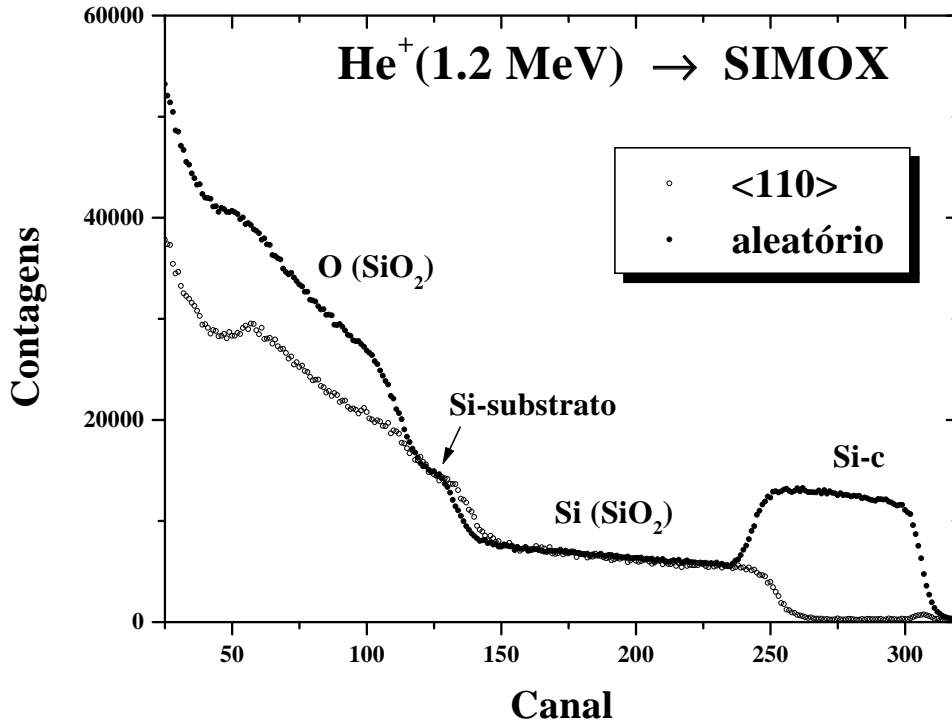


Fig. 6.2: Espectros de RBS aleatório e canalizado ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ de um alvo do tipo SIMOX medidos com íons de He^+ de 1.2 MeV. Na figura, indicamos as regiões do espectro correspondentes ao sinal do Si da camada cristalina mais externa (Si-c), ao sinal do Si da camada enterrada de SiO_2 (Si(SiO₂)), ao sinal do oxigênio do SiO_2 (O(SiO₂)) e ao Si do substrato.

quando comparadas aos resultados de experimentos de transmissão [55, 101] e com dados de medidas de alcances [102] demonstraram que os valores do poder de freamento obtidos por esta técnica são absolutamente consistentes com os obtidos por intermédio de outras técnicas. Na figura 6.2 apresentamos espectros típicos de RBS em direção canalizada e aleatória de amostras de SIMOX.

Para as medidas realizadas neste trabalho utilizamos o acelerador Tandetron de 3 MV do Laboratório de Implantação Iônica da UFRGS e o acelerador Pelletron de 3MV do Max-Planck Institut für Kernphysik (MPI-K) de Heidelberg, Alemanha. Nos dois laboratórios, os arranjos experimentais e o procedimento de limpeza de amostras foram semelhantes aos utilizados nas medidas de profilometria de íons pesados descritas anteriormente. A divergência angular dos feixes utilizados era $\leq 0.03^\circ$, os goniômetros de três eixos utilizados tinham precisão de $\leq 0.005^\circ$ e a incerteza na energia do feixe era menor que 500 eV. As partículas retroespalhadas eram detectadas por detectores de barreira de superfície localizados em ângulos de 165 a 170° com relação à direção do feixe. A resolução total dos sistemas de detecção tanto em Porto Alegre quanto em Heidelberg eram da ordem de 12 keV para os

íons de hélio e de 17 keV para os íons de lítio. O vácuo nas câmaras de análise era de 10^{-7} e de 10^{-8} Torr em Porto Alegre e no MPI-K, respectivamente. Em todos os experimentos realizados, a posição de incidência do feixe sobre as amostras era periodicamente modificada a fim de minimizar a deposição de hidrocarbonetos sobre a superfície das amostras.

6.2 Medidas da perda de energia como função da energia do feixe

Como veremos a seguir, a perda de energia canalizada pode ser obtida diretamente a partir da diferença entre energia das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂ em incidência canalizada (E_c) e a energia das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂ em incidência aleatória (E_r). Este procedimento requer somente o conhecimento da geometria de retroespalhamento e da dependência da perda de energia em incidência aleatória.

Sendo assim, as medidas de perda de energia consistem simplesmente em tomar espectros de RBS nas amostras de SIMOX com o feixe incidindo em direção canalizada e direção aleatória. Para a determinação da direção aleatória, nós utilizamos o método descrito na referência [103]. Neste trabalho, demonstrou-se que, num cristal de Si, a direção de incidência do feixe correspondente a uma direção aleatória é a direção dada pelo ângulo azimutal (de rotação em torno da direção $\langle 100 \rangle$) $\phi = 15^\circ$ a partir do plano $\{100\}$ e pelo ângulo $\Psi = 6^\circ$ (de inclinação em relação à direção $\langle 100 \rangle$).

6.3 Análise de dados

Nas figuras 6.2, 6.3 e 6.4 apresentamos espectros típicos de RBS tomados em direção canalizada e aleatória. As setas indicam os canais correspondentes às energias E_c e E_r , que são as energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂ em incidência canalizada e aleatória, respectivamente. Uma inspeção dos espectros tomados em direção canalizada revela vários aspectos interessantes. Em primeiro lugar, o χ_{min} próximo à superfície é de 3.5 % subindo para cerca de 4.5 % próximo à interface Si/SiO₂. Em segundo lugar, a interface Si/SiO₂ aparenta ser tão abrupta quanto a superfície da amostra, se levarmos em conta a dispersão em energia das partículas do feixe após atravessarem toda a camada de silício cristalino. Todas estas características indicam que a camada de Si no topo da amostra é um cristal de boa qualidade e que a região próxima à interface é bem definida e não apresenta um nível significativo de defeitos estendidos.

Na aproximação de energia média, podemos exprimir as energias E_c e E_r como:

$$E_c = K \left[E_0 - \frac{dE}{dx} \Big|_{\bar{E}_{entrada}^c} \Delta l_{entrada} - \frac{dE}{dx} \Big|_{\bar{E}_{saida}^r} \Delta l_{saida} \right] \quad (6.1)$$

e

$$E_r = K \left[E_0 - \frac{dE}{dx} \Big|_{\bar{E}'_{entrada}} \Delta l'_{entrada} - \frac{dE}{dx} \Big|_{\bar{E}'_{saida}} \Delta l'_{saida} \right]. \quad (6.2)$$

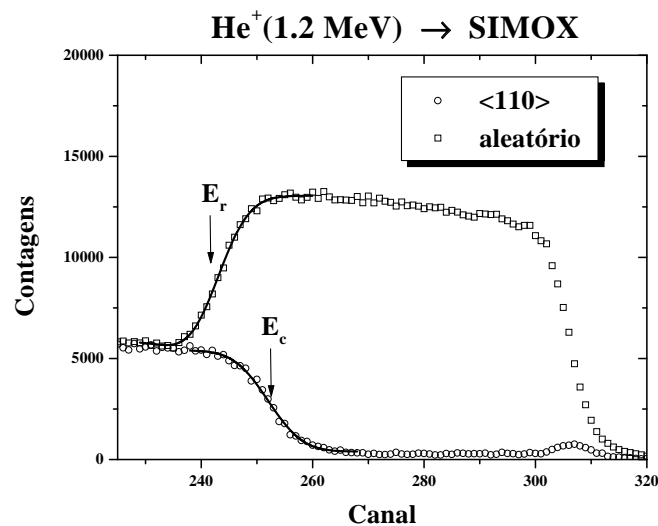


Fig. 6.3: Espectro de RBS em amostra de SIMOX, em direção canalizada e aleatória com feixe de íons de He a 1.2 MeV. As setas indicam os canais correspondentes às energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂ em cada geometria. As linhas sólidas representam resultados típicos do procedimento de ajuste utilizado para obter as energias correspondentes à interface.

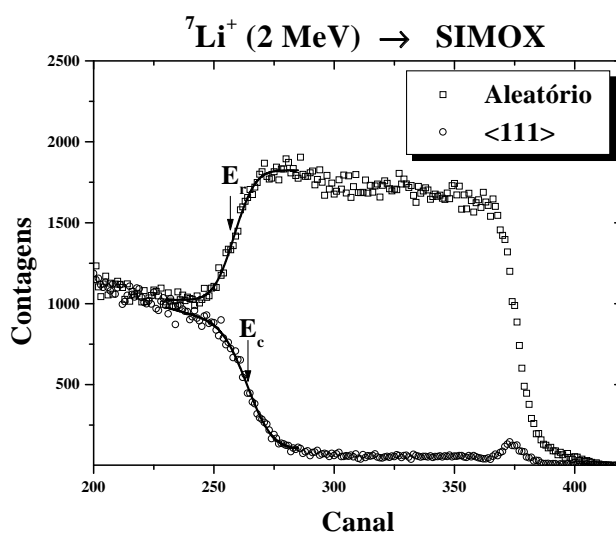


Fig. 6.4: Espectro de RBS em amostra de SIMOX, em direção canalizada e aleatória com feixe de íons de Li a 2 MeV. As setas indicam os canais correspondentes às energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂ em cada geometria.

Nas equações 6.1 e 6.2 as quantidades marcadas com apóstrofe referem-se à condição de incidência aleatória, K é o fator cinemático, E_0 é a energia do feixe incidente, $\frac{dE}{dx}|^c$ é a perda de energia canalizada (que queremos determinar) e $\frac{dE}{dx}|^r$ é a perda de energia aleatória. $\bar{E}_{entrada}$ e $\Delta l_{entrada}$ (\bar{E}_{sai} e Δl_{sai}) são a energia média e o comprimento do caminho de entrada (saída) do feixe.

Combinando as equações 6.1 e 6.2, obtemos

$$\frac{dE}{dx}|_{\bar{E}_{entrada}}^c = \left[\frac{KE_0 - E_c}{KE_0 - E_r} \left(\beta_1 + \frac{\cos(\theta_1)}{\cos(\theta'_1)} - \beta_2 \right) \right] \frac{dE}{dx}|_{\bar{E}'_{entrada}}^r, \quad (6.3)$$

onde definimos

$$\beta_1 \equiv \frac{\frac{dE}{dx}|_{\bar{E}'_{sai}}^r \cos(\theta_1)}{K \frac{dE}{dx}|_{\bar{E}'_{entrada}}^r \cos(\theta'_2)} \quad (6.4)$$

e

$$\beta_2 \equiv \frac{\frac{dE}{dx}|_{\bar{E}_{sai}}^r \cos(\theta_1)}{K \frac{dE}{dx}|_{\bar{E}'_{entrada}}^r \cos(\theta_2)}, \quad (6.5)$$

e θ_1 e θ_2 são os ângulos entre o feixe e a normal à amostra e entre a normal à amostra e a direção do detetor, respectivamente. Podemos verificar inspecionando as equações (6.3), (6.4) e (6.5) que o poder de freamento em direção canalizada é dado em termos da perda de energia em direção aleatória, das energias E_c e E_r e da geometria do retroespalhamento. Repare que não é necessária a determinação da espessura da camada cristalina do topo da amostra de SIMOX.

Vale a pena comentar agora o método empregado para determinar as energias E_c e E_r . O espectro observado num experimento de RBS é a convolução do espectro “verdadeiro” (aquele que seria obtido com um sistema de detecção com resolução igual a zero) com a resposta (gaussiana) do detetor. Assim, por exemplo, o espectro correspondente à região próxima à superfície de uma amostra mono-elementar seria a convolução de uma função de Heaviside com uma Gaussiana. Tal espectro seria, portanto, bem reproduzido por uma função erro. No entanto esta aproximação não considera o aumento da seção de choque de Rutherford com a profundidade na amostra. Por esta razão, a determinação das energias E_c e E_r foi realizada ajustando-se os espectros canalizado e aleatório com uma função que descreve o espectro na região da interface e que incorpora à função erro a dependência da seção de choque de Rutherford [100] e a dispersão em energia das partículas incidentes. No algoritmo utilizado, o espectro na região da interface é descrito pela seguinte função:

$$f(x) = A_1 f_1(x) + A_2 f_2(x), \quad (6.6)$$

onde

$$f_1(x) = \frac{1}{2} [1 - \alpha_1(x - C)] [1 + \operatorname{erf}(z)] - \frac{\alpha_1 D}{\sqrt{\pi}} \exp(-z^2), \quad (6.7)$$

$$f_2(x) = \frac{1}{2} [1 - \alpha_2(x - C)] [1 - \operatorname{erf}(z)] + \frac{\alpha_2 D}{\sqrt{\pi}} \exp(-z^2) \quad (6.8)$$

e definimos

$$z \equiv \frac{x - C}{D}. \quad (6.9)$$

Nas equações acima, A_1 , A_2 , C , D , α_1 e α_2 são parâmetros livres, sendo A_1 e A_2 as alturas dos sinais do Si na camada de Si cristalino e na camada de SiO_2 , respectivamente, C a posição da interface, $D = \sqrt{2}\Omega_{r+s}$, onde Ω_{r+s} é o desvio padrão da gaussiana que representa a convolução da resolução do sistema de detecção com a dispersão em energia das partículas, e α_1 e α_2 estão relacionadas com o aumento da seção de choque com a profundidade na camada superficial de Si e na camada de SiO_2 .

As equações (6.6), (6.7) e (6.8) resultam da convolução de uma gaussiana com uma função do tipo :

$$F(x) = \begin{cases} \frac{N_1}{[1-a_1(x-C)]^2} & \text{para } x > C \text{ e} \\ \frac{N_2}{[1-a_2(x-C)]^2} & \text{para } x < C \end{cases} \quad (6.10)$$

cuja dependência com $1/x^2$ ($1/E^2$) descreve o aumento da seção de choque de Rutherford à medida que o feixe penetra na amostra. Na equação 6.10 a_1 e a_2 são constantes relacionadas à perda de energia nas camadas de Si cristalino e de SiO_2 respectivamente. N_1 e N_2 são fatores de normalização relacionados com as densidades e seções de choque nas duas camadas mencionadas acima.

As linhas sólidas nas figuras 6.3 e 6.4 ilustram resultados típicos do procedimento de ajuste mencionado acima nos espectros de RBS/canalização em alvos de SIMOX.

Seguindo o procedimento descrito acima, realizamos medidas da dependência da perda de energia de íons de ^4He e de ^7Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ como função da energia do feixe. A tabela 6.1 apresenta um resumo das medidas realizadas neste trabalho.

Tab. 6.1: *Resumo das medidas de perda de energia canalizada realizadas neste trabalho.*

íon	Intervalo de energia	direção
He	0.3 - 6 MeV	$\langle 110 \rangle$
He	0.35 - 5 MeV	$\langle 111 \rangle$
Li	0.5 - 8 MeV	$\langle 100 \rangle$
Li	0.5 - 5 MeV	$\langle 110 \rangle$
Li	0.65 - 4 MeV	$\langle 111 \rangle$

6.4 Medidas da dependência da perda de energia com o ângulo de incidência do feixe.

Além de investigar a dependência do poder de freamento de canalização como função da energia do feixe, sua dependência com o ângulo de inclinação Ψ do feixe em relação à direção de canalização também foi investigada. Como veremos no capítulo 7, os resultados destas medidas permitem investigar a dependência da perda de energia eletrônica com o parâmetro de impacto.

Nestas medidas, após determinarmos a direção de canalização, tomamos vários espectros para diferentes valores de (Ψ) entre -1.5° e 1.5° em intervalos de 0.2° . A fim de evitar

efeitos de canalização planar, nas medidas realizadas em torno da direção $\langle 100 \rangle$ (normal à superfície da amostra), o procedimento foi repetido para vários valores do ângulo azimutal ϕ (de rotação da amostra em torno do eixo de canalização) entre 0° (plano $\{100\}$) e 45° (plano $\{110\}$). Os resultados foram então mediados sobre os azimutes. No entanto, nas medidas realizadas em torno das direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, a varredura no ângulo Ψ foi realizada no azimute correspondente ao plano $\{110\}$ paralelo à direção de canalização.¹

Nas figuras 6.5 e 6.6, apresentamos espectros típicos de RBS tomados com feixes de ^4He de 0.96 MeV e ^7Li de 1.2 MeV, respectivamente, em direção aleatória e canalizada com $\Psi = 0, 0.4$ e 0.6° com relação à direção $\langle 100 \rangle$. As setas indicam a posição aparente da energia das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO₂. Uma inspeção dos espectros mostra que a perda de energia para $\Psi = 0.4^\circ$ parece ser menor do que a perda de energia para $\Psi = 0^\circ$. Isto ocorre porque o espectro de íons retroespalhados corresponde à soma dos espectros dos íons canalizados e decanalizados. De fato, à medida que se aumenta o ângulo de inclinação do feixe com relação à direção de canalização, a fração decanalizada do feixe aumenta, o que distorce o espectro de RBS. Portanto, a análise simples empregada até aqui para determinar a perda de energia canalizadas não pode ser utilizada. Para contornar este problema, nós utilizamos um método que permite descontar a parte decanalizada do espectro. Este algoritmo foi desenvolvido em trabalhos anteriores do nosso grupo [100, 98]. Em linhas gerais, este método consiste em supor que o feixe dentro do cristal pode ser dividido em duas parcelas. Uma fração canalizada e outra decanalizada. Supõe-se que a fração decanalizada aumenta exponencialmente à medida que o feixe penetra na amostra [104], tendo perda de energia correspondente à perda de energia aleatória. O perfil de decanalização é então obtido ajustando-se um espectro teórico baseado nas hipóteses acima. A perda de energia da fração canalizada é finalmente obtida subtraindo-se o perfil de decanalização do espectro original.

Seguindo este procedimento, realizamos várias medidas da dependência angular da perda de energia canalizada. Na tabela 6.2 a seguir, resumimos os experimentos realizados.

Tab. 6.2: *Resumo das medidas da dependência angular da perda de energia canalizada.*

íon	Energia	direção
He	0.96 MeV	$\langle 100 \rangle$
He	1.2 MeV	$\langle 100 \rangle$
He	2.0 MeV	$\langle 100 \rangle$
He	1.2 MeV	$\langle 110 \rangle$
He	2.0 MeV	$\langle 110 \rangle$
He	1.2 MeV	$\langle 111 \rangle$
Li	1.2 MeV	$\langle 100 \rangle$

¹ A realização de médias azimutais em torno das direções em questão demandaria o desenvolvimento de um novo programa de controle do nosso goniômetro o que, embora factível, estava fora da proposta inicial deste trabalho.

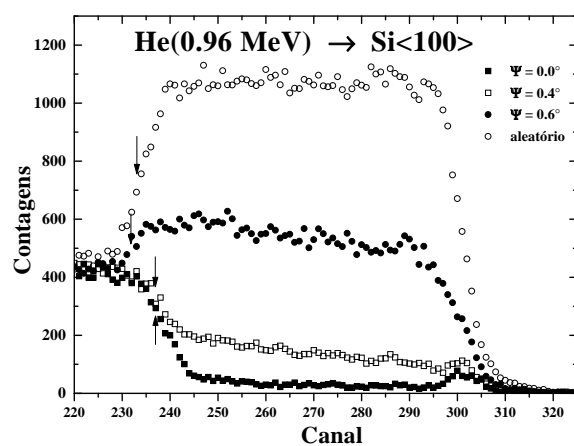


Fig. 6.5: Espectros canalizados e aleatório, tomados com feixes de ^4He de 0.96 MeV, com $\Psi = 0, 0.4$ e 0.6° com relação à direção $\langle 100 \rangle$.

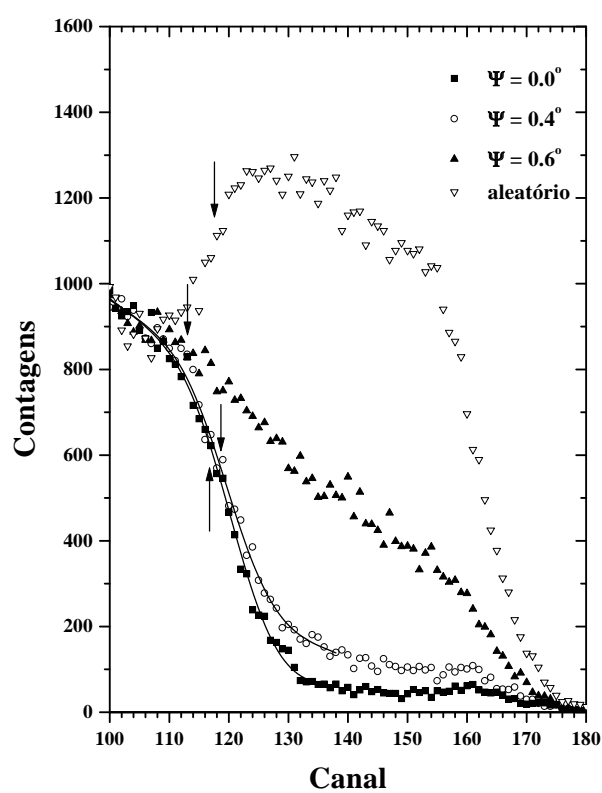


Fig. 6.6: Espectros canalizados e aleatório, tomados com feixes de ${}^7\text{Li}$ de 1.2 MeV com $\Psi = 0, 0.4$ e 0.6° com relação à direção $\langle 100 \rangle$. A linha sólida corresponde a um resultado dos ajustes descritos no texto.

Capítulo 7

Resultados e discussões II: íons leves.

7.1 Introdução

Quando um feixe de íons de carga q penetra num sólido, as partículas do feixe passam por uma sucessão de eventos de troca de carga, atingindo um estado de equilíbrio a partir do momento em que as taxas de ocorrência dos eventos de captura e perda de elétrons ficarem iguais. Ou seja, o estado de carga médio dos íons do feixe dentro do alvo é, em geral, diferente do estado inicial q . No entanto, o poder de freamento depende da carga dos íons do feixe. Portanto, durante a penetração de um feixe num alvo sólido, podemos distinguir duas etapas para o poder de freamento. Temos o poder de freamento de pré-equilíbrio e o poder de freamento de equilíbrio de carga.

Um feixe com energias da ordem de 1 MeV/uma, penetrando num alvo amorfo, entra em equilíbrio de carga após percorrer distâncias da ordem de 10 Å. Em condição de canalização, a situação pode ser bem diferente. De fato, um íon canalizado tem probabilidades de troca de carga bastante reduzidas em relação a uma incidência aleatória. Como resultado, a distância de equilibração pode ser muito maior em direção canalizada.

Durante a elaboração deste trabalho de doutoramento, estudamos tanto o freamento de pré-equilíbrio quanto o freamento de equilíbrio em direção canalizada. Os resultados referentes ao poder de freamento de pré-equilíbrio estão apresentados na forma de um artigo no apêndice C.¹ Neste capítulo apresentaremos e discutiremos apenas os resultados das medidas da perda de energia de equilíbrio de íons leves canalizados em Si, realizadas segundo o procedimento descrito no capítulo 6. Primeiramente, apresentaremos os resultados relativos ao He, em seguida, apresentaremos os resultados correspondentes ao Li. Por último, nós discutiremos nossos resultados experimentais através da comparação com cálculos de primeiros princípios.

¹ veja artigo intitulado “*Charge equilibration of energetic He ions in the Si(100) channel.*”

7.2 Resultados das medidas da perda de energia de íons de He canalizados

7.2.1 Dependência com a energia

Os resultados das medidas da perda de energia de íons de He canalizados nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si estão apresentados na figura 7.1. Para obter estes dados, utilizamos os resultados da perda de energia de He em Si amorfo das referências [52, 53], que estão apresentados como uma linha contínua na metade superior da figura 7.1. Esta figura mostra que, o poder de freamento na direção $\langle 110 \rangle$ é de 20 a 30% menor que na direção $\langle 111 \rangle$. A diferença entre os valores do poder de freamento nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ se explica pelo fato do canal $\langle 110 \rangle$ ser o mais aberto do Si. As barras de erro apresentadas resultam, principalmente, da dispersão estatística dos valores da perda de energia obtidos em medidas individuais. O erro percentual médio para os dados do He é de 10%. Para energias abaixo de 2 MeV, o erro típico é de 5% e, para energias mais altas, gira em torno de 20%.

A razão α entre os poderes de freamento canalizado e aleatório está apresentada na figura 7.2. Na direção $\langle 111 \rangle$ os valores de α têm valor máximo a 0.5 MeV e, a partir daí decrescem monotonicamente. Na direção $\langle 110 \rangle$, α tem comportamento semelhante mas apresenta uma saturação em torno de $\alpha = 0.45$ para energias iguais ou maiores que 3 MeV. O decrescimento de α a partir do máximo pode ser entendido da seguinte maneira. Em incidência aleatória, todos os parâmetros de impacto são igualmente prováveis. No entanto, em incidência canalizada, as colisões com pequenos parâmetros de impacto são fortemente suprimidas. Portanto, a contribuição devido à excitação das camadas internas do Si é reduzida, em comparação com a incidência aleatória. Agora, com o aumento da velocidade do projétil, aumenta a contribuição das camadas internas do Si para o freamento aleatório. Por isso, a razão α diminui com o aumento da energia. Outro ponto importante a observar é que, na direção $\langle 111 \rangle$, α é praticamente igual a 1 na região do máximo. Isto ocorre porque, nesta faixa de energias, o poder de freamento se deve, principalmente, aos elétrons de valência do Si. Nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 100 \rangle$ pode-se considerar que os elétrons de valência estejam distribuídos uniformemente [105, 54]. Na direção $\langle 110 \rangle$, como o canal é muito largo, a não uniformidade dos elétrons de valência tem que ser levada em conta [105]. Isto explica o fato da razão α ter valor máximo $\alpha = 0.7$ na direção $\langle 110 \rangle$. Com relação ao efeito de saturação observado na direção $\langle 110 \rangle$, este pode ser explicado em termos do teorema de equipartição de Bethe que afirma que, no limite de altas velocidades, as colisões com pequenas transferências de momentum (grandes parâmetros de impacto) dão a mesma contribuição para o poder de freamento total que as colisões com grandes transferências de momentum (pequenos parâmetros de impacto). Como o canal $\langle 110 \rangle$ é o mais largo no Si, as colisões com pequeno parâmetro de impacto são mais suprimidas nesta direção, tendo como resultado o efeito de saturação que observamos.

Embora feixes de He canalizados sejam amplamente utilizados na análise de amostras de Si, existem poucos estudos sistemáticos da perda de energia canalizada como função da energia do projétil. Nas direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$, as únicas medidas sistemáticas disponíveis, até então, eram medidas realizadas por Eisen em 1972 [55] que utilizou a técnica de trans-

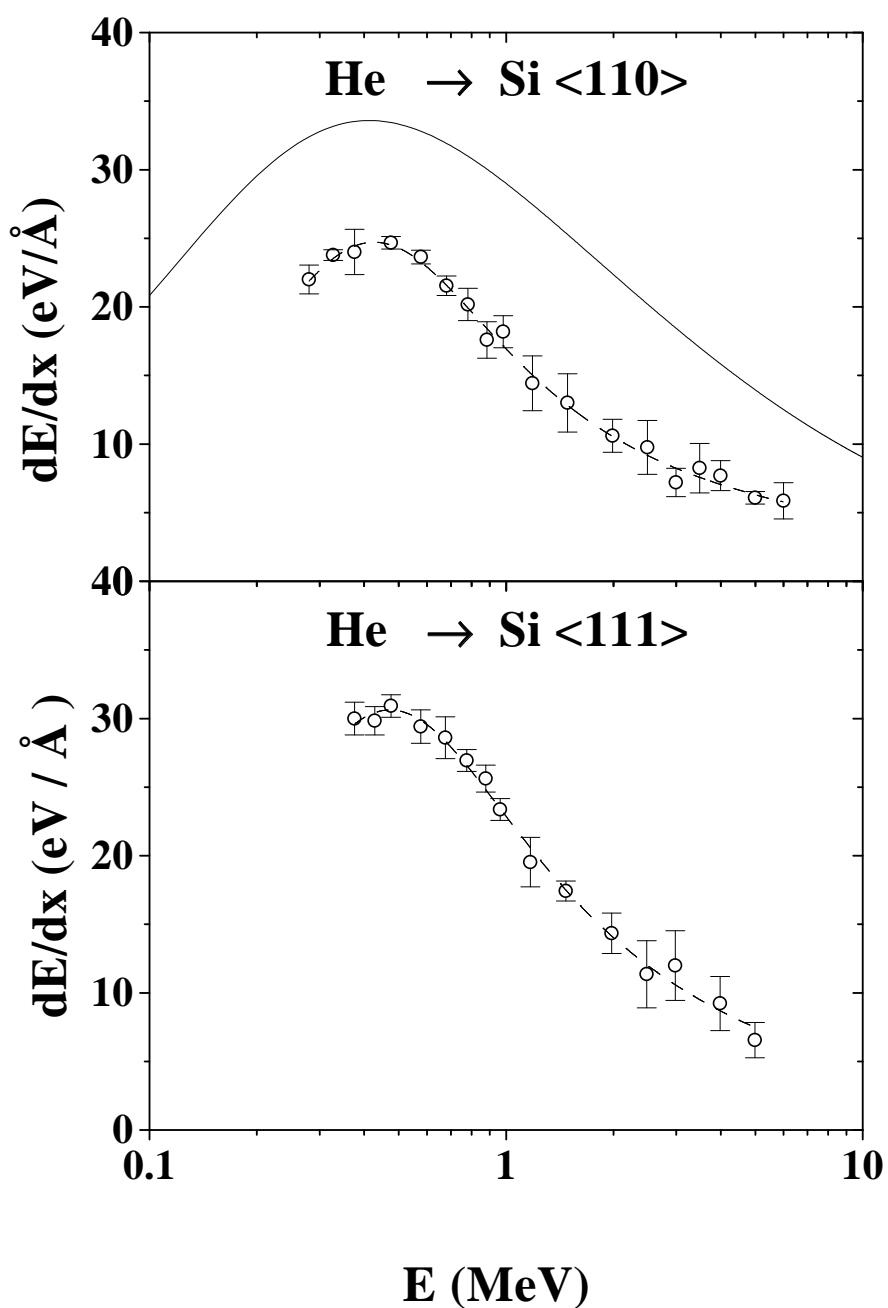


Fig. 7.1: Perda de energia de íons de ^4He canalizados nas direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. A linha contínua na metade superior da figura representa os dados experimentais da perda de energia de He em Si amorfo da ref. [52]. As linhas tracejadas são o resultado do ajuste dos dados experimentais com a fórmula 7.1.

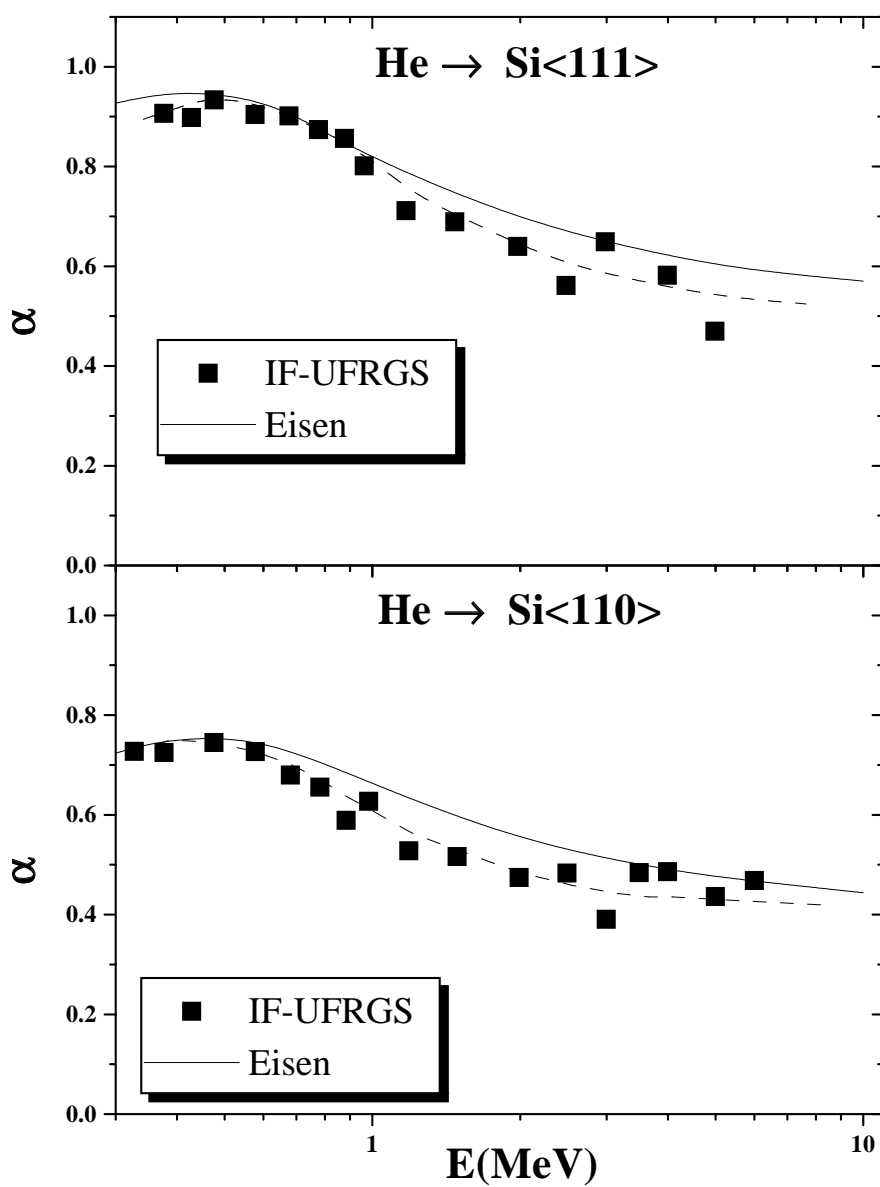


Fig. 7.2: Razão α para íons de He canalizados ao longo das direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ (símbolos). As linhas contínuas representam os dados experimentais da ref. [55] e a linhas tracejadas servem apenas para guiar os olhos do leitor.

missão. Na direção $\langle 100 \rangle$ os únicos dados existentes foram obtidos pelo nosso grupo [97] utilizando a técnica de retroespalhamento.

