

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

INSTITUTO DE FÍSICA

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

PPGFIS

PERDA DE ENERGIA E FRAGMENTAÇÃO DE ÍONS MOLECULARES EM
CRISTAIS*

RAUL CARLOS FADANELLI FILHO

Tese realizada sob a orientação do Prof. Dr. Pedro Luis Grande e apresentada ao programa de pós-graduação em Física em preenchimento parcial dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Porto Alegre, março de 2005

* Trabalho financiado pelas agências CAPES e CNPq.

Este trabalho é dedicado à minha família:
meus pais Raul e Sirlei e minha irmã
Cristina.

Agradecimentos

- Ao Prof. Pedro Grande, pela dedicada orientação e incentivo;
- Aos Profs. Moni Behar, Johnny Dias, José H. R. dos Santos, Henri Boudinov, Fernanda Stedile e Israel Baumvol, bem como aos colegas Rafael, Carlos, Miotti, Mateus e Gabriel pelo auxílio e incentivo na preparação, realização e análise dos experimentos de feixes de íons moleculares;
- Ao Dr. Gregor Schiwietz, pelo auxílio na análise dos resultados teóricos e dos experimentais;
- Ao laboratório de Implantação Iônica, por disponibilizar e permitir o uso dos equipamentos necessários à realização e análise dos experimentos;
- Aos técnicos Miro, Peco, Borba, Bello (*in memoriam*), Manoel e eng. Agostinho, pelo auxílio na montagem e realização dos experimentos;
- A todos os colegas do laboratório, pelo apoio, incentivo e convivência ao longo dos trabalhos;
- A todos aqueles que, cada um à sua maneira, contribuíram para este trabalho.

Resumo

Os fenômenos decorrentes da interação entre íons monoatômicos e a matéria têm sido amplamente estudados há décadas. No entanto, um esforço comparativamente menor tem sido despendido no estudo dos fenômenos decorrentes da interação entre feixes moleculares e a matéria, especialmente quando o alvo do feixe é um sólido cristalino.

Tais fenômenos, como a transferência de energia entre o feixe e a matéria, a emissão de raios X induzidos pelos feixes e a geração de produtos de reação nuclear sofrem importantes modificações no caso de feixes moleculares. Essas alterações estão longe de ser explicadas por uma simples soma dos efeitos causados pelos componentes individuais do aglomerado iônico. Em particular, no caso de interação com sólidos cristalinos, a fragmentação dos aglomerados causada pela explosão coulombiana causa importantes efeitos sobre o fluxo de íons ao longo do sólido. Finalmente, efeitos de vizinhança entre os componentes do aglomerado alteram sensivelmente o valor da energia transferida entre este e o sólido.

Na descrição desses fenômenos, empregou-se, neste trabalho, de um lado, a construção de um modelo teórico para a perda de energia de aglomerados e, de outro, técnicas experimentais envolvendo contagens de retroespalhamento, indução de raios X pelo feixe de íons e geração de produtos de reação nuclear por feixes de H^+ , H_2^+ e H_3^+ em Si e SIMOX. Como elo entre teoria e experimento, empregaram-se simulações que descrevem a interação entre os íons moleculares e o alvo. Pela primeira vez, alterações de fluxo de íons causadas pela explosão coulombiana foram quantificadas, valores de perda de energia foram obtidos e, finalmente, uma nova expressão simplificada para a transferência de energia foi obtida.

Abstract

Ion induced phenomena in matter have been studied for many decades. However, a comparatively minor effort was done in the subject of the interaction of molecular ions with the matter, especially for crystalline solid targets.

Such phenomena, for instance, the energy transfer between ions and matter, the ion beam induced X ray emission and the nuclear reaction yield undergo important modifications under molecular ion bombardment. These modifications cannot be explained by the sum of effects induced by each ion component of the ionic cluster. Moreover, for the interaction between the cluster beam and crystalline solids, the cluster breakup induced by the Coulomb explosion leads to important effects in the ion flux distribution along the solid. Finally, vicinage effects among the cluster components change the energy transfer between this cluster and the solid.

In order to describe those phenomena in this work, we have used, firstly, coupled-channel calculations to describe the cluster energy transfer, and developed a simple energy loss model. Secondly, backscattering, particle induced X ray emission and nuclear reaction analysis experiments have been measured for H^+ , H_2^+ and H_3^+ beams in Si and SIMOX targets. As a link between theory and experiments, we have performed computer simulations to describe the full interaction between the molecular ions and the target atoms. For the first time, cluster ion flux changes induced by the Coulomb explosion were quantified and, finally, a new simple expression for the cluster energy transfer was developed.

Lista de siglas:

LDA (*local density approximation*): aproximação de densidade local.

SCA (*semiclassical approximation*): aproximação semiclássica.

AO (*atomic orbitals*): cálculo de canais acoplados expandidos em orbitais atômicos.

PCA (*perturbative convolution approximation*): aproximação perturbativa por convolução.

UCA (*unitary convolution approximation*): aproximação unitária por convolução.

MPCA (*molecular perturbative convolution approximation*): aproximação perturbativa molecular por convolução.

MUCA (*molecular unitary convolution approximation*): aproximação unitária molecular por convolução.

TBM (*two beam model*): modelo de dois feixes.

RBS (*Rutherford backscattering spectrometry*): espectrometria de retroespalhamento de Rutherford.

RBS/c (*Rutherford backscattering spectrometry / channeling*): espectroscopia de retroespalhamento de Rutherford sob canalização.

PIXE (*particle induced X ray emission*): emissão de raios X induzida por partículas.

NRA (*nuclear reaction analysis*): análise por reação nuclear.

SIMOX (*separation by implanted oxygen*): separação por oxigênio implantado.

a. u. (*atomic units*): unidades atômicas.

Principais unidades atômicas

1 a. u. de distância: 0.529 Å (o raio de Bohr);

1 a. u. de tempo: 2.42×10^{-17} s;

1 a. u. de energia: 27.21 eV (o dobro da energia fundamental do átomo de H);

1 a. u. de velocidade: $c/137$ (a velocidade da luz é 137 unidades atômicas).

1. INTRODUÇÃO	3
1.1. MOTIVAÇÃO	3
1.2. TEORIA	6
1.2.1. <i>Formalismo dielétrico</i>	6
1.2.2. <i>Método do parâmetro de impacto</i>	8
1.2.3. <i>O modelo de átomo unido</i>	9
1.3. EXPERIMENTOS	10
1.3.1. <i>Experimentos de transmissão</i>	10
1.3.2. <i>Experimentos de retroespalhamento</i>	11
1.4. NOSSO TRABALHO	11
2. TÉCNICAS EXPERIMENTAIS.....	13
2.1. ESPECTROSCOPIA DE RETROESPALHAMENTO DE RUTHERFORD (RBS).....	13
2.1.1. <i>Fator cinemático</i>	14
2.1.2. <i>Seção de choque de espalhamento</i>	15
2.1.3. <i>Freamento</i>	15
2.1.4. <i>Stragglings</i>	16
2.1.5. <i>Canalização</i>	17
2.2. ANÁLISE DE RAIOS X INDUZIDOS POR FEIXES DE PARTÍCULAS (PIXE).....	20
2.3. ANÁLISE COM REAÇÕES NUCLEARES (NRA)	21
3. CANALIZAÇÃO.....	25
3.1. ASPECTOS EXPERIMENTAIS DA CANALIZAÇÃO: PROCEDIMENTO DE CANALIZAÇÃO	25
3.2. ASPECTOS TEÓRICOS DA CANALIZAÇÃO	27
4. CÁLCULOS AB-INITIO E MODELOS SIMPLES PARA A PERDA DE ENERGIA	34
4.1. OS CÁLCULOS AB-INITIO.....	34
4.2. OS MODELOS MPCA E MUCA.....	42
4.2.1. <i>Os modelos PCA e UCA</i>	42
4.2.2. <i>O modelo MPCA</i>	43
4.2.3. <i>O modelo MUCA</i>	46
4.2.4. <i>As correções de camada / distribuição de velocidades eletrônicas</i>	52
5. SIMULAÇÕES DE CANALIZAÇÃO	60
5.1. O POTENCIAL DE REDE USADO	60
5.2. O POTENCIAL ENTRE OS ÍONS.....	61
5.3. RESULTADOS DA SIMULAÇÃO PARA MODIFICAÇÃO DE FLUXO	62
5.4. RESULTADOS COMPUTACIONAIS PARA O EFEITO DO FLUXO SOBRE A PERDA DE ENERGIA	64
6. PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS E RESULTADOS	70
6.1. MEDIDAS DE PERDA DE ENERGIA VIA RBS/C	70
6.2. RESULTADOS DA ANÁLISE DE EMISSÃO DE RAIOS X INDUZIDA POR PARTÍCULAS (PIXE).....	72
6.3. RESULTADOS DA ANÁLISE POR REAÇÃO NUCLEAR (NRA).....	75
7. CONCLUSÕES	80
8. APÊNDICE A: O CÁLCULO DO MODELO MPCA.....	83
8.1. APROXIMAÇÃO DE DIPOLO	83
8.1.1. <i>Potencial de Bohr</i>	85
8.1.2. <i>Potencial “single-zeta”</i>	88
8.2. APROXIMAÇÃO DE COLISÕES PRÓXIMAS.....	92
8.3. CONSTRUÇÃO DO MODELO MPCA	100
9. APÊNDICE B: TRABALHOS PUBLICADOS E ACEITOS	103
9.1. TRABALHO PUBLICADO	103
9.2. TRABALHOS ACEITOS PARA PUBLICAÇÃO	103
10. APÊNDICE C: ENERGIA GANHA PELO ALVO E ENERGIA PERDIDA PELO PROJÉTIL.....	119

11. APÊNDICE D: O MODELO DE DOIS FEIXES.....	122
12. REFERÊNCIAS	126

1. Introdução

1.1. Motivação

A perda de energia e os fenômenos de canalização de íons moleculares e aglomerados iônicos ainda não são tão bem compreendidos quanto os correspondentes fenômenos para íons monoatômicos. Importantes aplicações dos feixes moleculares podem ser encontradas no processo de desbaste (*sputtering*) de amostras, cuja taxa é maior do que a taxa de desbaste de feixes atômicos [1,2,3,4] (Figura 1), intensificação da emissão de elétrons secundários [5], física de

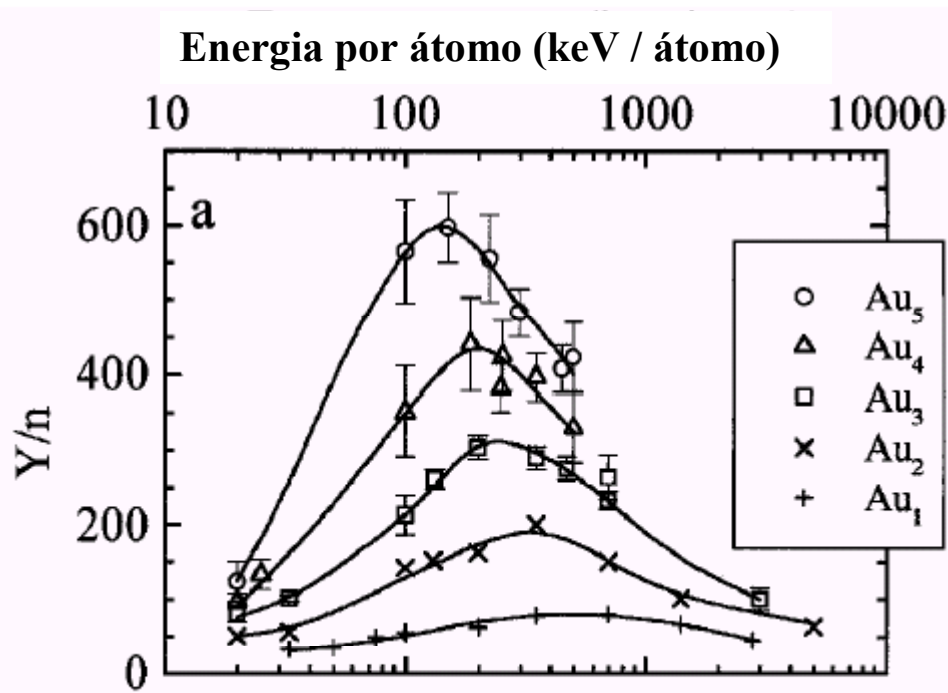


Figura 1: Taxa de *sputtering* de átomos de ouro causado pela irradiação de feixes moleculares de ouro. A taxa passa por um notável incremento quando o número de íons compondo o aglomerado iônico de Au aumenta. Esses efeitos se manifestam ao nível dos fenômenos nucleares (isto é, da interação entre núcleos) e não ao nível dos fenômenos eletrônicos. Figura de [4].

plasmas [6] e, até mesmo, indução de fusão nuclear inercial [7] devido à elevada deposição de energia do feixe molecular. No caso do *sputtering*, os efeitos moleculares são devidos a fenômenos ligados à perda de energia direta entre os núcleos dos projéteis e dos alvos, sem participação importante dos fenômenos eletrônicos.

Publicações pioneiras dos anos 70 já revelavam que os efeitos de um feixe molecular claramente se desviam da soma dos efeitos associados aos constituintes desse feixe, ou seja, há

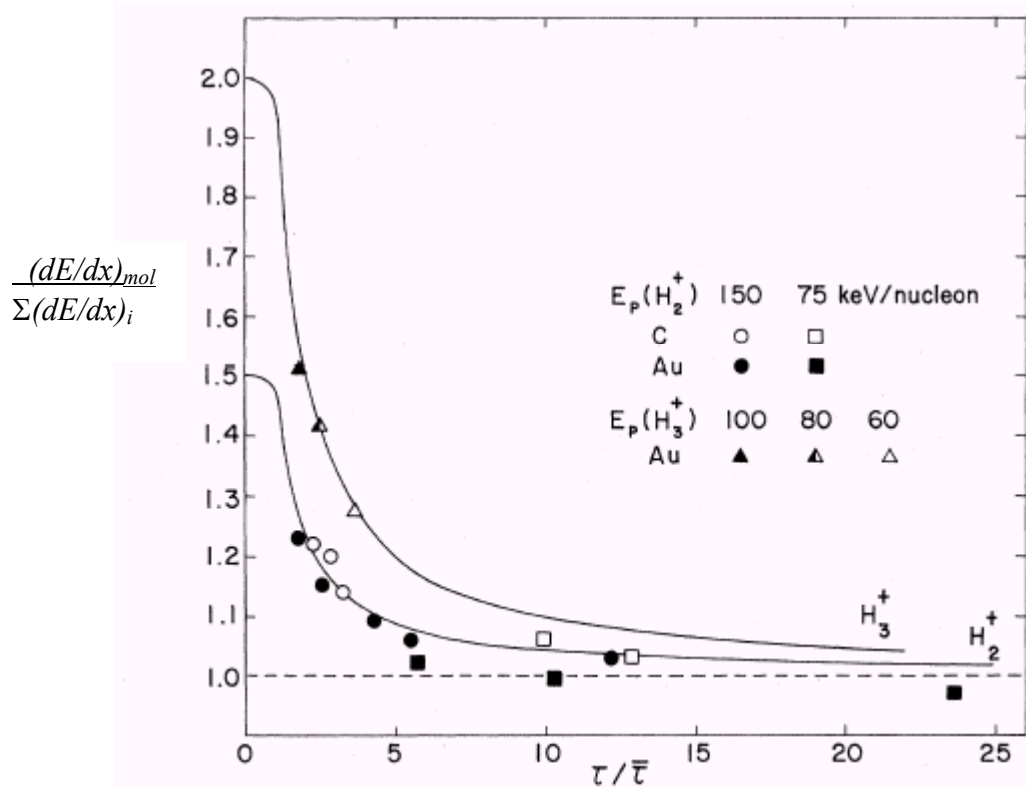


Figura 2: Relação de perdas de energia entre aglomerados de H_n e nH irradiados em diversas folhas de alvo como função do tempo de separação dos componentes iônicos. Estes resultados são devidos à perda de energia eletrônica. Figura e maiores detalhes em [8].

interferência entre os componentes do aglomerado iônico. Essa interferência se manifesta na perda de energia [8,9](Figura 2) e foi alvo de uma recente revisão sobre o assunto no caso não canalizado [10] que, em particular, menciona o efeito de vizinhança (*vicinage*). Este último efeito consiste na alteração do valor da perda de energia da molécula causada pela interferência entre os seus componentes. Além dos efeitos sobre a perda de energia, uma molécula sofre o fenômeno da *explosão coulombiana*, cujas conseqüências (particularmente o estado de carga dos fragmentos e as distribuições de energia) têm sido alvo de estudos por diversos autores [11,12,13,14,15,16,17]. O projétil molecular, penetrando um alvo a velocidades suficientemente altas, ou seja, superiores às velocidades típicas de seus elétrons de valência, tende a perder estes elétrons no interior do alvo. Seus componentes iônicos, assim, passam a sofrer repulsão mútua devido a forças quase coulombianas. Para energias da ordem de centenas de keV por unidade de massa atômica, esses efeitos se tornam importantes no caso da perda de energia eletrônica, visto que a perda de energia nuclear, nessas faixas de energia, contribui com menos de 1% da perda de energia total.