Eisen também realizou medidas em incidência aleatória [55], que estão cerca de 20% acima dos dados de Niemann na região em torno do máximo do poder de freamento. Aqui, vale comentar que escolhemos utilizar os dados de Niemann para obter os dados de perda de energia canalizada por dois motivos. Os dados de Niemann são mais recentes e têm maior precisão ($\sim 1\%$) que os dados de Eisen ($\sim 5\%$). Sendo assim, para realizar a comparação correta dos nossos dados com os de Eisen, é necessário comparar as razões α entre os dados para incidência canalizada e os respectivos dados para incidência aleatória. Esta comparação está apresentada na figura 7.2.

Na direção $\langle 111 \rangle$ temos um bom acordo entre os dois conjuntos de dados para energias abaixo de 1 MeV. No entanto, para energias acima de 1.0 MeV, nossos dados se afastam ligeiramente dos dados de Eisen sendo, em média, 10 % menores. Na direção $\langle 110 \rangle$ se observa um comportamento semelhante. Temos bom acordo para baixas energias e, novamente, para energias acima de 1 MeV, nossos dados diminuem progressivamente até uma saturação em torno de 2 MeV estando, em média, 15% abaixo dos dados de Eisen. As diferenças pequenas, porém sistemáticas, entre os nossos dados e os dados de Eisen podem ter sua origem na necessidade de medir a espessura das amostras, o que pode introduzir erros sistemáticos nos resultados das medidas por transmissão. Porém se considerarmos nossas barras de erro e a dispersão dos valores de Eisen, os dois conjuntos de dados são consistentes entre si.

7.2.2 Dependência angular

Embora o conhecimento da dependência angular da perda de energia em direção canalizada seja de fundamental importância em aplicações como localização de impurezas e determinação de perfis de defeitos [10], existem alguns poucos estudos relatando dados referentes a prótons [107, 108] e Hélio [109, 110] canalizados em Si. Nas figuras 7.3, 7.4 e 7.5 apresentamos os resultados relativos à dependência da razão α , com ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$, respectivamente.

A figura 7.3 mostra que as curvas da dependência angular de α apresentam larguras que diminuem com o aumento da energia, indo de 0.65° a 0.96 MeV até 0.47° a 2.0 MeV. Isto decorre do aumento da perda de energia devido a excitações dos elétrons internos dos átomos do alvo com o aumento da energia. Por outro lado, como já comentamos no capítulo anterior, os dados relativos à direção $\langle 100 \rangle$ são resultado de médias azimutais. Isto se reflete no fato dos valores de α para grandes inclinações do feixe serem iguais a um (dentro dos erros experimentais).

Na figura 7.3 nós comparamos os resultados deste trabalho [106] (quadrados cheios) com os dados da referência [109] (círculos vazios), obtidos pela técnica de transmissão. Embora as razões $\alpha(\Psi = 0^\circ)$ difiram em cerca de 5%, como se pode verificar, o acordo geral entre os dois conjuntos de dados é excelente.

Com relação aos dados referentes à direção $\langle 110 \rangle$, apresentados na figura 7.4, duas características são marcantes. Em primeiro lugar, as larguras (0.82 graus a 1.2 MeV e 0.72 graus a 2.0 MeV) são muito maiores que as observadas na direção $\langle 100 \rangle$, o que reflete o fato do canal $\langle 110 \rangle$ ser muito mais largo que os demais. Em segundo lugar, as razões α atingem valores máximos consideravelmente maiores que um. Isto quer dizer, que neste

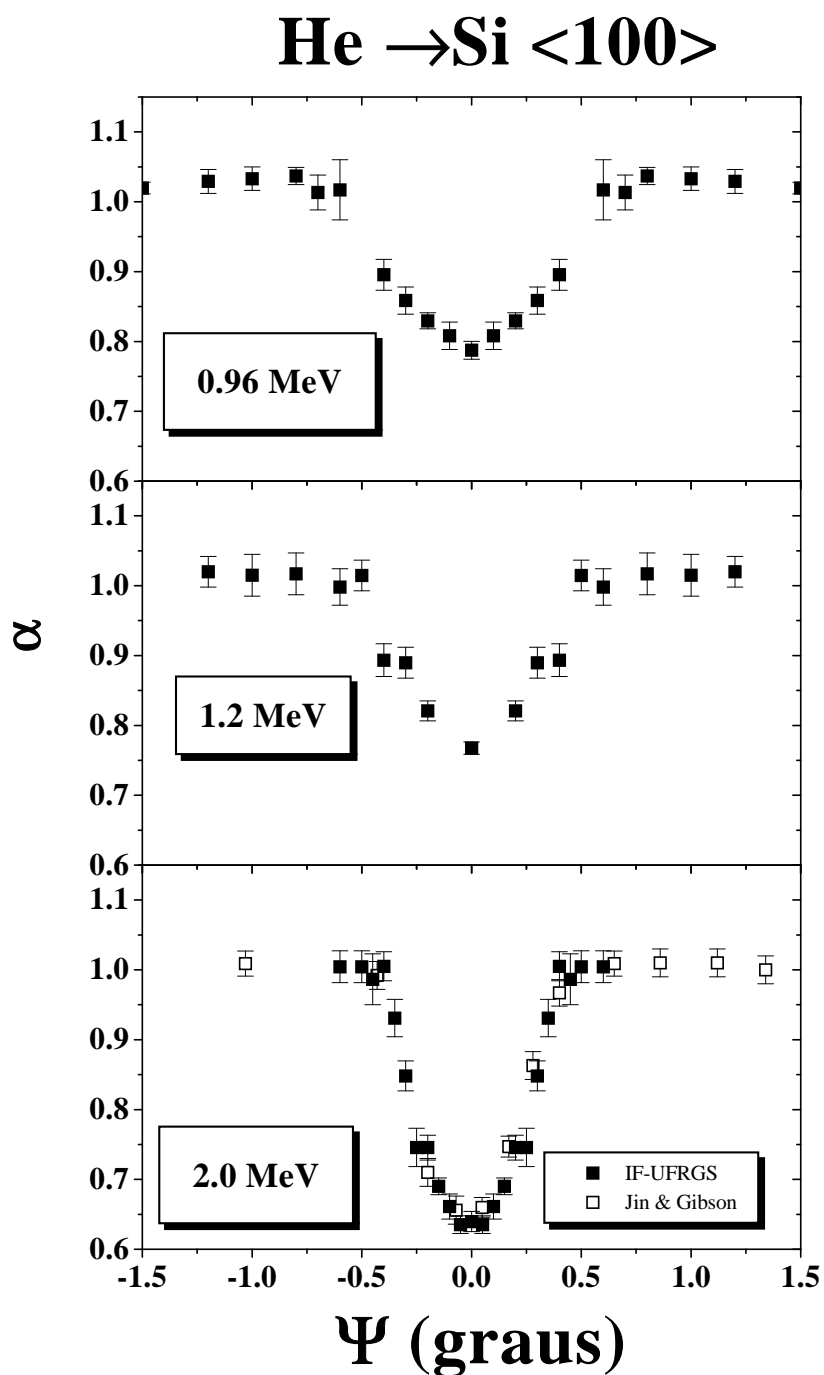


Fig. 7.3: Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Os símbolos vazios representam os dados experimentais da ref. [109].

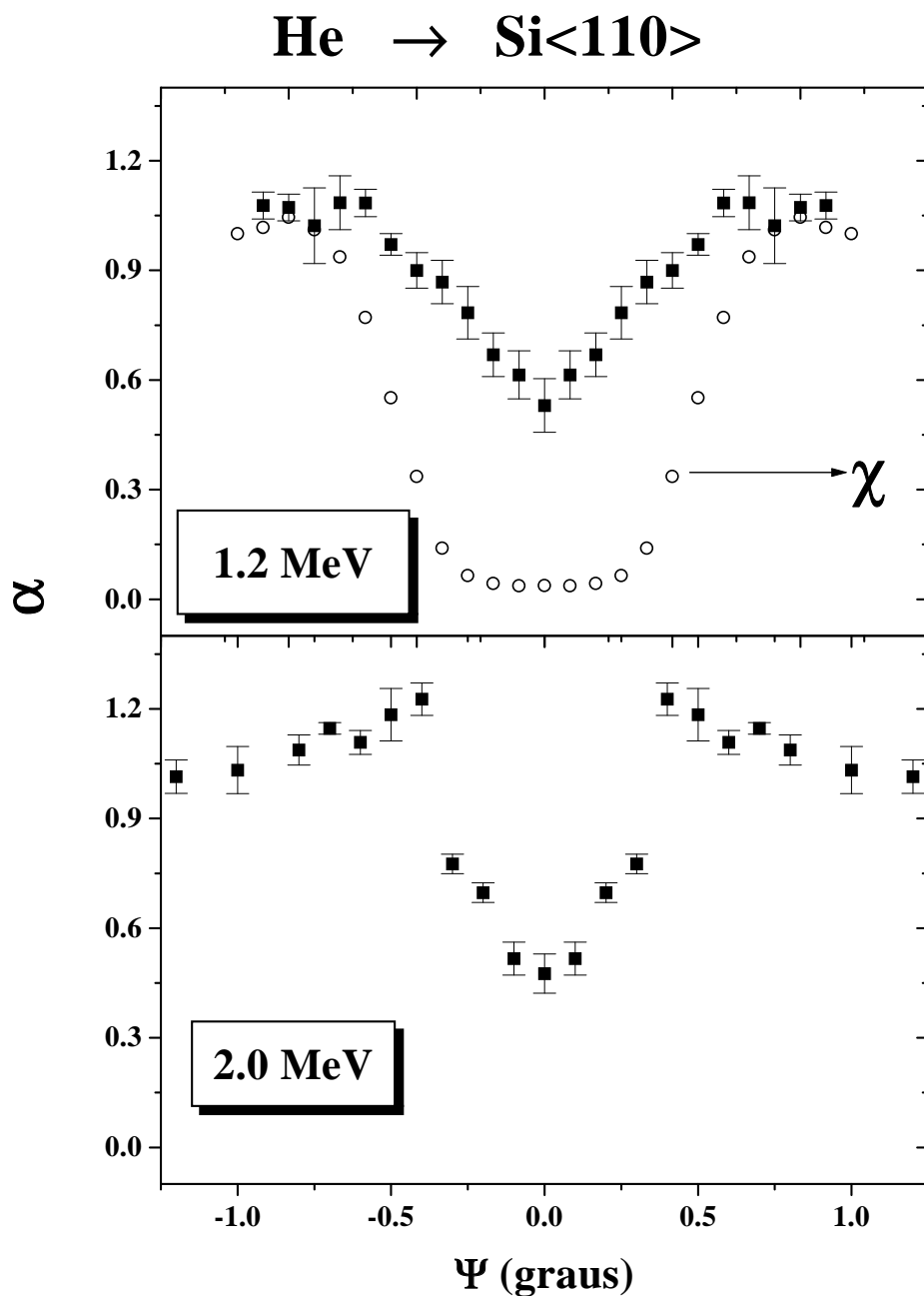


Fig. 7.4: Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 110 \rangle$ do Si. Os círculos vazios na metade superior da figura representam os valores experimentais da probabilidade de retroespalhamento próximo à superfície ($\chi(\Psi)$).

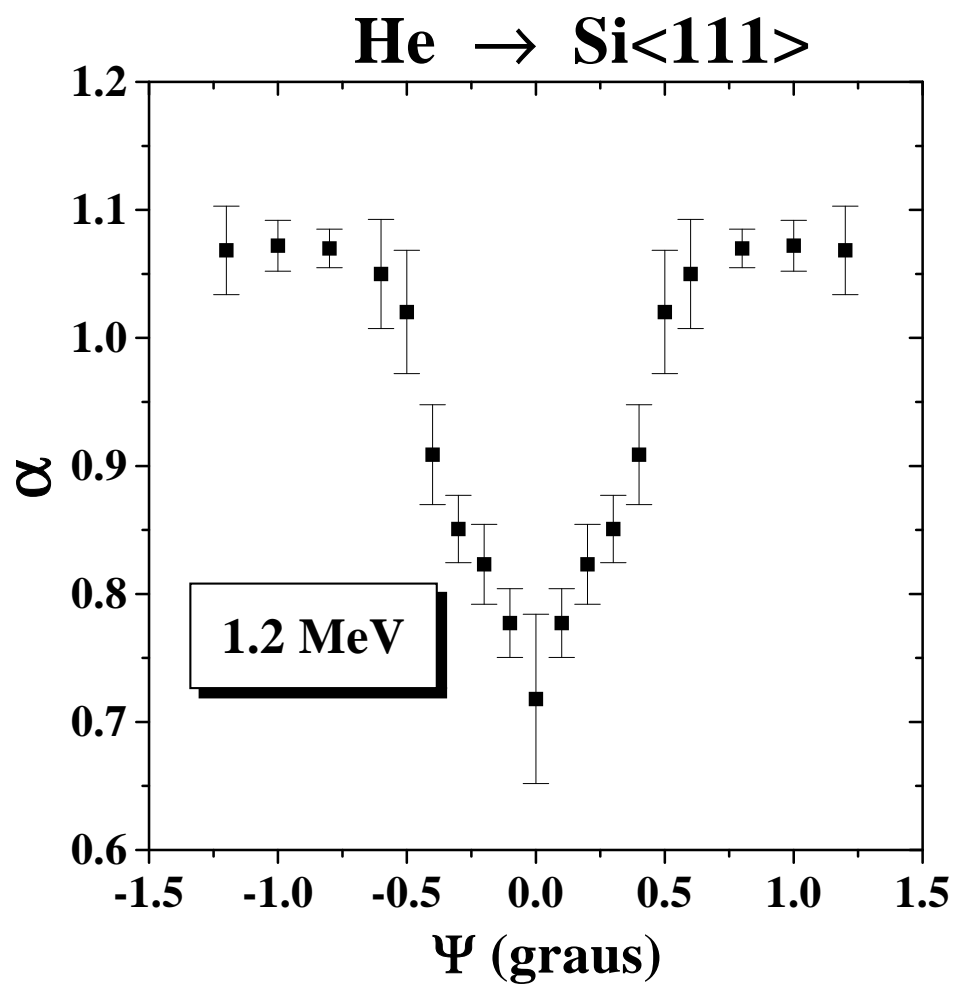


Fig. 7.5: Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de He canalizados em torno da direção $\langle 111 \rangle$ do Si.

caso, o poder de freamento de canalização é maior que o poder de freamento aleatório. Este comportamento, que também é verificado nos dados relativos à direção $\langle 111 \rangle$ (fig. 7.5), é explicado pelo fato de que nestas medidas nós não realizamos médias azimutais. Ao contrário, à medida que se aumentava o ângulo de incidência do feixe, passava-se de uma condição de canalização axial ao longo do canal $\langle 110 \rangle$ (ou $\langle 111 \rangle$) a uma situação de canalização planar perpendicular a um plano $\{110\}$. Como veremos adiante, o poder de freamento em condição de canalização planar pode exceder o poder de freamento aleatório. Outro aspecto importante apresentado na figura 7.4 se refere à largura da probabilidade de retroespalhamento, representada pelos círculos vazios, que é aproximadamente duas vezes maior que a largura da razão α . Isto indica que há trajetórias canalizadas em que os íons de He têm taxas de perda de energia tão grandes quanto em incidência aleatória. Isto pode ser explicado em termos das diferentes dependências com o parâmetro de impacto da perda de energia eletrônica e nuclear (que é a responsável pelo retroespalhamento).

7.3 Resultados das medidas da perda de energia de íons de Li canalizados

7.3.1 Dependência com a energia

Na figura 7.6 temos os resultados das medidas realizadas com íons de Li canalizados nas direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, representados pelos círculos cheios. Para obter estes dados, utilizamos os valores experimentais da perda de energia do Li em Si amorfo [111], representados pela linha contínua na figura 7.6. Como no caso do He, as barras de erro refletem, essencialmente, as flutuações nos dados das medidas individuais. O erro percentual médio para os dados do Li é de 10%.

Dentro dos erros experimentais, o poder de freamento nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ são iguais. Novamente, na direção $\langle 110 \rangle$, os valores do poder de freamento são cerca de 15 % menores que nas outras direções.

Com relação às razões α , a figura 7.7 mostra que o Li apresenta as mesmas características já discutidas para o caso do He. No entanto, na direção $\langle 110 \rangle$, não se observa o efeito de saturação verificado para o caso do He. A explicação para isto é muito simples. Em termos das velocidades dos projéteis, a energia de 3 MeV acima da qual se observa o efeito de saturação no He corresponde a uma energia de 5 MeV para o Li. Como não temos dados experimentais para o Li acima desta energia, nada podemos afirmar a respeito do efeito de saturação para o Li.

Nossos dados referentes à direção $\langle 100 \rangle$ foram parcialmente publicados na referência [112], no início de 1999. Na mesma época, Jiang [113] publicou dados para Li canalizado em Si $\langle 100 \rangle$ obtidos com a técnica de transmissão. Na parte superior da figura 7.6 os círculos vazios (Li \rightarrow Si $\langle 100 \rangle$) correspondem aos dados da ref. [113]. Em primeiro lugar, devemos observar que os dados para incidência aleatória obtidos por Jiang estão 5% acima dos nossos (linha sólida) o que indica um bom acordo entre estes dois conjuntos de dados. Em segundo lugar, os dados de Jiang para a perda de energia canalizada têm erro de 5%, estando, em média, 10% acima dos nossos. Portanto, levando-se em conta as barras de erro dos dois conjuntos de dados para incidência canalizada, conclui-se que ambos são perfeitamente

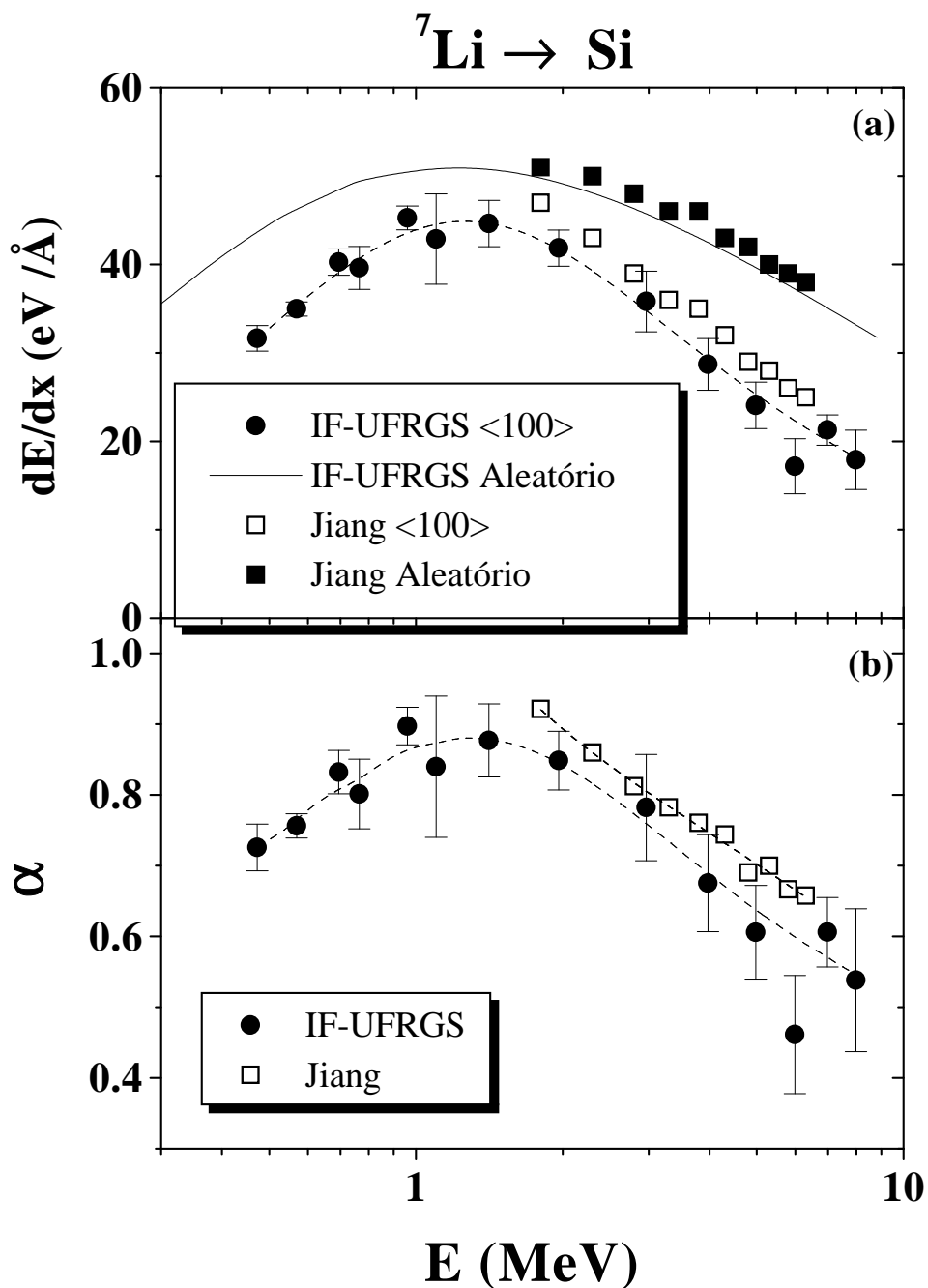


Fig. 7.6: Perda de energia de íons de ${}^7\text{Li}$ canalizados nas direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. Os círculos cheios são os resultados do presente trabalho. Os quadrados vazios são os resultados experimentais da ref. [113] A linha contínua corresponde aos dados experimentais do IF-UFRGS para Li incidente em Si amorfo[111] e as linhas tracejadas são o resultado do ajuste dos nossos dados experimentais com a fórmula 7.1.

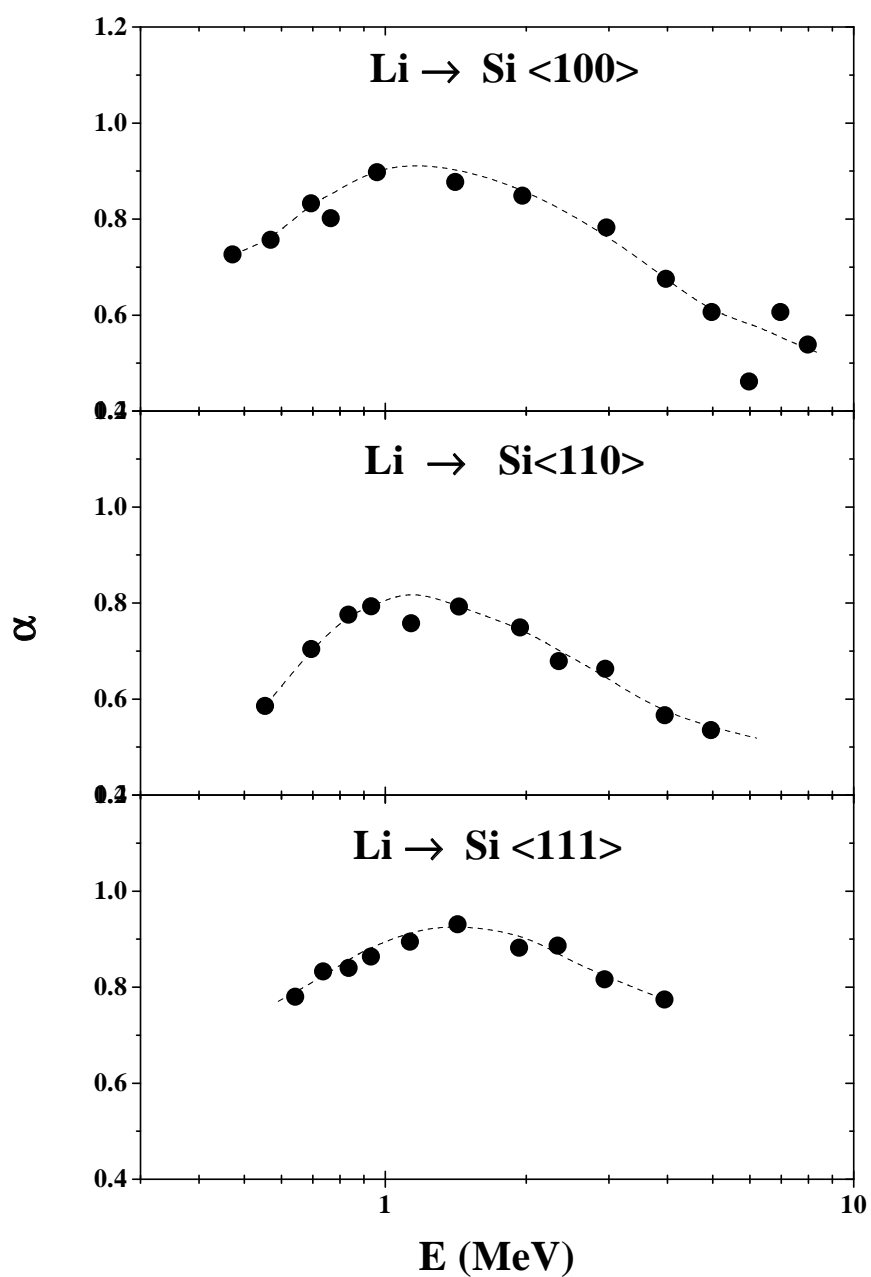


Fig. 7.7: Razão α como função da energia para íons de Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ (símbolos). As linhas tracejadas servem apenas para guiar os olhos do leitor.

Tab. 7.1: *Parâmetros de ajuste para os dados de perda de energia canalizada, realizados com a fórmula 7.1 (ref. [52]). Inserindo estes parâmetros na fórmula 7.1 juntamente com a energia do feixe em MeV's obtemos os valores da perda de energia em eV/Å.*

íon	E(MeV)	direção	α_0	α_1	α_2	α_3	α_4	β
⁴ He	0.2 - 6	$\langle 100 \rangle$	6.137e-2	-3.091e-2	-5.677e-2	4.317e-2	1.055e-1	16.788
⁴ He	0.35 - 5	$\langle 111 \rangle$	7.178e-1	-4.446e-2	-7.886e-2	6.648e-2	4.861e-2	1.557
⁴ He	0.3 - 6	$\langle 110 \rangle$	8.179e-2	-4.989e-2	-8.941e-2	7.522e-2	1.095e-1	6.418
⁷ Li	0.5 - 8	$\langle 100 \rangle$	1.216e-1	-8.130e-3	-6.576e-2	1.305e-2	5.317e-2	192.86
⁷ Li	0.65 - 4	$\langle 111 \rangle$	1.106e-1	-2.79e-2	-7.381e-2	5.317e-2	2.09e-2	31.42
⁷ Li	0.5 - 5	$\langle 110 \rangle$	1.129e-1	-4.119e-2	-9.218e-2	4.922e-2	2.54e-2	5.734

consistentes entre si.

Os dados de perda de energia apresentados nas figuras 7.1 e 7.6 podem ser condensados ajustando-os com a seguinte expressão semi-empírica proposta por S. Kalbitzer[52]:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{\sqrt{E} \ln(2.71828 + \beta E)}{\alpha_0 + \alpha_1 E^{1/4} + \alpha_2 E^{1/2} + \alpha_3 E + \alpha_4 E^{3/2}}, \quad (7.1)$$

onde β , α_0 , α_1 , α_2 , α_3 e α_4 são parâmetros de ajuste e E é a energia do feixe. A segunda coluna da tabela 7.1 indica o intervalo de energias no qual os ajustes são válidos. Os parâmetros de ajuste para os dados experimentais obtidos neste trabalho estão listados na tabela 7.1. Nela também estão listados os parâmetros de ajuste para os dados de perda de energia de He canalizado na direção $\langle 100 \rangle$ do Si, obtidos em trabalhos anteriores do nosso grupo[54]. Com estes parâmetros, a expressão 7.1 fornece a perda de energia em eV/Å quando a energia E é dada em MeV. O resultado dos ajustes estão apresentados como linhas tracejadas nas figuras 7.1 e 7.6. Como se pode observar, os dados experimentais são muito bem reproduzidos pela fórmula 7.1.

7.3.2 Dependência angular

Na figura 7.8 temos os dados referentes à dependência angular da perda de energia para íons de Li canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$ do Si. A razão α a $\Psi = 0^\circ$ é 0.84 e a largura da distribuição é de 0.58 graus. Assim como no caso dos íons de He canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$, os dados apresentados na figura 7.8 correspondem a uma média azimutal.

7.4 Discussão

No capítulo 2 nós comentamos que a seqüência de colisões correlacionadas que os íons do feixe experimentam em condição de canalização focaliza o feixe no centro do canal(*flux*

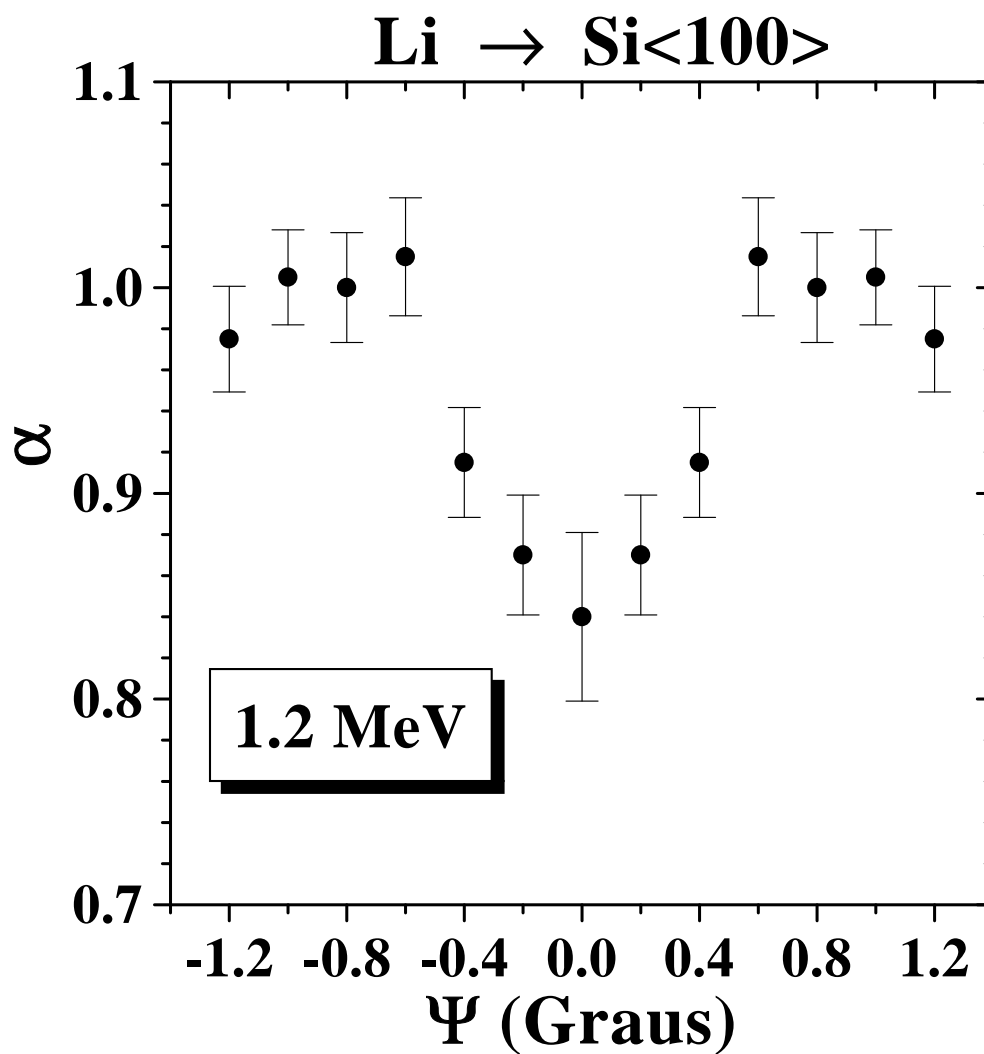


Fig. 7.8: Razão α , como função do ângulo de incidência do feixe, para íons de Lítio de 1.2 MeV canalizados em torno da direção $\langle 100 \rangle$ do Si.