Caso o feixe incida sobre um alvo monocristalino orientado paralelamente (ou quase paralelamente) a um dos eixos cristalográficos principais, ocorre o fenômeno da canalização, já descrito por muitos autores para o caso de feixes monoatômicos [18,19,20]. A característica mais importante da canalização (e que se mantém no caso de feixes moleculares) é o fato de os íons (ou os fragmentos de um íon molecular) terem o movimento dentro do alvo guiado pelos potenciais do alvo que geram uma sucessão de colisões fracas e correlacionadas entre cada projétil e os átomos do alvo. A canalização e a explosão coulombiana juntas levam ao fenômeno conhecido como *Coulomb heating* ou aquecimento de Coulomb [21,22,23], que consiste no acréscimo da energia associada ao movimento do íon na direção transversal ao canal.

Tanto o efeito de vizinhança quanto o efeito de aquecimento de Coulomb ainda são amplamente estudados, tanto do ponto de vista teórico, em que ainda não há uma teoria não perturbativa para o efeito de vizinhança, como do experimental, em que não há referências sobre valores para o efeito de aquecimento. Em particular, não se sabe até o presente quanta energia é de fato transferida para o movimento transversal dos íons.

Em suma, a interação de íons moleculares com a matéria tem interesse tanto para a física fundamental, pelos problemas que nos são propostos na linha de Física Atômica, quanto para a física aplicada, pelas novas ferramentas que podem ser disponibilizadas para a criação de novos materiais e de novas técnicas.

Desse modo, este trabalho tem por objetivos determinar valores para a variação da perda de energia de feixes das moléculas mais simples (H^+ , H_2^+ e H_3^+) em condição canalizada, descrevendo e separando a relação entre o efeito de vizinhança e o efeito do aquecimento de Coulomb, como também determinar a distribuição do feixe de íons moleculares no interior de um sólido cristalino. Para isso, o trabalho se desenvolveu em três frentes. A frente experimental, com resultados de análise por reação nuclear (NRA), espectroscopia de retroespalhamento de Rutherford (RBS) e análise por emissão de raios X induzidos por partículas (PIXE). A frente computacional, com a simulação do transporte de íons moleculares e seus fragmentos no interior de um alvo cristalino, bem como a obtenção de estimativas para a perda de energia por unidade de comprimento em função do ângulo entre o feixe e um dado eixo do alvo. E, finalmente, a frente teórica, com a obtenção de expressões para a transferência de energia entre um íon molecular e um dado átomo alvo como função do parâmetro de impacto. Com este fim, desenvolveram-se e se utilizaram modelos de aproximação de convolução unitária (MUCA) e perturbativa (MPCA) moleculares, confrontados com os cálculos de canais acoplados para projéteis moleculares, por sua vez, também desenvolvidos neste trabalho.

Antes do prosseguimento deste trabalho, será feito um resumo muito breve sobre os principais resultados existentes na área de interação de moléculas com a matéria. Informações adicionais podem ser encontradas nos trabalhos de revisão [10, 24].

1.2. Teoria

1.2.1. Formalismo dielétrico

O formalismo dielétrico, descrito para feixes moleculares por Brandt, Ratkowski e Ritchie [8] e por Arista [25] é um formalismo perturbativo que tem como premissa que o alvo pode ser tratado como um gás homogêneo de elétrons. Dessa forma, todas as informações do alvo passam a ser dadas por uma única função dielétrica $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$. O íon molecular, nesse modelo, é descrito como uma densidade externa de carga $\rho(\vec{r}, t)$. O campo elétrico induzido pela carga sobre o alvo é dado pela equação de Poisson para íons não relativísticos. No espaço de Fourier, esse procedimento resulta em uma expressão algébrica:

$$\vec{E}_{ind}(\vec{k}, \omega) = -\frac{4\pi i \vec{k}}{k} \frac{\rho(\vec{k}, \omega)}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)}, \quad (1)$$

onde $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$ é a função dielétrica do alvo. Encontrado o campo induzido no espaço de Fourier, volta-se ao campo no espaço de coordenadas e tempo e pode-se provar [10] a seguinte expressão para a perda de energia de um aglomerado iônico:

$$S_{cl} = \sum_{i=1}^N S_i(v) + \sum_{i \neq j} S_{ij}(\vec{r}_i - \vec{r}_j, \vec{v}), \quad (2)$$

onde \vec{r}_i é a posição do i -ésimo íon do aglomerado, \vec{v} é a velocidade (e v é o módulo da velocidade),

$$S_i(v) = \frac{1}{2\pi^2 v} \int d^3k \left| f_i(\vec{k}) \right|^2 \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{k^2} \text{Im} \left[\frac{1}{\varepsilon(k, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right], \quad (3)$$

$$S_{ij}(\vec{r}_i - \vec{r}_j, \vec{v}) = \frac{1}{2\pi^2 v} \int d^3 k f_i(\vec{k}) f_j^*(\vec{k}) \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{k^2} \text{Im} \left[\frac{1}{\varepsilon(k, \vec{k} \cdot \vec{v})} \right] \exp[i\vec{k} \cdot (\vec{r}_i - \vec{r}_j)] \quad (4)$$

e

$$f_i(\vec{k}) = \int d^3 r \rho_i(\vec{r}) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}). \quad (5)$$

Assim, tem-se explícitos na equação os termos correspondentes à soma de termos atômicos S_i e de termos de interferência aos pares S_{ij} , como visto, por exemplo, em [26] Quanto à função dielétrica, emprega-se, para alvos com estrutura eletrônica mais simples (caso de metais alcalinos), a função dielétrica de Lindhard ou, para estruturas eletrônicas mais complexas, uma série formada a partir da função dielétrica de Mermin [27]:

$$\varepsilon_M(k, \omega) = 1 + \frac{(1 + i\gamma/\omega) [\varepsilon_L(k, \omega + i\gamma) - 1]}{1 + (i\gamma/\omega) [\varepsilon_L(k, \omega + i\gamma) - 1] / [\varepsilon_L(k, 0) - 1]} \quad (6)$$

onde γ é a taxa de amortecimento dos plasmons e ε_L é a função dielétrica de Lindhard (descrita, por exemplo, na ref. [28]). Dessa forma, uma expressão adequada para a função dielétrica é dada por [28]:

$$\text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon(k, \omega)} \right] = \begin{cases} \sum_i A_i \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon_M(k, \omega; \omega_i, \gamma_i)} \right], & \omega < \omega_{i \text{ edge}} \\ \sum_{i\text{-shell}} A_{i\text{-shell}} \text{Im} \left[\frac{-1}{\varepsilon_M(k, \omega; \omega_{i \text{ shell}}, \gamma_{i \text{ shell}})} \right], & \omega \geq \omega_{i \text{ edge}} \end{cases}, \quad (7)$$

onde $\omega_{i \text{ edge}}$ é a energia das camadas internas e os valores A_i , $A_{i\text{-shell}}$, ω_i , $\omega_{i \text{ shell}}$, γ_i e $\gamma_{i \text{ shell}}$ são parâmetros ajustados a partir de dados experimentais.

Para se levar em conta o efeito dos núcleos do alvo, usa-se o formalismo dielétrico em conjunto com a aproximação de densidade local (LDA) [29], que considera cada elemento de volume do alvo como um gás de elétrons independente dos outros elementos de volume e com densidade eletrônica $n(r)$. A perda de energia, assim, é obtida via uma média sobre todo o espaço.

Um dos fenômenos mais importantes que podem ser estudados com o formalismo dielétrico é o efeito do potencial de esteira ou *wake* sobre componentes do projétil molecular. O potencial de

wake é consequência da perturbação sofrida pelo meio (no caso, os elétrons do alvo) devido à passagem de um íon veloz com relação à velocidade média dos elétrons do meio. Este potencial é assimétrico, isto é, mais pronunciado da direção paralela ao movimento do íon que o induz, e mais intenso atrás do íon do que em sua frente [10,30]. Íons imediatamente atrás e suficientemente próximos deste primeiro íon (por exemplo, o segundo componente de um projétil de H_2^+) sofrem o efeito deste potencial, que induz uma força não central que leva, no caso do projétil diatômico, a uma tendência de alinhamento do eixo deste projétil com a direção do movimento do projétil como um todo [10]. Em um recente trabalho [30], mostra-se que até mesmo o estado de carga do íon sujeito ao potencial de *wake* tem o estado de carga diferente do estado de carga do íon que se encontra à frente deste (e, portanto, sob um potencial de *wake* muito inferior ao potencial por ele induzido sobre o íon que se encontra atrás). Desse modo, mesmo a evolução da distância entre os componentes do projétil em função da profundidade de penetração sofre desvios da expressão estimada por Brandt [8].

Apesar do sucesso do formalismo dielétrico para a descrição da perda de energia molecular em meios amorfos, esta teoria não pode ser prontamente usada para descrever interações locais entre íons e o alvo. Assim, fenômenos como a canalização, em que o alvo claramente não pode mais ser tratado como homogêneo, mas sim como tendo uma estrutura ordenada, não podem ser descritos diretamente pelo formalismo dielétrico.

1.2.2. Método do parâmetro de impacto

O método do parâmetro de impacto consiste essencialmente em obter uma expressão para a transferência de energia entre um projétil e os átomos do alvo como função do parâmetro de impacto b , após, obter o valor para a perda de energia entre o projétil e o alvo, através de uma integração que leve em conta a função de transferência de energia por parâmetro de impacto e o fluxo de íons ao longo do alvo. Esse método foi empregado para aglomerados iônicos por Jensen, Mikkelsen e Sigmund [31], mas, ao contrário do presente trabalho, eles o empregaram somente para grandes parâmetros de impacto. Jensen e colaboradores encontraram uma expressão baseada na expansão multipolar do potencial de Coulomb induzido pelos componentes do íon molecular. O termo de ordem mais baixa, isto é, o termo obtido somente com termos de monopolo, corresponde ao resultado da transferência de energia por parâmetro de impacto para uma molécula que possa ser tratada como um “átomo unido”, isto é, uma única carga com perda de energia dependendo do

quadrado da soma das cargas individuais dos componentes do aglomerado $Q(b) \propto (Z_{p1} + Z_{p2})^2$. A dependência da transferência de energia com a estrutura e a orientação do aglomerado só aparece levando-se em conta termos de mais altas ordens, ou seja, envolvendo termos monopolo-dipolo e superiores. Após a média sobre todas as orientações do íon, restam, além dos termos monopolo-monopolo, somente as correções a partir do termo quadrupolo-quadrupolo. Os termos que envolvem o momento de dipolo têm médias angulares nulas.

Os resultados principais, assim postos, revelam que existe uma dependência da perda de energia em função da orientação dos íons moleculares com relação à velocidade de propagação. Ainda assim, de modo semelhante ao formalismo dielétrico, é uma teoria perturbativa, e que, por isso, só pode ser aplicada para íons com altas energias e baixos números de carga, visto que o parâmetro de expansão é a relação entre a carga e a velocidade, ambas do projétil.

1.2.3. O modelo de átomo unido

O modelo de átomo unido, proposto por Bem-Hamu e colaboradores [32], considera o íon molecular como sendo um projétil monoatômico, de número de carga e de massa iguais à soma das cargas e massas, respectivamente, para efeitos do cálculo da perda de energia. O modelo se fundamenta no fato de a molécula, no instante em que penetra no alvo, ser envolta pelos elétrons do mesmo, blindando o campo molecular a distâncias superiores ao comprimento de blindagem de Debye. O comprimento de blindagem de Debye é proporcional à velocidade média do projétil. Assim, para velocidades suficientemente altas, um íon molecular pode ser considerado um único átomo se as distâncias internucleares forem menores do que o comprimento de Debye.

Usualmente, a distribuição dos estados de carga dos fragmentos da molécula tem valores menores do que a distribuição para os íons isolados, levando a uma redução do valor da perda de energia (devido a um efeito molecular que leva ao aumento da seção de choque de captura de elétrons). Por outro lado, os efeitos de correlação ou interferência entre os fragmentos levam a um acréscimo da perda de energia. Assim, como o modelo de átomo unido considera o estado de carga de um único átomo, que é muito menor do que o estado de carga de seus componentes individuais somados, a concordância com os dados experimentais é razoável no limite de espessura zero para o alvo devido a esses dois efeitos antagônicos sobre a perda de energia.

No entanto, para a descrição do fenômeno de canalização, este modelo não se mostra adequado, a não ser para descrever os instantes iniciais da interação íon molecular-alvo. Além

disso, ele não contém uma transição entre o estado de átomo unido e o estado de dissociação total.

1.3. Experimentos

1.3.1. Experimentos de transmissão

A determinação da perda de energia molecular para alvos amorfos por transmissão de feixes através de folhas foi realizada por diversos autores, como Ray et al. [33], que descobriram, para aglomerados de hidrogênio, que a interferência entre os íons do projétil leva a uma redução da perda de energia (considerando-se a perda de energia molecular em relação à soma das perdas de energia que cada componente teria em separado) para baixas velocidades do projétil ao passo que, para altas velocidades, a interferência causa um aumento da perda de energia. Medidas com o uso de folhas de carbono e ouro também foram realizadas por Brandt et al. [8] e Levi-Setti [34], e, em todos os casos, percebe-se nitidamente a existência de termos de interferência, ou seja, a perda de energia medida de fato não corresponde à soma das perdas de energia associadas a cada íon do aglomerado.

Além da determinação da perda de energia, os experimentos de transmissão também foram fundamentais para se estabelecer o efeito da explosão coulombiana. Diversos experimentos são citados no artigo de revisão de Sigmund et al. na ref. [24], em particular, os experimentos de transmissão de Golovchenko e Laegsgaard [35], que confirmam a existência da explosão coulombiana para H_2^+ e, finalmente, para se estimar a fração de fragmentos neutralizados da molécula de H_2^+ em função da energia do feixe, como feito no trabalho de Denton et al. [36]. Quanto às distribuições angular e de energia dos fragmentos da explosão de H_3^+ , têm-se os experimentos de Castro Faria et al. [14,37], com feixes de H_3^+ e aglomerados maiores de H em alvos gasosos, como argônio. Nesses experimentos, pode-se encontrar íons negativos de H, H_2 ou aglomerados maiores na saída do alvo (no caso, gás de argônio). Finalmente, os dados experimentais de recombinação de H_2 após a passagem por alvos amorfos têm sido comparados com resultados de simulações [38].

Finalmente, a explosão coulombiana é utilizada com sucesso para a determinação da própria estrutura de moléculas simples. A técnica, conhecida por imageamento por explosão coulombiana (CEI) consiste na irradiação de íons moleculares através de finas folhas. O feixe transmitido é, então, analisado em termos de velocidade e dispersão angular, como por exemplo no trabalho de

Lammich e colaboradores [39].

A distribuição angular da molécula e a distribuição de orientações moleculares podem ser obtidas por essa técnica.

1.3.2. Experimentos de retroespalhamento

Relativamente poucos experimentos foram feitos por retroespalhamento para a determinação da perda de energia molecular ou os efeitos da explosão coulombiana. Os experimentos de retroespalhamento permitem investigar os fenômenos ligados aos íons moleculares penetrando em alvos finos (tipicamente 200 nm) em condição canalizada, que dificilmente poderiam ser medidos por meio de experimentos de transmissão dada a extrema dificuldade ou mesmo a impossibilidade de se construírem amostras auto-sustentadas de tais espessuras como se exige em experimentos de transmissão. Previamente, efetuaram-se medidas dos efeitos da explosão coulombiana sobre a distribuição de energias dos íons ao longo das seções dos canais do alvo (*Coulomb heating*) [21,22]. Estas medidas revelaram, mas não quantificaram, o aquecimento de Coulomb.

Experimentos de retroespalhamento também foram usados para a medição da perda de energia de aglomerados de hidrogênio em condição canalizada [40], mostrando um aumento da perda de energia por partícula para as moléculas de H_2^+ e H_3^+ com relação às moléculas de H^+ em condições de canalização para energias entre 250 e 800 keV/amu.

Mais recentemente, medidas de RBS em conjunto com simulações [23] revelaram que o efeito da explosão coulombiana sobre a perda de energia em direção canalizada é maior, como esperado, para projéteis de H_3^+ . Além disso, as simulações previram a possibilidade de elétrons permanecerem ligados aos íons mesmo depois da explosão coulombiana para feixes de H_n^+ a 650 keV/amu. Mesmo naquele trabalho, no entanto, não foi possível determinar a importância relativa dos efeitos de vizinhança e aquecimento sobre a perda de energia molecular.

Finalmente, é importante citar o trabalho de Behar et al. [41], relativo a medições realizadas em filmes finos de $Si^{18}O_2$ com o uso da análise por reação nuclear (NRA). Os resultados mostram que, para feixes de H_3^+ a 151.2 keV por átomo, há uma concordância notável entre os resultados experimentais e os resultados obtidos através do formalismo dielétrico.

1.4. Nosso trabalho

Como foi esboçado na seção introdutória, este trabalho foi realizado em três frentes: a frente experimental, a frente teórica e, como elo entre estas duas, a frente de simulação. Nos capítulos 2 e 3 deste trabalho serão mostradas as técnicas experimentais utilizadas para a investigação da perda de energia e da distribuição do fluxo de íons moleculares sob distribuição canalizada. Essencialmente, serão capítulos de revisão.

O capítulo 4 trata sobre os cálculos empregados na determinação da transferência de energia por parâmetro de impacto de íons moleculares. Nesse capítulo, há duas seções: uma tratando dos cálculos de canais acoplados para íons moleculares e outra tratando dos modelos simplificados de aproximação convolutiva. Ambas as abordagens são, após, comparadas entre si, revelando as semelhanças e as principais diferenças entre elas.

O capítulo 5 trata das simulações empregadas para a descrição da distribuição de fluxo de íons moleculares sob canalização. São tratados os casos em que feixes monoatômicos e moleculares (com três potenciais interatômicos distintos: Coulomb puro, Coulomb somado com *wake* e Yukawa) interagem com os alvos cristalinos de Si na direção $\langle 100 \rangle$. Distribuições finais de fluxo e valores do efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia são dados a partir de tais simulações.

Finalmente, no capítulo 6, estão postos os resultados experimentais deste trabalho. Três experimentos distintos e complementares foram usados. Juntos, dois deles (RBS e NRA) eles permitem a determinação dos valores do efeito médio de *vicinage* e do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia e, um deles em especial o PIXE, fornece *diretamente* o valor do aumento da energia transversal dos íons em condição canalizada devido à explosão coulombiana, ou seja, o próprio valor do aquecimento de Coulomb.

2. Técnicas experimentais

Para este trabalho, foram empregadas as técnicas experimentais de espectroscopia de retroespalhamento de Rutherford (RBS), análise de emissão de raios X induzida por partículas (PIXE) e análise de reação nuclear (NRA).

Neste capítulo, será feita uma rápida descrição de cada uma dessas técnicas, enfatizando os princípios físicos que permitem a utilização de cada uma delas. Somente o arranjo empregado na técnica de RBS será descrito com maiores detalhes, enquanto que as demais técnicas, do ponto de vista do arranjo experimental, serão descritas apenas em termos das diferenças entre elas e a técnica de RBS. Ao mesmo tempo, serão descritas as principais vantagens e desvantagens das três técnicas, mostrando como elas se complementam neste trabalho.

2.1. Espectroscopia de Retroespalhamento de Rutherford (RBS)

A técnica de RBS (espectroscopia de retroespalhamento de Rutherford) é um procedimento não destrutivo, que consiste na determinação da composição atômica de materiais em função de sua profundidade, tipicamente ao longo do primeiro micrômetro a partir da superfície do material.

Como principais vantagens, o RBS é uma técnica não destrutiva, capaz de fornecer espectros em poucos minutos e informações sobre a interação entre íons e o alvo em função da profundidade da amostra. Além disso, os princípios físicos que norteiam o uso desta técnica são bem compreendidos e conhecidos.

Como principal desvantagem, a técnica de RBS tem baixa resolução, da ordem de keV. Dessa forma, detalhes do espectro não podem ser bem resolvidos. Em termos de profundidade, isso representa até mesmo algumas dezenas de nanômetros (tipicamente 30 nm). Além disso, a imunidade do número de contagens aos efeitos de vizinhança, embora facilite enormemente a análise dos espectros, impossibilita a medida precisa da contribuição da vizinhança sobre a perda de energia.

Para o uso da técnica, faz-se incidir um feixe de partículas (por exemplo, H^+) sobre o material (doravante chamado de amostra). Dada às dimensões dos átomos da amostra, existe baixa probabilidade de colisão entre as partículas do feixe e os átomos da amostra. Se a amostra for suficientemente fina, praticamente todas as partículas a atravessam, perdendo pouca energia. No

entanto, para uma amostra mais espessa, somente as partículas retroespalhadas (isto é, espalhadas por um ângulo superior a 90°) poderão ser detectadas. Tais partículas, além da forte mudança de direção, sofrem uma apreciável mudança na sua energia. Para a análise, detectores de estado sólido são usados para coletar parte das partículas retroespalhadas e analisá-las em energia. O sinal do detector, após passar por um pré-amplificador e um amplificador, é enviado a um multicanal que discretiza os eventos de energia em canais (Figura 3). Cada evento de retroespalhamento cuja energia corresponda a um dado canal é registrado como um incremento do número de contagens para este canal. O resultado final é um gráfico que consiste no número de contagens por energia dos íons retroespalhados, ou seja, o espectro de RBS.

Os processos físicos que regem a análise de RBS são os seguintes:

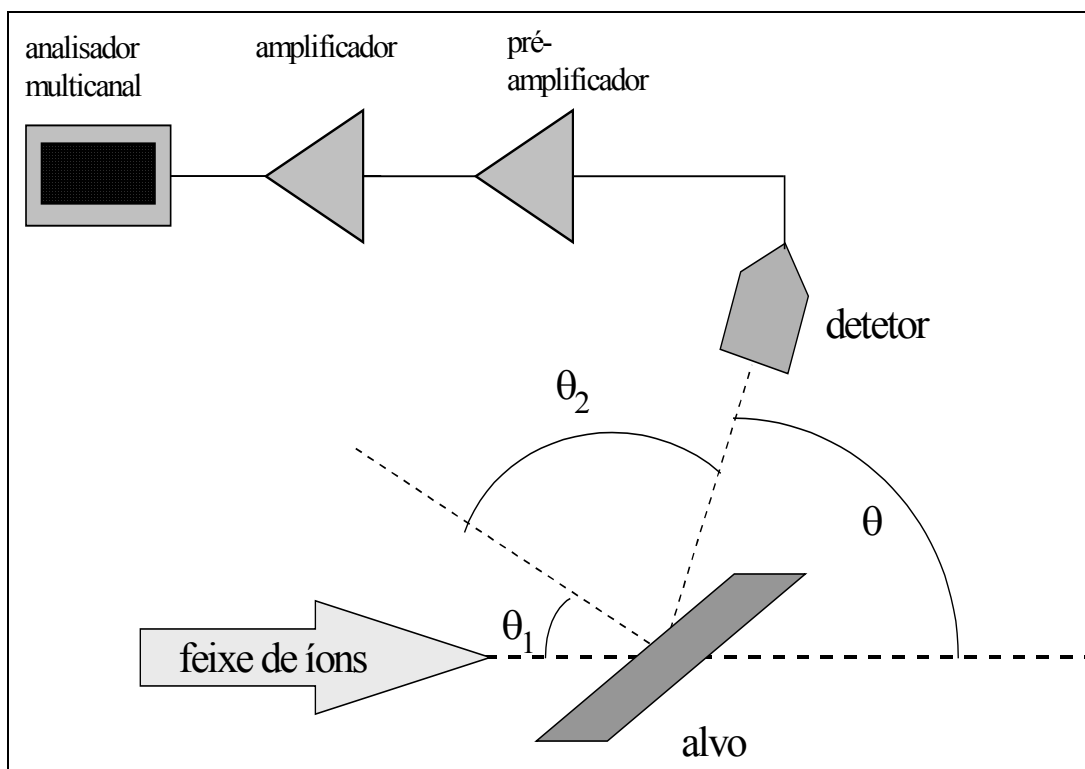


Figura 3: Esquema do interior da câmara de análise, mostrando a geometria empregada nas análises de RBS, em particular os ângulos entre a normal à amostra (θ_1) e entre a normal e o detector (θ_2).

2.1.1. Fator cinemático

Define-se o fator cinemático K como a relação entre a energia E_1 do projétil imediatamente após a colisão e a energia imediatamente antes da colisão E_0 : $K = E_1/E_0$.

Mostra-se que o fator cinemático é dado por [42]

$$K(M_1, M_2, \theta) = \left\{ \frac{\left[1 - (M_1/M_2)^2 \sin^2 \theta \right]^{1/2} + (M_1/M_2) \cos \theta}{1 + (M_1/M_2)} \right\}^2, \quad (8)$$

onde M_1 é a massa do íon incidente, M_2 é a massa do átomo alvo e θ é o ângulo de espalhamento, ou seja, o ângulo entre as direções inicial e final do projétil.

2.1.2. Seção de choque de espalhamento

A seção de choque diferencial de espalhamento é dada na ref. [43]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left[\frac{Z_1 Z_2}{4E \sin(\theta_{cm}/2)} \right]^2 \frac{\left[(1 - x^2 \sin^2 \theta)^{1/2} + x \cos \theta \right]^2}{(1 - x^2 \sin^2 \theta)^{1/2}}, \quad (9)$$

onde $x = M_1/M_2$, E é a energia da partícula no sistema de referência do laboratório e

$$\tan \theta_{cm} = \frac{\sin \theta}{\cos \theta + x}, \quad (10)$$

A seção diferencial de choque é um componente, na análise de RBS, da altura do espectro em dado canal. Outros fatores para a altura do canal são o ângulo sólido do detetor, a distância entre o detetor e a amostra e a eficiência do detetor.

2.1.3. Freamento

O *poder de freamento* (perda de energia ou, na literatura, *stopping power*) é definido como sendo a perda de energia do íon em um dado alvo por unidade de caminho percorrido. Cabe, ainda, lembrar que o poder de freamento contém dois componentes, usualmente considerados não correlacionados: o poder de freamento nuclear (elástico) e o poder de freamento eletrônico

(inelástico).

Com o conceito de poder de freamento em mãos, pode-se determinar a profundidade em que um íon se encontra em um alvo como função da energia instantânea E e da energia inicial E_0 segundo ref. [42]:

$$x = \int_{E_0}^E \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE . \quad (11)$$

Usualmente, não se empregam as expressões para o poder de freamento em função da energia, mas sim uma das aproximações em que ele seja considerado constante. Seu valor, então, é dado pelo valor do poder do freamento para a energia incidente do íon (aproximação de superfície) ou como a média aritmética entre as energias dos íons incidentes e as energias dos íons imediatamente antes de um retroespalhamento (aproximação de energia média).

2.1.4. Straggling

Os fenômenos físicos que se manifestam durante a passagem de um íon (ou aglomerado iônico) são causados por uma sucessão de colisões individuais entre os íons e o alvo. Desse modo, não se pode negar a natureza estatística desses eventos e um dos resultados dessa natureza aparece sob a forma de *straggling*, ou seja, um alargamento na distribuição de energias que o feixe incidente sofre ao passar por um alvo.

Para energias altas, isto é, energias em que o poder de freamento é definido pelas interações entre os íons e os elétrons do alvo, pode-se mostrar que, na chamada aproximação de Bohr, o *straggling* é dado por:

$$\Omega_B^2 = 4\pi (Z_p e^2)^2 NZ_t t , \quad (12)$$

onde Z_p é o número atômico do projétil, Z_t é o número atômico do alvo, N é a densidade do alvo (NZ_t é, assim, a densidade de elétrons do alvo) e t é a espessura do alvo.

No entanto, o *straggling* não é, na prática, o principal fator que causa o alargamento das distribuições de energia nas medidas de RBS. A resolução do detetor, juntamente com a eletrônica a ele associada, causa usualmente alargamentos de distribuição dezenas de vezes maiores do que os causados pelo *straggling*.

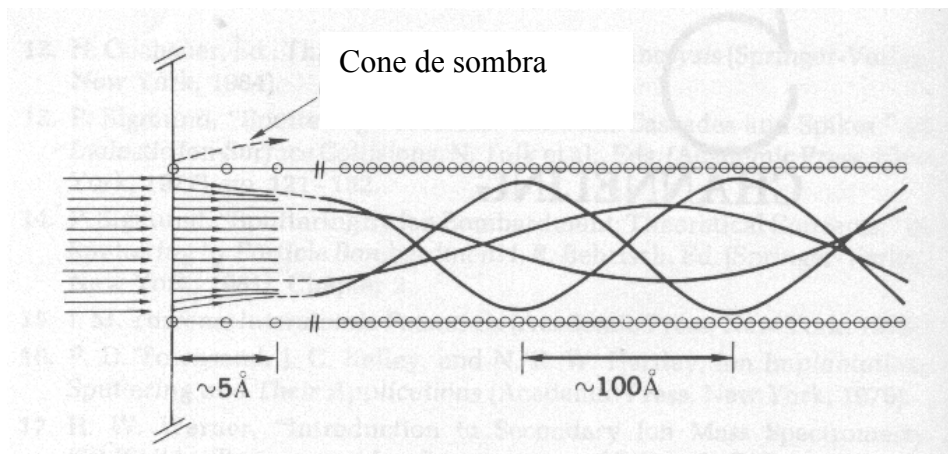


Figura 4. Ilustração esquemática descrevendo a canalização de íons. Pode-se notar como o íon incidente é guiado por sucessivas e pequenas colisões com os átomos do alvo, que formam, nessa orientação, as paredes do canal.

2.1.5. Canalização

Para alvos amorfos, a distribuição de parâmetros de impacto dos íons é independente da direção de incidência do feixe sobre o alvo. Assim, o número de contagens de RBS, de PIXE ou de produtos de reação nuclear não mostra alterações em função da orientação relativa entre o feixe e o alvo.

No entanto, se o alvo é monocristalino, a distribuição de parâmetros de impacto passa a depender fortemente da orientação relativa entre o feixe e o alvo. Este é o efeito de canalização [18]. Se o feixe está orientado de tal modo que ele esteja paralelo a um dos eixos cristalográficos principais do alvo, como, por exemplo, a direção $\langle 100 \rangle$ do silício, os potenciais do alvo passam a guiar o movimento dos íons, ditos canalizados, por meio de sucessivas colisões correlacionadas entre si e com maior probabilidade de ocorrer a grandes parâmetros de impacto em comparação com a situação de alvo amorfo, como ilustrado na Figura 4. Vale notar, no entanto, que as oscilações descritas nessa figura estão grandemente exageradas. As oscilações dos íons canalizados têm comprimentos de onda tipicamente de 20 a 30 nm.

Um dos resultados da canalização é a diminuição do número de contagens de RBS com relação ao caso em que o feixe não está paralelo a uma direção de canalização. Usualmente essa redução passa dos 95%. Na Figura 5, tem-se um exemplo desse fenômeno em uma medida de RBS, em que o número de contagens associada à camada cristalina de Si do alvo é notavelmente reduzido.

Levando-se em conta os principais fenômenos físicos que participam das medidas de RBS, pode-se provar, considerando-se separadamente os caminhos de entrada e saída de um íon retroespalhado, a seguinte expressão para a escala de profundidade desta técnica:

$$\Delta E = [S] \Delta x, \quad (13)$$

onde ΔE é a diferença de energia no espectro, Δx é a espessura correspondente à diferença de energia ΔE e $[S]$ é o *fator de perda de energia*, dado por:

$$[S] = \frac{K}{\cos \theta_1} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} + \frac{1}{\cos \theta_2} \left(\frac{dE}{dx} \right)_{saída}, \quad (14)$$

onde θ_1 é o ângulo entre a normal à superfície da amostra e o feixe incidente e θ_2 é o ângulo entre a normal à superfície da amostra e a direção de detecção do feixe, como ilustrados na Figura 3. Na aproximação de superfície, temos $E_{entrada} = E_0$ e $E_{saída} = KE_0$, que foram as aproximações empregadas neste trabalho. Pode se mostrar [42] que esta aproximação difere da aproximação de energia média por menos de 2 % para cada 100 nm de espessura.