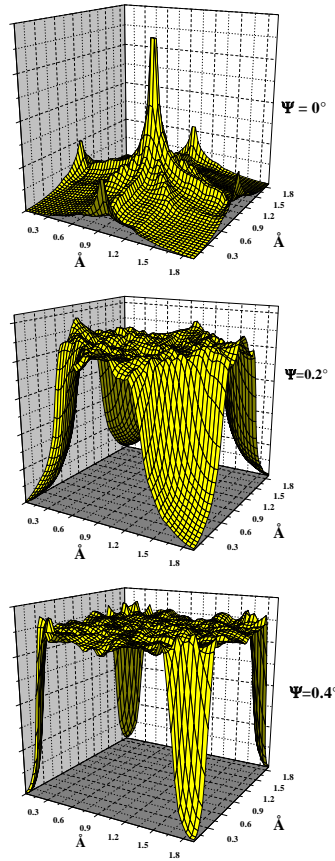


Fig. 7.9: Fluxo de partículas como função do ângulo de incidência do feixe Ψ .

peaking). Isto explica a redução da perda de energia canalizada, em relação à perda de energia aleatória, para um feixe bem canalizado ($\Psi = 0^\circ$). À medida que se aumenta o ângulo de incidência do feixe, o fluxo tende a ficar uniforme (equivalente a uma incidência aleatória). A figura 7.9 ilustra o que acabamos de dizer com uma representação gráfica tridimensional do fluxo de partículas no canal $\langle 100 \rangle$. A modificação do fluxo com o aumento de Ψ explica a dependência angular perda de energia observada nos dados experimentais apresentados acima. Vimos que a perda de energia é mínima para $\Psi = 0^\circ$ (focalização máxima do fluxo) e tende ao valor aleatório à medida que se aumenta Ψ (fluxo uniforme).

O poder de freamento em regime de canalização não depende apenas do fluxo de íons dentro do canal, mas também é reflexo da dependência da perda de energia inelástica (Q) que ocorre numa colisão binária com parâmetro de impacto b . A energia média perdida pelo feixe após atravessar uma espessura t do cristal é dada pela seguinte equação:

$$\Delta E(\Psi, E_0) = \frac{1}{d} \frac{\int_A d^2\rho \Phi(E_0, \Psi, \vec{\rho}) Q(\vec{\rho}, E_0)}{\int_A d^2\rho \Phi(E_0, \Psi, \vec{\rho})}, \quad (7.2)$$

onde, A , é a área transversal do canal, $\vec{\rho}$ é o vetor posição do elemento de área $d^2\rho$ ($\vec{\rho} = 0$ corresponde ao centro do canal) e

$$\Phi(E_0, \Psi, \vec{\rho}) = \frac{1}{t} \int_0^t dz \Phi(E_0, \Psi, \vec{\rho}, z) \quad (7.3)$$

é a média do fluxo no elemento de área $d^2\rho$, ao longo da espessura t . $Q(\vec{\rho}, E_0)$ é a perda de energia de um íon localizado na posição $\vec{\rho}$ devido às interações com as colunas de átomos em torno do centro do canal e d é a distância interatômica ao longo da direção de canalização.

Para calcular a perda de energia dos íons canalizados como função posição dentro do canal ($Q(\vec{\rho})$) nós consideramos a contribuição de cada átomo de Si em torno do canal. Por exemplo, na direção $\langle 100 \rangle$, $Q(\vec{\rho})$ é dado por

$$Q(\vec{\rho}) = Q(b_1) + Q(b_2) + Q(b_3) + Q(b_4) \quad (7.4)$$

e na direção $\langle 110 \rangle$ por

$$Q(\vec{\rho}) = Q(b_1) + Q(b_2) + Q(b_3) + Q(b_4) + Q(b_5) + Q(b_6) \quad (7.5)$$

onde os parâmetros de impacto b_i estão definidos na figura 7.10

A equação 7.2 relaciona uma grandeza física macroscópica e experimentalmente acessível (perda de energia como função do ângulo de incidência do feixe) com uma grandeza microscópica ($Q(b)$) onde estão embutidas as interações entre o íon e o sistema eletrônico do alvo. A quantidade que faz esta ligação é o fluxo de íons. Assim, para calcularmos o poder de freamento de canalização, devemos ser capazes de calcular o fluxo de partículas no canal e, também, a perda de energia como função do parâmetro de impacto.

Nas seções a seguir, vamos apresentar o procedimento utilizado para calcular $Q(b)$ e o fluxo de íons.

7.4.1 Cálculo do fluxo de íons dentro do canal.

A fim de obtermos o fluxo de íons num elemento de área transversal do canal $d^2\rho$ é necessário determinar, para um ensemble de trajetórias canalizadas, o número de trajetórias que atravessam o elemento de área em questão, numa profundidade entre z e $z + dz$. Na determinação das trajetórias canalizadas, utilizamos o modelo contínuo [1, 2], que discutimos no capítulo 2. Como vimos, a utilização de um potencial médio, no caso da canalização axial, reduz o problema do cálculo das trajetórias à solução das equações de movimento no plano x-y, transversal à direção de canalização.

O potencial contínuo devido a uma coluna de átomos foi obtido a partir do potencial ZBL. Nós incorporamos o efeito das vibrações térmicas nas simulações convoluindo o potencial da coluna com a distribuição gaussiana que descreve os deslocamentos transversais dos átomos da rede [1, 2]. Nós consideramos $\sigma = 0.083 \text{ \AA}$ para a raiz quadrática média da amplitude de vibração unidimensional à temperatura ambiente, de acordo com a temperatura de Debye que obtivemos nos experimentos com íons pesados [87]. Para obter o potencial $U(x, y)$ que governa o movimento transversal das trajetórias canalizadas, somamos o potencial contínuo das colunas vizinhas ao centro do canal. Na figura 7.10 temos uma ilustração da disposição espacial das colunas de átomos paralelas às direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. Para descrever $U(x, y)$ consideramos a interação do íon canalizado com as colunas de átomos representadas pelos círculos cheios na figura 7.10, ou seja, consideramos as interações com 4, 6 e 7 colunas nas direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, respectivamente. Nós verificamos que a inclusão de mais colunas na descrição de $U(x, y)$ não altera os resultados das simulações. As

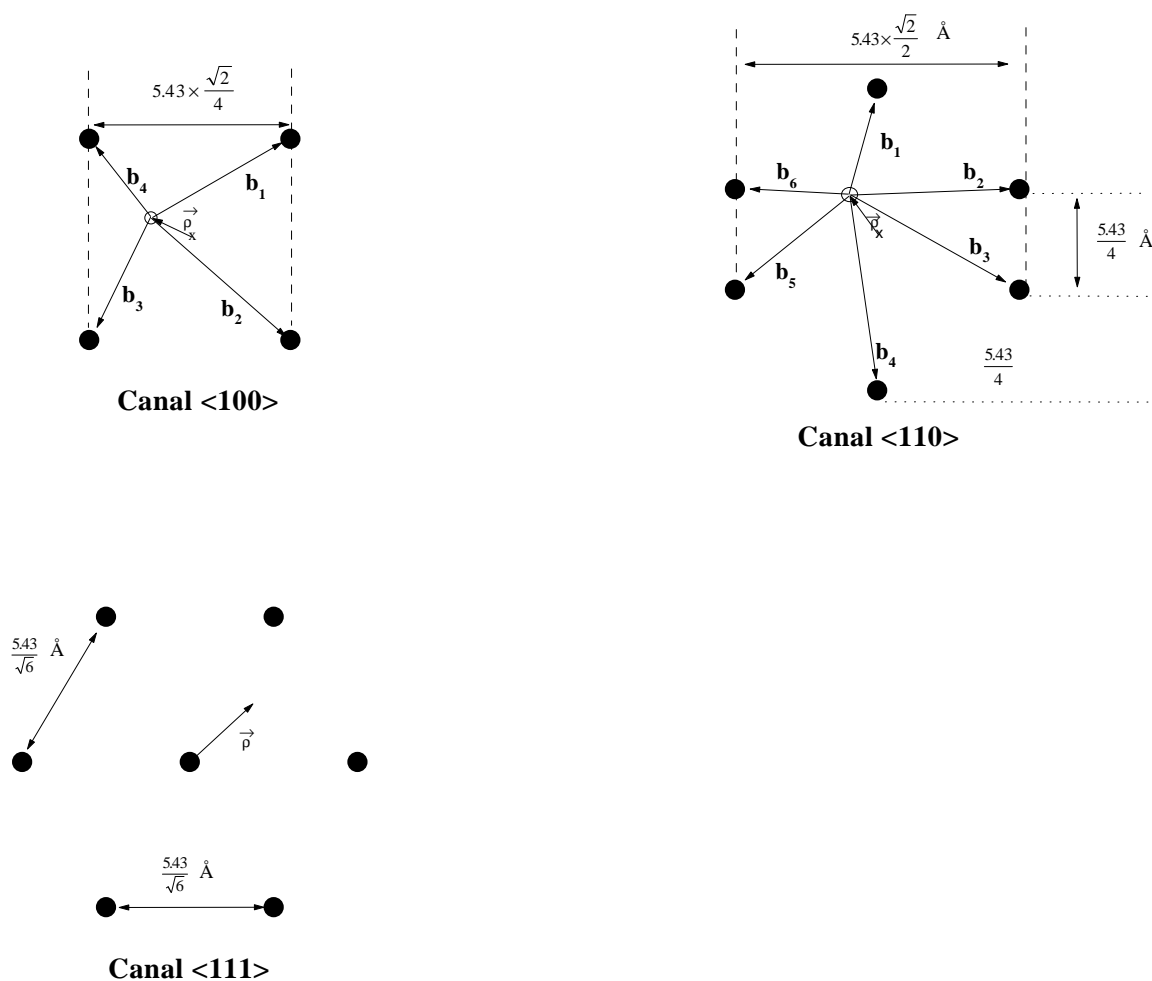


Fig. 7.10: Disposição espacial das colunas de átomos paralelas às direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si.

curvas de nível dos potenciais $U(x, y)$ obtidos pelo procedimento descrito acima se encontram apresentadas na figura 7.11.

De posse do potencial contínuo $U(x, y)$, as trajetórias canalizadas foram obtidas sorteando-se uma posição inicial dentro do canal e uma velocidade transversal inicial compatível com o ângulo Ψ de incidência e com a velocidade das partículas do feixe. Dadas as condições iniciais, as trajetórias foram determinadas pela solução numérica das equações de Newton governadas pelo potencial $U(x, y)$ onde utilizamos o método de Runge-Kutta de quarta ordem [114]. Na figura 7.9 temos exemplos dos fluxos na direção $\langle 100 \rangle$ obtidos com a simulação que acabamos de descrever.

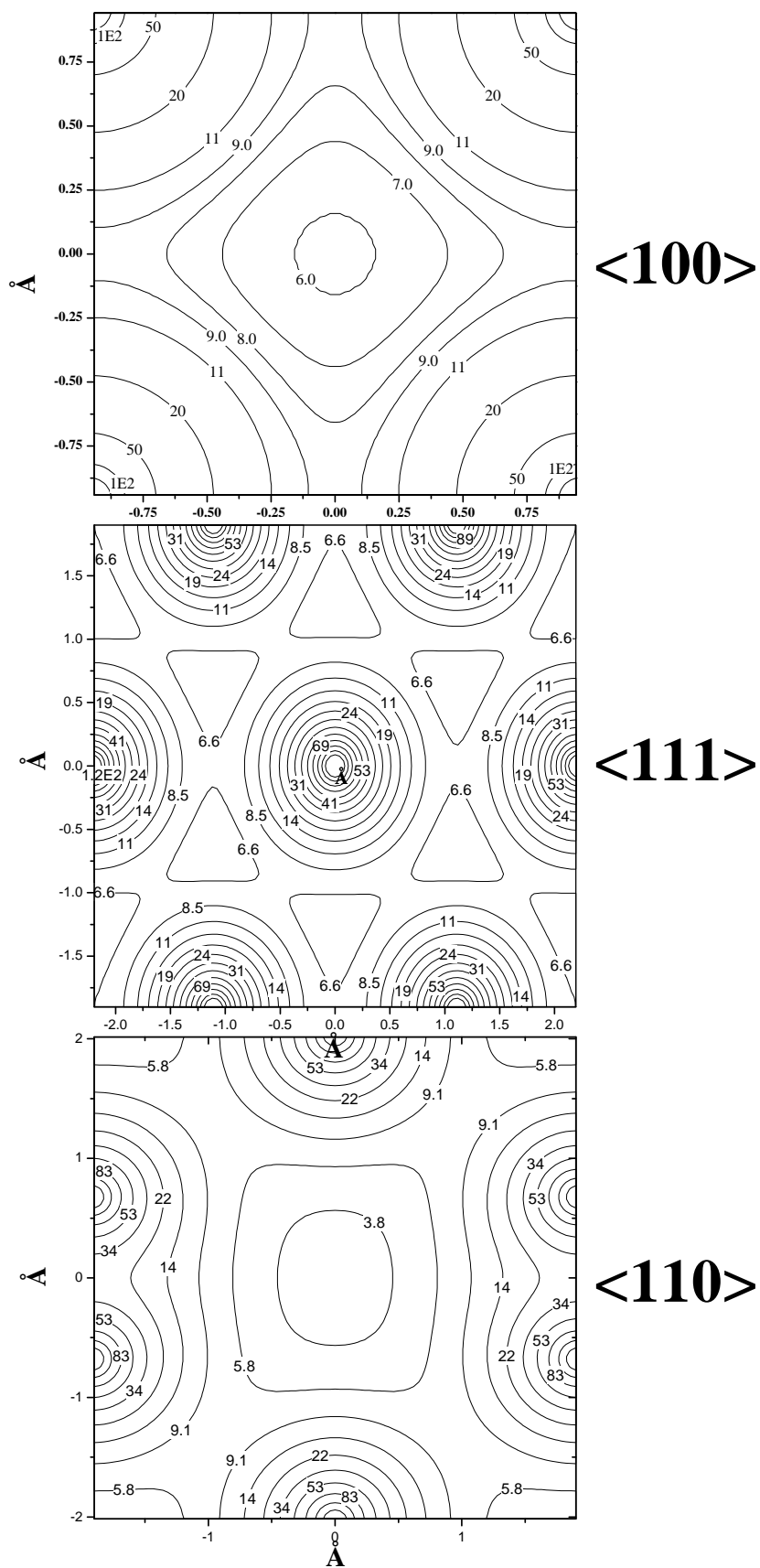


Fig. 7.11: Curvas de nível do potencial $U(x,y)$ (eV) para as direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si.

7.4.2 Determinação de $Q(b)$

Uma abordagem freqüentemente utilizada para descrever colisões atômicas é o método do parâmetro de impacto. Nesta aproximação considera-se que o projétil viaja ao longo de uma trajetória clássica causando uma perturbação dependente do tempo nos elétrons do átomo-alvo. Neste caso, a perda de energia como função do parâmetro de impacto é obtida a partir da seguinte expressão quanto-mecânica:

$$Q(b) = \sum_f |a_f(\vec{b})|^2 (\epsilon_f - \epsilon_i) \quad (7.6)$$

que envolve uma soma sobre todos os estados finais eletrônicos do alvo e o cálculo das amplitudes de transição correspondentes.

Um dos métodos mais sofisticados para se resolver a equação 7.6 é o Método dos Canais Acoplados (AO)[115, 116, 117, 118]. Este método consiste em resolver a equação de Schrödinger dependente do tempo para o elétron do ativo do alvo. Isto é realizado expandindo a função de onda do elétron numa base truncada de orbitais atômicos. Então um conjunto de equações diferenciais acopladas para os coeficientes dessa expansão, os chamados canais acoplados, é integrado numericamente ao longo da trajetória clássica do projétil, para um dado parâmetro de impacto. O modelo de partículas independentes é utilizado para um elétron ativo que se move no campo eletrostático devido aos núcleos e aos outros elétrons do sistema, que se supõe estarem “congelados”. Desta maneira, a essência do método está em resolver numericamente os canais acoplados a fim de obter as amplitudes $a_f(\vec{b})$ para transições entre um estado ocupado inicial i de energia ϵ_i e um estado final desocupado ligado ou de contínuo de energia ϵ_f .

Um dos méritos do método AO é que os processos de captura eletrônica estão automaticamente embutidos no cálculo de $Q(b)$. No entanto, o método tem como grande desvantagem o fato de demandar um grande esforço computacional.

Uma abordagem alternativa ao método AO é a aproximação semiclássica (SCA) que é utilizada quando $\chi = 2Z_p/v_p \ll 1$, onde Z_p e v_p são o número atômico e a velocidade do projétil, respectivamente. Neste caso, a interação entre o projétil e os elétrons do alvo pode ser considerada uma pequena perturbação e as amplitudes de transição podem ser obtidas em primeira ordem de teoria de perturbação dependente do tempo. Em unidades atômicas, as amplitudes $a_f(\vec{b})$ são dadas por:

$$a_f(\vec{b}) = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i(\epsilon_f - \epsilon_0)t} \langle f | V[\vec{r} - \vec{R}(t)] | 0 \rangle \quad (7.7)$$

onde $V[\vec{r} - \vec{R}(t)]$ é o potencial de interação entre o projétil e o elétron ativo e $\vec{R}(t)$ e \vec{r} são os vetores posição do projétil e do elétron, respectivamente. No entanto, mesmo em primeira ordem, o cálculo das amplitudes de transição e de $Q(b)$ envolve um esforço computacional que torna sua implementação proibitiva em qualquer programa de simulação de interações íon-matéria.

Existem soluções analíticas para a equação 7.7 válidas em intervalos restritos de parâmetros de impacto. Baseados nestas soluções analíticas, Grande e Schiwietz [119] propuseram um modelo simples para o cálculo de $Q(b)$ que consegue reproduzir os resultados de cálculos em primeira ordem, para todos os parâmetros de impacto e sem a necessidade de cálculos

pesados. Eles demonstraram que, em primeira ordem, $Q(b)$ é essencialmente, a convolução da densidade eletrônica do alvo com um certo *Kernel*. Por esta razão o modelo foi denominado Aproximação de Convolução Perturbativa ou PCA (Perturbative Convolution Approximation).

Um dos pontos fracos do modelo PCA está relacionado com a descrição de colisões com pequenos parâmetros de impacto. A PCA assume tacitamente que nestas colisões os elétrons do alvo estão parados. Esta hipótese só pode ser feita se a velocidade do projétil for muito maior que a velocidade orbital dos elétrons. Como resultado, o modelo PCA prevê transferências de energia da ordem de $T = 2m_e V_p^2$ em colisões com pequeno parâmetro de impacto, o que não ocorre se os elétrons do alvo tiverem velocidades altas o suficiente para se ajustarem adiabaticamente ao movimento do projétil. Como resultado, o modelo PCA tende a superestimar a perda de energia em colisões com pequenos parâmetros de impacto. Outro problema com o modelo PCA está relacionado com o fato de que, em primeira ordem de teoria de perturbação, as probabilidades de transição são proporcionais a Z_p^2 . Isto quer dizer que elas podem exceder 100% para projéteis pesados (grandes valores de Z_p). Por esta razão, os modelos baseados em teoria de perturbação em primeira ordem são ditos não-unitários. Novamente, este efeito leva a uma superestimativa de $Q(b)$ para baixas velocidades do projétil e pequenos parâmetros de impacto.

A fim de contornar algumas das limitações do modelo PCA, Grande e Schiwietz [120] propuseram uma extensão ao modelo PCA que incorpora efeitos não perturbativos à descrição da perda de energia. Neste modelo, denominado Aproximação de Convolução Unitária ou UCA (Unitary Convolution Approximation), a unitariedade do modelo é imposta *ad-hoc* pela restrição de que a seção de choque de freamento esteja em acordo com a teoria de Bloch. A principal modificação do modelo UCA com relação ao modelo PCA reside no tratamento das colisões com pequenos parâmetros de impacto. Maiores detalhes podem ser encontrados no apêndice B, onde os modelos PCA e UCA se encontram descritos detalhadamente.

Nas suas versões originais, os modelos PCA e UCA descrevem a perda de energia de íons nús. No entanto, a fim de descrever corretamente a perda de energia de íons interagindo com alvos sólidos, é necessário levar em consideração que os projéteis podem ter elétrons ligados. Por esta razão, uma das contribuições deste trabalho consistiu em estender os modelos PCA e UCA para projéteis blindados. Estes cálculos estão descritos em detalhes no apêndice B. Aqui, por razões didáticas, vamos apresentar apenas alguns resultados.

Cálculo de $Q(b)$ para o He

Para energias acima de 0.3 MeV, apenas dois estados de carga do He são populados durante a passagem do feixe por uma amostra de Si: He^+ e He^{2+} [121]. Assim, para o He, $Q(b)$ é a soma da contribuição devido ao He^+ e ao He^{2+} ($Q^+(b)$ e $Q^{++}(b)$, respectivamente). Um íon de He^{2+} pode excitar e ionizar os átomos de Si do alvo e pode também capturar elétrons do Si. Portanto, $Q^{++}(b)$ é dada por

$$Q^{++}(b) = Q_{exc}^{++}(b) + Q_{cap}^{++}(b) \quad (7.8)$$

onde $Q_{exc}^{++}(b)$ corresponde às excitações e ionizações do alvo e $Q_{cap}^{++}(b)$ é a parcela devida a

processos de captura. Por outro lado, um íon de He^+ também produz excitações e ionizações nos átomos do alvo. Além disso, no referencial do He^+ , os átomos de Si desempenham o papel de um projétil que pode excitar ou ionizar o íon de He^+ . Sendo assim,

$$Q^+(b) = Q_{exc}^+(b) + Q_{loss}^+(b) \quad (7.9)$$

onde $Q_{loss}^+(b)$ corresponde aos processos de excitação e ionização do He^+ pelo Si. Aqui, é importante salientar que os cálculos baseados nos modelos PCA e UCA não consideram a contribuição devido à captura eletrônica. O cálculo desta contribuição é bastante complicado, mesmo em primeira ordem de teoria de perturbação, requerendo a utilização de métodos mais sofisticados, como o método dos canais acoplados, por exemplo. Sendo assim, se desconsiderarmos os processos de captura, a perda de energia média como função do parâmetro de impacto é:

$$Q(b) = f_1((Q_{loss}^+ + Q_{exc}^+)) + f_2(Q_{exc}^{++}) \quad (7.10)$$

onde os f_n são as frações de carga de equilíbrio para os íons de He^{n+} .

Cálculo de $Q(b)$ para o Li

O cálculo de $Q(b)$ para o Li é realizado de maneira completamente análoga ao caso do He. A única diferença é que temos que levar em conta a contribuição devido a três estados de carga: Li^+ , Li^{2+} e Li^{3+} . Sendo assim, a perda de energia média como função do parâmetro de impacto para o Li é:

$$Q(b) = f_1((Q_{loss}^+ + Q_{exc}^+)) + f_2((Q_{loss}^{2+} + Q_{exc}^{2+})) + f_3 Q_{exc}^{3+} \quad (7.11)$$

onde os f_n são as frações de carga para os íons de Li^{n+} que retiramos da ref. [113].

Alguns resultados dos cálculos de $Q_{exc}^+(b)$ e $Q_{loss}^+(b)$ para o sistema He-Si obtidos com os modelos PCA e UCA estão apresentados na figura 7.12. No painel (a) temos os resultados dos cálculos PCA e no (b) os resultados dos cálculos UCA. Os símbolos são os resultados de cálculos completos SCA. No painel (c), comparamos os cálculos UCA e PCA.

Os círculos na figura 7.12 correspondem ao cálculo SCA para $Q_{loss}^+(b)$. Como se pode observar, o acordo dos cálculos PCA com cálculos SCA é excelente. Com relação ao intervalo de parâmetros de impacto $b > 2.5$ u. a., existe um aparente desacordo entre os cálculos PCA e SCA. Na verdade, podemos atribuir estas diferenças ao truncamento da base (ondas parciais até $l = 17$) na qual as funções de onda são expandidas nos cálculos SCA. Como verificamos, quanto maior o número de ondas parciais incluídas no cálculo SCA, melhor o acordo PCA-SCA. A figura 7.12 também mostra os resultados para $Q_{exc}^+(b)$ (quadrados). Novamente, o acordo PCA-SCA é excelente para grandes parâmetros de impacto. No entanto, para pequenos parâmetros de impacto ($b \ll 1$), observa-se diferenças significativas. Como se percebe, o modelo PCA superestima $Q(b)$ em colisões com pequeno parâmetro de impacto. Isto se deve, como já comentamos acima, ao fato do modelo PCA não considerar o movimento dos elétrons das camadas internas do Si.

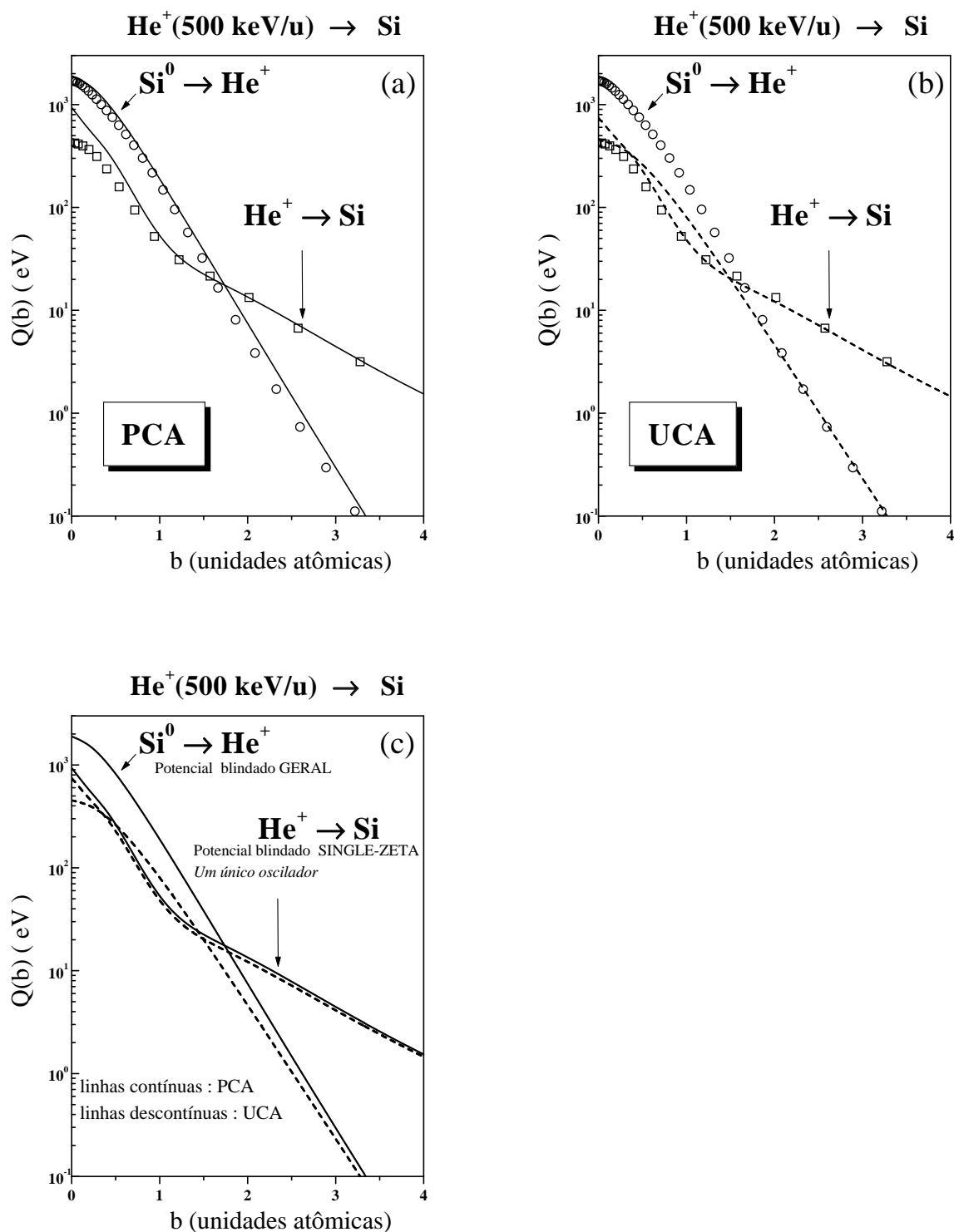


Fig. 7.12: Comparação dos cálculos PCA e UCA com cálculos SCA para um íon de He⁺ colidindo com um átomo de Si. As linhas tracejadas correspondem aos cálculos UCA. Os cálculos PCA estão representados pelas linhas contínuas e os cálculos SCA, pelos símbolos.

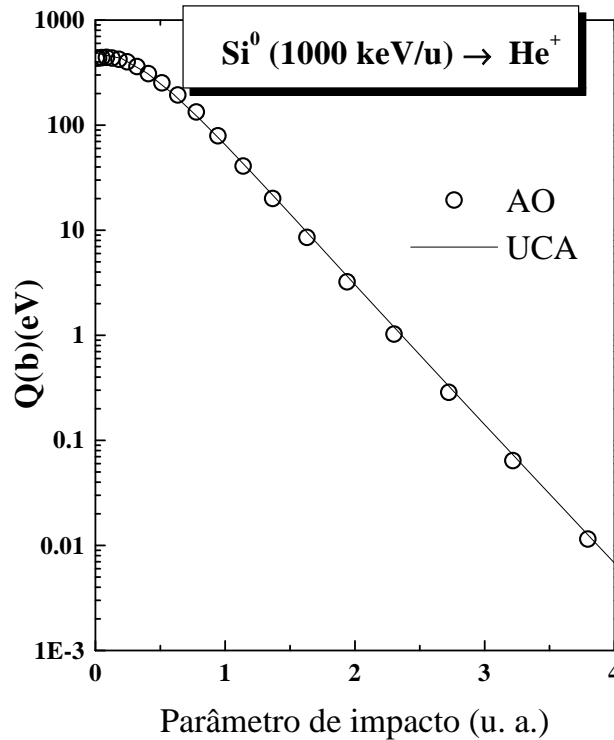


Fig. 7.13: Comparação dos resultados de $Q_{loss}^+(b)$ obtidos com o o modelo UCA e com o método de canais acoplados

É interessante comparar os cálculos PCA com os cálculos UCA (linhas tracejadas) no painel (c) da figura 7.12. Como se pode verificar $Q_{exc}^+(b)$ (linha pontilhada) calculado pelo método UCA é muito semelhante, porém sempre menor que o resultado obtido no método PCA (linha contínua). Outro ponto em comum entre os dois modelos reside no fato que o modelo UCA também superestima $Q_{exc}^+(b)$ para pequenos parâmetros de impacto, quando comparado aos cálculos AO. Novamente, isto resulta das aproximação de que os elétrons estão parados nas colisões com pequenos parâmetros de impacto.

Por outro lado, grandes diferenças são observadas quando se compara $Q_{loss}^+(b)$ obtido pelos dois métodos. Em $b = 0$, o valor PCA é quatro vezes maior que o valor UCA! Estas diferenças têm origem na não unitariedade do modelo PCA que discutimos acima. No caso da ionização do He^+ pelo Si, $Z_p = 14$, o que não permite a hipótese de que a interação deste elétron com o projétil possa ser considerada uma pequena perturbação.

Para alvos leves, o modelo UCA fornece valores de $Q_{loss}^+(b)$ que são muito próximos aos valores obtidos no método dos canais acoplados. Isto pode ser confirmado por uma inspeção da figura 7.13. Os resultados de canais acoplados, por sua vez, predizem acuradamente a seção de choque de ionização de projéteis de He^+ colidindo com diversos alvos gasosos ($\text{He}^+ \rightarrow \text{He}, \text{Ne}, \text{Ar}, \text{Kr}$) [122]. Estas observações nos permitem afirmar que o modelo UCA

fornece uma boa descrição para $Q_{loss}(b)$.

7.4.3 Cálculo da perda de energia como função da energia do projétil

A discussão acima permite estabelecer uma ordem hierárquica entre os métodos de cálculo de $Q(b)$ que discutimos acima. O método AO fornece os melhores resultados para $Q(b)$ porque inclui todos os efeitos de alta ordem, como captura e a unitariedade. Já o método UCA é unitário, porém não inclui captura eletrônica. Finalmente, o método PCA além de não incluir captura é não unitário. Em vista disso, poderíamos muito bem descartar *a priori* os modelos UCA e PCA e nos atermos simplesmente aos resultados do modelo AO. No entanto, como já citamos anteriormente, os cálculos AO envolvem um grande esforço computacional e, além disso, poucos grupos no mundo dominam esta técnica. Mesmo os cálculos SCA, que são mais simples, em princípio, só vieram a ser realizados recentemente [123]. Por esta razão, a comunidade que realiza simulações de interações íon-matéria tem preferido utilizar fórmulas semi-empíricas como o modelo de Robinson e Oen, modelos baseados em LDA [124] ou modelos altamente simplificados como o modelo de Firsov. Os modelos PCA e UCA, além de serem baseados em primeiros princípios, têm a grande vantagem de não demandarem cálculos pesados. Por exemplo, um cálculo de $Q(b)$ com os modelos PCA ou UCA demora menos de 5 minutos para ser realizado num computador pessoal. Pela primeira vez, cálculos *ab initio* se tornaram acessíveis à comunidade que realiza simulações de interações íon-matéria.² Por isso, é importante testar os limites de validade das hipóteses envolvidas nos modelos PCA e UCA, o que pode ser realizado confrontando os resultados teóricos com dados experimentais. Além disso, como veremos adiante, a comparação dos nossos dados experimentais com os modelos PCA e UCA permitirá inferir a contribuição dos diferentes mecanismos de perda de energia ao poder de freamento total

Antes de compararmos os resultados dos modelos PCA e UCA com dados experimentais de perda de energia é importante ter em mente as limitações desses modelos. Na lista abaixo, resumimos as principais observações feitas nos parágrafos acima:

1. Os modelos PCA e UCA não incluem captura eletrônica.
2. PCA é não-unitário \rightarrow superestima Q_{loss} para pequenos parâmetros de impacto quando $V_p \sim < V_e >$
3. UCA descreve bem Q_{loss} .
4. PCA e UCA superestimam Q_{exc} em pequenos parâmetros de impacto.