Na Figura 5, podemos ver, como exemplo, dois espectros típicos de RBS. No caso, o íon incidente é H^+ e o alvo é um filme de SIMOX. O filme de SIMOX é composto por uma camada de silício monocristalino (Si-c), tipicamente com 200 nm de espessura, seguida de uma camada de óxido de silício (SiO_2), tipicamente de 400 nm, sobre um substrato de Si-c. No espectro adquirido sob condições não canalizadas, os íons incidiram a 6° do canal $\langle 100 \rangle$ do silício. Após a calibração dos canais em termos de energia, estima-se a espessura da camada cristalina pela diferença entre as posições da borda frontal e a posterior da camada de Si. Ainda sobre a região de Si-c, pode-se notar um aumento do número de contagens com a diminuição de energia, algo esperado devido à queda da seção de choque de espalhamento com a energia, descrita há pouco.

Já o espectro adquirido em direção canalizada revela mais um fenômeno: a grande

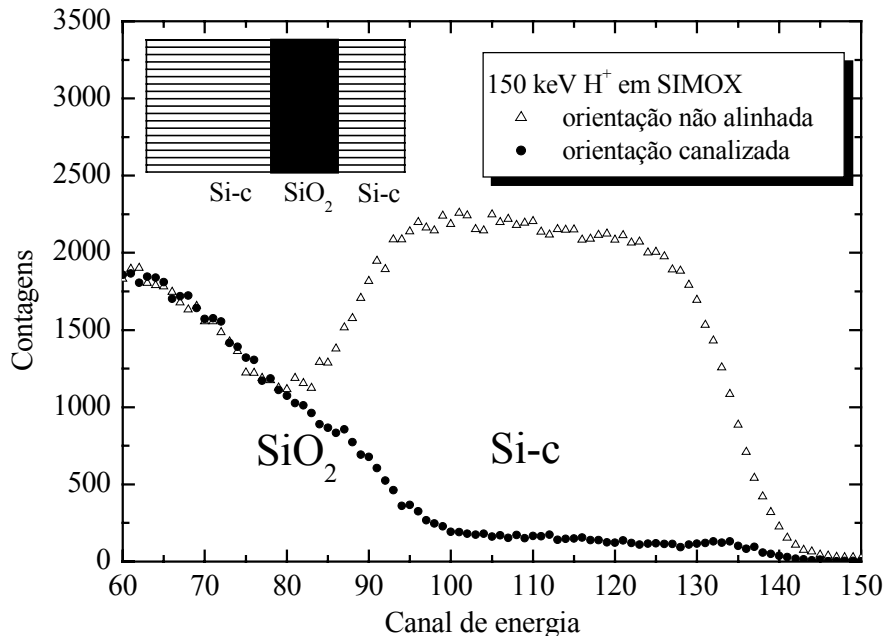


Figura 5. Dois espectros típicos de RBS. Pode-se ver a posição da borda de Si-c, a posição da interface Si-c / SiO₂ e o efeito da canalização sobre o número de contagens associadas ao Si. O efeito da resolução da medida também pode ser visto, especialmente na borda frontal da camada de Si.

diminuição do número de contagens frente à condição não canalizada na região associada à camada de Si-c. Devido ao aumento do número médio de interações entre os íons e o canal sob parâmetros de impacto maiores, a probabilidade de retroespalhamento dos íons reduz-se consideravelmente.

Neste trabalho, o RBS foi usado de duas formas: como técnica de medida de perda de energia em condição canalizada e como técnica auxiliar de canalização do feixe de íons para os demais experimentos.

A medida de perda de energia foi realizada empregando-se o método descrito na ref. [44], onde o espectro de RBS em uma dada energia E_1 é considerado como a soma de duas frações: a fração de íons que permanece canalizada até imediatamente antes do retroespalhamento (f_c) a uma profundidade x' e a fração (f_d) de íons que primeiramente é decanalizada (a uma profundidade x'') e somente após é retroespalhada em x . A fração canalizada é dada por:

$$f_c(E_1) = \int_0^{\infty} dx' [1 - \chi(x')] P_{sc}^c(x') \delta(E_1 - E_c(x')), \quad (15)$$

onde χ é a fração de partículas decanalizadas a uma profundidade x' , P_{sc}^c é a probabilidade de uma partícula ser retroespalhada a partir do canal ou da camada de óxido enterrado de silício a uma profundidade x' e E_c é a energia com que a partícula emerge da amostra após o retroespalhamento.

Já a fração decanalizada é dada por:

$$f_d(E_1) = \int_0^{\infty} dx' \int_0^x d\chi(x'') P_{sc}(x, x'') \delta(E_1 - E(x, x'')) \quad (16)$$

onde $d\chi$ é a fração de partículas decanalizadas entre as profundidades x'' e $x'' + dx$, P_{sc} é a probabilidade de uma partícula, decanalizada em x'' , ser retroespalhada a uma profundidade x e E é a energia com que uma partícula decanalizada em x'' e retroespalhada em x emerge da amostra.

A partir destas integrais, expressões para f_c e f_d em função da perda de energia canalizada e da perda de energia não canalizada são dadas na própria referência [44]. Com essas expressões e os espectros de RBS, pode-se, finalmente, encontrar o valor da perda de energia canalizada como função do ângulo de incidência do feixe.

2.2. Análise de raios X induzidos por feixes de partículas (PIXE)

A técnica de análise de emissão de raios X induzida por partículas (PIXE) é, de modo semelhante ao RBS, uma técnica não destrutiva que permite obter as concentrações dos elementos contidos em uma amostra. No caso do PIXE, a sensibilidade é elevada. Pode-se determinar concentrações de elementos da ordem de partes por milhão. No caso particular deste trabalho, no entanto, o uso dado a esta técnica não foi a análise do alvo, mas sim uma análise da distribuição do feixe dentro de um canal de Si-c, em particular, o canal $\langle 100 \rangle$, como será descrito no capítulo de procedimentos e resultados.

Para o nosso trabalho, a principal vantagem do PIXE é, assim como o RBS, a independência com relação aos efeitos de vizinhança (uma vez que as dimensões entre os íons e os átomos do alvo necessárias para a indução de ionização ou retroespalhamento são muito menores do que as

dimensões de moléculas típicas) e, em particular, o uso de outro processo físico para a análise da interação molécula-matéria.

As principais desvantagens para este trabalho são a não quantificação da técnica em função da profundidade (PIXE fornece apenas o resultado total de contagens de raios X, sem discriminar a profundidade onde eles foram gerados), o fato de ser uma análise, no nosso caso, destrutiva (a 150 keV/u.m.a., a seção de choque de geração de raios X é muito baixa, exigindo altas correntes e bastante tempo para a determinação de um espectro de PIXE, podendo amorfizar as amostras utilizadas) e a grande sensibilidade do arranjo experimental a interferências.

A disposição da amostra na câmara de análise é análoga à descrita na Figura 3 para a técnica de RBS. A amostra é submetida a um feixe de prótons. A grande diferença aqui é o detector usado, do tipo Si(Li), capaz de caracterizar os fótons de raios X emitidos tanto em intensidade quanto em energia. Um espectro típico de PIXE apresenta diversos picos, cuja análise exige, usualmente, um programa específico, como o GUPIX. Este é empregado juntamente com calibrações a partir de amostras-padrão ou compilações de seções de choque de produção de raios X [45]. Além disso, a técnica de PIXE exige uma cuidadosa medida da corrente de feixe sobre a amostra, pois a integração dessa corrente é um dos dados de entrada para a determinação da concentração absoluta de um elemento da amostra.

É um fato conhecido que a seção de choque de produção de raios X aumenta rapidamente com a energia do feixe incidente. A eficiência de emissão de raios X é muito maior para feixes de prótons com energia da ordem de MeV do que para prótons com energias de centenas de keV.

Neste trabalho, em particular, somente procedeu-se à integração da área do pico de raios X associado ao Si. Os maiores cuidados dispensados no uso do PIXE para este trabalho foram a medida da corrente de feixe e a supressão de raios X contínuos causados por elétrons secundários.

O sinal do detector de raios X era então levado a um pré-amplificador e a um amplificador e, posteriormente, levado ao multicanal para registro e posterior análise.

2.3. *Análise com reações nucleares (NRA)*

É um fato conhecido que núclídeos estáveis podem sofrer reações nucleares se forem bombardeados por feixes de íons de determinados projéteis a determinadas velocidades [46]. A contagem dos produtos das reações nucleares (raios gama ou outros núclídeos) é a base da análise da técnica de reação nuclear (NRA).

A reação nuclear empregada neste trabalho é a reação $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$, que contém uma ressonância para a energia do próton correspondente a 151 keV. As grandes vantagens da reação nuclear ressonante são a alta seletividade (somente um isótopo do alvo emite produtos de reação) e a resolução em profundidade, em alguns casos, subnanométrica. Diferenças de perda de energia da ordem de 5% são facilmente mensuráveis por esta técnica. É a única técnica empregada neste trabalho, em particular, que pode medir o efeito de vizinhança.

As desvantagens são a necessidade de tempo elevado de irradiação da amostra sob altas correntes para a obtenção de uma curva de excitação (no caso da reação escolhida para este trabalho), a preparação exigida para a amostra, que deve conter ao menos um nuclídeo passível de reação nuclear (o que limita o uso da técnica a poucos elementos; em particular, a reação usada nesse trabalho requer a presença do caro e raro isótopo de ^{18}O na amostra).

Como no caso do RBS e do PIXE, a caracterização mais importante da reação nuclear é a seção de choque da reação. Duas regiões se distinguem claramente na curva de seção de choque de reação nuclear: os platôs, isto é, as regiões onde a seção de choque praticamente não varia com a energia, e as ressonâncias estreitas. Na ressonância, pode-se estimar a forma da seção de choque por meio da lei de Breit-Wigner:

$$\sigma_{\theta}(E) = \sigma_{\theta}^m \frac{(\Gamma/2)^2}{(\Gamma/2)^2 + (E - E_R)^2}, \quad (17)$$

onde σ_{θ}^m é a seção de choque na ressonância, Γ é a largura à meia altura da distribuição (FWHM), E é a energia do feixe e E_R é a energia de ressonância.

A análise por reação nuclear empregada neste trabalho, assim, foi do tipo ressonante, ou seja, empregou-se uma reação nuclear em uma certa região de energia onde ela tem uma ressonância estreita. No caso da reação $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$, com energia de ressonância de cerca de 151 keV para o próton incidente, a largura da reação vale 50 eV.

Quando um feixe de íons incide no alvo com a energia de ressonância da reação e o alvo contém o elemento capaz de sofrer reação nuclear devida ao feixe, todos os produtos de reação detectados se devem somente à camada mais superficial do alvo. Todos os íons que não induzem reação nuclear (ou seja, ainda estão se propagando) sofrem perda de energia no alvo. Assim, deixam de ter a energia de ressonância a uma certa profundidade e, portanto, praticamente não induzem mais reações nucleares. Caso o feixe incida sobre o alvo a uma energia maior do que a

energia de ressonância, os produtos de reação não serão originados na camada mais superficial do alvo. No entanto, ao perder energia no interior do alvo, os íons alcançam novamente a energia de ressonância e, assim, induzem a reação em uma camada fina mais profunda, como ilustrado na Figura 6. A profundidade dessa camada é dada por:

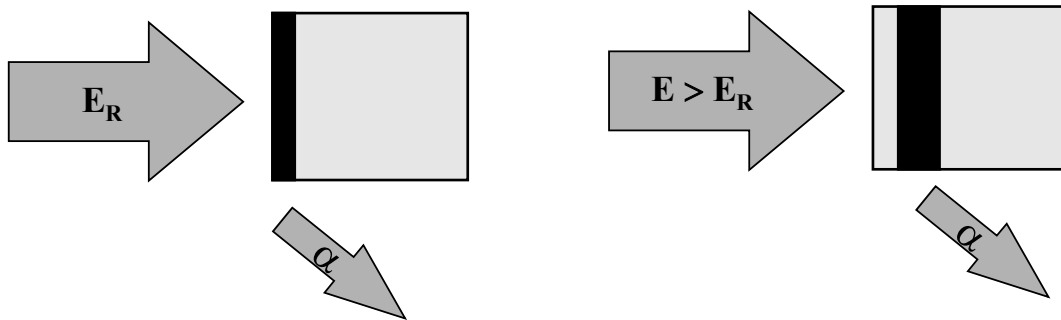


Figura 6. Escolha da profundidade de análise em função da energia do feixe para NRA. À esquerda, com feixe de energia igual à de ressonância, temos a emissão de produtos de reação (no exemplo, partículas alfa) pela camada superficial da amostra (em preto). À direita: com o aumento da energia do feixe, uma camada mais profunda do alvo é analisada. O efeito da dispersão em energia dos íons incidentes (straggling) também aumenta com a profundidade.

$$E - E_R \approx \frac{x}{\cos \theta_1} \frac{dE}{dx}, \quad (18)$$

onde x é a profundidade do alvo, θ_1 é o ângulo entre o feixe e a normal à superfície alvo e dE/dx é a perda de energia por unidade de comprimento.

Desse modo, pode-se usar a técnica tanto para se determinar a profundidade de uma camada que contenha ^{18}O quanto, se a profundidade for conhecida, para se determinar a perda de energia. A resolução da técnica, finalmente, depende da largura Γ da reação, da estabilidade da energia do feixe de íons, do efeito Doppler associado ao alvo. Com isso, a resolução típica é 150 eV.

Usualmente, o resultado da análise de reação nuclear, conhecido como curva de excitação, deve passar por um procedimento de simulação baseado na teoria estocástica da perda de energia de íons com a matéria [47] para se determinar o perfil de concentração da região que contém o nuclídeo passível de reação nuclear ressonante.

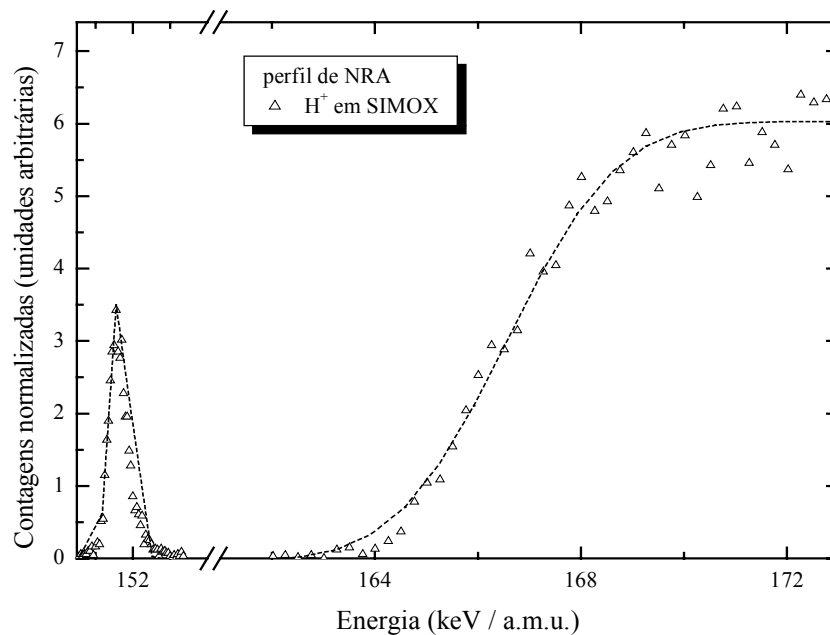


Figura 7. Curvas de excitação obtidas por NRA em uma amostra de SIMOX. Pode-se notar os picos de contagens de produtos de reação nuclear associados às regiões que contém ^{18}O . Uma das regiões (o pico à esquerda) é a superfície da amostra. A outra (o platô à direita) é a região de Si^{18}O_2 .

Neste trabalho, no entanto, o objetivo era a determinação da perda de energia. Para isso, foi usado um alvo de SIMOX com a camada de SiO_2 enriquecida com ^{18}O e, na superfície, foi feita uma oxidação da amostra em ambiente de ^{18}O , permitindo o uso dessa camada superficial como marcador.

Bastou-se, assim, medir a diferença em energia entre os sinais do pico da curva de excitação associada à superfície do alvo e a borda do platô da curva de excitação associado à região de Si^{18}O_2 , como a curva mostrada na Figura 7, sem a necessidade de simulações que seriam usadas para a determinação de perfis de concentração.

3. Canalização

Como descrito no capítulo anterior, processos causados por irradiação de íons em um alvo, como perda de energia, retroespalhamento, emissão de elétrons secundários, reações nucleares e produção de raios X, passam a depender da orientação relativa entre o feixe e o alvo se o alvo for monocristalino. A distribuição de parâmetros de impacto passa a privilegiar as interações íon-alvo com parâmetros de impacto maiores e os íons passam a ser guiados por sucessivas colisões pequenas e correlacionadas, sendo assim guiados pelos potenciais do alvo [18].

Neste capítulo, serão descritos aspectos experimentais da canalização, fundamentais para se explicar os procedimentos experimentais e o uso das técnicas experimentais em conjunto.

3.1. Aspectos experimentais da canalização: procedimento de canalização

Uma estrutura cristalina como a do Si pode ser vista de três diferentes direções:

(a) uma direção tal que os átomos da rede sejam vistos como um conjunto de pontos ocupando posições aleatórias (chama-se essa direção de não-alinhada ou aleatória);

(b) uma direção tal que os átomos da rede sejam vistos formando um conjunto de planos paralelos mas que, dentro de cada plano, o posicionamento dos átomos seja aleatório (direção de canalização planar);

(c) uma direção tal que a linha de visada se alinhe com um dos eixos cristalográficos do cristal, vendo, assim, os átomos da rede cristalina distribuídos em cadeias paralelas à linha de visada (direção de canalização axial).

Para qualquer experimento que estude a canalização, o primeiro procedimento é alinhar o feixe de íons com a direção de um dos eixos cristalográficos do alvo. Para isso, a própria técnica de RBS é empregada. Na Figura 8, temos a disposição experimental usada para o procedimento de alinhamento.

O procedimento de alinhamento entre o feixe e o eixo $\langle 100 \rangle$ do Si era, neste trabalho, facilitado pelo fato de o alvo ser crescido e cortado de tal forma que este eixo era praticamente perpendicular à superfície da amostra. Essa amostra era, então, posta no porta-amostras e, mediante sucessivas medidas de contagens de espectros de RBS próximos à superfície da amostra em função do ângulo de inclinação do porta-amostras (varredura angular), buscavam-se as menores relações

entre o espectro medido e o espectro não alinhado nessa região (por exemplo, entre os canais de energia 120 e 125 da Figura 5). Essa relação é conhecida por χ e a relação mínima, obtida no canal, é conhecida como χ_{\min} . Com isso, fazendo-se tal varredura ao longo de dois eixos ortogonais entre si, encontrava-se o canal, como ilustrado na Figura 9.

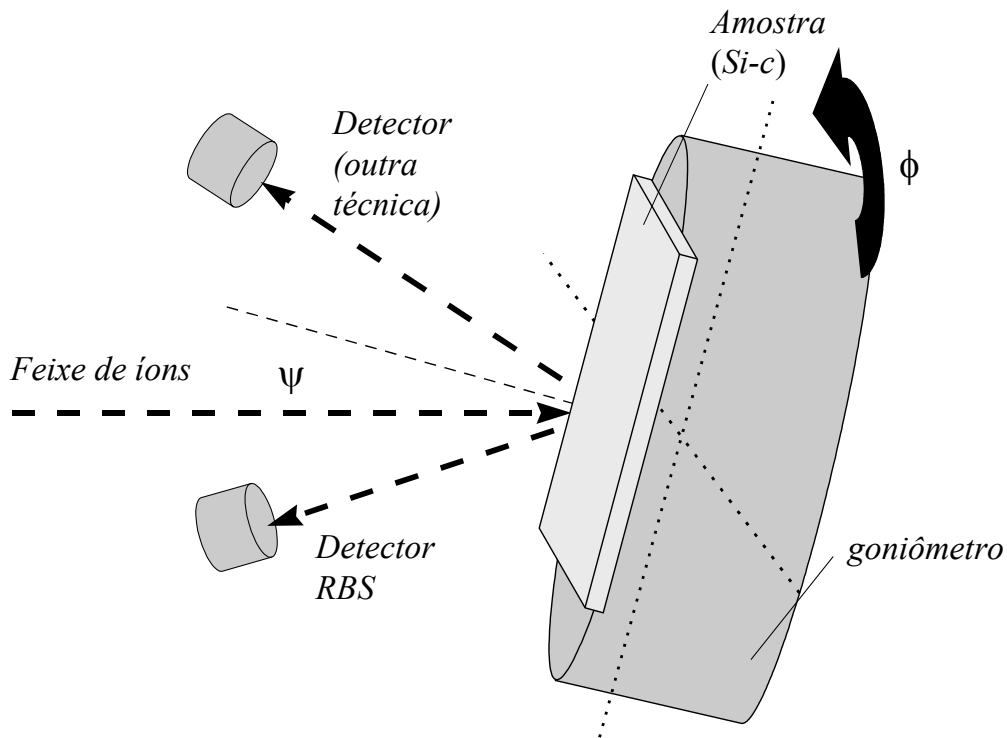


Figura 8: Arranjo experimental usado para experimentos envolvendo canalização. O alvo está apoiado em um porta-amostras ligado a um goniômetro de três eixos. O ângulo ψ é o ângulo entre o feixe e o eixo do canal. O ângulo ϕ é o ângulo das rotações em torno do eixo z, isto é, o ângulo azimutal. O procedimento de canalização pode ser usado tanto para medidas de RBS quanto para outras técnicas que dependam do alinhamento do feixe com a amostra.

Para nos assegurarmos que o espectro não alinhado era realmente livre da influência da canalização planar, fazia-se necessária a busca das posições dos planos do alvo. Para isso, uma vez encontrado o canal, a amostra era inclinada em ψ (arbitrariamente 6°). Após, fazia-se uma varredura ao longo de ϕ , em busca dos planos

Como mostrado na Figura 10, há dois planos mais pronunciados ao longo de 90° de varredura: o plano $\{100\}$ (o menor e mais estreito dos dois) e o plano $\{110\}$, mais profundo e largo. Uma vez caracterizados os planos, a amostra era posicionada no ângulo azimutal de 15° além do plano $\{100\}$. A varredura em ψ era, então, refeita nesse azimute para se obter o canal. Finalmente, o espectro não alinhado era obtido segundo um procedimento baseado na referência

[48], posicionando a amostra a $\psi = 6^\circ$ a partir do eixo $\langle 100 \rangle$ e a $\phi = 15^\circ$ a partir do plano $\{100\}$. Um teste final é obter o espectro não alinhado e o espectro de RBS no eixo e verificar se, no caso do Si, $\chi_{\min} \leq 5\%$.

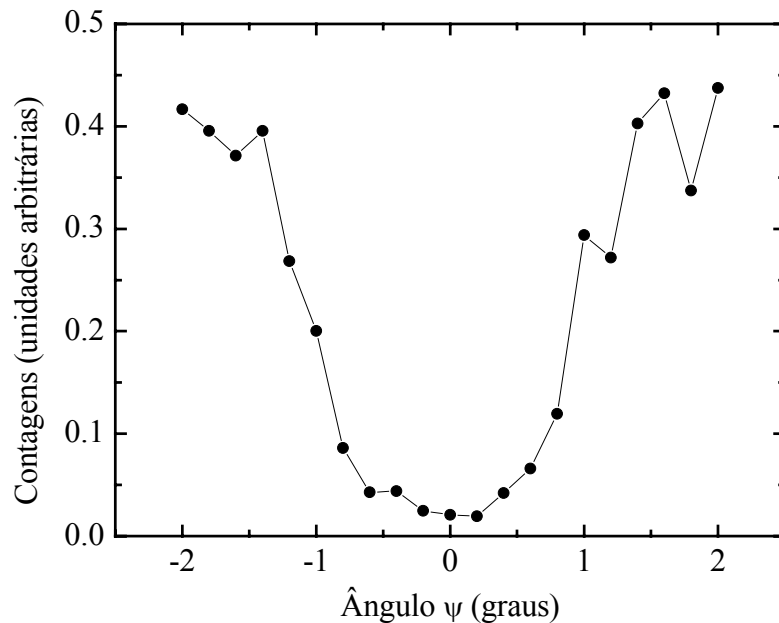


Figura 9: Varredura angular para a busca do canal $\langle 100 \rangle$ do Si. Pode-se notar que o canal está perto de 0° . Essa varredura é feita inclinando-se a amostra ao longo de dois eixos ortogonais à normal à amostra, ou seja, duas dessas curvas devem ser obtidas a cada vez.

3.2. Aspectos teóricos da canalização

A teoria da canalização é baseada no modelo de potencial contínuo de Lindhard [49]. Segundo esse modelo, íons percorrendo um plano ou um canal axial de um alvo monocristalino são guiados por um potencial que pode ser considerado como essencialmente contínuo, isto é, cadeias de átomos do alvo podem ser consideradas como uma corda contínua e os planos de átomos do alvo podem ser pensados como planos contínuos, nos dois casos, fazendo-se a média dos potenciais atômicos individuais ao longo da direção paralela da cadeia ou do plano. Assim, reduz-se o número de dimensões do problema.

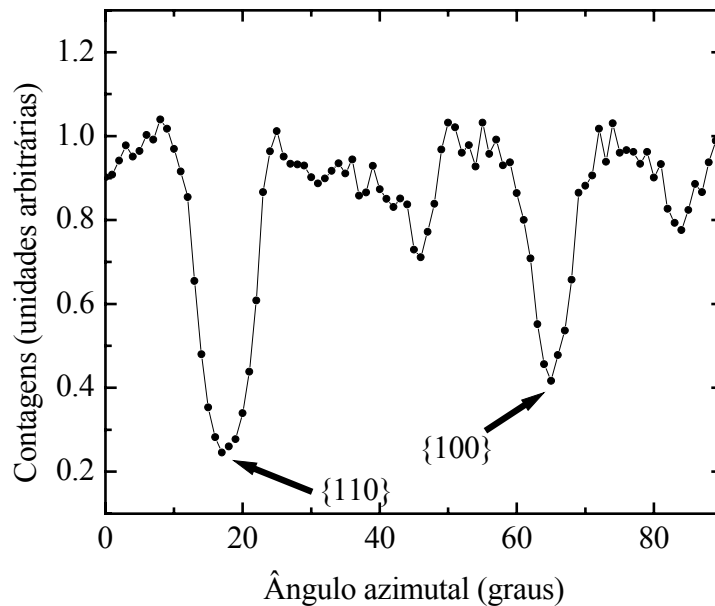


Figura 10: Varredura azimutal do alvo de Si-c. Os planos principais são mostrados em destaque. O ângulo de trabalho é usualmente próximo de 15° afastado do plano $\{100\}$.

Dessa forma, consideram-se as partículas canalizadas com um ângulo pequeno com relação ao eixo do canal. Os encontros das partículas canalizadas resultam em sucessivas colisões suaves com pequenos ângulos de interação. Quando o ângulo de incidência aumenta, a partícula tende a se aproximar dos átomos do alvo. Acima de um certo ângulo crítico ψ_{crit} , a partícula se aproxima da cadeia de átomos o suficiente para interagir com cada átomo isoladamente e, em uma colisão, sofrer um espalhamento para fora do canal.

Assim, com uma boa aproximação, três hipóteses são formuladas para o modelo:

- a) o movimento da partícula canalizada é bem descrito por trajetórias clássicas;
- b) as colisões sofridas pelas partículas resultam em pequenos ângulos de espalhamento $\Delta\psi$;
- c) o ângulo ψ entre a velocidade do íon e o eixo do canal é muito pequeno (da ordem de 1°).

Segundo o modelo, pode-se mostrar que o potencial médio a uma distância ρ de uma cadeia de átomos com espaçamento d e potencial individual u_1 é dado por:

$$U_1(\rho) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{+\infty} dz' u_1(\sqrt{z'^2 + \rho^2}). \quad (19)$$

Esse é o modelo de potencial transverso contínuo (ou modelo do contínuo). Usualmente, o potencial escolhido para este modelo é um potencial de Coulomb blindado:

$$u_1(r) = \frac{Z_1 Z_2}{r} \phi\left(\frac{r}{a}\right). \quad (20)$$

A partir desse tipo de potencial, obtém-se:

$$U_1(\rho) = \frac{2Z_1 Z_2}{d} \xi\left(\frac{\rho}{a}\right), \quad (21)$$

onde ξ é a função integrada de blindagem.

Uma escolha usual de potencial para ser usado com este modelo é o potencial de Molière (ver, por exemplo, [18]). Dessa forma, a função integrada de blindagem é dada por:

$$\xi_{Molière}(x) = 0.35K_0(0.3x) + 5.5K_0(1.2x) + 0.1K_0(6x). \quad (22)$$

onde $x = \frac{Z^{1/3} r}{0.8853}$.

Finalmente, cada canal é formado por um determinado número de cadeias. Simplesmente somam-se as contribuições de cada cadeia para um dado ponto do canal e, se conveniente, escolhe-se um valor arbitrário para o mínimo do potencial.

Dado que o potencial independe de z e independe explicitamente do tempo ou da velocidade, temos que o hamiltoniano é cíclico em z e que o hamiltoniano associado somente ao plano transversal à direção do movimento (doravante chamado de plano transversal), dado por

$$H_{\perp} = U(x, y) + \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M_1}, \quad (23)$$

é uma constante de movimento, chamada aqui por brevidade de energia transversal E_{\perp} .

Pode-se mostrar que, a grandes profundidades, sob equilíbrio estatístico, a distribuição de

partículas no plano transversal é dada por:

$$P_0(E_{\perp}, \vec{\rho}) = \begin{cases} 1/A(E_{\perp}), & \text{se } U(\vec{\rho}) \leq E_{\perp} \\ 0, & \text{se } U(\vec{\rho}) > E_{\perp} \end{cases}, \quad (24)$$

onde A é a área acessível à partícula em um canal.

Dessa forma, a região de um canal que cada partícula pode acessar após uma grande profundidade depende da energia transversal inicial depende da energia transversal inicial. No entanto, todas as partículas podem acessar a região central do canal, independente da energia transversal inicial. Isso leva à concentração de fluxo próximo ao centro do canal (*flux peaking*), como visto na Figura 11.

O ângulo máximo de incidência para a canalização de um íon é estimado por Lindhard como sendo da ordem de $\psi_1 = \sqrt{2Z_1Z_2/Ed}$. Vale lembrar que, de acordo com um trabalho mais recente, mostrado na referência [19], para baixos valores de energia associada ao movimento transversal, o fluxo de íons pode não alcançar o equilíbrio baseado na uniformidade da acessibilidade do espaço de fases mostrada na equação (24) mesmo a grandes profundidades para um feixe axialmente canalizado. Além disso, a densidade do fluxo passa a exibir comportamentos caóticos à medida que a energia transversal inicial é aumentada [19,50]. Além disso, estimativas baseadas em simulações de Monte Carlo, que consideravam tanto as vibrações da rede cristalina do alvo quanto o espalhamento múltiplo por elétrons, mostram que existe um número significativo de partículas que, mesmo a um ângulo de incidência um pouco superior ao limite de Lindhard, permanecem ainda canalizadas [51]. Finalmente, embora se suponha que a energia transversal de um íon canalizado seja uma quantidade essencialmente conservada, flutuações de carga dos íons, por captura e perda, levam a alterações da energia transversal dos íons para valores maiores do que os iniciais (*heating*) ou menores (*cooling*) [52].

Além do modelo do potencial contínuo, um outro importante aspecto da canalização é a regra de compensação de Lindhard [49] (ou regra da média angular). Determinados fenômenos, como produção de raios X, a perda de energia ou a taxa de reações sofrem grande dependência da direção de propagação do feixe de íons no canal para alvos monocristalinos. Se o alvo é amorfo, tais fenômenos independem totalmente da direção de propagação. A regra de compensação trata da diferença entre a média angular sobre todas as direções do feixe para um dado fenômeno e o valor deste fenômeno para um alvo amorfo. Diz-se que um determinado fenômeno de interação entre íons e a matéria sofre *compensação* quando o valor da média sobre todos os ângulos deste

fenômeno é igual ou muito próxima do valor obtido para um alvo amorfo de mesma composição e densidade do alvo cristalino dado.