As limitações listadas acima tendem a desaparecer com o aumento da velocidade do projétil. Também é importante lembrar que os processos de captura ocorrem, preferencialmente, em colisões com pequeno parâmetro de impacto. Para que sejam conservados a energia e o momentum total no processo de captura, é necessária a participação de três partículas. Embora elétrons de valência possam ser capturados em processos de captura eletrônica radiativa, onde um fóton (terceira partícula) é emitido, os elétrons capturados vêm, preferencialmente, das camadas internas do Si. Neste caso, quem faz o papel de terceira partícula é o núcleo de Si.

² Os cálculos PCA e UCA são realizados com o programa CasP, disponível na seguinte página da internet: <http://www.hmi.de/people/schiwietz/casp.html>

Hélio

Na figura 7.14 nós comparamos a perda de energia de He em Si amorfo calculada pelos modelos PCA e UCA (símbolos) com os resultados experimentais da referência [52]. Nestes cálculos, $Q(b)$ foi determinado pela equação 7.10 com valores f_1 e f_2 tomados da referência [121]. A perda de energia foi obtida por intermédio da seção de choque de freamento:

$$\frac{dE}{dx} = N \int_0^\infty 2\pi b db Q(b), \quad (7.12)$$

onde N é a densidade atômica do Si.

Com relação aos resultados do modelo UCA, temos um excelente acordo com os dados experimentais para todo o intervalo de energias entre 1 e 10 MeV. Este bom acordo pode ser explicado da seguinte maneira. Acima de 3 MeV, o He^{++} corresponde a 95% dos íons presentes dentro da amostra. Como resultado, os processos dominantes de perda de energia são a excitação e a ionização dos átomos de Si pelos íons de He^{++} (Q_{exc}). Além disso, para altas energias, o excesso de Q_{exc} para pequenos parâmetros de impacto resulta numa contribuição desprezível à seção de choque de freamento. Para energias abaixo de 3 MeV, à medida que se reduz a energia do projétil, os mecanismos de troca de carga assumem um papel progressivamente mais importante na determinação do poder de freamento. No entanto, só estamos considerando a contribuição devido à ionização do He^+ que, como comentamos acima é bem descrita no modelo UCA. Por outro lado, o excesso de Q_{exc} para pequenos parâmetros de impacto também se torna progressivamente maior à medida que se diminui a energia do projétil. Portanto, o bom acordo teórico experimental observado no intervalo de energias entre 1 e 3 MeV indica que o excesso que Q_{exc} compensa a ausência da captura eletrônica no modelo UCA.

No caso do modelo PCA, os resultados concordam com os dados experimentais acima de 4 MeV. Para energias mais baixas que 4 MeV, o modelo PCA fornece valores que superestimam a perda de energia, divergindo completamente da tendência dos dados experimentais à medida que se diminui a energia. O bom acordo verificado em energia acima de 4 MeV pode ser explicado com os mesmos argumentos utilizados para explicar o bom acordo verificado com o modelo UCA. O desacordo para baixas energias resulta do excesso de Q_{loss} devido à não unitariedade do modelo PCA.

Os cálculos PCA e UCA para a perda de energia canalizada como função da energia do projétil estão apresentados na figura 7.15. As linhas contínuas correspondem aos cálculos PCA as linhas tracejadas são os cálculos UCA e as linha pontilhadas são cálculos de canais acoplados (AO) retirados das referências [54, 105]. Na parte (a) da figura 7.15 comparamos nossos cálculos com os dados experimentais da perda de energia canalizada ao longo da direção $\langle 100 \rangle$ obtidos em trabalhos anteriores do grupo de implantação iônica da UFRGS (quadrados vazios) [97, 54]. Nas partes (b) e (c) temos os dados experimentais para as direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$, respectivamente.

Com relação aos resultados das simulações PCA, nas três direções temos um bom acordo teórico experimental para energias acima de 2 MeV. Para energias menores que 2 MeV, os cálculos PCA tendem a superestimar levemente a perda de energia, efeito que se intensifica com a diminuição da energia. Mesmo assim, o acordo geral com os dados experimentais

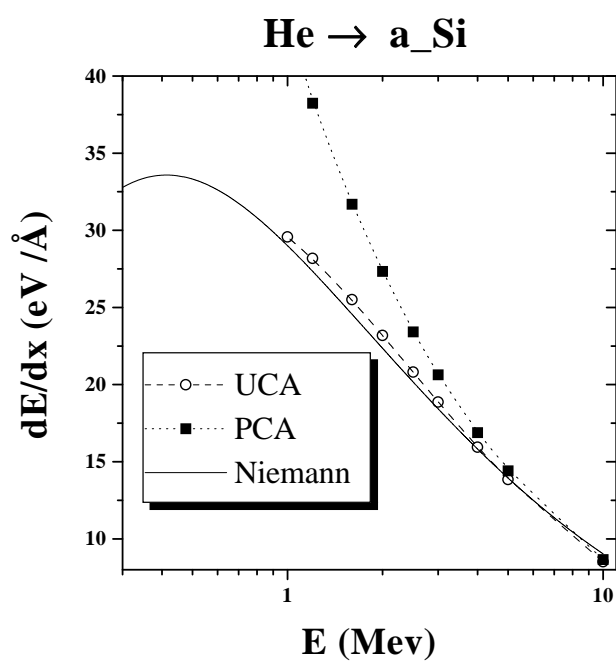


Fig. 7.14: Comparação dos cálculos PCA e UCA (quadrados e círculos, respectivamente), com dados experimentais da perda de energia de He em Si amorfo da ref. [52] (linha contínua).

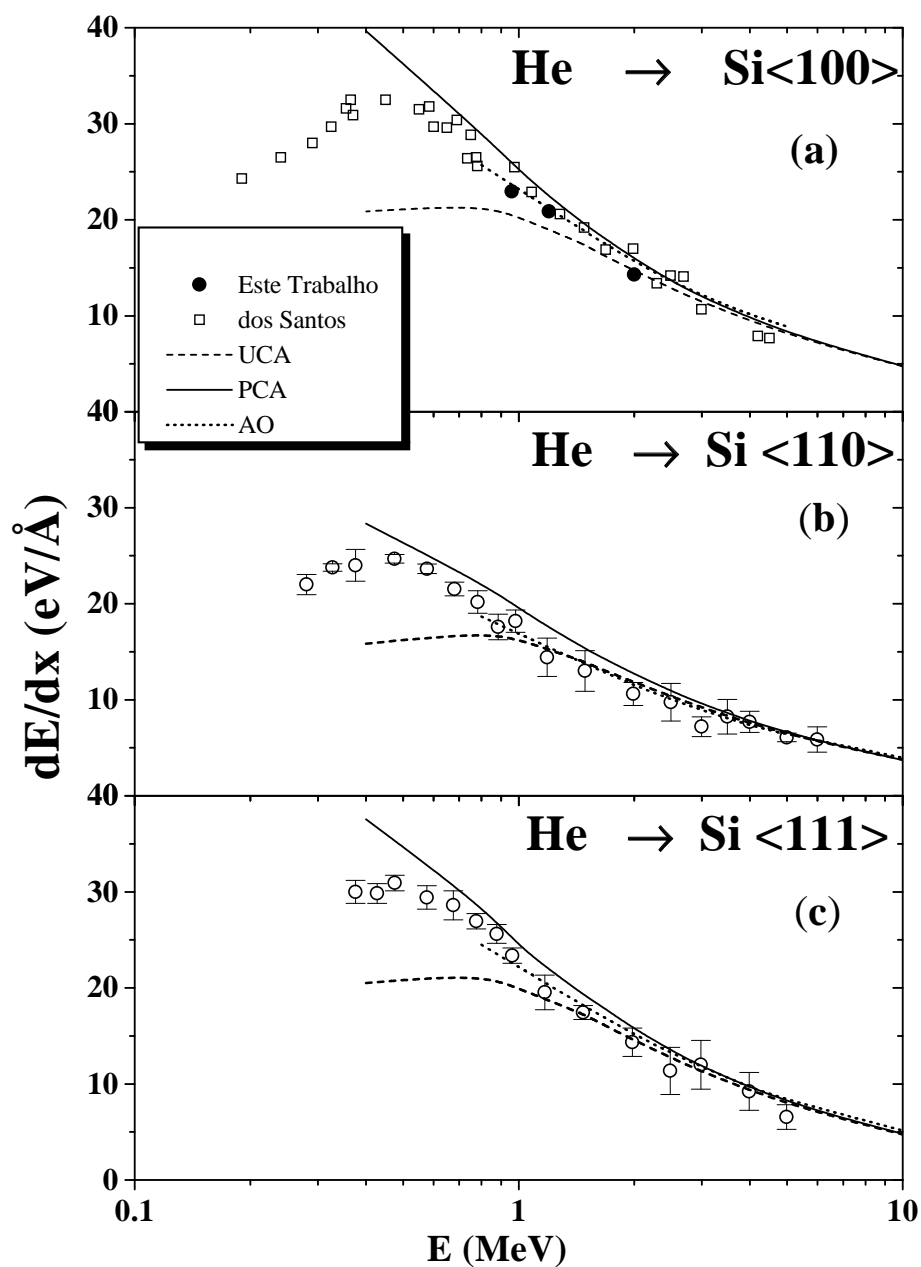


Fig. 7.15: Comparação dos cálculos PCA (linha contínua) e UCA (linha tracejada) com dados experimentais da perda de energia de He canalizado ao longo das direções $\langle 100 \rangle$ [97, 54], $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ do Si. As linhas pontilhadas correspondem aos cálculos de canais acoplados das refs. [54, 105]

ainda é bastante razoável. Estes resultados que, aparentemente, contradizem os resultados dos cálculos para incidência aleatória, podem ser explicados como a seguir. Em condição de canalização, as colisões com pequenos parâmetros de impacto são fortemente suprimidas devido ao *flux peaking*. Isto se reflete na redução de todos os mecanismos de perda de energia. No entanto, os resultados de $Q(b)$ calculados no modelo PCA que apresentamos na figura 7.12 mostram que $Q(b)_{loss}$ depende mais fortemente do parâmetro de impacto do que $Q(b)_{exc}$. De fato, para parâmetros de impacto em torno de 2.5 unidades atômicas (que correspondem ao raio do canal $\langle 100 \rangle$), $Q(b)_{exc}$ é cerca de cinco vezes maior que $Q(b)_{loss}$. Isto significa que, em direção canalizada o mecanismo de freamento dominante é $Q(b)_{exc}$. Além disso, a figura 7.12 também mostra que, nos parâmetros de impacto sondados com mais frequência em direção canalizada ($b > 1.5$ u.a), $Q(b)_{loss}$ do modelo PCA (linha sólida) se assemelha mas ainda superestima o valor “exato” do modelo UCA. Desta maneira, verificamos que o acordo teórico-experimental para energias abaixo de 4 MeV, observado com os cálculos PCA, em direção canalizada é fortuito e resulta do fato de que o excesso de $Q(b)_{loss}$, fortemente atenuado, compensa a falta da captura eletrônica nos nossos cálculos.

Com relação aos cálculos UCA também se observa um bom acordo teórico-experimental para energias acima de 2 MeV. De fato, os cálculos UCA e PCA são idênticos entre si e aos dados experimentais para energias acima de 2.5 MeV nas três direções estudadas. Para energias abaixo de 1.5 MeV, os cálculos UCA na direção $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ têm a tendência de subestimar os dados experimentais. No entanto, na direção $\langle 110 \rangle$, os cálculos UCA resultam num excelente acordo teórico-experimental em todo o intervalo de energias calculados ($1 \text{ MeV} \leq E \leq 10 \text{ MeV}$). Estes resultados podem ser explicados da seguinte maneira. Para incidência aleatória, vimos que o excesso de $Q(b)_{exc}$ para pequenos parâmetros de impacto compensava a ausência de captura. Em condição de canalização, o excesso de $Q(b)_{exc}$ é completamente suprimido, já que este excesso só está presente em colisões com parâmetros de impacto menores que 0.5 u.a ($\sim 0.25 \text{ \AA}$), e portanto, não há efeito de compensação neste caso. Isto explica os resultados das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$. Com relação à direção $\langle 110 \rangle$ o excelente acordo teórico experimental pode ser explicado pelo fato dos eventos de captura estarem diretamente relacionados a colisões com pequeno parâmetro de impacto. Como o canal $\langle 110 \rangle$ é o mais aberto no Si, estas colisões são mais suprimidas nesta direção. Desta maneira, não há processos de captura nem excesso de $Q(b)_{exc}$, o que resulta no perfeito cenário de aplicabilidade do modelo UCA.

Na figura 7.15 também estão mostrados resultados de cálculos de canais acoplados retirados da ref [105]. No método dos canais acoplados tanto a perda de energia por excitações e ionizações dos elétrons de camada interna quanto a perda de energia por processos de troca de carga (captura e perda de elétrons) são levadas em conta corretamente. Isto explica o excelente acordo teórico-experimental para os cálculos AO nas três direções estudadas. Além disso é interessante notar que as previsões dos modelos UCA e PCA são praticamente idênticas às previsões AO para energias acima de 2,5 MeV. Nestas energias a fração de carga de He^+ é menor que 5%. Isto significa que os processos de troca de carga do projétil têm um papel secundário na determinação do poder de freamento total. Para estas energias, os principais mecanismos de perda de energia são a excitação e ionização dos átomos do alvo. Portanto, o acordo entre as previsões dos modelos (UCA e PCA) com os cálculos de canais acoplados indica que o limiar 2,5 MeV ($5 v_{Bohr}$) é o limiar inferior de energias onde os cálculos PCA e UCA são aplicáveis à descrição da perda de energia de íons de He em

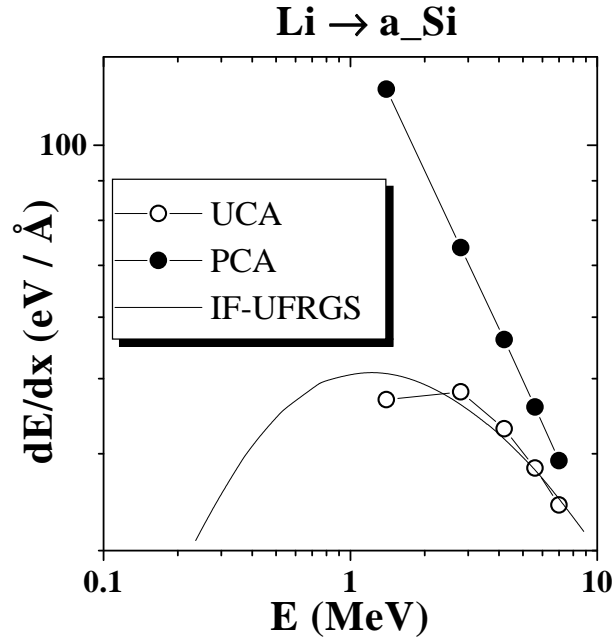


Fig. 7.16: Comparação entre os dados experimentais de perda de energia de íons de Li incidentes em Si amorfo (linha contínua) e os cálculos PCA e UCA

amostras de Si.

Lítio

Na figura 7.16 confrontamos as previsões dos modelos PCA e UCA com dados experimentais da perda de energia de íons de Li incidentes em Si amorfo [111]. Como se percebe, os cálculos PCA superestimam os dados experimentais em todo o intervalo de energias abaixo de 10 MeV, onde os dados experimentais estão disponíveis para a comparação. Este comportamento, análogo ao que observamos para o He, resulta do excesso de $Q(b)_{loss}$ em colisões com pequenos parâmetros de impacto. Além disso, temos que levar em conta que temos dois canais possíveis de ionização ($Li^+ \rightarrow Li^{2+}$ e $Li^{2+} \rightarrow Li^{3+}$).

Com relação aos cálculos UCA, temos um bom acordo para energias acima de 3 MeV. Novamente, este bom acordo indica que existe algum tipo de compensação da falta de captura e o excesso de excitação e ionização em colisões com pequenos parâmetros de impacto. No entanto, para energias mais baixas que 3 MeV, os cálculos UCA subestimam os dados

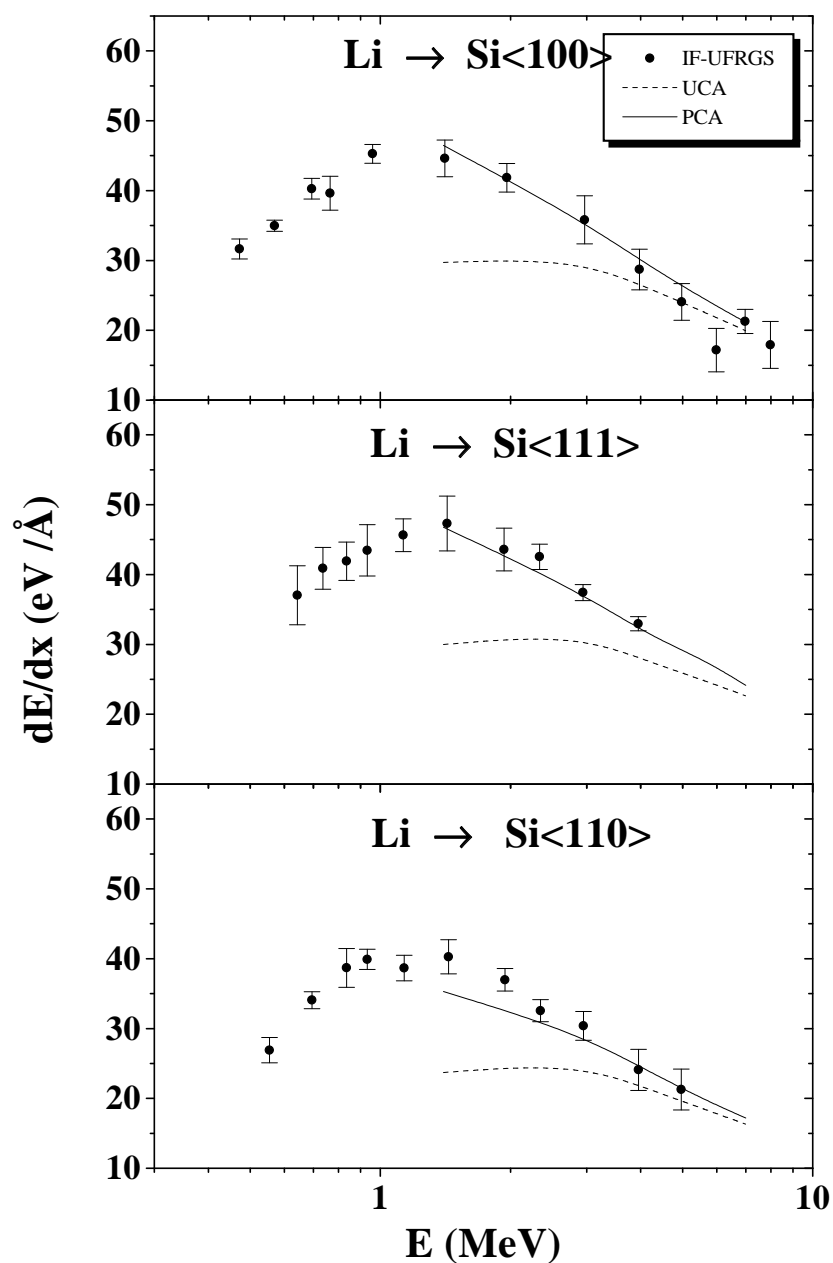


Fig. 7.17: Comparação entre os dados experimentais de perda de energia de íons de Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si e os cálculos baseados nos modelos PCA (linha contínua) e UCA (linha tracejada)

experimentais. Não podemos esquecer que diversos outros mecanismos de perda de energia estão sendo desconsiderados nos nossos cálculos. Por exemplo, não estamos levando em conta efeitos de estado sólido, efeitos de polarização dos átomos do alvo pelo projétil (Efeito Barkas) e antiblindagem. O efeito Barkas, por exemplo, que contribuiria para aumentar a perda de energia, pode ser importante à medida que se reduz a velocidade do projétil. No momento, estamos investigando estas possibilidades.

Na figura 7.17 temos os resultados dos cálculos PCA e UCA para as três direções canalizadas. Assim como no caso do He, o modelo PCA resulta num excelente acordo teórico experimental para os dados de canalização. Novamente, este acordo pode ser explicado em termos da compensação da falta dos mecanismos de captura (e possível efeito Barkas), pelo excesso de Q_{loss} . Com relação aos modelo UCA, percebe-se que os cálculos subestimam os dados experimentais, especialmente para energias abaixo de 4 MeV. O forte desacordo em baixas energias pode ser atribuído, pelo menos em parte, à falta de captura no modelo UCA e, como no caso da incidência aleatória, podemos ter também a falta da contribuição do efeito Barkas. Já o desacordo em energias acima de 4 MeV pode estar relacionado com o efeito de anti-blindagem (*antiscreening*). Nos nossos cálculos estamos considerando que os elétrons do projétil têm o papel meramente passivo de blindar a interação coulombiana entre o projétil e os elétrons dos átomos de Si. No entanto, em colisões com altas energias, os elétrons do projétil também passam a atuar ativamente (como projéteis) e passam a excitar o átomo-alvo. Este mecanismo é denominado *antiscreening*. No presente momento, estamos investigando a contribuição dos efeitos que citamos acima para o poder de freamento canalizado.

7.4.4 Cálculo da dependência angular da perda de energia

Hélio

Nas figuras 7.18 e 7.19, comparamos os cálculos UCA com nossos resultados da dependência angular da perda de energia para os dados tomados nas energias de 1.2 e 2 MeV, respectivamente. Os cálculos PCA não serão mostrados aqui porque eles, no melhor caso, conseguem reproduzir a largura dos nossos resultados. Os valores absolutos são fortemente superestimados.

Para o modelo UCA, temos um bom acordo teórico experimental com os dados a 1.2 MeV nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ (figura 7.18). No entanto, o valor para $\Psi = 0^\circ$ é levemente subestimado pelos cálculos. Na direção $\langle 110 \rangle$, temos um excelente acordo teórico-experimental. Tanto as larguras quanto os valores absolutos da perda de energia são bem reproduzidos pelos cálculos UCA. Estes resultados podem ser explicados em termos da mesma linha de argumentação utilizada para discutir os resultados da dependência da perda de energia com a energia inicial do feixe. Por exemplo, o leve desacordo verificado nas direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ para pequenos ângulos de incidência pode ser explicado pela falta da captura eletrônica no modelo UCA. Com relação à direção $\langle 110 \rangle$, vimos que os efeitos de captura não são importantes. Por outro lado, o bom acordo para os grandes ângulos de incidência pode ser

explicado da mesma maneira que explicamos os dados para incidência aleatória: o excesso de Q_{exc} para colisões com pequenos parâmetros de impacto compensa a falta da captura. Com relação aos cálculos para a energia de 2 MeV (figura 7.19), os processos de captura são de menor importância e, por isso, verifica-se um bom acordo para ambas as direções estudadas.

Como comentamos anteriormente, na obtenção dos dados experimentais da dependência angular da perda de energia em torno das direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$, nós não realizamos médias azimutais. Ao contrário, as varreduras angulares foram realizadas sobre o plano $\{110\}$. Neste caso, à medida que se aumenta o ângulo de incidência do feixe, ocorre uma transição de um regime de canalização axial para um regime de canalização planar. Por esta razão, para realizar a simulação da dependência angular em torno das direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ nós adotamos o procedimento descrito a seguir. Seja Ψ_p o ângulo a partir do qual se verifica a transição entre os regimes axial e planar. Para ângulos de incidência Ψ menores que Ψ_p consideramos um regime de canalização axial, ou seja, calculamos a expressão (7.2) com fluxos calculados para canalização axial. Para ângulos de incidência maiores que Ψ_p , consideramos um regime de canalização planar. A perda de energia no ângulo Ψ_p foi tomada como a média aritmética da perda de energia em regime axial e regime planar. Na figura 7.20 apresentamos os fluxos para canalização planar, como função de Ψ , para o plano $\{110\}$. Como se pode verificar, à medida que se aumenta o ângulo de incidência, o fluxo tende a se concentrar mais próximos aos planos atômicos e, como resultado, a perda de energia em canalização planar pode ser maior que a perda de energia em incidência aleatória. Para os dados a 1.2 MeV, adotamos $\Psi_p = 0.6^\circ$. Como se pode ver na figura 7.20, este ângulo de incidência corresponde à máxima concentração do fluxo próximo aos atômicos. A 2 MeV, adotamos $\Psi_p = 0.4^\circ$, pelo mesmo critério.

Os cálculos UCA, realizados segundo o procedimento descrito no parágrafo anterior, estão apresentados nas figuras 7.18 e 7.19. Na direção $\langle 110 \rangle$, temos um ótimo acordo teórico experimental para os dois conjuntos de dados disponíveis. Este acordo mostra que os “ombros” observados nas dependências angulares da perda de energia são, de fato, resultado da canalização planar, como havíamos sugerido anteriormente. Finalmente, com relação aos dados da direção $\langle 111 \rangle$, o acordo teórico-experimental é razoável.

Lítio

Os resultados dos cálculos da perda de energia como função da energia do feixe, para os íons de Li, que apresentamos acima, permitem antever que, tanto os cálculos UCA quanto os cálculos PCA devem resultar num péssimo acordo com nossos dados experimentais. Por isto, estes cálculos não serão apresentados. No entanto, é possível estimar $Q(b)$ a partir dos dados experimentais. Para isto, nós parametrizamos $Q(b)$ utilizando uma dependência exponencial, segundo o modelo de Robinson e Oen:

$$Q(b) = \varepsilon + \lambda \exp(-\gamma b). \quad (7.13)$$

Aqui, ε é uma constante que representa a perda de energia não-local devido aos elétrons de valência do alvo e o termo exponencial representa a perda de energia devido à excitação dos

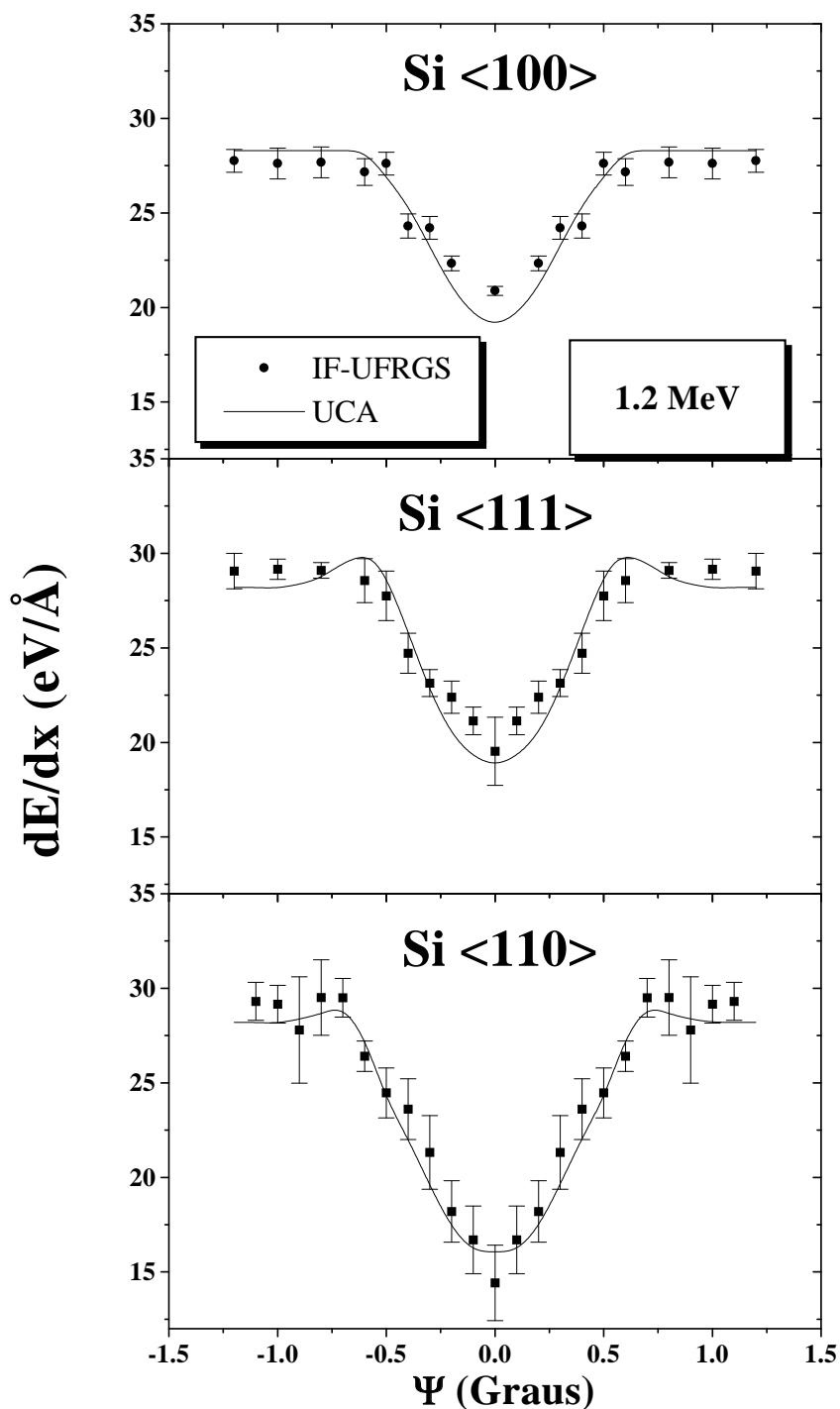


Fig. 7.18: Dependência angular da perda de energia a 1.2 MeV, em torno da direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, calculadas com o modelo UCA (linha contínua). Os símbolos são os dados experimentais deste trabalho.

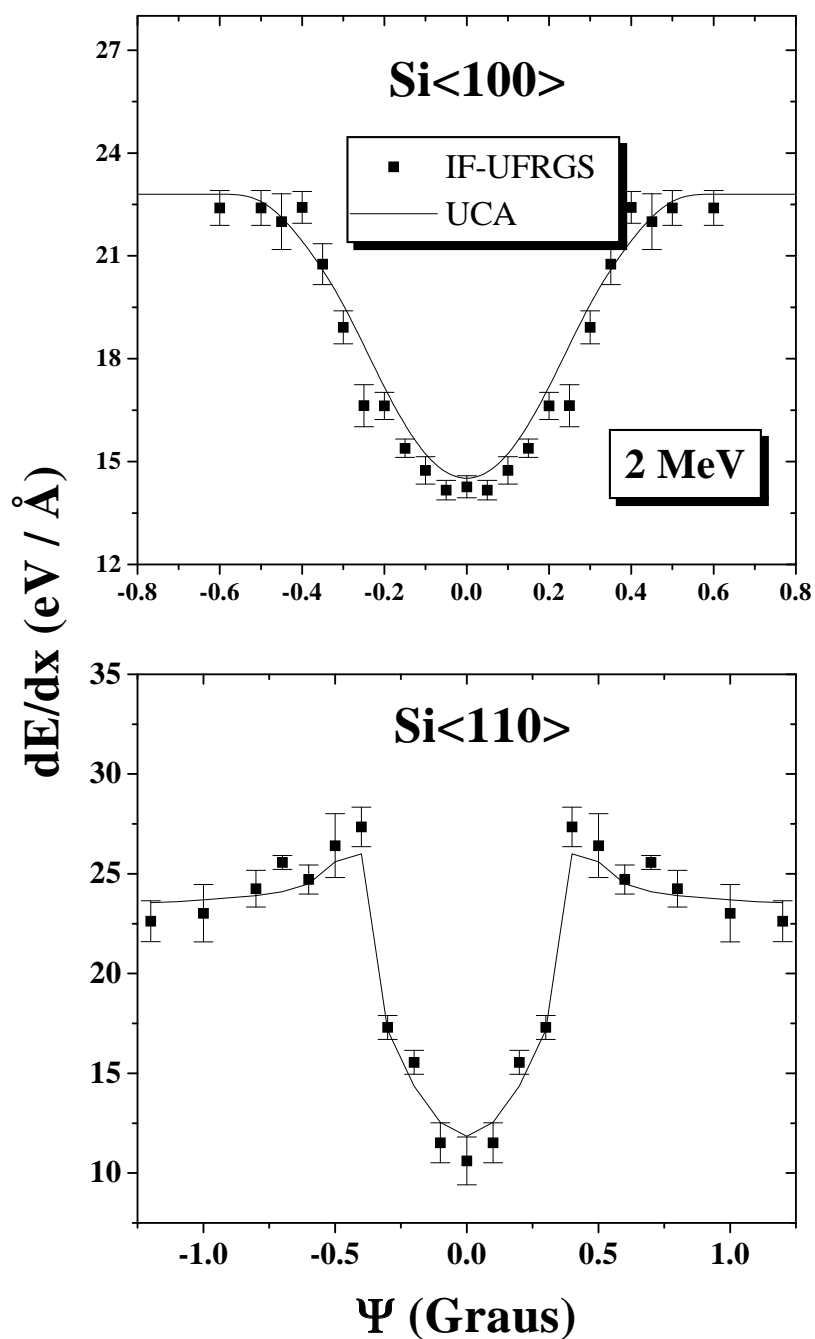


Fig. 7.19: Dependência angular da perda de energia a 2.0 MeV, em torno das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ calculadas com o modelo UCA (linha contínua). Os símbolos são os dados experimentais deste trabalho.