Para a compreensão desta importante regra, seja P a probabilidade de uma partícula de energia E estar em certo ponto \vec{R} do espaço no interior do cristal. É importante ter em mente que essa probabilidade é medida com relação à probabilidade que seria medida sem o alvo cristalino. Seja, ainda, o estado inicial do feixe de partículas de intensidade uniforme dado pelos ângulos θ (ângulo entre o eixo do canal e a direção do feixe) e ϕ (o ângulo azimutal). Dessa forma, $P = P(\theta, \phi, \vec{R})$, apesar de poder depender também de outras variáveis como a energia, o tipo de partícula, o tipo de alvo e, no caso de íons moleculares, dos graus internos de liberdade. Define-se,

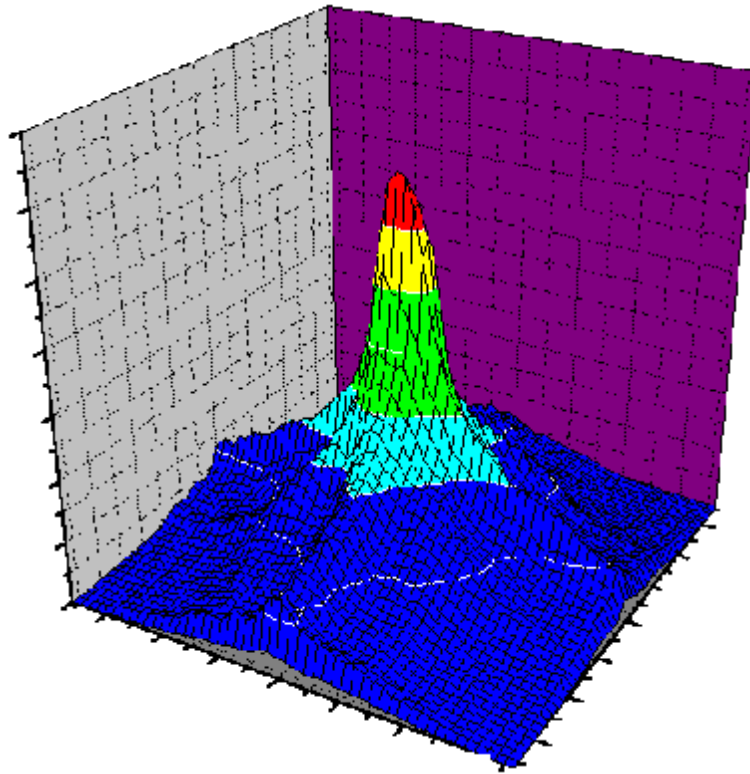


Figura 11: Concentração do fluxo de íons no centro do canal. Todos os íons que incidem no canal podem acessar livremente a região central, mas somente os íons de energia transversal inicial mais alta podem acessar regiões mais distantes do canal. Dessa forma, o resultado é a formação de *flux peaking*.

ainda, a média angular como:

$$P(\vec{R}) = \frac{1}{4\pi} \int P(\theta, \phi, \vec{R}) \sin \theta d\theta d\phi. \quad (25)$$

Para o cômputo de $P(\vec{R})$, considera-se um *ensemble* de íons de energia E . Assim, a definição de Lindhard de P nos leva à seguinte expressão vinda do *ensemble* microcanônico:

$$P(\vec{R}) = \frac{\int \delta(H_l - E) d^{3N} p}{\int \delta(H_0 - E) d^{3N} p}, \quad (26)$$

onde H_l é o hamiltoniano dos íons do aglomerado levando-se em conta a interação entre eles e a rede cristalina via um potencial partícula-rede $V_l(\vec{R})$, H_0 é o hamiltoniano sem a interação entre os íons e a rede e E é a energia dos íons.

Lembrando que duas trajetórias dos íons no espaço de fases jamais se cruzam e que cada trajetória do espaço de fases é univocamente determinada pelas condições iniciais dos íons, temos que a expressão (26), que é a integração sobre as trajetórias dos íons no espaço de momentum, é totalmente equivalente à média angular (25), que é feita sobre todas as condições iniciais de momentum. É importante, ainda, lembrar que $V_l(\vec{R})$ é, tipicamente, da ordem de alguns eV a até algumas dezenas de eV para prótons. Dessa forma, a média angular utilizada na regra de Lindhard pode ser calculada via *ensemble* microcanônico.

Para o caso molecular, acrescentou-se neste trabalho ao hamiltoniano do íon o potencial $V_m(|\vec{R}_i - \vec{R}_j|)$ associado aos demais componentes do aglomerado. A integração foi feita sobre os momenta individuais dos componentes do aglomerado. Com isso, encontra-se para H_2^+ e H_3^+ uma expressão para a probabilidade integrada sobre todas as direções da forma:

$$P\left(\left\{\vec{R}_i\right\}_{i=1}^N\right) = \left[1 - \frac{\sum_{i=1}^N V_l(\vec{R}_i)}{E - \sum_{i>j} V_m(|\vec{R}_i - \vec{R}_j|)} \right]^{\frac{3N-2}{2}}. \quad (27)$$

válida para $N = 1, 2, 3$. Como a energia E do feixe é da ordem de centenas de keV / u.m.a. e as energias potenciais V_l e V_m são da ordem de no máximo dezenas de eV, tem-se que esta probabilidade é essencialmente 1. Dessa forma, mesmo para o caso molecular, a regra de compensação angular de Lindhard permanece válida para fenômenos em que a energia do íon

incidente não sofra grandes alterações e que dependam linearmente de $P(\{\vec{R}_i\})$. Como comentado na referência [49], a regra não é válida, por exemplo, para o alcance de um íon no alvo.

A regra de Lindhard permite o emprego de uma análise mais detalhada dos espectros de perda de energia molecular em função do ângulo de incidência do feixe, como será visto na seção 6.1.

4. Cálculos *ab-initio* e modelos simples para a perda de energia

4.1. Os cálculos *ab-initio*

Os cálculos *ab-initio* para a perda de energia de um projétil contra um átomo alvo já vêm sendo empregados para o caso de íons monoatômicos [53,54,55]. Tais cálculos se dividem em vários grandes grupos, de acordo com as hipóteses envolvidas para suas implementações, entre os quais destacamos a aproximação semiclássica de primeira ordem (SCA) e os cálculos de canais acoplados com orbitais atômicos (AO).

Ambos os métodos são baseados no formalismo de parâmetro de impacto. Este formalismo é válido quando é possível associar ao projétil a noção de trajetória. Esse sempre é o caso para projéteis tão ou mais massivos do que o próton e a velocidades superiores às velocidades térmicas.

Uma breve descrição do procedimento usado para os cálculos *ab-initio* deste trabalho será dada nesta seção. Para um sistema envolvendo um projétil p (que pode ser atômico ou molecular) que se mova em linha reta e um átomo alvo (cujas grandezas terão o subscrito t) com sua respectiva nuvem eletrônica (e), o hamiltoniano do sistema é dado por:

$$H_e = H_{te}(\vec{r}) + V_{pe}(\vec{R}(t) - \vec{r}), \quad (28)$$

onde r é a coordenada da nuvem eletrônica com respeito ao núcleo alvo, R é a coordenada do projétil em relação ao alvo, H_{te} é o hamiltoniano do par núcleo alvo-elétron ($H_{te}(\vec{r}) = T_e(\vec{r}) - V_t(\vec{r})$, onde T_e é o operador de energia cinética do alvo e V_t é o operador energia potencial do par elétron-núcleo alvo) e V_{pe} é o operador energia potencial do par projétil-elétron. É importante salientar que, nessa aproximação, o projétil é considerado um corpo clássico, desprezando-se eventuais estados eletrônicos nele centrados. Além disso, a interação entre o elétron e o núcleo alvo sob recuo também é desprezada (o núcleo é suposto imóvel com relação à posição inicial de sua nuvem eletrônica).

Para os cálculos que se seguem, é feita uma expansão das funções de onda dependentes do tempo $\Phi_e(\vec{r}, t)$ em autoestados do hamiltoniano H_{te} definidos em termos de uma função radial u e de esféricos harmônicos Y_{lm} como sendo $\phi_{n,l,m}(\vec{r}) = Y_{lm}(\theta, \phi)u_{nl}(r)/r$. Assim, vale a seguinte relação:

$$\Phi_e(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) e^{-i\varepsilon_{n,l}t} \phi_{n,l,m}(\vec{r}) + \sum_{l,m} \int_0^\infty d\varepsilon b_{l,m}(\varepsilon, t) e^{-i\varepsilon t} \phi_{n,l,m}(\vec{r}), \quad (29)$$

Maiores detalhes sobre as implementações e as simplificações utilizadas para os estados estão na referência [53].

A inserção da eq. (29) na equação de Schrödinger com o hamiltoniano H_e , e a posterior realização de um produto interno com uma autofunção arbitrária de H_e resulta no conjunto de equações de canais acoplados:

$$i \frac{d}{dt} a_{n,l,m} = \sum_{n',l',m'} a_{n',l',m'}(t) e^{i(\varepsilon_{n,l} - \varepsilon_{n',l'})t} \langle \phi_{n',l',m'} | V_{pe}(\vec{R}(t) - \vec{r}) | \phi_{n,l,m} \rangle \quad (30)$$

com a condição de contorno $a_{n,l,m}(t \rightarrow -\infty) = \delta_{1s0,nlm}$ para H e He. Em particular, a soma sobre n deve ser entendida como uma soma propriamente dita para os estados ligados e como uma integral em energia para os estados de contínuo.

Com a separação dos autoestados de H_{te} em termos da parte radial e da parte angular, pode-se calcular analiticamente os termos dos elementos de matriz de transição do potencial V_{pe} correspondentes à parte angular dos autoestados e calcular numericamente as integrais correspondentes à parte radial da função de onda, através da expansão do potencial em termos de harmônicos esféricos. Detalhes do procedimento para íons monoatômicos são dados em [53] e [54].

Finalmente, após obtidos os elementos de matriz de transição, a equação (30) pode ser integrada de duas formas diferentes para a obtenção dos coeficientes $a_{n,l,m}$. Na primeira forma, em cada equação, somente o elementos de matriz entre o estado fundamental do alvo e o estado (n,l,m) do dado coeficiente são empregados na equação de canais acoplados. Isso desacopla as equações e a integração das mesmas fornece os resultados segundo a aproximação SCA perturbativa. Na segunda forma, todos os termos da soma em cada equação são usados e os resultados são fornecidos segundo os cálculos AO.

Qualquer que seja a forma escolhida, a transferência média de energia por dado parâmetro de impacto b é dada por:

$$Q(b) = \sum_{n,l,m} |a_{n,l,m}(t \rightarrow \infty)|^2 (\varepsilon_{n,l} - \varepsilon_{1s}). \quad (31)$$

Até aqui, a descrição feita não considerou detalhes do potencial do projétil, em especial se o

projétil é monoatômico ou molecular. O programa, tal como descrito em [53] e [54], tratava de íons monoatômicos. O ângulo azimutal φ , uma coordenada do projétil que é conservada ao longo de todo o processo de colisão (supondo que a trajetória retilínea do projétil esteja alinhada com o eixo z), podia ser arbitrado como zero. No caso de um projétil molecular, no entanto, o potencial gerado não tem mais simetria esférica. E, salvo no caso de uma molécula linear alinhada com a direção do movimento, cada componente do projétil tem um ângulo φ distinto. O programa original utilizava tal simetria suprimindo o termo $\exp(im\varphi)$ das funções de onda.

Para a utilização deste programa para uma molécula diatômica, foi necessário fazer uma modificação na rotina que gera os elementos de matriz de transição. A modificação foi feita para este trabalho durante uma missão de estudos de curta duração no Hahn-Meitner Institut (HMI), Berlin, Alemanha, em conjunto com G. Schiwietz. Os elementos de matriz do potencial foram reescritos da seguinte maneira (levando-se em conta que o parâmetro de impacto da molécula foi definido como medido a partir de seu centro):

$$V_{ij}(\vec{R}(t) - \vec{r}) \rightarrow V_{1ij}(\vec{R}_1(t) - \vec{r}) \exp(i\Delta m_{ij}\varphi_1) + V_{2ij}(\vec{R}_2(t) - \vec{r}) \exp(i\Delta m_{ij}\varphi_2). \quad (32)$$

onde $\Delta m_{ij} = m_i - m_j$.

Empregando-se este potencial molecular na aproximação de primeira ordem (SCA), o resultado para os estados finais é totalmente equivalente à soma das amplitudes de probabilidade de transição individuais, levando-se em conta os termos de defasagem que surgem na equação (32).

No que se segue, resultados para a perda de energia em função do parâmetro de impacto de moléculas diatômicas serão apresentados, bem como valores para a perda de energia para dois íons equivalentes (mesmas cargas e parâmetros de impacto) a fim de se enfatizar a contribuição dos termos de interferência. Testes foram realizados para H_2 , He_2 e Li_2 , com separação internuclear de 2 a.u. (cerca de 1.06 Å).

As siglas empregadas aqui serão SCA, para os cálculos perturbativos, AO+, para os cálculos completos de canais acoplados feitos para os projéteis e AO- para os cálculos de canais acoplados feitos para antiprojéteis. Salvo onde indicado em contrário, todos os projéteis neste modelo estão completamente ionizados, isto é, não carregam consigo nenhum elétron. As siglas com a indicação *indep.* correspondem aos cálculos realizados sem os termos de interferência entre os íons do projétil, ou seja, levando-se em conta a ação de dois projéteis independentes. Comparando com os projéteis moleculares, no caso a molécula de H_2 , deve-se ter em mente o fato de a perda de energia no regime perturbativo depender do quadrado da carga que perde energia. A grandes parâmetros de

impacto, vale o modelo de átomo unido e a perda de energia passa a depender de $(Z_1 + Z_2)^2$. Já para parâmetros de impacto muito menores do que as dimensões da molécula, a perda de energia passa a depender de $(Z_1^2 + Z_2^2)$, ou seja, a perda de dois íons descorrelacionados.

Na Figura 12, temos os resultados SCA e AO para os íons moleculares de H_2 e para os dois íons descorrelacionados para duas energias e duas configurações angulares. Analisando-se primeiro somente os íons descorrelacionados (as linhas da Figura 12), notam-se dois comportamentos-chave: primeiro, em qualquer configuração, o efeito de polarização (a diferença entre $AO+$ *indep*, linha tracejada, e $AO-$ *indep*, linha pontilhada, conhecida como efeito Barkas) é muito reduzido para parâmetros de impacto pequenos, especialmente para maiores energias, como esperado, e a transferência de energia de $AO+$ *indep* é superior à transferência de energia de $AO-$ *indep*. Segundo, os resultados SCA *indep* (linha contínua) são, especialmente para pequenos parâmetros de impacto, maiores do que quaisquer resultados AO (média entre $AO+$ e $AO-$). Esses dois comportamentos são decorrentes de termos de altas ordens que compõem aos cálculos AO que, por construção, não estão presentes nos cálculos SCA. Em particular, o efeito Barkas se deve a termos de ordens de potências ímpares do parâmetro de perturbação Z/v , que dependem do sinal da carga.

Agora, as análises para a molécula de H_2 . Em todos os casos, temos, como mostrado na Figura 12, que a transferência de energia do projétil molecular para grandes parâmetros de impacto é duas vezes maior do que a transferência correspondente aos íons descorrelacionados, tanto nos cálculos SCA (quadrados vazados) quanto nos cálculos AO (triângulos cheios: para cima, íons; para baixo, anti-íons). Como comentado para o caso atômico, os cálculos SCA, por não dependerem do sinal da carga do projétil, podem dar uma indicação da polarização que surge nos cálculos de AO. Mesmo havendo polarização, o resultado SCA, especialmente para grandes parâmetros de impacto, deveria se situar na média dos valores de $AO+$ e $AO-$. Não ocorrendo isso, temos a indicação de fenômenos de ordens mais altas.

Nos dois painéis superiores da Figura 12, temos os resultados da transferência de energia para a configuração em que o íon molecular se encontra com o eixo perpendicular à direção do movimento e paralelo ao vetor parâmetro de impacto. Como a separação entre os íons é de duas unidades atômicas e o ponto da molécula escolhido para referência do parâmetro de impacto é o centro geométrico da mesma, temos um máximo pronunciado em torno de $b = 1$ a. u.. Para este valor, um dos dois íons passa por uma colisão frontal com o núcleo, resultando no máximo pronunciado na região em que o parâmetro de impacto se torna igual à metade da separação internuclear.