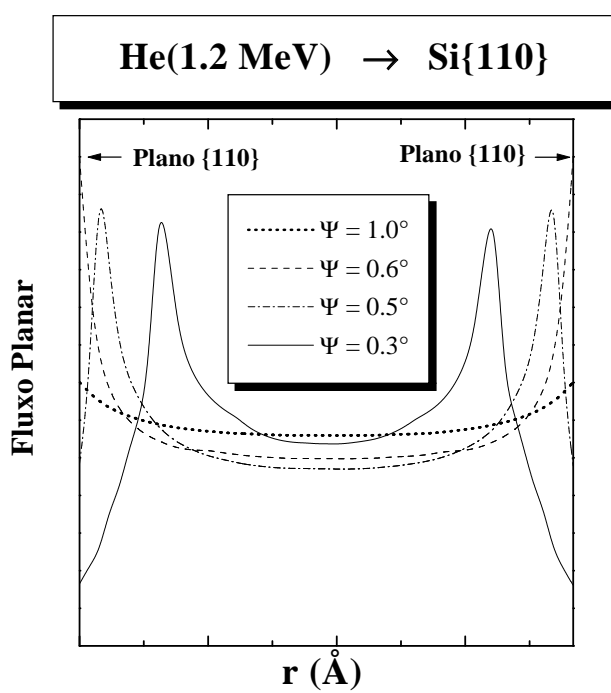


Fig. 7.20: Fluxo de íons de He sujeitos à canalização planar no plano {110} do Si como função do ângulo de incidência do feixe

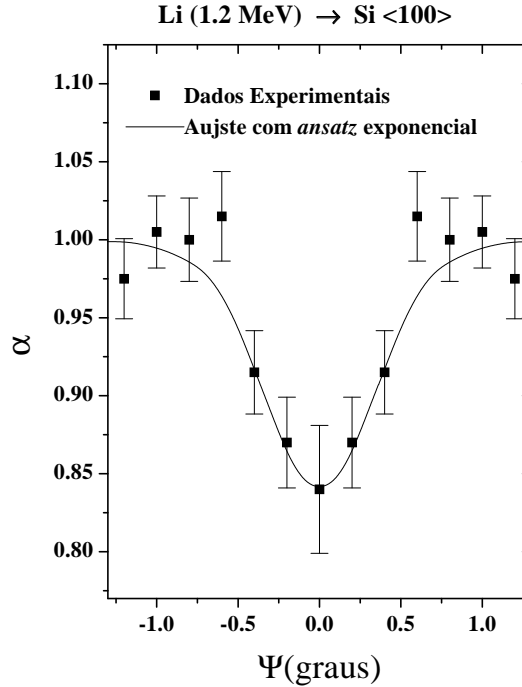


Fig. 7.21: Resultados das estimativas de $Q(b)$ a partir dos dados experimentais.

elétrons internos dos átomos do alvo. Nesses cálculos, γ é o parâmetro livre a ser ajustado enquanto ε e λ são obtidas impondo que os cálculos de $\Delta E(\Psi)$ (equação 7.2) com um fluxo constante (incidência aleatória) e com o fluxo a $\Psi = 0^\circ$ resultem na perda de energia aleatória e na perda de energia canalizada (resultados deste trabalho), respectivamente.

Nós utilizamos o procedimento descrito acima para estimar $Q(b)$ a partir da dependência angular de Li a 1.2 MeV canalizado próximo à direção $\langle 100 \rangle$ do Si. Nós verificamos que os dados experimentais são bem ajustados para $5.98 \text{ \AA}^{-1} \leq \gamma \leq 7.65 \text{ \AA}^{-1}$. Como se pode observar, a parametrização que fizemos para $Q(b)$ não consegue reproduzir univocamente os dados experimentais. No entanto, é possível estabelecer uma faixa de valores possíveis de $Q(b)$. A fim de investigar se outra dependência funcional para $Q(b)$ consegue reproduzir os dados, nós repetimos o procedimento de ajuste descrito acima utilizando uma dependência Gaussiana para $Q(b)$:

$$Q(b) = \varepsilon' + \lambda' \exp(-\gamma' b^2). \quad (7.14)$$

Assim como no primeiro caso, este *ansatz* para $Q(b)$ permite obter apenas uma faixa de valores possíveis. Neste caso, obtivemos um bom ajuste com $7.5 \text{ \AA}^{-2} \leq \gamma' \leq 12.0 \text{ \AA}^{-2}$.

Um exemplo do ajustes obtido com o procedimento que acabamos de descrever se encontra na figura 7.21

Na figura 7.22 as faixas hachuradas correspondem a $Q(b)$ para os valores de γ obtidos acima com os dois *ansatz* que fizemos. Para efeitos comparativos, também apresentamos $Q(b)$ correspondentes à excitação dos elétrons internos do Si $Q_{in}(b)$, calculado com o modelo

PCA. Esta figura mostra claramente que o modelo PCA é inadequado para descrever colisões com pequenos parâmetros de impacto. No entanto, o acordo com o *ansatz* exponencial é muito bom em parâmetros de impacto maiores que 1 Å.

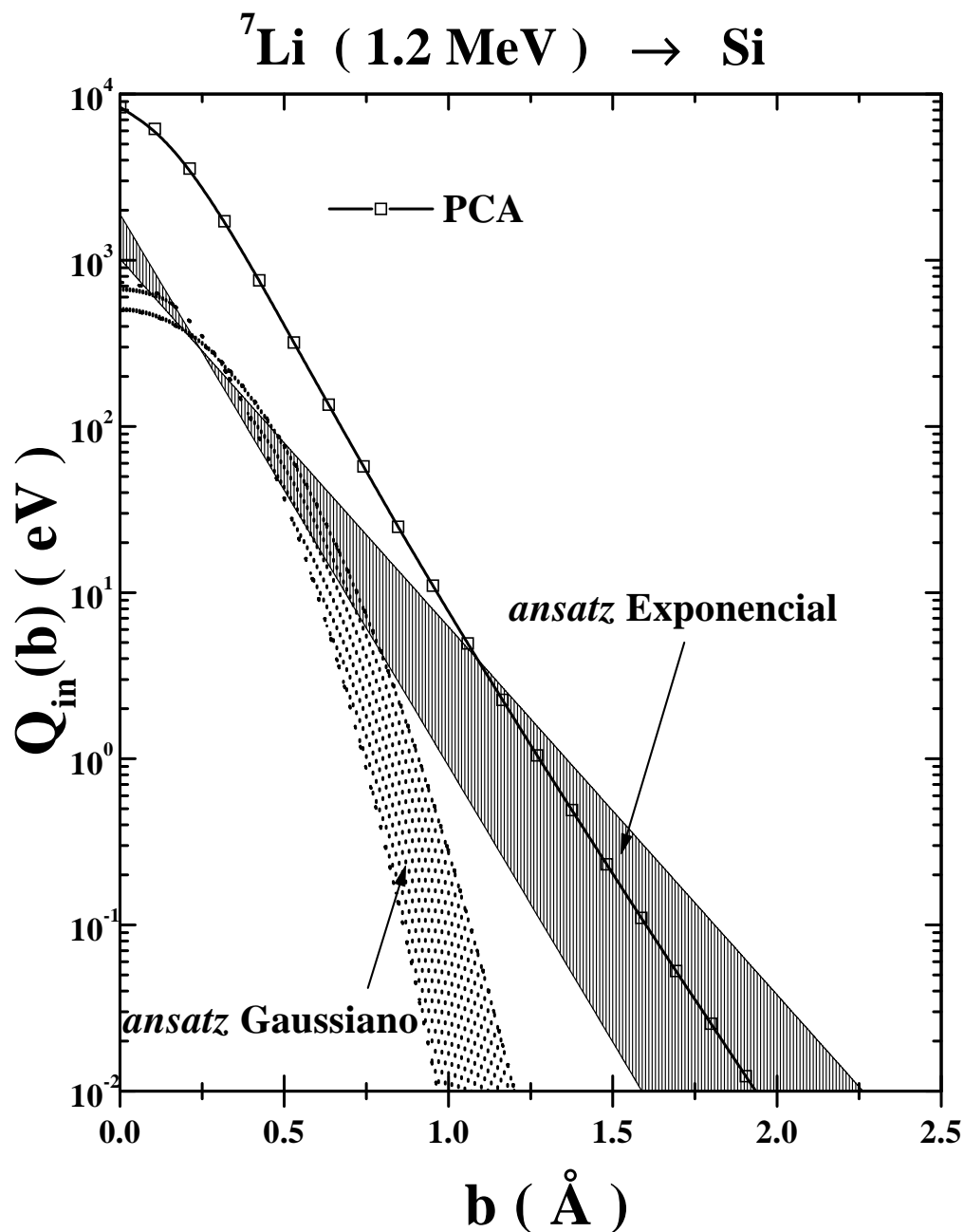


Fig. 7.22: Comparação do cálculo PCA com as estimativas de $Q(b)$ a partir dos dados experimentais (regiões hachuradas).

Capítulo 8

Conclusões

Neste trabalho, foi realizado um estudo sistemático do poder de freamento de íons canalizados ao longo das três direções principais de simetria do Si: $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$. Foram abordados dois aspectos distintos do problema. Por um lado, estudamos o freamento de íons pesados com energias de algumas dezenas de keV, onde o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento nuclear. Em particular, nos focalizamos na investigação do efeito Z_1 , que está relacionado a modificações no potencial interatômico devido à deformação das nuvens eletrônicas do projétil e do alvo durante colisões de baixa energia. Fomos motivados pela idéia de que o efeito Z_1 deveria ser amplificado em implantações canalizadas. Neste estudo, os mecanismos de freamento foram investigados de maneira indireta, pela comparação de perfis de concentração de íons implantados em direções canalizadas com as previsões do programa MARLOWE. Por outro lado, também estudamos a perda de energia de íons leves com energias entre algumas centenas de keV's e alguns MeV's. Para estes íons, o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento eletrônico. Neste caso, a perda de energia dos íons canalizados foi obtida experimentalmente pela técnica de retroespalhamento Rutherford em estruturas do tipo SIMOX. Com esta técnica, investigamos a dependência do poder de freamento com a energia inicial e com o ângulo de incidência do feixe. Os resultados destes experimentos foram interpretados por intermédio de cálculos, da dependência da perda de energia com o parâmetro de impacto, baseados na aproximação semiclássica. Os resultados deste trabalho de doutoramento foram os seguintes.

8.1 Íons pesados

A implantação de íons pesados em Si apresenta uma dificuldade experimental básica: íons pesados produzem defeitos pontuais e estendidos na matriz de Si, mesmo quando implantados em baixas fluências. Além disso, a implantação de fluências muito baixas dificulta a determinação dos perfis de implantação por RBS devido às limitações intrínsecas da técnica. Por esta razão, desenvolvemos o método de implantação à quente em direção canalizada, que atualmente é realizada de maneira corriqueira no nosso laboratório. A idéia é que manter a amostra aquecida para que os defeitos produzidos no Si sejam regenerados pelo mecanismo de recozimento dinâmico. Como resultado, cada íon implantado penetra numa amostra praticamente virgem. No entanto, a partir de uma certa fluência crítica, o recozimento dos defeitos não é completo, verificando-se a danificação da amostra ou, eventualmente, a amorfização da mesma. Portanto, é necessário, para cada íon implantado e para cada

energia de implantação, determinar a fluência máxima que pode ser implantada sem que seja produzida uma quantidade mensurável de defeitos na matriz de Si. Implantamos Bi com energias entre 20 e 40 keV na direção $\langle 100 \rangle$ do Si e Eu com energias entre 15 e 50 keV nas direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. Nas implantações, a temperatura das amostras foi mantida em 350°C. Em todos os casos estudados, verificamos que a fluência máxima é de cerca de 1×10^{14} at/cm². É importante ressaltar que este conjunto de dados experimentais é absolutamente original. Na literatura, a quantidade de dados referentes a implantações em direção de canalização é muito reduzida. Os dados existentes referem-se, principalmente, a implantações à temperatura ambiente e com íons mais leves com energias mais altas, onde o mecanismo predominante de perda de energia é o freamento eletrônico. Não é do nosso conhecimento a existência na literatura de uma sistemática semelhante com íons pesados de velocidades tão baixas ($\leq 0.1v_{Bohr}$) implantados em direção canalizada.

Íons de Bismuto

Verificamos que as previsões do MARLOWE reproduzem nossos dados experimentais se forem utilizados os seguintes parâmetros de entrada no programa: potencial ZBL, perda de energia eletrônica descrita pelo modelo local de Robinson e Oen e temperatura de Debye $\Theta_D = 490\text{K}$. De fato, em trabalhos anteriores do nosso grupo, já havia sido verificado que os resultados das implantações de íons de Bi em alvos de Si amorfo são bem reproduzidos pela teoria procedimento ZBL. Embora não tenhamos verificado a manifestação do efeito Z_1 , as implantações foram de fundamental importância, porque permitiram fixar a temperatura de Debye do Si, que é um parâmetro importante nas simulações. No nosso trabalho, estabelecemos que o valor da temperatura de Debye que melhor reproduz a amplitude de vibração térmica dos átomos do alvo de Si em experimentos de canalização é $\Theta_D = 490\text{K}$. Além do mais, como este é o mesmo valor obtido em experimentos de canalização de íons a temperaturas baixas (temperatura do N₂ líquido) e à temperatura ambiente, podemos concluir que este valor é válido para um grande intervalo de temperaturas.

Visto o bom acordo teórico-experimental, podemos afirmar que o efeito Z_1 não é observado neste caso. Estes resultados estão de acordo com resultados prévios [67], que demonstraram que também se observa um bom acordo teórico experimental em implantações de Bi em Si amorfo.

Íons de Európio

No caso do Eu, verificamos que os dados experimentais das direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ apresentam caudas mais profundas que as predições do MARLOWE baseadas no procedimento ZBL. Além disso, as diferenças entre as simulações e os dados experimentais diminuem com o aumento da energia do feixe, desaparecendo completamente em energias acima de 50 keV. Verificamos que as caudas não eram devidas a efeitos espúrios de difusão e, portanto, deveriam ser atribuídas a problemas com a descrição do potencial interatômico. Assim como no

caso do Bi, os resultados do Eu para as direções $\langle 100 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ corroboram com antigos resultados de implantações em Si amorfo. No entanto, contrariando a expectativa criada pelos dados das direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 100 \rangle$, e pela noção de que o efeito Z_1 deve ser maior nas direções com canais mais largos, não observamos diferenças entre as predições do MARLOWE e os dados relativos à direção $\langle 110 \rangle$, o que sugere uma aparente contradição com a interpretação dos resultados das direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 100 \rangle$, em termos do efeito Z_1 . Demonstramos que, de fato, todos os nossos dados experimentais podem ser explicados em termos do efeito Z_1 . Para isto, introduzimos um potencial “cortado suavemente” nas simulações. Com este potencial, que tem apenas um parâmetro livre, as simulação com o MARLOWE reproduzem todos os nossos dados experimentais e, além disso, reproduzem os dados de implantações em Si amorfo. Isto demonstrou que a nossa expectativa inicial de que o efeito Z_1 deve ser amplificado nas direções de canalização mais abertas não é totalmente verdadeira. De fato, nestas direções o efeito Z_1 é mascarado pelo aumento da parcela percentual de freamento eletrônico no poder de freamento total.

A fim de uma melhor compreensão dos mecanismos que levam ao aparecimento do efeito Z_1 , o potencial obtido pelo procedimento de corte foi comparado com o potencial Eu-Si obtido a partir de cálculos *ab-initio* de estrutura molecular (potencial DFT). Os resultados dos cálculos *ab initio* mostraram que, para distâncias internucleares menores que 1.2 Å o potencial DFT é idêntico ao potencial que obtivemos a partir dos dados experimentais. No entanto, verificou-se que o potencial DFT tem uma região atrativa para distâncias interatômicas maiores que 1.4 Å, o que indica a formação de uma molécula Eu-Si! Em outras palavras, nós demonstramos, pela primeira vez, que, de fato, o efeito Z_1 decorre de um rearranjo dos elétrons periféricos do projétil e do alvo, dando origem a uma redução na energia potencial de interação que se manifesta nas colisões de baixa energia, onde o tempo de interação é longo o suficiente para a formação da quase-molécula.

8.2 Íons leves

Neste trabalho, realizamos medidas do poder de freamento eletrônico de íons de ^4He e ^7Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. Nos parágrafos abaixo, resumiremos os principais resultados deste estudo.

Íons de Hélio

A despeito do uso disseminado de íons de He em diversas técnicas de análise de materiais, há uma enorme escassez de dados relativos à perda de energia de íons de He em regime de canalização. Antes da realização deste trabalho, as únicas medidas sistemáticas disponíveis haviam sido realizadas por Eisen no início da década de 1970, para as direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ do Si, pela técnica de transmissão e os dados de J. H. R. dos Santos, do grupo de implantação iônica da UFRGS, para a a direção $\langle 100 \rangle$. Neste trabalho, realizamos novas medidas da dependência com a energia do feixe da perda de energia de íons de He canalizados ao longo das direções $\langle 110 \rangle$ e $\langle 111 \rangle$ do Si, no intervalo de energias que vai de 0.3 e 6 MeV.

Verificamos que, na direção $\langle 110 \rangle$, o poder de freamento é, sistematicamente, de 20 a 30% menor que na direção $\langle 111 \rangle$, o que se explica pelo fato da direção $\langle 110 \rangle$ ser a mais aberta do Si. A comparação dos nossos dados com os de Eisen mostra um bom acordo para a razão α entre o poder de freamento de canalização e o aleatório, próximo ao máximo do poder de freamento. No entanto, para as energias acima de 1 MeV, os dados de Eisen estão progressivamente acima dos nossos valores, com o aumento da energia. Isto pode estar relacionado com desvios sistemáticos oriundos da necessidade de medir a espessura das amostras na técnica de transmissão.

Medimos, também, a perda de energia de íons canalizados como função do ângulo de incidência Ψ do feixe com relação à normal à superfície da amostra. Na direção $\langle 100 \rangle$, realizamos medidas a 960 keV, 1.2 MeV e 2 MeV. Na direção $\langle 110 \rangle$, temos dados a 1.2 e 2.0 MeV e na direção $\langle 111 \rangle$, realizamos medidas a 1.2 MeV. Estes resultados (à exceção das medidas a 2 MeV realizadas na direção $\langle 100 \rangle$) são absolutamente originais. A comparação dos dados tomados a 2 MeV na direção $\langle 100 \rangle$ com os dados de Jin e Gibson [109], obtidos pela técnica de transmissão, revelam um excelente acordo entre os dois conjuntos de dados.

Nossos resultados relativos à direção $\langle 100 \rangle$ correspondem a médias sobre medidas realizadas a vários ângulos azimutais. Como resultado, os valores da perda de energia para grandes ângulos de inclinação correspondem ao valor que seria observado em incidência aleatória. Além disso, os resultados mostram que as curvas da perda de energia de canalização têm larguras muito menores que as larguras das curvas de probabilidade de retroespalhamento. Isto indica que há trajetórias, que embora permaneçam canalizadas, experimentam uma perda de energia igual a de uma trajetória aleatória. Este fato é uma consequência direta das diferenças nas dependências com o parâmetro de impacto dos mecanismos de transferência de energia inelástico e elástico (que é o responsável pela modificação da trajetória do íon). Com relação aos dados da dependência angular em torno das direções $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$, nestes casos não foram realizadas médias azimutais. Ao contrário, à medida que aumentamos Ψ , ocorre uma transição de um regime de canalização axial para um regime de canalização planar. Por esta razão, segundo pudemos demonstrar com simulações das trajetórias planarmente canalizadas, para grandes ângulos de inclinação, os poderes de freamento canalizados podem exceder o valor aleatório em até 30 %.

Íons de Lítio

Assim como no caso do He, realizamos medidas do poder de freamento de íons de Li canalizados ao longo das direções $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ e $\langle 110 \rangle$ do Si. A varredura em energias foi realizada no intervalo entre 0.5 e 8 MeV. Os dados do Li apresentam um comportamento similar aos referentes ao He. A comparação dos nossos dados relativos à direção $\langle 100 \rangle$, com os dados de Jiang [113], obtidos por transmissão, revela um bom acordo entre os dois conjuntos de dados.

Com relação à dependência angular da perda de energia, para o Li realizamos apenas medidas a 1.2 MeV em torno da direção $\langle 100 \rangle$. Estes resultados apresentam as mesmas características apresentadas pelos dados do He para a direção $\langle 100 \rangle$.

Como comentário final a respeito dos dados experimentais do Li, gostaríamos de frisar

que estes dados são absolutamente originais e únicos (exceção feita aos dados de Li canalizado na direção $\langle 100 \rangle$ que foram publicados simultaneamente aos dados de Jiang). Em comparação com o He, o Li apresenta algumas vantagens. Por exemplo, a sensibilidade de medidas de RBS aumenta por um fator de mais de 100% $\sim (3/2)^2$ se utilizarmos Li no lugar de He. Por outro lado, embora a resolução em energia para os íons de Li seja consideravelmente pior que no caso do He, o poder de freamento do Li canalizado é, sistematicamente, cerca de 50% maior que o poder de freamento de He em Si amorfo! Desta maneira, o aumento no fator de perda de energia compensa, em parte, a perda de resolução em energia. Esperamos então que estas observações sirvam de estímulo ao incremento da utilização de feixes de Li em análises de materiais.

Análise teórica dos dados experimentais

Os resultados experimentais relativos aos íons leves foram interpretados por intermédio de simulações das trajetórias canalizadas baseadas no modelo contínuo e de cálculos da perda de energia dependente do parâmetro de impacto realizados com os modelos PCA e UCA, que são baseados na aproximação semiclássica.

Os modelos PCA e UCA, em suas versões originais, só consideravam íons nus como projéteis. No entanto, para descrever corretamente a perda de energia, é necessário levar em conta que os íons trocam de carga durante os seus percursos dentro da amostra, isto é, é necessário levar em conta que os projéteis podem ser íons com elétrons ligados. Por esta razão, uma das contribuições deste trabalho consistiu em modificar os modelos PCA e UCA para que estes incluíssem as contribuições devido a projéteis blindados.

A comparação dos cálculos realizados com os modelos UCA e PCA com dados experimentais de He e Li canalizados em Si e com os dados de He e Li incidentes em Si amorfo permitiu discutir os limites de validade das diversas aproximações envolvidas nestes modelos. Além disso, pudemos discutir o papel de cada mecanismo de perda de energia no poder de freamento total como função da energia dos projéteis.

Apêndice A

A aproximação de colisões binárias e o programa MARLOWE

A.1 Introdução

Existem dois métodos para se realizar a simulação computacional da interação de íons com a matéria: o modelo de dinâmica clássica, mais conhecido como dinâmica molecular (MD), e o método de colisões binárias (BCA). No método MD, são levadas em conta as interações múltiplas entre todos os átomos vizinhos. Isto inclui as interações entre o projétil e os átomos do alvo bem como as interações dos átomos do alvo entre si. Todas as trajetórias dos átomos em movimento são calculadas em pequenos intervalos de tempo de forma que todas as colisões entre os átomos em movimento são automaticamente computadas. Isto é realizado pela solução das equações de Newton para o sistema em questão. O método MD é indicado para o estudo de problemas envolvendo a penetração de íons de baixíssima energia (~ 1 eV/uma). Maiores detalhes sobre a técnica de dinâmica molecular podem ser encontrados na referência [17].

Contrariamente ao método MD, a principal hipótese da aproximação de colisões binárias é que a interação do projétil com o sólido pode ser subdividida numa seqüência de colisões envolvendo dois corpos, isto é, o projétil interage com um átomo do alvo de cada vez. Esta hipótese requer que as modificações na energia relativa de interação dos átomos em movimento ocorram na vizinhança imediata dos átomos-alvo, de tal maneira que a deflexão da trajetória aconteça numa escala de comprimento menor que as distâncias interatômicas do cristal. Isto quer dizer que a BCA falha para baixas energias do projétil, quando os efeitos de muitos corpos se tornam importantes (abaixo de algumas dezenas de eV).

Duas classes de programas baseados na BCA podem ser encontrados na literatura. Na primeira dessas classes, na qual estão incluídos programas como o TRIM[125], os alvos não têm estrutura. Nestes códigos tipo Monte-Carlo, técnicas aleatórias são utilizadas para localizar os átomos-alvo, determinar as distâncias de vôo do projétil entre duas colisões e o parâmetro de impacto em cada colisão. Não são consideradas quaisquer correlações entre os átomos do alvo, exceto aquelas impostas pela densidade atômica do alvo.

Na outra classe de programas BCA, cujo melhor representante é o MARLOWE [69, 70, 71, 72, 73, 75], as localizações dos átomos que serão alvos em potencial numa colisão binária são determinadas por uma estrutura cristalina bem definida. Nestes modelos, as técnicas aleatórias têm um papel secundário fornecendo, por exemplo, a posição e a direção inicial

da trajetória do íon incidente, desordem local térmica e estrutural (defeitos pontuais), e assim por diante. Devido à estrutura regular bem definida, estes modelos permitem a ocorrência de correlações entre as colisões binárias sucessivas resultando, por exemplo, no efeito de canalização. De fato, o fenômeno de canalização foi observado pela primeira vez em simulações com o programa precursor do MARLOWE [?].

No programa MARLOWE a trajetória de cada partícula em movimento é construída como uma seqüência de colisões binárias com alvos inicialmente estacionários. Entre duas colisões binárias sucessivas, considera-se que as partículas têm trajetórias retilíneas, correspondentes às assíntotas das trajetórias “verdadeiras” do projétil e do alvo. Isto está ilustrado na figura A.1. Embora as trajetórias sejam construídas considerando-se que as partículas se movem ao longo de segmentos de reta com velocidade constante entre suas colisões, as acelerações totais em cada colisão são completamente levadas em conta, ou seja, o cálculo da colisão binária é exato para encontros estritamente binários nos quais o projétil e o alvo estejam completamente isolados.

O fato das acelerações serem computadas exatamente significa que o modelo de freamento nuclear incorporado nas simulações com o MARLOWE depende exclusivamente da escolha do potencial interatômico que descreve as colisões binárias. O modelo de freamento inelástico implementado no MARLOWE considera que ocorre uma perda de energia Q no ápice de colisão. Esta perda de energia corresponde a uma diminuição da energia cinética do centro de massas. No entanto, a perda de energia Q é ignorada no cálculo das integrais de espalhamento. Por esta razão, esta descrição da perda de energia no MARLOWE é denominada “quase-elástica”.

Nas seções a seguir nós discutiremos em detalhes a implementação da BCA no MARLOWE. Serão discutidos também temas como a modelagem dos freamentos eletrônico e nuclear (escolha do potencial interatômico), o cálculo das integrais de espalhamento, os algoritmos de seleção de alvos e de tratamento de colisões simultâneas e a modelagem das vibrações térmicas da rede.

A.2 Cinemática de colisões binárias

Seja uma colisão binária entre um projétil de massa m_1 e velocidade inicial v_1 , com uma partícula de massa m_2 , inicialmente em repouso. Após a colisão, o projétil tem velocidade u_1 e o alvo tem velocidade u_2 . Tal situação está esquematizada na figura A.2.

Por hipótese, o sistema está isolado de forças externas. Supondo também que o alvo esteja em repouso, o centro de massas se move com velocidade constante \vec{V}_{CM} dada por

$$\vec{V}_{CM} = \frac{m_1}{m_1 + m_2} \vec{v}_1 \quad (\text{A.1})$$

É conveniente descrever a colisão no referencial do centro de massa; neste referencial o momentum total é nulo, o que simplifica a análise.

Na notação que utilizaremos a seguir, as variáveis com linha se referem ao ref. do C.M. e as variáveis sem linha se referem ao ref. do laboratório. Em ambos os referenciais, as velocidades iniciais são denotadas pela letra v e as finais pela letra u . Finalmente, o índice 1 se refere ao projétil e o índice 2 ao alvo.

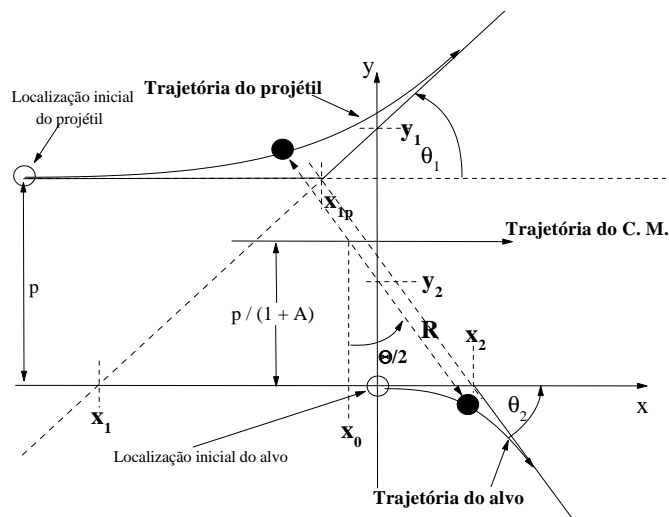


Fig. A.1: *Trajétórias de espalhamento do projétil e de recuo do átomo alvo e suas respectivas assíntotas no sistema de referência do laboratório numa colisão binária com parâmetro de impacto p . Os círculos vazios representam as posições iniciais do projétil e do alvo. Os círculos cheios representam estas partículas no instante em que a distância de aproximação máxima (R) é atingida. Os valores de x e y indicados são os pontos de interseção das assíntotas das trajetórias com os eixos e com a reta $y = p$. Maiores detalhes no texto.*

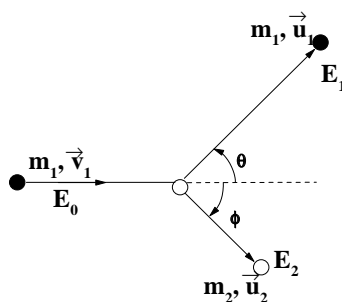


Fig. A.2: *Esquema de uma colisão binária.*

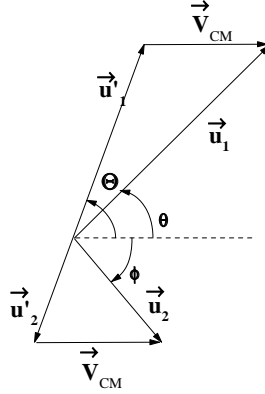


Fig. A.3: Relações entre as velocidades no ref. do C.M e do lab.

No ref. do C. M. temos,

$$m_1 u_1' = m_2 u_2' \quad (\text{A.2})$$

Na figura A.3 mostramos as relações entre as velocidades nos referenciais do C. M. e do lab. Daí se verifica que

$$\begin{cases} \vec{v}_1' = \vec{v}_1 - \vec{V}_{CM} \\ \vec{v}_2' = -\vec{V}_{CM} \end{cases}, \quad (\text{A.3})$$

Da equação A.3, temos a energia inicial no C. M.:

$$E_{CM} = \frac{1}{2} m_1 v_1'^2 + \frac{1}{2} m_2 v_2'^2 = \frac{1}{2} \left(\frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \right) v_1^2 \quad (\text{A.4})$$

Se uma energia Q é retirada da energia do C. M. durante a colisão, devido a processos inelásticos, então temos a seguinte expressão para a energia final no ref. do C. M.:

$$E_{CM} = \frac{1}{2} m_1 u_1'^2 + \frac{1}{2} m_2 u_2'^2 + Q. \quad (\text{A.5})$$

substituindo as equações A.2, A.3 e A.4 na equação A.5, temos:

$$u_1' = f v_1', \quad (\text{A.6})$$

$$u_2' = f v_2', \quad (\text{A.7})$$

onde,

$$f \equiv \sqrt{1 - Q/E_{CM}}. \quad (\text{A.8})$$

Para retornar ao ref. do lab., temos que somar a velocidade \vec{V}_{CM} às velocidades \vec{u}_1' e \vec{u}_2' (veja figura A.3). Temos:

$$\begin{cases} \vec{u}_1 = \vec{u}_1' + \vec{V}_{CM} \\ \vec{u}_2 = \vec{u}_2' + \vec{V}_{CM} \end{cases}, \quad (\text{A.9})$$

Observando as definições dos ângulos θ e ϕ nas figuras A.2 e A.3, a energia transferida ao alvo pode ser facilmente obtida:

$$T = \frac{1}{2}m_2u_2^2 = T_{max} \left[f \sin^2(\theta/2) + \frac{1}{4}(1-f)^2 \right], \quad (\text{A.10})$$

onde T_{max} é a máxima energia transferível ao alvo, dada por

$$\frac{4m_1m_2}{(m_1+m_2)^2}E_0 \quad (\text{A.11})$$

e E_0 é a energia cinética inicial do projétil no referencial do laboratório.