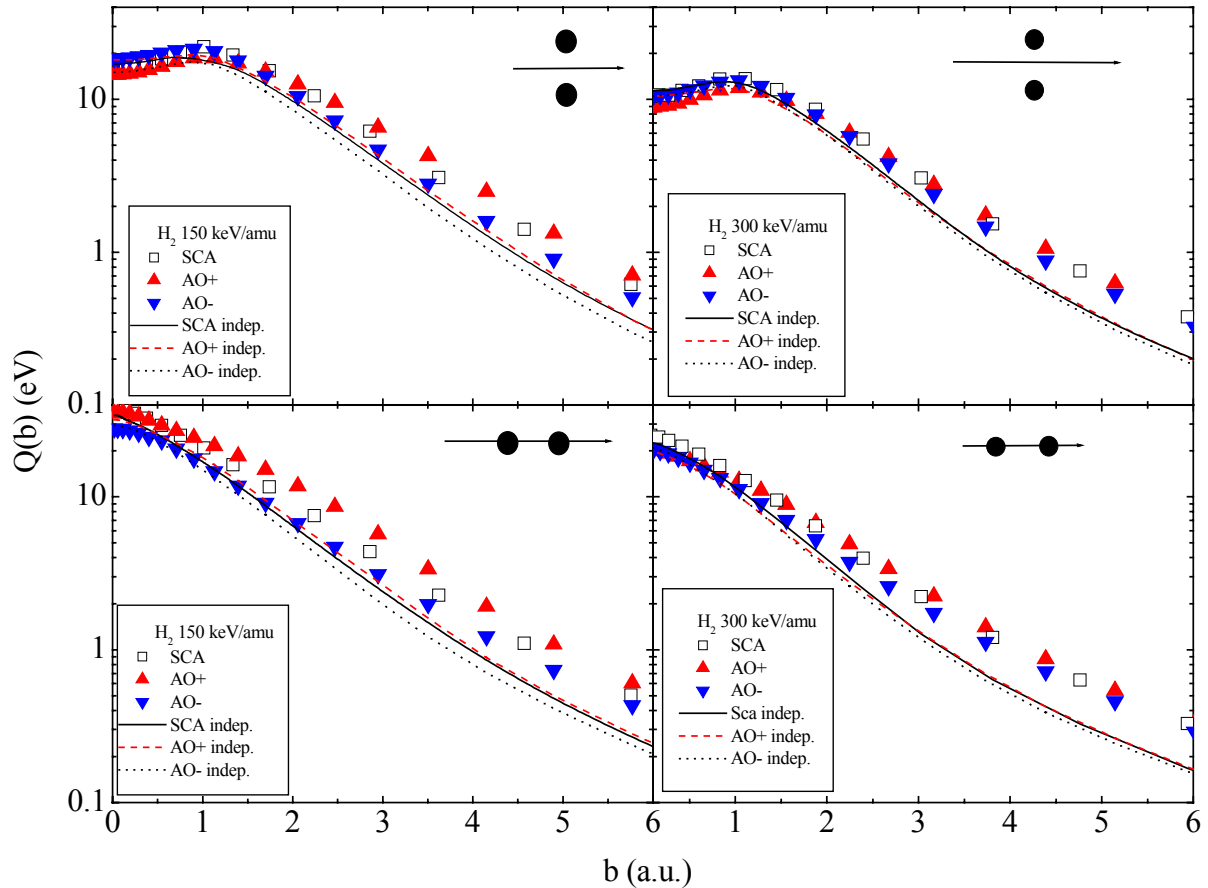


Figura 12: Resultados dos cálculos *ab-initio* para H_2 sob duas orientações (representadas esquematicamente nos próprios gráficos) e sob energias de 150 e 300 keV/amu. Foram usadas duas aproximações: SCA (quadrados vazados) que, por ser perturbativa, não depende do sinal da carga do projétil e AO que, neste caso, dada a dependência do sinal da carga, foi realizada para H_2 (AO+) e para anti- H_2 (AO-).

Efeitos tipo o de polarização (Barkas) e de captura (que não pode ocorrer para íons negativos, por repelirem a nuvem eletrônica do alvo [55]) aparecem juntos nos cálculos de canais acoplados como a diferença entre AO+ e AO-. O efeito de polarização, que, no caso atômico, não se manifesta para parâmetro de impacto zero, é reduzido também para o caso em que os dois componentes da molécula podem ter simultaneamente parâmetros individuais de impacto nulos. Ou seja, é a condição em que o projétil está alinhado à direção do movimento (mostrado nos dois painéis inferiores). Novamente para grandes parâmetros de impacto, notamos que, em geral, AO+ fornece perdas de energia maiores do que AO-. O antiprojétil, negativo, tende a repelir a nuvem eletrônica, interagindo, assim, menos com ela e perdendo menos energia do que seu correspondente

positivo. No entanto, a baixos parâmetros de impacto, começa a competição entre o efeito de polarização e o chamado efeito de antiligação, em que um projétil positivo a baixos parâmetros de impacto tende a, momentaneamente, reforçar a ligação entre o elétron e seu núcleo. Dessa forma, os valores finais da energia do elétron do alvo tendem a ser menores do que seriam se a energia de ligação do elétron não fosse alterada. Por outro lado, um antiprojétil em colisões muito próximas e baixas energias pode, por um instante, enfraquecer drasticamente o potencial de ligação que reúne o elétron e o núcleo alvo. Dessa forma, o valor final da energia do elétron pode ser consideravelmente alto, inclusive a ponto de aumentar a probabilidade de ionização.

Ambos os efeitos, o de polarização e o de antiligação são fortemente dependentes de parâmetro de impacto, carga do projétil, energia do projétil e, no nosso caso, da geometria do projétil (para íons moleculares, a estrutura da molécula passa a ser extremamente importante em uma colisão individual). Há casos, como na parte inferior da Figura 12 (ambos os painéis, esquerdo e direito), em que os íons estão alinhados com o movimento do feixe. Neste caso, a antiligação parece não ter um efeito tão determinante, ao passo que a polarização é reforçada pelo íon que se encontra à frente na molécula. Já para o caso em que a molécula tem o seu eixo ortogonal à direção do movimento, o efeito de polarização parece perder para o efeito de antiligação para pequenos parâmetros de impacto. É uma indicação de um efeito molecular de antiligação causado pela incidência de dois íons em seqüência sobre o alvo: considerando-se a antimolécula, o primeiro íon negativo (o mais próximo do alvo) induz uma redução momentânea da energia de ligação do elétron do alvo e o segundo íon passa a induzir uma transição para níveis finais maiores de energia para o elétron, ou seja, o segundo íon realiza uma transição no elétron do alvo *assistida* pelo primeiro. No caso de projéteis positivos, um raciocínio análogo permite concluir que o segundo íon induz uma transição *dificultada* pelo primeiro. Em suma, íons moleculares diatômicos incidindo sobre um átomo alvo a baixos parâmetros de impacto com seu eixo paralelo à direção do movimento tendem a causar maiores efeitos de polarização, ao passo que os íons incidentes perpendicularmente à direção do movimento tendem a causar maiores efeitos de antiligação.

Finalmente, comparando-se os dois painéis esquerdos com os dois direitos da Figura 12 (especialmente os dois painéis inferiores), observa-se o efeito da energia do íon sobre a transferência de energia. A 300 keV/amu, tanto os efeitos de polarização quanto as diferenças entre as transferências de energia via SCA e via AO sofrem notável redução percentual em comparação aos cálculos feitos a 150 keV/amu, uma vez que, quanto maiores foram as energias, tanto mais o sistema se aproxima das condições para ser descrito via teoria de perturbação de primeira ordem. Assim, o efeito Barkas, que é de segunda ordem, além dos efeitos de ordens superiores, tornam-se

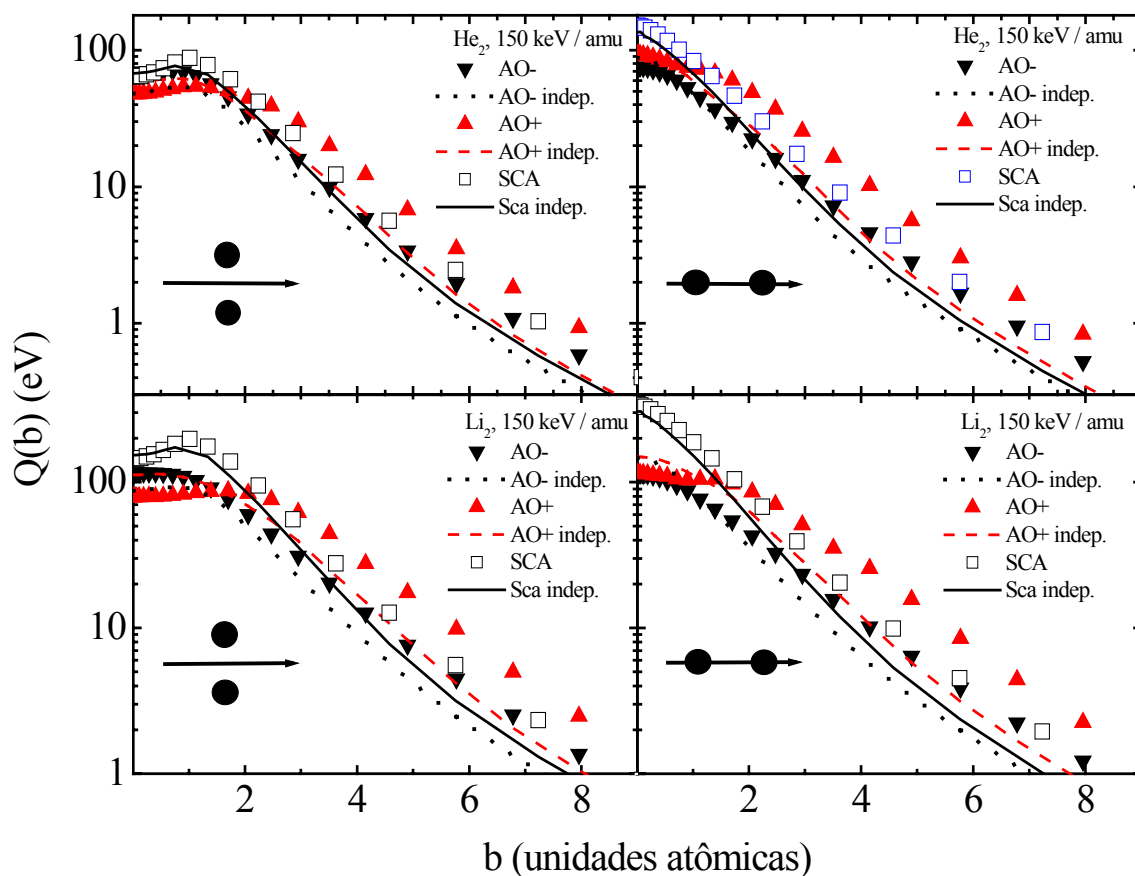


Figura 13: Resultados de AO e SCA para He_2 e Li_2 a 150 keV/amu. Os resultados mostram a importância dos termos de interferência e, como pode ser visto para Li_2 alinhado ao movimento, uma indicação dos efeitos de antiligação nos resultados de AO+.

menos pronunciados do que os efeitos de primeira ordem, que são o cerne dos cálculos SCA.

Os cálculos foram feitos, ainda, para algumas configurações de He_2 e Li_2 como projéteis. Os resultados, mostrados na Figura 13, mostram, especialmente para o Li_2 alinhado à trajetória (painel inferior direito), uma grande redução do efeito de polarização para pequenos parâmetros de impacto, já comentada. Ainda nesse painel, pode-se observar como a curva AO+ molecular (triângulos para cima) altera seu comportamento para parâmetros de impacto inferiores a 1 a.u., porém, isto não é observado para o caso AO+ indep (linha tracejada). É uma assinatura do efeito de antiligação, que é reforçado no caso em que os íons não estão alinhados à trajetória, a tal ponto que um efeito semelhante a um “anti-Barkas” pode ser visto nos painéis esquerdos para as moléculas. Os resultados SCA, finalmente, parecem concordar melhor com a média dos resultados AO+ e AO- para grandes parâmetros de impacto, como esperado, mostrando claramente que os efeitos de

ordens mais altas, à exceção das ordens ímpares, estão confinados a colisões próximas. O efeito

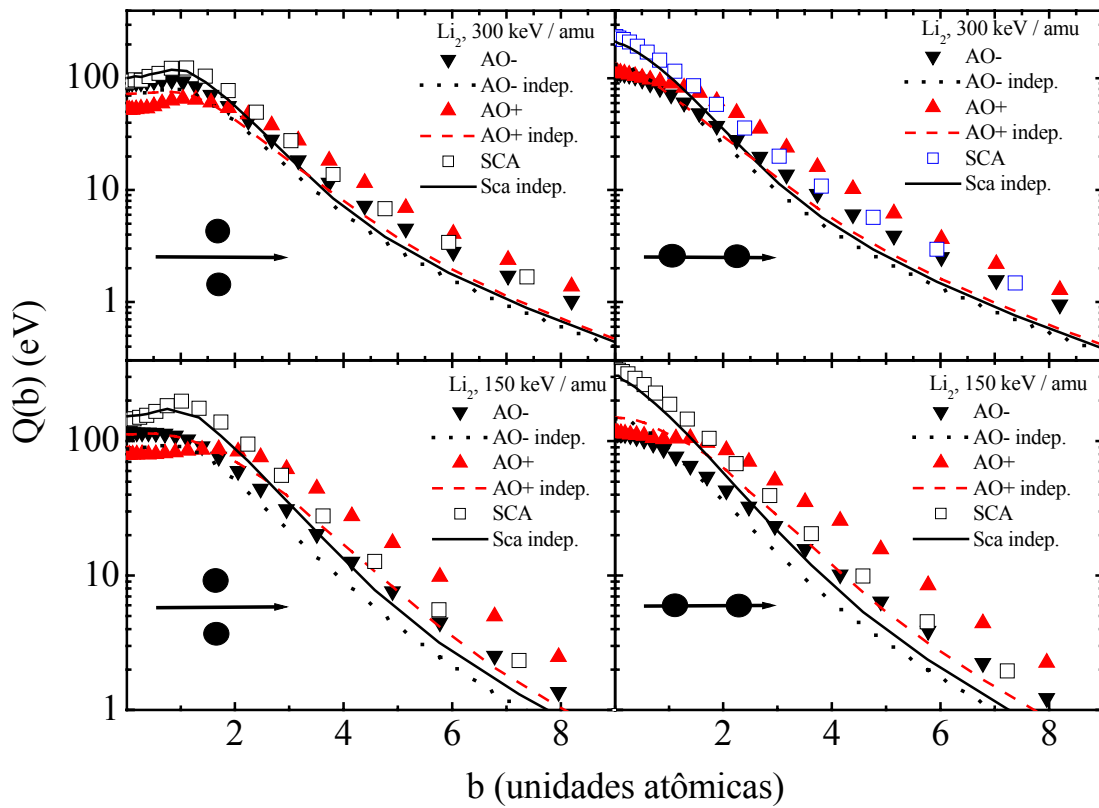


Figura 14: Resultados de SCA e AO para Li_2 em duas energias distintas. Pode-se observar como os efeitos de ordens superiores se reduzem apreciavelmente à medida que a energia do projétil molecular é aumentada.

Barkas ainda se manifesta mesmo a grandes parâmetros de impacto. Neste último caso, o de colisões próximas, a diferença percentual entre SCA e AO é notável, especialmente para Li_2 alinhado (painel inferior direito da Figura 13).

Já para Li e anti-Li a 300 keV na Figura 14, temos a comparação entre este caso e os resultados a 150 keV, já mostrados. Como característica geral, mas melhor visível nos painéis direitos, temos a diminuição dos efeitos de ordens mais altas para maiores energias do projétil. Tanto os efeitos Barkas e antiligação quanto a diferença entre SCA e AO para pequenos parâmetros de impacto se tornam notavelmente reduzidos.

Em resumo, os resultados AO são mais confiáveis, especialmente para pequenos parâmetros de impacto, do que os resultados de SCA. A comparação entre SCA e SCA *indep.*, bem como entre AO e AO *indep.*, enfatiza os efeitos moleculares, ou seja, os efeitos de interferência. Já a

comparação entre AO+, AO- e SCA enfatiza os efeitos moleculares de mais altas ordens, já que os cálculos AO levam em conta transições de ordens mais altas e, sendo um modelo não perturbativo, o resultado é unitário (isto é, a soma dos módulos quadrados dos coeficientes é igual a 1), ao contrário dos cálculos SCA que acabam por superestimar as probabilidades de transição.

4.2. Os modelos MPCA e MUCA

4.2.1. Os modelos PCA e UCA

Os modelos PCA [56,57] e UCA [59] são dois modelos convolutivos para a determinação da transferência de energia entre um íon monoatômico e um átomo alvo. Os dois modelos resultam, essencialmente, em uma expressão da forma:

$$Q(b) = \int d^2 r_{\perp} K(\vec{b} - \vec{r}_{\perp}) \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_{\perp}, z) \quad (33)$$

onde K é a função núcleo do modelo, b é o parâmetro de impacto, r_{\perp} é a distância entre um ponto da eletrosfera do alvo e o projétil na direção perpendicular ao movimento, z é a distância ao longo da direção do movimento e ρ é a densidade eletrônica do alvo. A diferença entre os dois modelos está no núcleo.