Agora, utilizando a figura A.3, podemos obter as relações dos ângulos θ e ϕ com o ângulo Θ de espalhamento no ref. do C. M.:

$$\tan(\theta) = \frac{Af \sin(\Theta)}{Af \cos(\Theta) + 1} \quad (\text{A.12})$$

e

$$\tan(\phi) = \frac{f \sin(\Theta)}{1 - f \cos(\Theta)}, \quad (\text{A.13})$$

onde definimos

$$A = \frac{m_2}{m_1} \quad (\text{A.14})$$

A.3 As integrais de espalhamento

As assíntotas das trajetórias nas colisões binárias são obtidas determinando-se os pontos de interseção dessas assíntotas com os eixos x e y e com a reta $y = p$, conforme mostrado na figura A.1. Para determinar os valores de x_0 , x_1 , x_2 , y_1 , y_2 é necessário calcular duas integrais: a integral Θ correspondente ao ângulo de espalhamento no referencial do laboratório e a integral τ , que determina a posição do centro de massa no instante do ápice da colisão, como veremos a seguir.

A.3.1 Determinação do ângulo de espalhamento (Θ)

Uma hipótese que simplifica muito a descrição do espalhamento numa colisão binária é que o potencial que descreve a interação entre os dois átomos é central, ou seja, só depende da distância entre os dois átomos. Como se sabe, o problema de dois corpos interagindo por um potencial central pode ser reduzido a um problema equivalente, no referencial do centro de massa, a um único corpo de massa reduzida $\mu = M_1M_2/(M_1+M_2)$ que se move em torno de um centro de forças fixo [19]. Considerando que o referencial do centro de massa está em repouso, a conservação de energia, nas coordenadas relativas, definidas na figura A.3, resulta:

$$\frac{\mu}{2} (\dot{r}^2 + r^2\dot{\phi}^2) + V(r) = E_r, \quad (\text{A.15})$$

onde $V(r)$ é o potencial de interação e os pontos denotam a diferenciação com relação ao tempo. A conservação do momento angular pode ser escrita como:

$$r^2\dot{\phi} = -v_0p, \quad (\text{A.16})$$

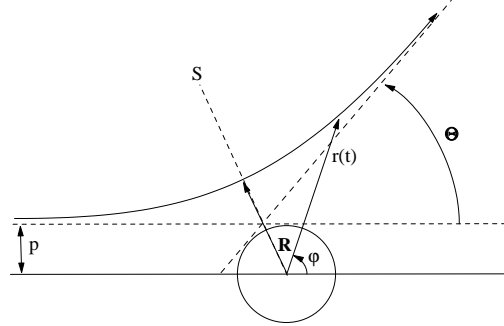


Fig. A.4: Definição das coordenadas $\varphi(t)$ e $r(t)$ que descrevem a colisão binária no referencial do centro de massa.

onde v_0 é a velocidade inicial do projétil no ref. do laboratório e p é o parâmetro de impacto. Combinando as duas equações acima, podemos determinar a dependência temporal de r :

$$\dot{r} = \pm v_0 g(r), \quad (\text{A.17})$$

onde

$$g(r) = \sqrt{1 - \nu(r) - \left(\frac{p}{r}\right)^2} \quad (\text{A.18})$$

e

$$\nu(r) = \frac{V(r)}{E_r}. \quad (\text{A.19})$$

Na equação A.17, o valor de \dot{r} muda de sinal quando $\dot{r} = 0$. O sinal negativo se aplica antes do sistema atingir a distância de aproximação máxima R , que é dada pela solução da equação:

$$g(R) = 0. \quad (\text{A.20})$$

Numa colisão elástica a trajetória do projétil é simétrica com relação à linha S na figura A.3. Agora, combinando as equações A.16 e A.17, podemos determinar a dependência de φ com r :

$$\frac{d\varphi}{dr} = \frac{\dot{\varphi}}{\dot{r}} = \pm \frac{p}{g(r)r^2}, \quad (\text{A.21})$$

onde o sinal $+$ é válido antes do projétil atingir a linha de simetria e o sinal $-$ depois da linha S.

Considerando agora, que o instante $t = 0$ corresponde à configuração em que o projétil e o alvo são representados pelos círculos vazios na figura A.1, definimos $r(0) = L$ e $\varphi(0) = \pi - \arcsin\left(\frac{p}{L}\right)$, onde assumimos que L seja grande o suficiente para que possamos desprezar $\nu(L)$.

O ângulo de Θ de espalhamento pode então ser determinado facilmente:

$$\int_{\varphi(0)}^{\varphi(\infty)} d\varphi = p \int_L^R [r^2 g(r)]^{-1} - p \int_R^L [r^2 g(r)]^{-1} = 2p \int_R^L [r^2 g(r)]^{-1}, \quad (\text{A.22})$$

ou seja, tomando o limite $L \rightarrow \infty$,

$$\Theta = \pi - 2p \int_R^\infty [r^2 g(r)]^{-1} \quad (\text{A.23})$$

A.3.2 Determinação da Integral de tempo (τ) ou *Time Integral*

Da equação A.17 podemos determinar o instante em que a distância de aproximação máxima é atingida:

$$t(R) = \frac{1}{v_0} \int_R^L \frac{dr}{g(r)}. \quad (\text{A.24})$$

Se os átomos não interagissem, teríamos $\nu(r) = 0$ e $R = p$. Neste caso, o tempo necessário para atingir o ápice da colisão seria:

$$t_0(p) = \frac{1}{v_0} \int_p^L \frac{dr}{\sqrt{(1 - p^2/r^2)^{1/2}}} = \frac{1}{v_0} \int_p^L \frac{dr}{\tilde{g}(r)}. \quad (\text{A.25})$$

A integral τ é definida como:

$$\tau = v_0 [t_0(p) - t(R)] = \int_p^L \frac{dr}{\sqrt{(1 - p^2/r^2)^{1/2}}} - \int_R^L \frac{dr}{g(r)}. \quad (\text{A.26})$$

Novamente, fazendo o limite $L \rightarrow \infty$ e lembrando que para potenciais repulsivos $0 \leq p \leq R \leq L$, temos:

$$\tau = \sqrt{R^2 - p^2} + \int_R^\infty \frac{dr}{\tilde{g}(r)} - \int_R^\infty \frac{dr}{g(r)}. \quad (\text{A.27})$$

No caso de potenciais com regiões atrativas, R pode ser menor que p e a expressão para a integral τ fica [126]:

$$\tau = R + \int_R^\infty dr \left[1 - \frac{1}{g(r)} \right], \quad (\text{A.28})$$

que também é válida para potenciais puramente atrativos [17, 126].

A.3.3 Determinação numérica das integrais de espalhamento

As integrais de espalhamento A.23, A.27 e A.28 podem ser reescritas numa maneira conveniente à integração numérica se utilizarmos a seguinte substituição de variáveis:

$$r = \frac{R}{u} \quad (\text{A.29})$$

e

$$dr = -\frac{R}{u^2} du. \quad (\text{A.30})$$

com estas transformações, as integrais de espalhamento têm as seguintes expressões:

$$\Theta = \pi - (2p/R) \int_0^1 H(u) du \quad (\text{A.31})$$

e

$$\tau = \sqrt{R^2 - p^2} - R \int_0^1 [H(u) - I(u)] u^{-2} du \quad (\text{A.32})$$

, onde

$$H(u) = [1 - p^2 u^2 / R^2 - V(R/u) / E_r]^{-1/2} \quad (\text{A.33})$$

e

$$I(u) = [1 - p^2 u^2 / R^2]^{-1/2}. \quad (\text{A.34})$$

As equações A.31 e A.32 estão escritas numa forma muito conveniente ao uso de métodos de integração Gaussianos [114, 127]. Qualquer conjunto de polinômios ortogonais definidos entre (-1,+1) pode ser utilizado. No MARLOWE, são utilizados polinômios de Chebyshev. O método de Gauss-Chebyshev também é conhecido como Gauss-Mehler.

A fórmula de Gauss-Mehler é

$$\int_{-1}^1 \frac{f(u) du}{(1-u^2)^{1/2}} \approx \sum_{i=1}^n \omega_i f(u_n^i), \quad (\text{A.35})$$

onde os u_n^i são as raízes do polinômio de Chebyshev de grau n ($T_n(x) = \cos[n \cos^{-1}(x)]$)

$$u_n^i = \cos \left[\left(\frac{2i-1}{2n} \right) \pi \right] \quad (\text{A.36})$$

e

$$\omega_i = \pi/n. \quad (\text{A.37})$$

Combinando as equações A.35, A.36, A.37, juntamente com as equações A.33 e A.34 e após alguns passos intermediários obtemos as seguintes expressões para o Θ e τ :

$$\Theta = \pi - (2p/R) \frac{\pi}{n} \sum_{i=1}^n b_i b_{n-i+1} [g(R/b_i^2)]^{-1} \quad (\text{A.38})$$

e

$$\tau = \sqrt{R^2 - p^2} - R \frac{\pi}{n} \sum_{i=1}^n b_i b_{n-i+1} \frac{1}{b_i^4} \left([g(R/b_i^2)]^{-1} - [\tilde{g}(R/b_i^2)]^{-1} \right) \quad (\text{A.39})$$

A.4 Vibrações térmicas

Como se sabe, as posições dos átomos numa rede cristalina não são fixas, devido às vibrações térmicas da rede. No entanto, a implementação da BCA no MARLOWE considera que os projéteis colidem com átomos da rede inicialmente estacionários. Os átomos da rede podem ser considerados instantaneamente fixos se eles se moverem lentamente em comparação com a velocidade do projétil. Podemos obter uma noção das limitações dessa hipótese considerando que a velocidade com que os átomos oscilam em torno de suas posições de equilíbrio seja igual à velocidade de propagação do som no meio. Tipicamente, a velocidade de propagação do som num sólido é da ordem de $v_s = 5000$ m/s. Um íon pesado (de Európio, por exemplo) penetrando no sólido com energia de 30 keV tem velocidade cerca de 50 vezes maior que v_s . Quando a energia do projétil cai a 1 keV sua velocidade é da ordem de 10 v_s . Íons mais leves viajando com as mesmas energias citadas acima, têm velocidades ainda maiores. Portanto, é uma boa aproximação considerar que os átomos são instantaneamente fixos.

Nestas condições, as vibrações térmicas não correlacionadas podem ser introduzidas de maneira simples[17]. Considera-se que os átomos se movam independentemente uns dos outros, com igual probabilidade em todas as direções. A probabilidade $P(u)du$, de encontrar um átomo a uma distância entre u e $u + du$ da sua posição de equilíbrio é dada por uma distribuição gaussiana:

$$P(u) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}u^2\right), \quad (\text{A.40})$$

onde u é dada em unidades da raiz quadrática média da amplitude de vibração ($\langle u_i^2 \rangle^{1/2}$). O valor de $\langle u_i^2 \rangle^{1/2}$ é dado pela teoria de Debye-Waller:

$$\langle u_i^2 \rangle^{1/2} = \frac{3\hbar^2}{Mk\Theta_D} \left[\frac{T^2}{\Theta_D^2} \int_0^{\frac{\Theta_D}{T}} \frac{x dx}{e^x - 1} + \frac{1}{4} \right], \quad (\text{A.41})$$

onde u_i é o deslocamento ao longo da direção i , M é a massa do átomo da rede, k a constante de Boltzman, Θ_D é a temperatura de Debye e T a temperatura do alvo. O termo $\frac{1}{4}$ aparece graças à vibração de ponto zero. As amplitudes de vibração dadas pela equação acima são pequenas em comparação com as constantes de rede típicas. Por exemplo, para o silício, cuja temperatura de Debye é de 490 K [84, 85, 87], o valor de u_i a 350°C é de 0.11 Å.

A.5 Potenciais Interatômicos

No MARLOWE as colisões binárias são governadas por potenciais centrais que dependem exclusivamente dos números atômicos do projétil e do átomo-alvo. Na versão do MARLOWE utilizada neste trabalho (versão 13c) [69] os potenciais interatômicos são puramente repulsivos do tipo coulombiano blindado e são escritos na forma usual:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \Phi(r/a), \quad (\text{A.42})$$

onde Φ é a função de blindagem e a , o comprimento de blindagem.

Há quatro possibilidades de escolha:

A.5.1 Potencial de Born-Mayer

O potencial originalmente utilizado no MARLOWE [39] foi o potencial de Born-Mayer, que é escrito como [17]

$$V(r) = A_{BM}e^{-r/a_{BM}}, \quad (\text{A.43})$$

onde A_{BM} é um parâmetro com unidades de energia e a_{BM} é o comprimento de blindagem. Os parâmetros *default* no MARLOWE são os da referência [128], onde foi sugerido o seguinte conjunto de parâmetros “universais”:

$$\begin{cases} A_{BM} = 52(Z_1 Z_2)^{3/4} \text{eV} \\ a_{BM} = 0.219 \text{Å} \end{cases}, \quad (\text{A.44})$$

No entanto, outros valores para A_{BM} e a_{BM} podem ser fornecidos pelo usuário nos arquivos de entrada de dados.

A.5.2 Potencial de Molière

As versões posteriores do MARLOWE[75] utilizaram o potencial de Molière cuja função de blindagem é dada pela aproximação de Molière para a função de blindagem de Thomas-Fermi. Esta função de blindagem, obtida minimizando-se o funcional de Thomas-Fermi sob a restrição de que o potencial tenha decaimento exponencial [?] é dada pela expressão.

$$\Phi_{Moli}(r) = \sum_{i=1}^3 c_i \exp\left(-d_i \frac{r}{a}\right), \quad (\text{A.45})$$

onde $c_i = \{0.35, 0.55, 0.10\}$ e $d_i = \{0.3, 1.2, 6.0\}$. No MARLOWE, para o potencial de Molière, o comprimento de blindagem *default* é o comprimento de blindagem de Firsov [30]:

$$a_F = \frac{0.8854a_0}{(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{2/3}}, \quad (\text{A.46})$$

embora outros valores para o comprimento de blindagem possam ser passados ao programa nos arquivos de entrada.

A.5.3 Potencial ZBL

O MARLOWE também permite utilizar o potencial ZBL[3], que discutimos no capítulo II. A função de blindagem ZBL é dada por:

$$\Phi_{ZBL}(r) = \sum_{i=1}^4 c_i \exp\left(-d_i \frac{r}{a}\right), \quad (\text{A.47})$$

onde $c_i = \{0.028171, 0.0.28022, 0.50986, 0.18175\}$ e $d_i = \{0.20162, 0.40290, 0.94229, 3.1998\}$ e o comprimento de blindagem é:

$$a_{ZBL} = \frac{0.8854a_0}{(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}. \quad (\text{A.48})$$

A.5.4 Potencial AMLJ

Uma alternativa ao potencial ZBL é o potencial AMLJ (*Averaged Modified Lenz-Jensen Potential*) [129, 130]. Assim como o potencial ZBL, este potencial é baseado no modelo FEG. As diferenças entre os dois residem no fato de que o potencial ZBL é baseado em densidades eletrônicas atômicas obtidas pelo método Hartree-Fock Slater. O Potencial AMLJ utiliza densidades eletrônicas obtidas pelo método Dirac-Hartree-Fock-Slater. A Função de blindagem AMLJ é dada por:

$$\Phi_{AMLJ}(r) = \exp \left[-\alpha_1 r + \alpha_2 r^{3/2} - \alpha_3 r^2 \right], \quad (\text{A.49})$$

onde

$$\begin{cases} \alpha_1 = \frac{1.706}{a_0} (Z_1^{0.307} + Z_2^{0.307})^{2/3} \\ \alpha_2 = \frac{0.916}{a_0^{3/2}} (Z_1^{0.169} + Z_2^{0.169}) \\ \alpha_3 = \frac{0.244}{a_0^2} (Z_1^{0.0418} + Z_2^{0.0418})^{4/3} \end{cases} \quad (\text{A.50})$$

A comparação do potencial AMLJ com o potencial ZBL mostra algumas discrepâncias entre os dois, especialmente para íons leves [72]. No entanto, para íons pesados (como os pares EU-Si e Bi-Si) não são observadas discrepâncias apreciáveis.

A.6 Perda de energia eletrônica

No MARLOWE são considerados dois tipos de modelamento para a perda de energia eletrônica. Se a perda de energia é dependente da energia e da distância percorrida pelo projétil, mas é independente do que acontece em torno da trajetória, esta perda de energia é denominada **não-local**. No MARLOWE, a seção de choque de freamento eletrônico é dada por:

$$S_e(E) = kE^{1/2}, \quad (\text{A.51})$$

onde o parâmetro k é dado pela teoria LSS ou pelo modelo de FIRSOV. Neste modelo, as perdas de energia eletrônica e nuclear são completamente descorrelacionadas [72].

Quando a perda de energia depende da distância de aproximação máxima ou do parâmetro de impacto na colisão o modelo é denominado **local**. No MARLOWE, pode-se escolher entre dois modelos de freamento local: o modelo de Firsov [74] e o modelo de Robinson e Oen [75]. A seguir, faremos uma apresentação breve destes dois modelos.

A.6.1 O modelo de Firsov

Firsov [74] propôs um modelo qualitativo, baseado em conceitos de mecânica clássica, para descrever a energia de excitação das camadas eletrônicas do íon e do alvo, durante colisões lentas ($v_0 \ll v_{Bohr}^{2/3}$) entre íons pesados.

Neste modelo, o projétil e o alvo são descritos pelo modelo de Thomas-Fermi. Assume-se que o tempo de colisão é longo o suficiente para que se forme uma quase molécula e que elétrons sejam trocados entre o alvo e o projétil. Os elétrons do alvo que são absorvidos pelo projétil têm que ser acelerados até a velocidade \vec{v}_0 do projétil, significando que o projétil perde momentum $\Delta\vec{p} = m_e\vec{v}_0$. Firsov calculou então o fluxo de elétrons capturados pelo

projétil. A partir deste fluxo ele obteve o momentum total transportado ao projétil por unidade de tempo, ou seja, a força que atua no projétil. A perda de energia como função do parâmetro de impacto foi obtida calculando-se o trabalho realizado por esta força. O resultado obtido foi o seguinte:

$$Q(p, E) = \frac{\alpha_{12}E^{1/2}}{[1 + \beta_{12}R(p, E)]^5}, \quad (\text{A.52})$$

onde $R(p, E)$ é a distância de aproximação máxima na colisão e as constantes α_{12} e β_{12} são dadas por [17]:

$$\alpha_{12} = 0.06685 \frac{(Z_1 + Z_2)^{1/3}}{M_1^{1/2}} [\text{eV}]^{1/2} \quad (\text{A.53})$$

e

$$\beta_{12} = 0.3043(Z_1 + Z_2)^{1/3} [\text{Å}]^{-1}. \quad (\text{A.54})$$

A seção de choque de freamento de Firsov é dada pela relação:

$$Se = K_{Fir} \pi e^2 a_{Bohr} (Z_1 + Z_2) \frac{v_0}{v_{Bohr}}, \quad (\text{A.55})$$

onde $K_{Fir} = 1.08$.

O resultado obtido na equação A.52 vem do fato de que o tratamento de Firsov leva a $Q \propto \int \varphi^2 dx$, onde φ é a função de blindagem de Thomas-Fermi. Assintoticamente $\varphi \propto x^{-3}$. Então, $Q \propto x^{-5}$.

A.6.2 O modelo de Robinson e Oen

A densidade eletrônica num átomo real deve cair exponencialmente. Assim, Robinson e Oen [75] sugeriram que utilizar $\varphi \propto e^{-x}$ seria uma abordagem mais realista que a de Firsov. Sendo assim, eles propuseram a seguinte expressão para a perda de energia eletrônica numa colisão binária:

$$Q(p, E) = K_{LSS} E^{1/2} \left(\frac{\gamma^2}{2\pi a^2} \right) \exp[-\gamma R(p, E)/a]. \quad (\text{A.56})$$

Nesta expressão, $\gamma = 0.3$. Esta escolha corresponde a utilizar a função de blindagem de Molière. Na equação A.45, vemos que assintoticamente, $\Phi_{moli} \propto e^{-0.3x}$. No entanto, a conexão original do Modelo de Robinson e Oen com o potencial de Molière não é essencial. O valor de γ pode ser considerado um parâmetro de ajuste que tem o papel de fazer com que a dependência espacial da perda de energia local siga aproximadamente a densidade eletrônica em torno do átomo-alvo. Os fatores numéricos que multiplicam o termo exponencial foram escolhidos de tal forma que

$$S_e^{RO} = 2\pi \int_0^\infty Q(p, E) p dp = K_{LSS} E^{1/2}. \quad (\text{A.57})$$

Na equação A.57, assumimos que a integração pode ser estendida ao infinito. No entanto, no MARLOWE, é necessário limitar o valor do parâmetro de impacto máximo a valores $p \leq p_{max}$. Assim, parte do freamento local é desprezado. Para corrigir este problema o freamento local é calculado pela equação A.56 para $p \leq p_{max}$, mas o freamento

para $p > p_{max}$ é considerado não-local. A seção de choque de freamento total no modelo de Robinson e Oen é dada por:

$$S_e^{RO} = K_{LSS} E^{1/2} [1 + (1 + \gamma p_{max}/a) \exp(-\gamma p_{max}/a)], \quad (\text{A.58})$$

onde o segundo termo corresponde à parte não local. O MARLOWE também permite combinar os modelos local e não-local em quaisquer proporções que se desejar. A opção usual é considerar que os dois modelos contribuem igualmente ao freamento total (equipartição).

A.7 Construção das trajetórias

O MARLOWE utiliza a estrutura da rede cristalina do alvo para determinar a seqüência de colisões experimentada pelos projéteis. Por exemplo, um alvo de Si é construído informandose ao programa que o cristal é formado por uma rede de Bravais FCC com uma base formada por 2 átomos de Si, cujos vetores deslocamento em relação aos sítios de rede são:

$$\begin{cases} \vec{v}_1 = [0, 0, 0] \\ \vec{v}_2 = \frac{D}{4} [1, 1, 1] \\ D = 5.43 \text{ \AA} \end{cases} \quad (\text{A.59})$$

A.7.1 Procedimento de procura dos alvos

Um dos sítios da rede é tomado como origem de um sistema de coordenadas cartesianas. Então, utilizando as propriedades de simetria da rede, o programa cria uma lista de primeiros e segundos vizinhos à posição do projétil.

O procedimento de busca dos alvos está ilustrado na figura A.7.1. A partir do ponto D_{i-1} , onde aconteceu a última mudança na direção da assíntota da trajetória, o projétil está se movendo na direção do vetor unitário $\hat{\lambda}_0$. A procura na lista de vizinhos encontra o átomo alvo T_i . Então a distância ζ e o parâmetro de impacto p são determinados por

$$\zeta = \hat{\lambda}_0 \cdot \vec{\Delta}x \quad (\text{A.60})$$

e

$$p = |\vec{\Delta}x \times \hat{\lambda}_0|, \quad (\text{A.61})$$

onde $\vec{\Delta}x$ é o vetor deslocamento entre D_i e T_i . Para evitar que o átomo T_{i-1} seja escolhido novamente como alvo, impõe-se a seguinte condição sobre ζ :

$$\zeta > \zeta_{min} \geq 0. \quad (\text{A.62})$$

O valor de ζ_{min} é um dos parâmetros de entrada do programa e tem que ser obtido por tentativa e erro. O valor *default* é $\zeta_{min} = 0.25 \text{ \AA}$.

Se o valor de p (eq. A.61) for maior que um parâmetro de impacto máximo pré-estabelecido (p_{max}) o átomo alvo T_i é considerado muito distante para causar qualquer deflexão na trajetória do projétil ou transferência de energia ao alvo T_i . Se, no entanto,

$$p < p_{max}, \quad (\text{A.63})$$

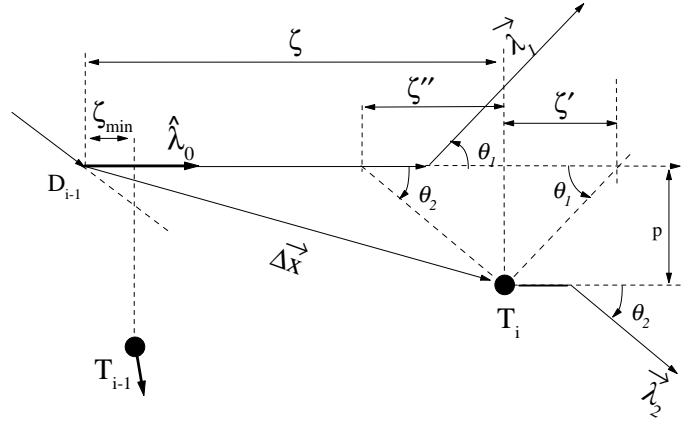


Fig. A.5: Esquema que ilustra o procedimento de busca de alvos no MARLOWE. Veja o texto para maiores detalhes. Baseado na ref. [17]

as novas direções das assíntotas podem ser obtidas da figura A.7.1. Temos:

$$\begin{cases} \lambda'_1 = (\zeta + \zeta') \hat{\lambda}_0 - \vec{\Delta}x \\ \lambda'_2 = (\zeta - \zeta'') \hat{\lambda}_0 - \vec{\Delta}x \end{cases}, \quad (\text{A.64})$$

onde ζ' e ζ'' são definidos pelas relações:

$$\begin{cases} \tan(\theta_1) = \frac{p}{\zeta'} \\ \sin(\theta_1) = \frac{p}{|\lambda'_1|} \\ \tan(\theta_2) = \frac{p}{\zeta''} \\ \sin(\theta_2) = \frac{p}{|\lambda'_2|} \end{cases} \quad (\text{A.65})$$

Agora, combinando as equações A.64 e A.65 podemos obter as novas direções do projétil e do alvo, dadas pelos seguintes vetores unitários:

$$\begin{cases} \hat{\lambda}_1 = \left[\cos(\theta_1) + \frac{\zeta}{p} \sin(\theta_1) \right] \hat{\lambda}_0 - \left[\frac{1}{p} \sin(\theta_1) \right] \vec{\Delta}x \\ \hat{\lambda}_2 = \left[\cos(\theta_2) - \frac{\zeta}{p} \sin(\theta_2) \right] \hat{\lambda}_0 + \left[\frac{1}{p} \sin(\theta_2) \right] \vec{\Delta}x \end{cases} \quad (\text{A.66})$$

A.7.2 Tratamento das colisões simultâneas

Neste ponto, surge uma outra complicação. Pode ser que mais de um projétil satisfaça às condições A.62 e A.63. Neste caso, o MARLOWE utiliza a seguinte aproximação para tratar a colisão com dois ou mais alvos. Seja i um índice que denota cada um dos alvos ao longo da trajetória, então para cada alvo em potencial o programa calcula a seguinte quantidade:

$$\Delta\zeta_{i1} = \zeta_i - \zeta_1. \quad (\text{A.67})$$

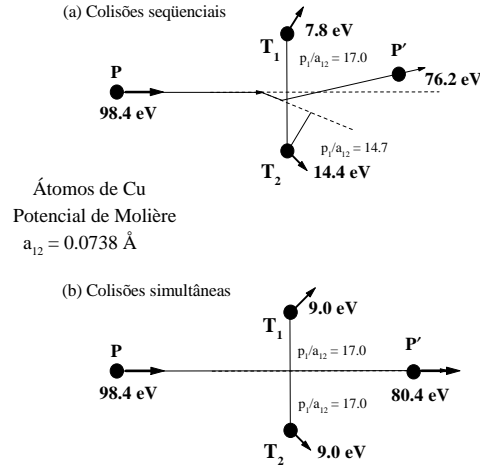


Fig. A.6: Comparação entre os tratamentos seqüencial e simultâneo de uma colisão de três corpos. O exemplo corresponde ao movimento de um átomo de Cu ao longo da direção $\langle 110 \rangle$ dum cristal de Cu. Baseado na figura 5 da ref [72].

As colisões que satisfazem à condição

$$\Delta\zeta_{i1} < \zeta_m, \quad (\text{A.68})$$

são consideradas simultâneas. O valor *default* para ζ_m é 0.25 \AA .

A direção e a energia cinética de cada alvo são calculadas como se as colisões fossem isoladas. Então, os momenta de todos os alvos são calculados e a conservação de momentum total é utilizada para determinar o momentum final do projétil; sua nova posição corresponde à primeira assíntota a intersectar sua trajetória inicial. Finalmente, a conservação de energia é obtida renormalizando todos os momenta envolvidos. Este algoritmo é exato quando há um único átomo-alvo mas, em geral, subestima a energia transferida a múltiplos alvos.

O algoritmo que descrevemos acima está ilustrado na figura A.6. Na parte (a) as colisões são tratadas seqüencialmente. Na parte (b), o mesmo evento é tratado como descrito acima [72]. No primeiro caso, a deflexão por T_1 faz com que o projétil passe muito mais próximo de T_2 do que no caso (b). Devido a isto, no caso (a), o projétil perde muito mais energia e também é defletido para longe da sua direção inicial de movimento. No caso (b), o tratamento simultâneo preserva a direção de movimento, o que é altamente desejável para descrever situações onde há canalização, mas subestima a perda de energia.

A.7.3 Trajetórias assintóticas

A fim de determinar a intersecção das assíntotas das trajetórias com os eixos x e y e com a reta $y = p$ (veja figura A.1 para maiores detalhes) é necessário determinar o comportamento assintótico do ângulo polar e da distância r , que são as coordenadas relativas do sistema. É fácil mostrar que, após o sistema ter passado pelo ápice da colisão, o comportamento

assintótico de $\varphi(r)$ é dado por:

$$\varphi(r) = \Theta + \arcsin\left(\frac{p}{r}\right) \approx \theta + \frac{p}{r} \quad (\text{A.69})$$

Por outro lado, a dependência temporal de r pode ser obtida a partir da eq. A.17:

$$\int_0^t dt = -\frac{1}{v_0} \int_\infty^R [g(r)]^{-1} dr + \frac{1}{fv_0} \int_R^{r(t)} [g(r)]^{-1} dr. \quad (\text{A.70})$$

Aqui, o fator $1/f$ na segunda metade da trajetória aparece devido à perda de energia inelástica no ápice da colisão. No limite assintótico em que $r \gg p$, podemos reescrever a eq. A.70 como:

$$\begin{aligned} v_0 t &= \int_R^\infty ([g(r)]^{-1} - [\tilde{g}(r)]^{-1}) dr + \int_R^{r(0)=L} [\tilde{g}(r)]^{-1} dr \\ &+ \frac{1}{f} \left(\int_R^\infty ([g(r)]^{-1} - [\tilde{g}(r)]^{-1}) dr + \int_R^{r(t)} [\tilde{g}(r)]^{-1} dr \right), \end{aligned} \quad (\text{A.71})$$

onde utilizamos a seguinte aproximação:

$$\int_R^r [g(r)]^{-1} dr \approx \int_R^\infty [g(r)]^{-1} dr - \int_r^\infty [\tilde{g}(r)]^{-1} dr - \int_R^r [\tilde{g}(r)]^{-1} + \int_R^r [\tilde{g}(r)]^{-1}. \quad (\text{A.72})$$

Agora, utilizando a equação A.27, podemos reescrever a equação A.71 como:

$$\begin{aligned} v_0 t &= r(0) - \tau + \frac{1}{f}(r(t) - \tau), \text{ ou seja,} \\ r(t) &= fv_0 t + (1+f)\tau - fr(0). \end{aligned} \quad (\text{A.73})$$

Sejam agora $((x_1(t), y_1(t)))$ e $((x_2(t), y_2(t)))$ os vetores posição do projétil e do alvo, respectivamente, no ref. do laboratório.

Podemos agora obter as assíntotas das trajetórias a partir do conhecimento do movimento do centro de massas (conservação do momento linear),

$$\begin{aligned} M_1 x_1(t) + M_2 x_2(t) &= M_1 v_0 t - M_1 r(0) \\ M_1 y_1(t) + M_2 y_2(t) &= M_1 p, \end{aligned} \quad (\text{A.74})$$

combinado com as equações A.69, A.71 e com as igualdades

$$x_1(t) - x_2(t) = r \cos(\varphi(r)) \quad (\text{A.75})$$

$$y_1(t) - y_2(t) = r \sin(\varphi(r)). \quad (\text{A.76})$$

Eliminando-se o tempo das equações resultantes, pode-se obter as interseções das assíntotas com os eixos x e y . Por exemplo, a assíntota do projétil corta o eixo x no ponto $(\hat{x}_1, y = 0)$, onde

$$\hat{x}_1 = -\frac{p}{1+A} \frac{1 + A^2 f + A(1+f) \cos(\Theta)}{A f \cos(\Theta)} - \frac{\tau}{1+A} (1 + f^{-1}) \quad (\text{A.77})$$

e corta o eixo y no ponto $(x = 0, \hat{y}_1)$, com

$$\hat{y}_1 = \frac{p}{1+A} \left(1 + \frac{Af(Af + \cos(\Theta)) + A^2f(1-f)\sin^2(\Theta)}{1 + Af \cos(\Theta)} \right) + \frac{\tau}{1+A} \frac{A(1+f)\sin(\Theta)}{1 + Af \cos(\Theta)}. \quad (\text{A.78})$$

As assíntotas do alvo cortam o eixo x no ponto $(\hat{x}_2, y = 0)$, onde

$$\hat{x}_2 = \frac{1+f^{-1}}{1+A} \left(p \tan\left(\frac{\Theta}{2}\right) - \tau \right), \quad (\text{A.79})$$

e o eixo y no ponto $(x = 0, \hat{y}_1)$, com

$$\hat{y}_2 = \frac{1+f}{1+A} \left(p \frac{1-\cos(\Theta)}{1-f\cos(\Theta)} - \tau \frac{\sin(\Theta)}{1-f\cos(\Theta)} \right). \quad (\text{A.80})$$

A assíntota do projétil cruza a reta $y = p$ no ponto $(\hat{x}_{1p}, y = p)$ dado por

$$\hat{x}_{1p} = \frac{1}{f(1+A)} \left(p(Af - 1) \tan\left(\frac{\Theta}{2}\right) + \tau(1+f) \right), \quad (\text{A.81})$$

e a assíntota do alvo cruza a reta $y = p$ no ponto com $(\hat{x}_{1p}, y = p)$ dado por:

$$\hat{x}_{2p} = \hat{x}_{1p} - \frac{p(1-f^{-1})}{\sin(\Theta)}. \quad (\text{A.82})$$

De fato, das equações A.79 e A.81, podemos demonstrar o seguinte resultado (veja figura A.1):

$$\hat{x}_2 - \hat{x}_{1p} = p \tan\left(\frac{\Theta}{2}\right). \quad (\text{A.83})$$

Por outro lado, pela definição da integral τ , pode-se demonstrar que

$$\hat{x}_0 = \frac{\tau}{1+A}. \quad (\text{A.84})$$

Portanto, o valor de \hat{x}_0 (veja figura A.1) é uma medida direta de τ .

Apêndice B

Cálculo de $Q(b)$: os modelos PCA e UCA

B.1 Introdução

Um método muito utilizado para calcular a perda de energia dependente do parâmetro de impacto é a aproximação semiclássica. Esta aproximação se baseia na idéia de que se pode desprezar o caráter ondulatório do projétil e associar ao seu movimento uma trajetória bem definida. Ela é válida [131] se o íon incidente tiver, ao menos, energias térmicas. Outra hipótese relacionada é que o projétil viaja em linha reta $\vec{R}(t) = \vec{v}_p t + \vec{b}$, com velocidade constante \vec{v}_p e vetor parâmetro de impacto \vec{b} . Esta hipótese é válida em altas energias, quando o momentum transferido aos elétrons do alvo é muito menor que o momentum inicial do projétil. Vamos nos restringir, por hora, a íons nus como projéteis. Neste caso, a interação coulombiana ¹ $V(\vec{r} - \vec{R}(t)) = -Z_p / |\vec{r} - \vec{R}(t)|$ entre o projétil e o elétron do alvo, localizado na posição \vec{r} , dá origem a transições eletrônicas no alvo, que resultam na perda de energia do projétil. A perda de energia devido aos processos de excitação e ionização do alvo é calculada a partir da expressão

$$Q(b) = \sum_f |a_f(\vec{b})|^2 (\epsilon_f - \epsilon_0) \quad (\text{B.1})$$

que envolve uma soma sobre todos os estados finais eletrônicos do alvo e o cálculo das amplitudes de transição correspondentes. Se $\chi = Z_p/v_p \ll 1$, a interação entre o projétil e os elétrons do alvo pode ser considerada uma pequena perturbação e as amplitudes de transição podem ser obtidas em primeira ordem de teoria de perturbação dependente do tempo. Em unidades atômicas, as amplitudes $a_f(\vec{b})$ são dadas por:

$$a_f(\vec{b}) = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i(\epsilon_f - \epsilon_0)t} \langle f | V(\vec{r} - \vec{R}(t)) | 0 \rangle \quad (\text{B.2})$$

No entanto, mesmo em primeira ordem, o cálculo das amplitudes de transição e de $Q(b)$ na SCA envolve um esforço computacional que torna proibitiva sua implementação em qualquer programa de simulação de interações íon-matéria.

Na busca de soluções aproximadas para $Q(b)$ Grande e Schiwietz [119, 120] propuseram um modelo simples para o cálculo de $Q(b)$ que consegue reproduzir os resultados dos

¹ Neste apêndice trabalharemos com unidades atômicas: $e = 1, m_e = 1, \hbar = 1$

cálculos completos SCA, para todos os parâmetros de impacto, sem a necessidade de cálculos pesados. Estes modelos, denominados PCA e UCA, serão descritos a seguir.

B.2 O modelo PCA

Na literatura, é possível encontrar soluções aproximadas para as equações B.2 e B.1, todas válidas em intervalos limitados de parâmetros de impacto. Para *grandes parâmetros de impacto* utiliza-se a aproximação de dipolo para $V(\vec{r} - \vec{R}(t))$ onde,

$$V(\vec{r} - \vec{R}(t)) \approx V(\vec{r} - \vec{R}(t))|_{\vec{r}=0} + \vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{r}} V(\vec{r} - \vec{R}(t))|_{\vec{r}=0} \quad (\text{B.3})$$

Neste caso, é possível obter uma expressão analítica para $Q(b)$:

$$Q(b) = \frac{1}{2} \sum_i f_i |\hat{E}(b, \omega_i)|^2 = T(b) \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b}{v_p}\right) \quad (\text{B.4})$$

onde $\hat{E}(b, \omega_i)$ é a transformada de Fourier do campo elétrico devido ao projétil na posição do núcleo atômico ($\vec{E}(t) = -\vec{\nabla}_{\vec{r}} V(\vec{r} - \vec{R}(t))|_{\vec{r}=0}$),

$$T(b) = 2Z^2/v_p^2 b^2 \quad (\text{B.5})$$

é a energia transferida a um elétron em repouso, calculada pela aproximação de impulso clássica, e

$$g(x) = x^2(K_0^2(x) + K_1^2(x)). \quad (\text{B.6})$$

Aqui, K_0 e K_1 são funções de Bessel modificadas, $\omega_i \equiv (\epsilon_i - \epsilon_0)$ são as energias de transição, e os f_i são as forças de oscilados de dipolo ($f_i = 2|\langle i|z|0\rangle|^2(\epsilon_i - \epsilon_0)$) que satisfzem à regra de soma de Thomas-Reiche-Kuhn $\sum_i f_i = 1$ [26].

Para *parâmetros de impacto intermediários* (um pouco maiores que o raio da camada eletrônica, r_{shell}) e para altas velocidades do projétil, o fator exponencial na equação B.2 pode ser desprezado quando o tempo de colisão $\tau = r_{shell}/v_p$ é pequeno comparado com $1/\omega_i$. Neste caso é possível realizar analiticamente o somatório sobre todos os estados finais do elétron do alvo. Considerando um tempo de colisão muito curto, temos $e^{i(\epsilon_f - \epsilon_0)t} \approx 1$. Neste caso, $a_f(b) \approx -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle f | \hat{V}(t) | 0 \rangle$ onde $\hat{V}(t) = V(\vec{r} - \vec{R}(t))$. Neste caso, é fácil mostrar que

$$Q(b) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dt dt' \langle 0 | \hat{V}(t) (\hat{H}_0 - \epsilon_0) \hat{V}(t') | f \rangle \quad (\text{B.7})$$

onde utilizamos a relação de fechamento

$$\sum_f \epsilon_f |f\rangle \langle f| \equiv \hat{H}_0 \quad (\text{B.8})$$

e \hat{H}_0 é a Hamiltoniana para o elétron ativo do alvo. Manipulando-se a relação B.7 chega-se à seguinte expressão para $Q(b)$ [132]:

$$Q(b) = \frac{1}{2} \langle 0 | \left[\int_{-\infty}^{\infty} dt \vec{F}(\vec{r}, t) \right]^2 | 0 \rangle, \quad (\text{B.9})$$

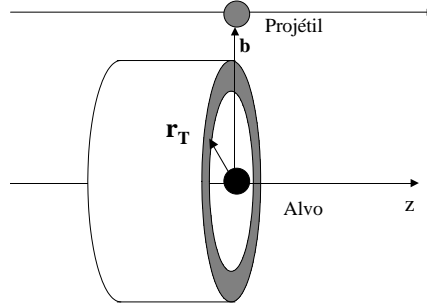


Fig. B.1: Representação esquemática da geometria de colisão, onde definimos o vetor r_T . O cilindro representa a densidade eletrônica do alvo integrada ao longo da direção de movimento do projétil.

onde $\vec{F}(\vec{r}, t)$ é a força aplicada pelo projétil no elétron ativo e a integral entre colchetes tem interpretação imediata: é o momentum transferido a um elétron livre, calculado na aproximação de impulso. Desta maneira, podemos finalmente escrever

$$Q(b) = \int d^2 r_T T(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z) \quad (\text{B.10})$$

com $T(b) = 2Z^2/v_p^2 b^2$. Como mostrado na figura B.1, o vetor r_T é perpendicular a z , a direção de movimento do projétil. A integral $\int dz \rho(\vec{r}_T, z)$ é a densidade eletrônica do alvo, integrada ao longo da trajetória do íon. Portanto, a equação B.10 corresponde à energia transferida a um elétron livre, na aproximação de impulso, cuja probabilidade de ser encontrado na posição \vec{r} corresponde à densidade eletrônica do átomo-alvo.

Para *parâmetros de impacto pequenos*, energias transferidas da ordem de $\omega_i = 2v_p^2$ ganham importância e um tratamento adequado da cinemática da colisão se torna necessário. Para altas velocidades do projétil e pequenos parâmetros de impacto, os elétrons absorvem grande quantidades de energia sendo ejetados (ionizados) do átomo-alvo. Se as energias dos elétrons ejetados forem grandes em comparação com suas energias de ligação, a influência do potencial do átomo alvo pode ser desprezada e os estados finais dos elétrons podem ser substituídos por ondas planas, o que torna possível obter uma expressão analítica para $Q(b)$ [119]:

$$Q(b) = \int d^2 r_T \mathcal{T}(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (\text{B.11})$$

onde

$$\mathcal{T}(b) = \frac{2Z^2}{v_p^2 b^2} \times h(2vb) = T(b) \times h(2vb), \quad (\text{B.12})$$

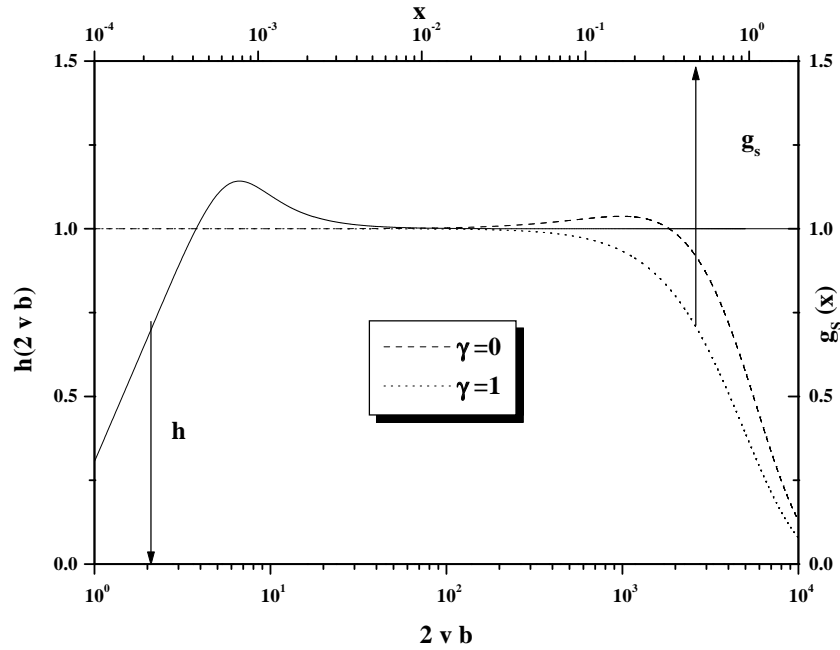


Fig. B.2: As funções $g(x)$ e $h(x)$ das equações B.6 e B.13 que descrevem os termos de dipolo e colisões quase livres, respectivamente. A linha pontilhada corresponde à função $g_s(x)$ para o potencial de Bohr (equação B.37) no caso limite ($\gamma = 1$) de um íon fortemente blindado. Para altas velocidades do projétil, as partes horizontais das funções têm uma considerável superposição.

com

$$h(x) = \frac{x^2}{2} \int_0^1 dy y K_0(xy^2) J_0(xy\sqrt{1-y^2}). \quad (\text{B.13})$$

Neste ponto, é interessante tecer alguns comentários a respeito das expressões que obtivemos para $Q(b)$ nas três regiões de parâmetros de impacto estudadas acima. Para grandes parâmetros de impacto, $Q(b)$ (equação B.4) é dada, essencialmente pelo produto da função $g(\omega_i b/v_p)$ pela energia transferida a um elétron livre na aproximação de impulso, $T(b)$ (equação B.5). A função $g(\omega_i b/v_p)$ está graficada na figura B.2 como uma linha traçada. Como mostrado nesta figura, à medida que se aumenta $\omega_i b/v_p$ esta função passa do valor constante igual a um até um máximo largo em $\omega_i b/v_p = 0.17$ e cai a zero exponencialmente para grandes parâmetros de impacto. Por outro lado, a expressão que obtivemos para pequenos parâmetros de impacto (equações B.11, B.12 e B.13) é modulada pela função $h(2v_p b)$, que se encontra graficada na figura B.2 como uma linha contínua. Como se pode ver, a função h vai a zero para $b \ll 1/v_p$ a assume valor constante igual a um para parâmetros de impacto intermediários e grandes. Isto quer dizer que $Q(b)$ para pequenos parâmetros de impacto coincide com a expressão B.10 em parâmetros de impacto intermediários. Além disso, a figura B.2 também mostra que há uma região de parâmetros de impacto onde acontece uma superposição entre as funções $g(\omega_i b/v_p)$ e $h(2v_p b)$. Ainda, de acordo com a figura B.2, quanto maior a velocidade do projétil, maior será a região de superposição das duas funções. Isto significa que, para altas velocidades do projétil, a

transição entre o cenário de colisões violentas e o cenário de transições de dipolo se dá de maneira suave. Baseados nestas observações Grande e Schiwietz [119] propuseram a seguinte fórmula geral que interpola as aproximações descritas acima e que é aplicável para todos os parâmetros de impacto:

$$Q(b) = \int d^2r_T \mathcal{K}(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (\text{B.14})$$

onde,

$$\mathcal{K}(b) = \frac{2Z^2}{v_p^2 b^2} \times h(2v_p b) \times \sum_i f_i g \left(\frac{\omega_i b}{v_p} \right) \quad (\text{B.15})$$

Esta função une suavemente as três regiões de parâmetros de impacto descritas acima. Os dois primeiros termos na equação B.15 descrevem colisões binárias violentas e o último termo descreve as transições de dipolo. A primeira integral na equação B.14 é uma convolução do *Kernel* $\mathcal{K}(b)$ com densidade eletrônica do átomo alvo em torno da trajetória do projétil, e portanto, também leva em conta contribuições não locais para a perda de energia. A convolução proposta na equação B.14 é a razão do nome dado ao modelo apresentado aqui. PCA vem de **P**erturbative **C**onvolution **A**pproximation. Como discutido na referência [119] o modelo PCA consegue reproduzir com sucesso cálculos SCA para projéteis nus.

B.2.1 Introdução de potenciais blindados no modelo PCA

Devido aos processos de troca de carga que ocorrem quando íons penetram alvos sólidos, para descrever adequadamente a perda de energia é necessário considerar todos os estados de carga possíveis do íon, ou seja, temos que determinar $Q(b)$ para íons com elétrons ligados. Uma das contribuições deste trabalho de doutoramento consistiu em modificar o modelo PCA para íons blindados por elétrons ligados. A seguir, vamos apresentar a extensão do modelo PCA realizada neste trabalho, onde consideramos três tipos de potenciais Coulombianos blindados para descrever a interação entre o projétil e os elétrons do alvo. Este potenciais contém, além do termo coulombiano devido à carga nuclear do projétil, o potencial estático produzido pelos elétrons do projétil que blindam a carga nuclear do projétil. Nesta aproximação, o potencial pode ser calculado a partir de

$$V(\vec{R} - \vec{r}) = -\frac{Z_p}{|\vec{R}(t) - \vec{r}|} + \sum_i^{n_p} \int d^3r' \frac{|\Phi_i(\vec{r}')|^2}{|\vec{R}(t) - \vec{r} - \vec{r}'|} \quad (\text{B.16})$$

onde Z_p é a carga nuclear do projétil, Φ_i são as funções de onda dos elétrons do projétil e n_p é o número de elétrons do projétil. As funções de onda para cada elétron i do projétil podem ser obtidas pelo método Hartree-Fock-Slater [133]. Nesta formulação nós estamos desprezando efeitos de blindagem dinâmica (a dependência temporal de Φ_i devido a efeitos de polarização, excitação e/ou ionização do projétil), de correlação de Pauli (devido à antisimetria das funções de onda centradas no projétil e no alvo) e efeitos de correlação dinâmica devido à interação residual elétron-elétron. Portanto, os elétrons do projétil têm o papel meramente passivo de blindar o potencial devido ao núcleo atômico, isto é, os elétrons do projétil permanecem no estado fundamental durante a excitação do alvo. Portanto, estamos

desprezando também os efeitos de *antiscreening*, onde a interação elétron-elétron entre os elétrons ligados do projétil e os elétrons do alvo resultam num aumento das seções de choque de excitação e ionização na faixa de energias intermediárias e altas [134, 135].

Nós consideramos três tipos de potencial blindado:

1. O potencial blindado de Bohr:

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = -Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{r}-\vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|} \quad (\text{B.17})$$

que é o potencial eletrostático produzido por uma carga externa pontual Z_p introduzida num gás homogêneo de elétrons. Portanto, o potencial de Bohr descreve, aproximadamente, a polarização dos elétrons de valência num sólido devido à presença do projétil. Para íons lentos, o parâmetro α pode ser determinado a partir do comprimento de blindagem de Debye [37].

2. O potencial *single-zeta*:

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = - \left[\frac{(Z_p - n_p)}{|\vec{r} - \vec{R}|} + n_p \frac{e^{-\alpha|\vec{r}-\vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|} \times \left(1 + \frac{\alpha}{2} |\vec{r} - \vec{R}| \right) \right] \quad (\text{B.18})$$

que descreve a interação do elétron ativo do alvo com projéteis carregando um ou dois elétrons ($n_p = 1, 2$) em orbitais hidrogenóides 1s. Neste caso, o parâmetro α é obtido a partir da carga nuclear efetiva do projétil Z_p^{eff} ($\alpha = 2Z_p^{eff}$).

3. O potencial blindado Geral:

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = - \left[\frac{(Z_p - n_p)}{|\vec{r} - \vec{R}|} + n_p \sum_i^{n_{max}} \frac{e^{-c_i|\vec{r}-\vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|} \times (a_i + b_i|\vec{r} - \vec{R}|) \right] \quad (\text{B.19})$$

que é uma soma de potenciais *single-zeta* e é apropriado para descrever projéteis com muito elétrons. Os coeficientes a_i , b_i e c_i são determinado pelo ajuste do potencial calculado pela equação B.16. Em geral, o número de termos *single-zeta*, n_{max} , corresponde ao número de camadas atômicas do projétil.

A seguir, vamos mostrar como os potenciais blindados listados acima podem ser introduzidos no modelo PCA. Para isto, assim como já fizemos anteriormente, vamos estudar os comportamento limite de $Q(b)$ para parâmetros de impacto pequenos e grandes, a fim de extrair uma expressão comum para a transferência de energia que interpole os valores de $Q(b)$ para os limites assintóticos.

Grandes parâmetros de impacto

Como vimos na equação B.4, para calcular $Q(b)$ para *grandes parâmetros de impacto*, é necessário calcular a transformada de Fourier $|\hat{E}(b, \omega_i)|^2$ do campo elétrico devido ao projétil na posição do núcleo do átomo-alvo. A seguir, vamos apresentar os detalhes do cálculo de $Q(b)$ para o **potencial de Bohr**. O cálculo para os demais potenciais segue a mesma seqüência de passos que realizaremos a seguir.

Na aproximação de dipolo, temos

$$V(\vec{r}, \vec{R}) \sim -Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{R}|}}{|\vec{R}|} \left[1 + \vec{r} \cdot \vec{R} \left(\frac{1}{|\vec{R}|^2} + \frac{\alpha}{|\vec{R}|} \right) \right] \quad (\text{B.20})$$

Portanto, para o campo elétrico teremos:

$$\vec{E}(t) = -\nabla_{\vec{r}} V(\vec{r}, \vec{R}) = Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{R}|}}{|\vec{R}|} \left[\left(\frac{1}{|\vec{R}|^2} + \frac{\alpha}{|\vec{R}|} \right) \vec{R} \right] \quad (\text{B.21})$$

Calculando agora $\hat{E}(b, \omega_0)$,

$$\hat{E}(b, \omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega_0 t} Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{R}|}}{|\vec{R}|} \left[\left(\frac{1}{|\vec{R}|^2} + \frac{\alpha}{|\vec{R}|} \right) \vec{R} \right] \quad (\text{B.22})$$

Lembrando que $\vec{R}(t) = \vec{v}_p t + \vec{b}$ temos,

$$\hat{E}(b, \omega_0) = \hat{E}(b, \omega_0)_{\parallel} + \hat{E}(b, \omega_0)_{\perp}, \quad (\text{B.23})$$

onde

$$\hat{E}(b, \omega_0)_{\parallel} = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega_0 t} Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{R}|}}{|\vec{R}|} \left[\left(\frac{1}{|\vec{R}|^2} + \frac{\alpha}{|\vec{R}|} \right) \vec{v}_p t \right] \quad (\text{B.24})$$

e

$$\hat{E}(b, \omega_0)_{\perp} = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega_0 t} Z_p \frac{e^{-\alpha|\vec{R}|}}{|\vec{R}|} \left[\left(\frac{1}{|\vec{R}|^2} + \frac{\alpha}{|\vec{R}|} \right) \vec{b} \right] \quad (\text{B.25})$$

Fazendo a mudança de variáveis

$$x = \frac{v_p t}{b} \quad (\text{B.26})$$

as equações B.24 e B.25 ficam:

$$\hat{E}(b, \omega_0)_{\parallel} = \frac{Z_p \vec{v}_p}{b v_p^2} 2i \int_0^{\infty} \sin\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} x\right) e^{-\alpha b \sqrt{x^2+1}} b \left[\frac{\alpha}{x^2+1} + \frac{1}{b(x^2+1)^{3/2}} \right] x dx \quad (\text{B.27})$$

e

$$\hat{E}(b, \omega_0)_{\perp} = \frac{2Z_p \vec{b}}{v_p b^2} \int_0^{\infty} \cos\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} x\right) e^{-\alpha b \sqrt{x^2+1}} b \left[\frac{\alpha}{x^2+1} + \frac{1}{b(x^2+1)^{3/2}} \right] dx \quad (\text{B.28})$$

As integrais nas equações B.27 e B.28 podem ser resolvidas utilizando as seguintes igualdades:

$$I_1 = \int_0^{\infty} \exp\left(-\beta \sqrt{\gamma^2 + x^2}\right) \sin(ax) \frac{x dx}{\sqrt{\gamma^2 + x^2}} = \frac{a\gamma}{\sqrt{a^2 + \beta^2}} K_1\left(\gamma \sqrt{a^2 + \beta^2}\right) \quad (\text{B.29})$$

e

$$I_2 = \int_0^{\infty} \exp\left(-\beta \sqrt{\gamma^2 + x^2}\right) \cos(ax) \frac{dx}{\sqrt{\gamma^2 + x^2}} = K_0\left(\gamma \sqrt{a^2 + \beta^2}\right) \quad (\text{B.30})$$

que diferenciadas em relação ao parâmetro γ fornecem as integrais que procuramos:

$$\frac{\partial I_1}{\partial \gamma} = - \int_0^\infty \gamma \left[\beta \frac{\exp(-\beta\sqrt{\gamma^2 + x^2})}{(\gamma^2 + x^2)} + \frac{\exp(-\beta\sqrt{\gamma^2 + x^2})}{(\gamma^2 + x^2)^{3/2}} \right] \sin(ax) x dx \quad (\text{B.31})$$

e

$$\frac{\partial I_2}{\partial \gamma} = - \int_0^\infty \gamma \left[\beta \frac{\exp(-\beta\sqrt{\gamma^2 + x^2})}{(\gamma^2 + x^2)} + \frac{\exp(-\beta\sqrt{\gamma^2 + x^2})}{(\gamma^2 + x^2)^{3/2}} \right] \cos(ax) dx \quad (\text{B.32})$$

Agora, comparando as equações B.31 e B.31 com as equações B.28 e B.27, respectivamente, é fácil mostrar que

$$\hat{E}_\perp(b, \omega_0) = \frac{2Z_p \hat{b}}{bv_p} \left[K_1 \left(\sqrt{\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2} \right) \times \sqrt{\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2} \right] \quad (\text{B.33})$$

$$\hat{E}_\parallel(b, \omega_0) = \frac{2iZ_p \hat{v}_p}{bv_p} \left[\frac{\omega_0 b}{v_p} \times K_0 \left(\sqrt{\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2} \right) \right] \quad (\text{B.34})$$

Finalmente, temos

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} |\hat{E}(b, \omega_0)|^2 &= \frac{1}{2} |\hat{E}_\parallel(b, \omega_0)|^2 + \frac{1}{2} |\hat{E}_\perp(b, \omega_0)|^2 \\ &= T(b) \times g_s(b) \end{aligned} \quad (\text{B.35})$$

onde,

$$T(b) = \frac{2Z_p^2}{v_p^2 b^2} \quad (\text{B.36})$$

e

$$g_s(b) = \left[K_1^2 \left(\sqrt{\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2} \right) \times \left(\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2 \right) + K_0^2 \left(\sqrt{\left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 + \alpha^2 b^2} \right) \times \left(\frac{\omega_0 b}{v_p} \right)^2 \right] \quad (\text{B.37})$$

Na figura B.2 a função g_s está graficada para dois casos limite do parâmetro $\gamma = \frac{\alpha^2}{\left(\frac{\omega}{v_p}\right)^2 + \alpha^2}$: $\gamma = 1$ (linha pontilhada) corresponde a um íon fortemente blindado. É fácil ver que o caso $\gamma = 0$, que corresponde a $\alpha = 0$ (íon nu), recai na equação B.6 (linha tracejada), como seria de se esperar.

Para os potenciais *single-zeta* e Geral, obtém-se uma equação idêntica à equação B.35 com g_s dado pelas seguintes expressões:

Para o potencial *single-zeta*,

$$g_s(b) = f_1^2 + f_2^2$$

com $f_1(b)$ e $f_2(b)$ sendo:

$$\begin{aligned} f_1(b) &= n_p/Z_p \left(\frac{(\alpha b)^2}{2} K_0(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2}) \right. \\ &+ \sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2} K_1(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2}) \\ &+ (1 - n_p/Z_p) \omega b/v_p K_1(\omega b/v_p) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 f_2(b) &= n_p/Z_p \left(\frac{(\alpha b)^2}{2} K_1(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2}) / \sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2} \right. \\
 &\quad + (\omega b/v_p) K_0(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (\alpha b)^2}) \\
 &\quad \left. + (1 - n_p/Z_p) \omega b/v_p K_0(\omega b/v_p) \right)
 \end{aligned}$$

Para o potencial geral,

$$g_s(b) = f_1^2 + f_2^2$$

onde,

$$\begin{aligned}
 f_1(b) &= n_p/Z_p \sum_i \left(a_i K_1(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2}) \sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2} \right. \\
 &\quad + b^2 b_i c_i K_0(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2}) \\
 &\quad \left. + (1 - n_p/Z_p) \omega b/v_p K_1(\omega b/v_p) \right)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 f_2(b) &= n_p/Z_p \sum_i \left(a_i \omega b/v_p K_0(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2}) \right. \\
 &\quad + b^2 \omega b/v_p b_i c_i K_1(\sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2}) / \sqrt{(\omega b/v_p)^2 + (c_i b)^2} \\
 &\quad \left. + (1 - n_p/Z_p) \omega b/v_p K_0(\omega b/v_p) \right)
 \end{aligned}$$

Parâmetros de impacto Intermediários

Como vimos anteriormente, em parâmetros de impacto intermediários, para altas velocidades do projétil, se o tempo de colisão for pequeno em comparação com o período orbital dos elétrons do alvo, pode-se desprezar o fator exponencial na equação B.2. Este procedimento resulta numa expressão idêntica à energia transferida a um elétron em repouso, na aproximação de impulso:

$$Q(b) = \frac{1}{2} |\Delta \vec{P}|^2 = \frac{1}{2} \left| \int_0^\infty \vec{F}(\vec{r}, t) dt \right|^2 \quad (\text{B.38})$$

Resolvendo esta última equação para o potencial de Bohr, obtemos:

$$Q(b) = \frac{2Z_p^2}{v^2 b^2} \left[\alpha^2 b^2 K_1^2(\alpha b) \right] = T(b) \times \left[\alpha^2 b^2 K_1^2(\alpha b) \right] \quad (\text{B.39})$$

que é a mesma expressão que se obtém tomando-se o limite $\omega_0 \rightarrow 0$ na equação B.37. No limite $z \rightarrow 0$, $z^2 K_1^2(z) \rightarrow 1$. Portanto, para $b \rightarrow 0$, tanto a aproximação para grandes parâmetros de impacto quanto a aproximação para parâmetros de impacto intermediários resultam $Q(b) = T(b)$.

Parâmetros de impacto pequenos

Para pequenos parâmetros de impacto, o elétron ativo do alvo interage com um núcleo praticamente nu. Por esta razão, os efeitos de blindagem podem ser desprezados nesta região de parâmetros de impacto. Sendo assim, vamos adotar a equação B.11 para descrever $Q(b)$ para estas colisões.

Como se pode ver na figura B.2 no caso dos projéteis blindados, também existe uma transição suave do regime em que $Q(b)$ resulta de colisões binárias violentas (pequenos b 's) ao regime de transições de dipolo (grandes b 's), exemplificado pela superposição das funções h e g_s verificada em parâmetros de impacto intermediários. Sendo assim podemos estender o *ansatz* PCA (B.14) para íons blindados:

$$Q(b) = \int d^2r_T \mathcal{W}(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (\text{B.40})$$

onde

$$\mathcal{W}(b) = \frac{2Z^2}{v_p^2 b^2} \times h(2v_p b) \times \sum_i f_i g_s \left(\frac{\omega_i b}{v_p}, \alpha \right) \quad (\text{B.41})$$

B.3 O modelo UCA

A seguir vamos apresentar uma extensão do modelo PCA, denominado UCA, que incorpora efeitos não perturbativos. Isto se faz necessário porque, à medida que se aumenta a carga do projétil, a perturbação induzida pelo mesmo não pode ser considerada pequena. Portanto, o tratamento perturbativo que nós utilizamos acima deixa de ser confiável. De fato, na SCA, para um dado parâmetro de impacto, as probabilidades de ionização podem exceder 100%, já que elas proporcionais a Z_p^2 ! A denominação UCA vem de **U**nitary **C**onvolution **A**pproximation já que o novo modelo é unitário, no sentido de que a probabilidade total de encontrar o elétron é igual a 1.

O modelo UCA se baseia na teoria de freamento de Bloch. Esta teoria concorda com a teoria de Bohr quanto $\chi = \frac{2Z_p}{v_p} \gg 1$ e concorda com a teoria de Bethe quando $\chi \ll 1$. Bloch realiza um tratamento separado para grandes e pequenos parâmetros de impacto. Para grandes parâmetros de impacto o tratamento é baseado nas mesmas idéias que desenvolvemos acima. No entanto, para pequenos parâmetros de impacto, ele realizou um tratamento mais elaborado que leva em consideração a influência do potencial do projétil nos estados finais eletrônicos. A formulação de Bloch é exata se pudermos desprezar a influência do potencial do alvo.

A perda de energia no modelo de Bloch é dada por

$$Q(b, t) = \langle \phi(b; t) | H_t | \phi(b; t) \rangle - \langle \phi_0 | H_t | \phi_0 \rangle \quad (\text{B.42})$$

onde $|\phi(b; t)\rangle$ é a função de onda do elétron ativo, ϕ_0 é a função de onda inicial do elétron em $t = -\infty$ e H_t é a Hamiltoniana do alvo. Bloch introduziu o seguinte *ansatz* para a $\phi(b; t)$:

$$\phi(b; t) = \alpha(b; t) \times \phi_0. \quad (\text{B.43})$$

Como resultado, $\alpha(b; t)$ satisfaz à seguinte equação de Schrödinger:

$$i \frac{\partial \alpha}{\partial t} = -\frac{1}{2} \nabla^2 \alpha + V_p(t) \alpha + \alpha / \phi_0 H_t \phi_0 - \frac{1}{\phi_0} (\nabla \alpha) (\nabla \phi_0) \quad (\text{B.44})$$

O terceiro termo no lado direito da equação acima é a energia do estado fundamental do alvo e pode ser tomado como zero por uma escolha adequada da energia de referência do sistema. O quarto termo também pode ser desprezado argumentando-se que o tempo de colisão é muito menor que os inversos das frequências características do sistema. Destas aproximações, resulta a seguinte equação de Schrödinger:

$$i \frac{\partial \alpha}{\partial t} = -\frac{1}{2} \nabla^2 \alpha + V_p \alpha \quad (\text{B.45})$$

Agora, no referencial do projétil, V_p é independente do tempo. Portanto o problema fica reduzido a um problema de espalhamento de um pacote de onda representando o elétron por um potencial coulombiano representando o projétil. A solução do problema proposto pela equação B.45 já é conhecida sendo a função de onda de Coulomb. Portanto, a variação temporal da função de onda do alvo (α) é transformada para o referencial do projétil (utilizando uma transformada de Fourier para descrever o pacote de onda do elétron) e o movimento de cada componente de momentum é dado pela função de onda de Coulomb. Portanto, não há criação de elétrons já que a corrente total de probabilidade do estado inicial é conservada após o espalhamento. A expressão para a seção de choque de freamento de Bloch após utilizar a equação B.42 para determinar $Q(b)$ é [120]

$$S^{Bloch} = \frac{4\pi Z_p^2}{v_p^2} N \sum_n f_n \left[\ln \left(\frac{2v_p^2}{\omega_n} \right) - \ln(\eta) \right] \quad (\text{B.46})$$

onde

$$\eta = \exp[\text{Re}\psi(1 + i\gamma) - \psi(1)] = \exp \left[\gamma^2 \sum_{l=1}^{\infty} \frac{1}{l(l^2 + \gamma^2)} \right] \quad (\text{B.47})$$

e ψ é a função digamma que corresponde à derivada logarítmica da função Γ .

Finalmente, o modelo UCA consiste em fazer a seguinte mudança de escala na função h que descreve colisões com pequeno parâmetro de impacto:

$$h(2v_p b) \rightarrow h(2v_p b / \eta) \quad (\text{B.48})$$

onde a variável η é dada pela equação B.47. Desta maneira, $Q(b)$ integrado sobre todos os parâmetros de impacto resulta na seção de choque de Bloch.

Maiores detalhes sobre o cálculo de $Q(b)$ podem ser encontrados no apêndice C, no artigo intitulado *Impact-parameter dependent energy loss of screened ions*.

Apêndice C

Publicações relacionadas com este trabalho

C.1 Artigos Publicados

- Depth profiles and amorphization behavior under channeling conditions for low energy Bi ions implanted into Si crystals : NIM B 149 (1999) 301.
- Electronic stopping power of $\langle 100 \rangle$ axial channeled Li ions in Si crystals: NIMB 148 (1999) 164.
- Angular dependent energy loss of 0.8-2.0 MeV He ions channeled along the Si $\langle 100 \rangle$ direction NIM B 136-138 (1988) 132
- Charge equilibration process for channeled He ions along the Si $\langle 100 \rangle$ direction NIM B 148 (1999) 168

C.2 Artigos aceitos para publicação

- Angular dependence of the electronic stopping power of Li ions channeled around the Si $\langle 100 \rangle$ direction.
- Impact-parameter dependent energy loss of screened ions
- Charge equilibration of energetic He ions in the Si $\langle 100 \rangle$ channel

C.3 Artigos submetidos

- Z_1 oscillations for low energy channeling implantations (submetido ao Phys. Rev. B)

C.4 Artigos em preparação

- Energy loss of 0.2-8 MeV He and Li ions channeled in Si crystals
- Angular dependent energy loss of He and Li ions channeled in Si crystals

Referências Bibliográficas

- [1] GEMMEL, D. S. Channeling and related effects in the motion of charged particles through crystals. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 46, n. 1, p. 129-227, Jan. 1974.
- [2] MORGAN, D. V., (Ed.) **Channeling: theory, observation and applications**. London: John Wiley, 1973.
- [3] ZIEGLER, J. F., BIERSACK, J. P., LITTMARK, U. **The stopping and range of ions in solids**. New York: Pergamon Press, 1985.
- [4] BOHR, N. The penetration of atomic particles through matter. **Matematisk-Fysiske Meddelelser**, København, v. 8, n. 14, p. 1-144, Dec. 1948.
- [5] LINDHARD, J., SCHARFF, M. Energy dissipation by ions in the keV region. **Physical Review**, New York, v. 124, n. 1, p. 128-130, Oct. 1961.
- [6] LINDHARD, J. Influence of crystal lattice on motion of energetic charged particles. **Matematisk-Fysiske Meddelelser**, København, v. 34, n. 14, p. 1-64, Nov. 1965.
- [7] LINDHARD, J., SCHARFF, M., SCHIØTT, H. E. Range concepts and heavy ion ranges. **Matematisk-fysiske Meddelelser**, København, v. 33, n. 14, p. 1-42, June 1964.
- [8] TESMER, J. R., NASTASI, M. (Eds.) **Handbook of modern ion beam materials analysis**. Pittsburg: Materials Research Society, 1995.
- [9] CHU, W-K., MAYER, J. W., NICOLET, M. A. **Backscattering spectrometry**. New York: Academic Press, 1978.
- [10] FELDMAN, L. C., MAYER, J. W., PICRAUX, S. T. **Materials analysis by ion channeling: submicron crystallography**. New York: Academic Press, 1982.
- [11] SOUZA, J. P. de, SADANA, D. K. Ion implantation of silicon and gallium arsenide. In: MAHAJAN, S. (Ed.) **Materials, properties and preparation**. Amsterdam: North Holland, 1994. p. 2033-2126. (Handbook on Semiconductors, 3b)

- [12] NASTASI, M., MAYER, J. W., HIRVONEN, J. K. **Ion-solid interactions: fundamentals and applications**. Cambridge: Cambridge University Press, 1996.
- [13] KITTEL, C. **Introduction to solid state physics**. New York: John Wiley, 1990.
- [14] KITTEL, C. A. **Quantum theory of solids**. New York: John Wiley, 1980.
- [15] PINES, D. **Elementary excitations in solids**. New York: W. A. Benjamin, 1963.
- [16] ASHCROFT, N. W., MERMIN, N. D. **Solid state physics**. Philadelphia: Saunders College, 1976.
- [17] ECKSTEIN, W. **Computer simulation of ion-solid interactions**. Berlin: Springer-Verlag, 1991.
- [18] SIGMUND, P. Statistics of charged-particle penetration.. In: GRAS-MARTI, A. et al. (Eds.) **Interaction of charged particles with solids and surfaces**. New York: Plenum, 1991. p. 73–144. (Série B: Physics, NATO Advanced Study Institute, 271)
- [19] GOLDSTEIN, H. **Classical mechanics**. 2. ed. Reading: Addison-Wesley, 1980.
- [20] DELOS, J. B. Theory of electronic transitions in slow atomic collisions. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 53, n. 2, p. 287-357, Apr. 1981.
- [21] SZABO, A., OSTLUND, N. **Modern quantum chemistry**. Mineola: Dover, 1996.
- [22] SABELLI, N. H., BENEDEK, R., GILBERT, T. L. Ground-state potential curves for Al_2 and Al_2^{6+} in the repulsive region. **Physical Review A**, New York, v. 20, n. 3, p. 677-688, Sept. 1979.
- [23] JONES, R. O., GUNNARSSON, O. The density functional formalism, its applications and prospects. **Reviews of Modern Physics**, Woodbury, v. 61, n. 3, p. 689-746, July 1989.
- [24] HOHENBERG, P., KOHN, W. Inhomogeneous electron gas. **Physical Review**, New York, v. 136B, n. 3, p. 864-872, Aug. 1964.
- [25] REIF, F. **Fundamentals of statistical and thermal physics**. New York: John Wiley, 1965.
- [26] BETHE, H. A., JACKIW, R. **Intermediate quantum mechanics**. New York: W. A. Benjamin, 1980.
- [27] KUMAKHOV, M. A., KOMAROV, F. F. **Energy loss and Ion ranges in solids**. New York: Gordon and Breach, 1981.

- [28] LIEB, E. H. Thomas-Fermi and related theories of atoms and molecules. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 53, n. 4, p. 603-641, Oct. 1981.
- [29] FIRSOV, O. B. Interaction energy of atoms for small nuclear separations. **Soviet Physics JETP**, New York, v. 5, n. 6, p. 1192-1196, Dec. 1957.
- [30] FIRSOV, O. B. Calculation of the interaction potential of atoms. **Soviet Physics JETP**, New York, v. 6, n. 3, p. 534-537, Mar. 1958.
- [31] WEDEPOHL, P. T. Influence of electron distribution on atomic interaction potentials. **Proceedings of the Physical Society**, London, v. 92, n. 575, p. 79-93, Sept. 1967.
- [32] JACKSON, J. D. **Classical electrodynamics**. New York: John Wiley, 1962.
- [33] CRUZ, S. A. On the energy loss of heavy ions in amorphous materials. **Radiation Effects**, London, v. 88, n. 3/4, p. 159-215, June 1986.
- [34] MERZBACHER, E. **Quantum mechanics**. 2. ed. New York: John Wiley, 1970.
- [35] INOKUTI, M. Inelastic collisions of fast charged particles with atoms and molecules : the Bethe theory revisited. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 43, n. 3, p. 297-347, July 1971.
- [36] AHLEN, S. P. Theoretical and experimental aspects of the energy loss of relativistic heavily ionizing particles. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 52, n. 1, p. 121-173, Jan. 1980.
- [37] CALKIN, M. G., NICHOLSON, P. J. Electrodynamics of a semiclassical free-electron gas. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 39, n. 2, p. 361-372, Apr. 1967.
- [38] BRANDT, W. Channeling in crystals. **Scientific American**, New York, v. 218, n. 3, p. 90-98, Mar. 1968.
- [39] ROBINSON, M. T., OEN, O. S. Computer studies of the slowing down of energetic atoms in crystals. **Physical Review**, New York, v. 132, n. 6, p. 2385-2398, Dec. 1963.
- [40] PIERCY, G. R., BROWN, F., DAVIES, J. A., McCARGO, M. Experimental evidence for the increase of heavy ion ranges by channeling in crystalline structure. **Physical Review Letters**, New York, v. 10, n. 9, p. 399-400, May 1963.
- [41] NELSON, R. S., THOMPSON, M. W. The penetration of energetic ions through the open channels in a crystal lattice. **Philosophical Magazine**, London, v. 8, n. 94, p. 1677-1689, Oct. 1963.

- [42] BØGH, E., DAVIES, J. A., NIELSEN, K. O. Experimental evidence for the extinction of (p,γ) yields in single crystals. **Physics Letters**, Amsterdam, v. 12, n. 2, p. 129-130, Sept. 1964.
- [43] BØGH, E., UGGERHØJ, E. Orientation dependence of Rutherford scattering yields in single crystals. **Physics Letters**, Amsterdam, v. 17, n. 2, p. 116-118, July 1965.
- [44] ANDERSEN, J. U., DAVIES, J. A., NIELSEN, K. O., ANDERSEN, S. L. An experimental study of the orientation dependence of (p,γ) yields in monocrystalline aluminum. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 38, n. 1, p. 210-215, Dec. 1965.
- [45] APPLETON, B. R., ERGINSOY, C., GIBSON, W. M. Channeling effects in the energy loss of 3-11 MeV protons in silicon and germanium single crystals. **Physical Review**, New York, v. 161, n. 2, p. 330-349, Sept. 1967.
- [46] DELLA MEA, G., DRIGO, A. V., RUSSO, S. L., MAZZOLDI, P., BENTINI, G. G. Energy loss of H, D and ^4He ions channeled through thin single crystals of silicon. **Physical Review Letters**, New York, v. 27, n. 18, p. 1194-1196, Nov. 1971.
- [47] MORGAN, D. V., Van VLIET, D. Critical approach distances and critical angles for channelling. **Radiation Effects**, London, v. 8, n. 1, p. 51-61, July 1971.
- [48] BARRETT, J. H. Monte Carlo channeling calculations. **Physical Review B**, New York, v. 3, n. 5, p. 1527-1546, Mar. 1971.
- [49] BARRETT, J. H. Breakdown of the statistical-equilibrium hypothesis in channeling. **Physical Review Letters**, New York, v. 31, n. 26, p. 1542-1545, Dec. 1973.
- [50] KNOLL, G. F. **Radiation detection and measurement**. 2. ed. New York: John Wiley, 1989.
- [51] HEALY, M. J. F. Minimising carbon contamination during ion beam analysis. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 129, n. 1, p. 130-136, June 1997.
- [52] NIEMANN, D., OBERSCHACHTSIEK, P., KALBITZER, S., ZEINDL, H. P. Energy loss and straggling of MeV ^4He ions in a Si/Sb multilayer target. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 80/81, n. 1, p. 37-40, June 1993.
- [53] NIEMANN, D., KONAC, G., KALBITZER, S. Stopping power measurements of ^1H , ^4He and ^{14}N in Si in the energy range of 0.02–MeV/amu. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 118, n. 1/4, p. 11-18, Sept. 1996.

- [54] SANTOS, J. H. R. dos, GRANDE, P. L., BOUDINOV, H., BEHAR, M., STOLL, R., KLATT, Chr., KALBITZER, S. Electronic stopping power of <100> axial-channelled He ions in Si crystals. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 106, n. 1/4, p. 51-54, Dec. 1995.
- [55] EISEN, F. H., CLARK, G. J., BÖTTIGER, J., POATE, J. M. Stopping power of energetic helium ions transmitted through thin silicon crystals in channeling and random directions. **Radiation Effects**, Glasgow, v. 13, n. 1, p. 93-100, Sept. 1972.
- [56] KALBITZER, S., OETZMANN, H. Ranges and range theories. **Radiation Effects**, New York, v. 47, n. 1/4, p. 57-72, Apr. 1980.
- [57] BESENBACHER, F., BÖTTIGER, J., LAURSEN, T., LOFTAGER, P., MÖLLER, W. Z_1 -oscillations in low-energy heavy-ion ranges. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 170, n. 1/3, p. 183-188, Mar. 1980.
- [58] O'CONNOR, D. J., FARMERY, B. W., CHIVERS, D., THOMPSON, M. W. Z_1 oscillations in low energy heavy ion ranges. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 178, n. 2/3, p. 517-522, Dec. 1980.
- [59] BERTHOLD, J., KALBITZER, S. Evidence for an insulator-metal effect on the Z_1 -Range oscillations in the nuclear stopping regime. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**, Amsterdam, v. 209/210, n. 1, p. 13-18, May 1983.
- [60] IZSAK, K., BERTHOLD, J., KALBITZER, S. Range phenomena of low energy ions in solids. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 15, n. 1, p. 34-41, Apr. 1986.
- [61] FICHTNER, P. F. P., BEHAR, M., OLIVIERI, C. A., LIVI, R. P., SOUZA, J. P. de, ZAWISLAK, F. C., FINK, D., BIERSACK, J. P. Energy dependence of the Z_1 -range oscillation effect in silicon. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 15, n. 1, p. 58-60, Apr. 1986.
- [62] GEYER, E., RESCHKE, D., FREITAG, K. Z_1 stopping power oscillation in the nuclear stopping regime as obtained by time-of-flight spectroscopy of heavy ions in hydrogen. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 15, n. 1, p. 81-85, Apr. 1986.
- [63] LOFTAGER, P., BESENBACHER, F., JENSEN, O. S., SØRENSEN, V. S. Experimental study of effective interatomic potentials. **Physical Review A**, New York, v. 20, n. 4, p. 1443-1446, Oct. 1979.
- [64] GÄRTNER, K., HEHL, K. Theoretical description of elastic atom-atom scattering. **Physica Status Solidi B**, Berlin, v. 94, n. 1, p. 231-238, July 1979.

- [65] BURENKOV, A. F., KOMAROV, F. F., TEMKIN, M. M., SCHLOTZHAUER, G. Z_1 dependence of low energy heavy ion range parameters. **Radiation Effects Letters**, London, v. 86, n. 5, p. 153-159, May 1984.
- [66] FICHTNER, P. F. P., BEHAR, M., OLIVIERI, C. A., LIVI, R. P., SOUZA, J. P. de, ZAWISLAK, F. C., BIRSACK, J. P., FINK, D. Range profiles of 10 to 390 keV ions ($29 \leq Z_1 \leq 83$) implanted into amorphous silicon. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 28, n. 4, p. 481-487, Nov. 1987.
- [67] BEHAR, M., FICHTNER, P. F. P., GRANDE, P. L., ZAWISLAK, F. C. Ranges in Si and lighter mono and multi-element targets. **Materials Science and Engineering R**, Amsterdam, v. 15, n. 1/2, p. 1-83, July 1995.
- [68] GRANDE, P. L., FICHTNER, P. F. P., BEHAR, M., ZAWISLAK, F. C. Range profiles of medium and heavy ions implanted into SiO_2 . **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 35, n. 1, p. 17-20, Nov. 1988.
- [69] ROBINSON, M. T. Slowing-down time for energetic atoms in solids. **Physical Review B**, Woodbury, v. 40, n. 16, p. 10717 - 10726, Dec. 1989.
- [70] ROBINSON, M. T. The temporal development of collision cascades in the binary-collision approximation. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 48, n. 1/4, p. 408-413, Mar. 1990.
- [71] ROBINSON, M. T. Computer simulation studies of high-energy collision cascades. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 67, n. 1/4, p. 396-400, Apr. 1992.
- [72] ROBINSON, M. T. The binary collision approximation: background and introduction. **Radiation Effects and Defects in Solids**, London, v. 130/131, n. 1, p. 3-20, Jan. 1994.
- [73] ROBINSON, M. T., TORRENS, I. M. Computer simulation of atomic-displacement cascades in solids in binary-collision approximation. **Physical Review B**, New York, v. 9, n. 12, p. 5008-5024, June 1974.
- [74] FIRSOV, O. B. A qualitative interpretation of the mean electron excitation energy in atomic collisions. **Soviet Physics-JETP**, New York, v. 9, n. 5, p. 1076-1080, Nov. 1959.
- [75] OEN, O. S., ROBINSON, M. T. Computer studies of the reflection of light ions from solids. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 132, n. 1, p. 647-653, Jan./Feb. 1976.

- [76] JACKSON, D.P., BARRETT, J. H. Modelling displacement correlations in computer simulations of particle-solid collisions.. **Computer Physics Communications**, Amsterdam, v. 13, n. 3, p. 157-166, Sept./Oct. 1977.
- [77] ALLINEY, S., MALAGUTI, F., VERONDINI, E. The effect of correlated thermal vibrations on crystal blocking patterns. **Nuclear Instruments and Methods B**, Amsterdam, v. 28, n. 1, p. 10-16, Aug. 1987.
- [78] BATTERMAN, B. W., CHIPMAN, D. R. Vibrational amplitudes in germanium and silicon. **Physical Review**, New York, v. 127, n. 3, p. 690-693, Aug. 1962.
- [79] DEUTSCH, M., HART, M. Electronic charge distribution in silicon. **Physical Review B**, Woodbury, v. 31, n. 6, p. 3846-3858, Mar. 1985.
- [80] BAISHENG, Z., JILIAN, Y., LAN, J., CHUNTANG, Y., BASHIR, J., BUTT, N. M., SIDDIQUE, M., ARSHED, M., KHAN, Q. H. Temperature factor of silicon by powder neutron diffraction. **Acta Crystallographica A**, København, v. 46, n. 6, p. 435-437, June 1990.
- [81] HAU, L. V., LAEGSGAARD, E., ANDERSEN, J. U. Thermal vibrations in Si studied by channeling-radiation spectroscopy. **Nuclear Instruments and Methods B**, Amsterdam, v. 48, n. 1/4, p. 244-247, Mar. 1990.
- [82] PARK, H., KEPHART, J. O., KLEIN, R. K., PANTELL, R. H., HYNES, M. V., BERMAN, B. L., DAHLING, B. A., DATZ, S., SWENT, R. L., ALGUARD, M. J. Temperature dependence of planar channeling radiation. **Physical Review B**, Woodbury, v. 35, n. 1, p. 13-17, Jan. 1987.
- [83] BUSCHHORN, G., DIEDRICH, E., KUFNER, W., RZEPKA, M., GENZ, H., HOFFMANN-STASCHECK, P., RICHTER, A. Temperature dependence of planar channeling radiation in silicon, germanium, and beryllium between 12 and 330 K. **Physical Review B**, Woodbury, v. 55, n. 10, p. 6196-6202, Mar. 1997.
- [84] DYGO, A., SMULDERS, P. J. M., BOERMA, D. O. Simulation analysis of ion channeling spectra: thermal vibrational amplitude in Si. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 64, n. 1/4, p. 701-705, Feb. 1992.
- [85] HOBLER, G., SIMIONESCU, A., PALMETSHOFER, L., JAHNEL, F., von CRIEGER, R., TIAN, C., STINGEDER, G. Verification of models for the simulation of boron implantation into crystalline silicon. **Journal of Vacuum Science and Technology B**, New York, v. 14, n. 1, p. 272-277, Jan./Feb. 1996.
- [86] FICHTNER, P. F. P. **Alcances de ions energéticos (10 a 390 keV) implantados em silício amorfo**. Porto Alegre: Curso de Pós-Graduação em Física - UFRGS, 1987. Tese

- [87] AZEVEDO, G. de M., MARTINI, J. C., BEHAR, M., GRANDE, P. L. Depth profiles and amorphization behavior under channeling conditions for low energy Bi ions implanted into Si crystals. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 149, n. 3, p. 301-311, Feb. 1999.
- [88] PACIOS, L. F., CHRISTIANSEN, P. A., *Ab initio* relativistic effective potentials with spin-orbit operators I. Li through Ar. **Journal of Chemical Physics**, Woodbury, v. 82, n. 6, p. 2664-2671, Mar. 1985.
- [89] ROSS, R. B., GAYEN, S., ERMLER, W. C. *Ab initio* relativistic effective potentials with spin-orbit operators V. Ce through Lu. **Journal of Chemical Physics**, Woodbury, v. 100, n. 11, p. 8145-8155, June 1994.
- [90] STEVENS, W. J., BASCH, H., KRAUSS, M. Compact effective potentials and efficient shared-exponent basis-set for the first- and second-row atoms. **Journal of Chemical Physics**, Woodbury, v. 81, n. 12, p. 6026-6033, Dec. 1984.
- [91] CUNDARI, T. R., STEVENS, W. J. Effective core potential methods for the lanthanides. **Journal of Chemical Physics**, Woodbury, v. 98, n. 7, p. 5555-5565, Apr. 1993.
- [92] PARR, R. G., YANG, W. **Density functional theory of atoms and molecules**. Oxford: Oxford University Press, 1989.
- [93] BECKE, A. D., PARR, R. G. Density functional theory of electronic structure. **Journal of Physical Chemistry**, Washington, v. 100, n. 31, p. 12974-12980, Aug. 1996.
- [94] BECKE, A. D. Density-functional thermochemistry III. The role of exact exchange. **Journal of Chemical Physics**, Woodbury, v. 98, n. 7, p. 5648-5652, Apr. 1993.
- [95] LEE, C., YANG, W., PARR, R. G. Development of the Colle-Salvetti correlation-energy formula into a functional of the electron density. **Physical Review B**, Woodbury, v. 37, n. 2, p. 785-789, Jan. 1988.
- [96] FRISH, J. M., **Gaussian 94**: revision E1. Pittsburgh: Gaussian, Inc., 1995.
- [97] SANTOS, J. H. R., GRANDE, P. L., BOUDINOV, H., BEHAR, M. Stopping power and charge equilibration process for channeled He ions along $\langle 100 \rangle$ and $\langle 110 \rangle$ directions of Si crystal. In: PROCEEDINGS OF THE INTERNATIONAL CONFERENCE ON ION IMPLANTATION TECHNOLOGY, 10, Catania, Italy. COFFA, S. et al. (Eds.) **Ion Implantation Technology-94**. Amsterdam: Elsevier Science, 1995. p. 711-715.
- [98] SANTOS, J. H. R. dos, GRANDE, P. L., BEHAR, M., BOUDINOV, H., SCHIWIETZ, G. Angular dependence of the electronic energy loss of 800-keV He ions along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. **Physical Review B**, Woodbury, v. 55, n. 7, p. 4432-4342, Feb. 1997.

- [99] SANTOS, J. H. R. dos, BEHAR, M., GRANDE, P. L., BOUDINOV, H. Electronic stopping power of ^{10}B in Si in random and $\langle 100 \rangle$ channeling directions. **Physical Review B**, Woodbury, v. 55, n. 20, p. 13651-13657, May 1997.
- [100] SANTOS, J. H. R. dos **Estudo do poder de freamento eletrônico de He e B canalizados em Si**. Porto Alegre: Curso de Pós-Graduação em Física - UFRGS, 1997. Tese
- [101] La FERLA, A., GALVAGNO, G., RAINERI, V., SETOLA, R., RIMINI, E., CARNERA, A., GASPAROTTO, A. Axial channeling of boron ions into silicon. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 66, n. 3, p. 339-344, Apr. 1992.
- [102] BOGEN, S., GONG, L., FREY, L., RYSSEL, H. High energy implantation of B^{10} and B^{11} into $\langle 100 \rangle$ Si in channeling and random direction. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 80/81, n. 1, p. 659-662, June 1993.
- [103] DYGO, A., LENNARD, W. N., MITCHELL, I. V., SMULDERS, P. J. M. Random spectrum for the channeling-backscattering technique: a rotating axial-dip study. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 84, n. 1, p. 23-30, Jan. 1994.
- [104] MORITA, K., ITOH, N. Dechanneling of MeV protons from axial and planar channels of germanium crystal. **Journal of the Physical Society of Japan**, Tokyo, v. 30, n. 5, p. 1430-1438, May 1971.
- [105] GRANDE, P. L., SCHIWETZ, G. Improved calculations of the electronic energy loss under channeling conditions. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 136/138, n. 1, p. 125-131, Mar. 1998.
- [106] AZEVEDO, G. de M., BEHAR, M., DIAS, J. F., GRANDE, P. L., SANTOS, J. H., R., STOLL, R., KLATT, Chr., KALBITZER, S. Angular dependent energy loss of 0.8-2.0 MeV He ions channeled along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 136/138, n. 1, p. 132-136, Mar. 1998.
- [107] DYGO, A., BOSCHART, M. A., GRANT, M. W., SEIBERLING, L. E. Energy loss distributions for 625 KeV H^+ ions channeled near the $\langle 100 \rangle$ axis in silicon. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 93, n. 1, p. 117-122, July 1994.
- [108] KÓTAI, E. Measurement of the stopping powers for channeled ions in ion implanted single crystals. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 118, n. 1/-4, p. 43-46, Sept. 1996.

- [109] JIN, H. S., GIBSON, W. M. The angular dependence of energy loss of channeled 2 MeV helium ions along Si $\langle 100 \rangle$ axis. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 13, n. 1/-3, p. 76-80, Mar. 1986.
- [110] BOSCHART, M. A., DYGO, A., SEIBERLING, L. E. Energy-loss distributions for 2.5 MeV He⁺ ions incident on Si single crystals. **Physical Review A**, Woodbury, v. 51, n. 3, p. 2637-2640, Mar. 1995.
- [111] SILVA, D. L. da **Estudo do poder de freamento de do Li no Si**. Porto Alegre: Curso de Pós-Graduação em Física - UFRGS, 2000. Diss. mest. física.
- [112] DIAS, J. F., AZEVEDO, G. de M., BEHAR, M., GRANDE, P. L., KLATT, Chr., KALBITZER, S. Electronic stopping power of $\langle 100 \rangle$ axial channeled ⁷Li ions in Si crystals. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 148, n. 1/-4, p. 164-167, Jan. 1999.
- [113] JIANG, W., GRÖTZSCHEL, R., PILZ, W., SCHMIDT, B., MÖLLER, W. Random and channeling stopping powers and charge-state distributions in silicon for 0.2-1.2 MeV/u positive heavy ions. **Physical Review B**, Woodbury, v. 59, n. 1, p. 226-234, Jan. 1999.
- [114] PRESS, W. H., VETTERLING, W. T., TEUKOLSKY, S. A., FLANNERY, B. P. **Numerical Recipes in FORTRAN**:. the art of scientific computing. Cambridge: Cambridge University Press, 1992.
- [115] SCHIWIEZ, G. Coupled-Channel calculations of stopping powers for intermediate-energy light ions penetrating atomic H and He targets. **Physical Review A**, Woodbury, v. 42, n. 1, p. 296-305, Jul. 1990.
- [116] GRANDE, P. L., SCHIWIEZ, G. Nonperturbative stopping-power calculation for bare and neutral hydrogen incident on He. **Physical Review A**, Woodbury, v. 47, n. 2, p. 1119-1122, Feb. 1993.
- [117] GRANDE, P. L., SCHIWIEZ, G. Coupled-channel calculations of the electronic energy loss. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, Amsterdam, v. 132, n. 2, p. 264-275, Oct. 1997.
- [118] SCHIWIEZ, G., GRANDE, P. L. Electronic Stopping of protons at intermediate velocities. **Nuclear Instruments and Methods B**, Amsterdam, v. 69, n. 1, p. 10-17, Jun. 1992.
- [119] GRANDE, P. L., SCHIWIEZ, G. Impact-Parameter dependence of the electronic energy loss of fast ions. **Physical Review A**, Woodbury, v. 58, n. 5, p. 3796-3801, Nov. 1998.

- [120] SCHIWETZ, G., GRANDE, P. L. A unitary convolution approximation for the impact-parameter dependent electronic energy loss.. **Nuclear Instruments and Methods B**, Amsterdam, v. 153, n. 1-4, p. 1-9, Jun. 1999.
- [121] PETTY, R. J., DEARNALEY, G. Charge state ratios for helium ions channeled through silicon. **Physics Letters**, Amsterdam, v. 50 A, n. 4, p. 273-274, Dec. 1974.
- [122] GRANDE, P. L., SCHIWETZ, G., SIGAUD, G. M., MONTENEGRO, E. C. Non-perturbative treatment of the screened-Coulomb contribution of projectile-electron loss. **Physical Review A**, Woodbury, v. 54, n. 4, p. 2983-2990, Oct. 1996.
- [123] KABACHNIK, N. M., KONDRATEV, V. N., CHUMANOVA, O. V. The impact-parameter dependence of electron stopping in proton collisions with gas and solid atoms. **Physica Status Solidi B**, Berlin, v. 145, n. 1, p. 103-116, Jan. 1988.
- [124] ASCOLANI, H., ARISTA, N. R. Impact-parameter dependence of the electronic energy loss of protons in collisions with atoms. **Physical Review A**, Woodbury, v. 33, n. 4, p. 2352-2357, Apr. 1986.
- [125] BIERSACK, J. P., HAGGMARK, L. G. A Monte-Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 174, n. 1/2, p. 257-269, Aug. 1980.
- [126] ROBINSON, M. T. Attractive interaction potentials and the binary collision approximation.. **Radiation Effects and Defects in Solids**, Amsterdam, v. 141, n. 1-4, p. 1-19, Jul. 1997.
- [127] STARK, P. A. **Introdução aos métodos numéricos**. Rio de Janeiro: Editora Interciência, 1979.
- [128] ANDERSEN, H. H., SIGMUND, P. Defect distributions in channeling experiments. **Nuclear Instruments and Methods**, Amsterdam, v. 38, n. 1, p. 238-245, Dec. 1965.
- [129] NAKAGAWA, S. T. A Realistic Interatomic potential in solids. **Radiation Effects and Defects in Solids**, London, v. 116, n. 1, p. 21-28, Feb. 1991.
- [130] NAKAGAWA, S. T. Interatomic potential in solids and its applications to range calculations. **Radiation Effects**, London, v. 105, n. 1, p. 239-256, Mar. 1988.
- [131] BAUR, G., PAULI, M., TRAUTMANN, D. Semiclassical treatment of break-up reactions. **Nuclear Physics A**, Amsterdam, v. 224, n. 3, p. 477-491, May 1974.
- [132] KHODYREV, V. A., SIROTININ, E. I. Charged particle stopping in crystals. **Physica Status Solidi B**, Berlin, v. 116, n. 2, p. 659-671, Apr. 1983.

-
- [133] HERMAN, F., SKILLMAN, S. **Atomic Structure Calculations**. Englewood Cliffs: Prentice Hall, 1963.
- [134] MONTENEGRO, E. C., MELO, W. S., MEYERHOF, W. E. Intermediate-velocity atomic collisions. VI. Screening, antiscreeing, and related processes in $\text{He}^+ + (\text{H}_2 \text{ and He})$. **Physical Review A** **48**, Woodbury, v. 48, n. 6, p. 4259-4266, Dec. 1993.
- [135] BATES, D. R., GRIFFING, G. W. Inelastic Collisions between heavy particles I: Excitation and ionization of hydrogen atoms in fast encounters with protons and with other hydrogen atoms.. **Proceeding of the Physical Society A**, London, v. 66, n. 407, p. 961-971, Nov. 1953.