O núcleo, em qualquer dos dois modelos, faz uma interpolação suave entre três regimes de interação entre o projétil e o alvo: o regime de colisões distantes (em que o projétil é tratado como uma perturbação elétrica para o alvo, valendo a aproximação de dipolo), o regime de colisões intemediárias (em que o resultado, obtido a partir da denominada *aproximação súbita* corresponde ao resultado clássico) e o regime de colisões próximas (em que a colisão entre o íons e o elétron é tão violenta que o potencial do alvo deixa de desempenhar um papel importante durante o processo).

Os modelos PCA e UCA não contêm o efeito de polarização. O modelo PCA reproduz os resultados de SCA. Já o modelo UCA contém alguns termos de ordens mais altas (como o efeito Bloch ou Z^4). Nesta seção, são mostradas expressões que generalizam os modelos PCA e UCA para íons moleculares, sendo que os resultados de AO utilizados na seção anterior desempenham o papel de *benchmark* para os modelos estendidos.

4.2.2. O modelo MPCA

O modelo MPCA (aproximação perturbativa de convolução para moléculas) é, uma extensão do modelo PCA para o caso de um aglomerado iônico, utilizando o já conhecido método do parâmetro de impacto [31]. Mesmo no caso de transferência clássica molecular de energia, fica claro que, além dos termos associados a cada íon do aglomerado, temos termos de produtos cruzados sendo somados. A estes termos cruzados, chamamos de *termos de interferência*.

Nos cálculos que se seguem, será usado o sistema atômico de unidades ($\hbar = m_e = q_e = 1$). Temos, na Figura 15, a configuração do nosso sistema para o exemplo de uma molécula diatômica.

Seja \vec{r} a distância entre o núcleo do alvo e um ponto da sua nuvem eletrônica e $\vec{R}_i = \vec{v}t + \vec{b}_i$ a distância entre o núcleo do alvo e o i -ésimo íon do aglomerado de velocidade v . O potencial sobre a nuvem eletrônica induzido pelo aglomerado passa a ser $V = \sum_i V_{ion}(|\vec{r} - \vec{R}_i|)$. Considerando-se uma base de estados β , podemos relembrar a equação (31), para a perda de energia:

$$Q(b) = \sum_{\beta} |a_{\beta}|^2 (\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0) \quad (34)$$

onde b é o parâmetro de impacto associado ao centro do aglomerado, ε_0 é a energia do estado inicial do alvo e ε_{β} é a energia do β -ésimo estado do alvo. No apêndice C, mostra-se a equivalência entre a equação (34), que, rigorosamente, descreve a energia *ganha pelo alvo*, com uma conhecida expressão da energia *perdida pelo projétil*.

O problema agora posto consiste na obtenção das amplitudes de probabilidade a_{β} . Tais amplitudes podem ser calculadas via teoria de perturbação de primeira ordem para velocidades suficientemente altas do aglomerado. Assim, para um aglomerado de N íons, temos a seguinte expressão para as amplitudes de probabilidade:

$$a_{\beta} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp[i(\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0)t] \langle \beta | \sum_{i=1}^N V_i(\vec{r} - \vec{R}_i) | 0 \rangle \quad (35)$$

notando, novamente, pela aparente ausência da constante de Planck, o uso do sistema atômico de unidades. Para simplificar a notação, usaremos a definição $\omega_{\beta 0} = \varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0$. Um cálculo aproximado

desta integral pode ser feito se levarmos em conta diferentes aproximações, cada uma delas válida para determinados intervalos de parâmetro de impacto.

Os cálculos necessários estão detalhados no apêndice A. Estão feitos os cálculos para grandes parâmetros de impacto usando-se o modelo de dipolo para três potenciais iônicos: o potencial de Coulomb, que descreve o campo de um projétil que não transporta elétrons; o potencial de Bohr, que descreve o campo para íons através de um gás homogêneo de elétrons e o potencial “single-zeta”, que descreve o campo produzido por um íon blindado por um ou dois elétrons a ele ligados. Os potenciais de Bohr e “single-zeta” estão calculados explicitamente. É fácil mostrar que,

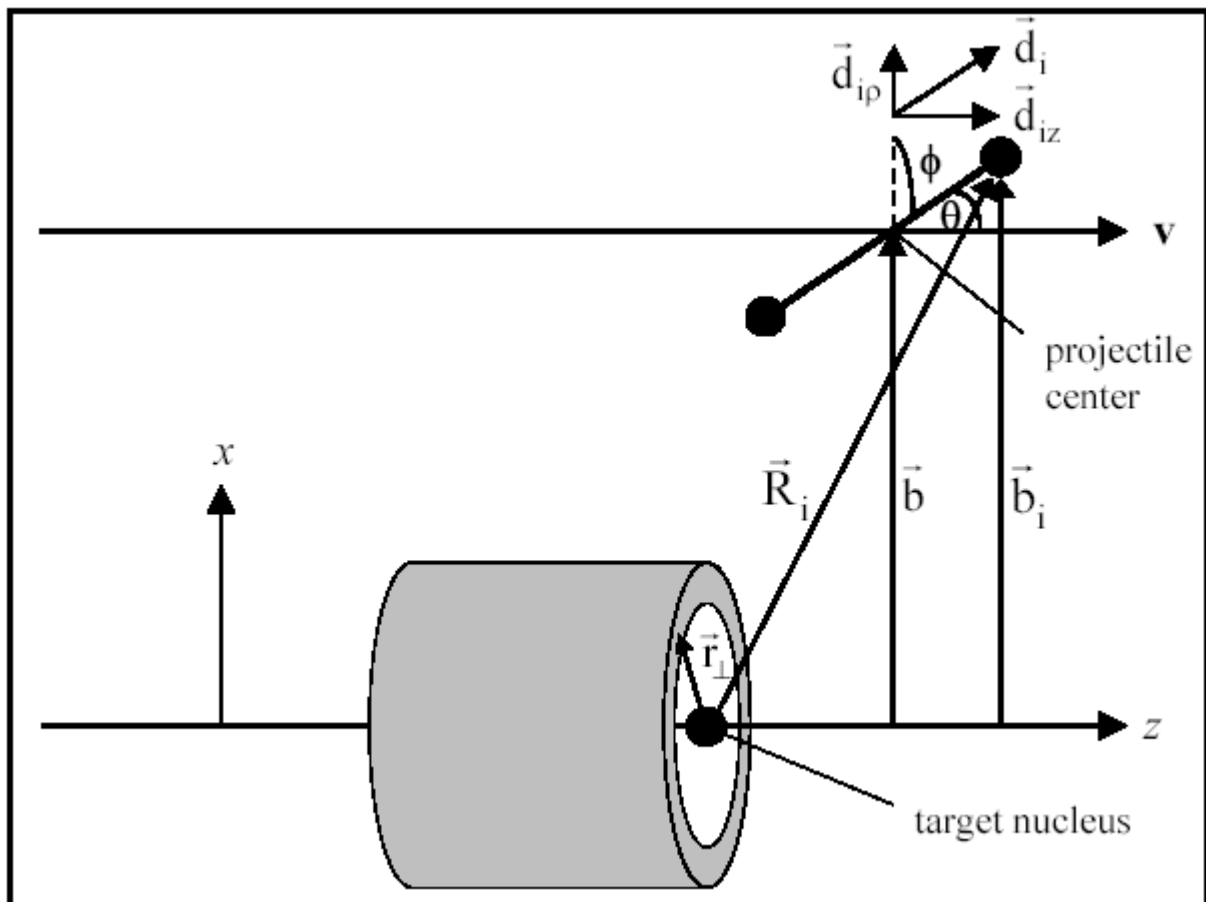


Figura 15: Representação da geometria da colisão. Mostra-se o núcleo alvo, o projétil (no exemplo, um íon molecular diatômico) e as grandezas relevantes ao modelo. O cilindro corresponde à densidade eletrônica integrada ao longo da direção de movimento do projétil.

removendo-se a blindagem de qualquer um dos dois potenciais, obtém-se o resultado para o potencial de Coulomb.

Depois, os cálculos estão feitos para pequenos parâmetros de impacto, em que o potencial do núcleo alvo é desprezado (exceto na criação do estado eletrônico inicial do alvo) e os estados finais do elétron do alvo são substituídos por ondas planas. Neste caso, nenhuma blindagem é empregada,

visto que, para pequenos parâmetros de impacto, a presença de elétrons do projétil pode ser desprezada.

4.2.2.1. Resultados do modelo MPCA

Após os cálculos detalhados no apêndice A, obtém-se a seguinte expressão para o modelo MPCA:

$$Q_{MPCA}(\vec{b}) = \int d^2 r_{\perp} K_{MPCA}(\vec{r}_{\perp} - \vec{b}) \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_{\perp}, z), \quad (36)$$

Ou seja, uma convolução entre uma função núcleo K_{MPCA} e a densidade eletrônica do alvo integrada ao longo da direção do movimento. O núcleo é dado por:

$$K_{MPCA}(\vec{b}) = \frac{2}{v^2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) h(2v\vec{b}_i) + \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\ \left. \left(\frac{2\vec{b}_j \cdot \vec{b}_m}{(b_j b_m)^2} h_{\text{int}}(2v\vec{b}_i, 2v\vec{b}_j) g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{\sqrt{b_i^2 + b_{\text{min}}^2} \sqrt{b_j^2 + b_{\text{min}}^2}} \right) \right] \quad (37)$$

onde $f_{\beta} = 2|\langle \beta | z | 0 \rangle|^2 (\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0)$ são as forças de oscilador e os parâmetros b_{min}^i , assim como as funções g_{\perp} , g_{\parallel} , h e h_{int} , são definidas no apêndice A os resultados foram publicados em [58].

Uma comparação com o modelo PCA mostra que, como esperado, além de termos associados à perda de energia de cada íon do aglomerado, temos termos associados à interferência entre os íons do projétil. Levando-se em conta a integral na eq. (35), que contém uma integral que envolve o tempo, temos que a separação entre os íons do aglomerado ao longo da direção do movimento causa uma diferença de fase entre as amplitudes de probabilidade associadas a cada íon. Assim, as amplitudes de probabilidade totais contém termos em cosseno (como vistos na eq. (37)) semelhantes aos termos esperados em fenômenos de interferência de Michelson para as ondas de luz.

Para fins de teste, o modelo MPCA foi comparado com os resultados obtidos a partir da aproximação semiclássica (SCA), criada inicialmente para o caso de íons monoatômicos [53,54,55] e modificada para o caso molecular. O método SCA permite calcular a perda de energia em função

do parâmetro de impacto usando, no nosso caso, cerca de 3500 estados do alvo. O maior número de estados aumenta a precisão dos resultados por somar mais ondas parciais, às custas do tempo exigido pelo programa para fornecer os resultados e dos requerimentos de memória do computador.

Na Figura 16, podem-se ver os resultados do modelo MPCA em comparação com os cálculos SCA, para duas orientações de uma molécula diatômica de hidrogênio. Acima, temos os íons sem blindagem. Pode-se ver, para eles, o efeito de interferência entre os dois íons pela comparação com os resultados SCA feitos para dois prótons descorrelacionados com os mesmos parâmetros de impacto. Para pequenos parâmetros de impacto, a perda de energia é proporcional a $Z_1^2 + Z_2^2$ (2, neste caso), ou seja, à soma dos quadrados das cargas dos íons. Cada íon passa a operar sobre o alvo como se fosse descorrelacionado do outro. Para grandes parâmetros de impacto, a perda de energia passa a ser proporcional a $(Z_1 + Z_2)^2$ (4, neste caso), ou seja, os dois íons passam a agir como se fossem um átomo unido. Por isso a diferença entre os resultados MPCA e o resultado para íons independentes oscila entre 10% (para pequenos parâmetros de impacto) e 50% (para grandes parâmetros) neste caso.

Ainda na Figura 16, temos o caso em que existe blindagem “single-zeta” com comprimento de blindagem da ordem de 0.5 unidades atômicas para um dos íons. Como a distância entre os íons é da ordem de quatro comprimentos de blindagem e o decaimento do potencial é exponencial, temos que a interferência entre os íons praticamente desaparece, como mostrado na mesma figura.

Em resumo, a equação (36) fornece a perda de energia por parâmetro de impacto para moléculas de um modo muito mais rápido do que seria obtido por meio de cálculos SCA e ainda mantém uma concordância muito boa com os resultados SCA. Isso permite o uso dessa equação em simulações que requeiram o cálculo dessa importante grandeza.

4.2.3. O modelo MUCA

O modelo de aproximação de convolução unitária molecular (MUCA) é um modelo criado neste trabalho que, à semelhança do modelo MPCA, permite a obtenção do valor da energia transferida pelo projétil molecular para o átomo alvo como função do parâmetro de impacto da colisão. É uma extensão do modelo UCA [59], já estabelecido para íons monoatômicos. Diferentemente do MPCA, no entanto, o modelo MUCA procura levar em conta alguns efeitos quânticos de ordens mais altas, ao passo que o MPCA é derivado da teoria de perturbação de primeira ordem.

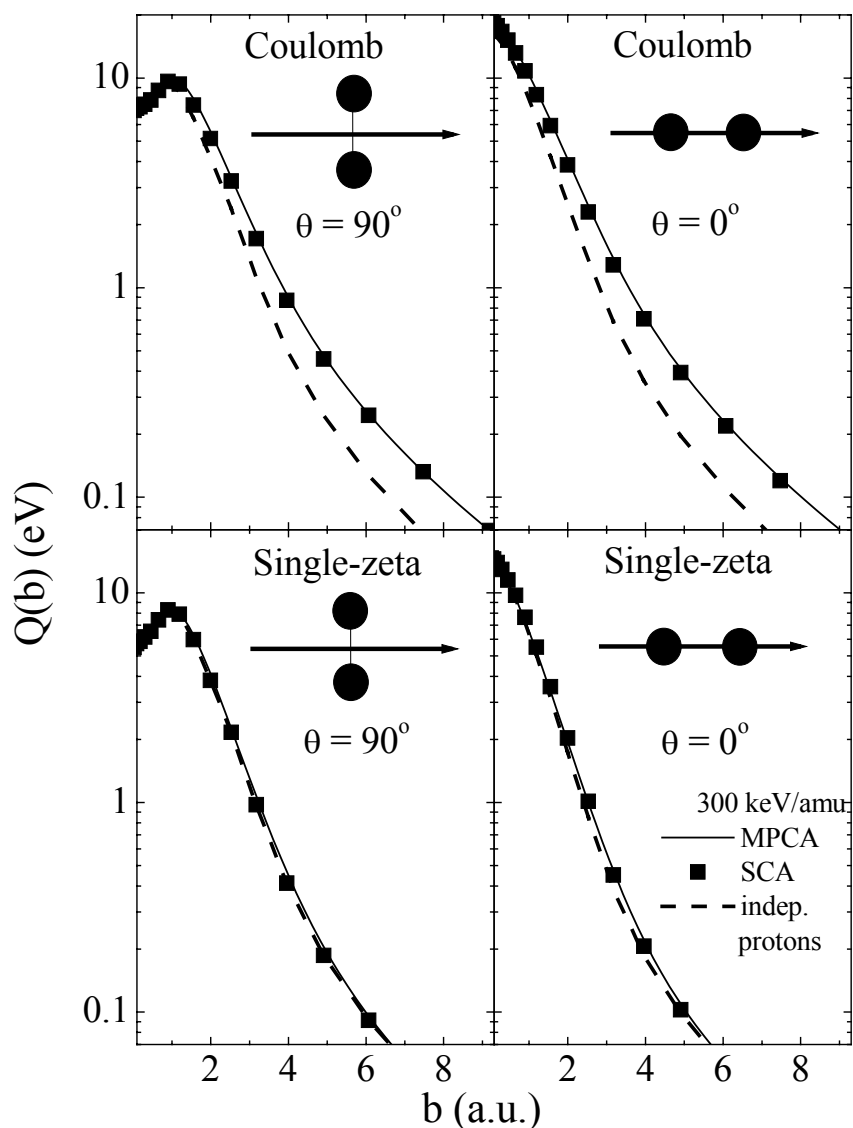


Figura 16: Resultados do modelo MPCA para uma molécula de H_2 totalmente ionizadas (acima) e blindadas (abaixo) sob duas orientações distintas, à energia de 300 keV/amu. No caso dos íons sem blindagem, pode-se ver o efeito de interferência entre os íons. No caso dos íons blindados, a interferência é praticamente anulada.

Para a descrição do modelo MUCA, convém citar brevemente os passos para a obtenção do modelo UCA a partir do modelo PCA, feito para projéteis monoatômicos. No modelo UCA, usou-se uma comparação entre as expressões de perda de energia de Bethe, que é obtida a partir de uma teoria de perturbação de primeira ordem, ou seja, é quadrática com a carga do projétil e a de Bohr, que é obtida através do uso de mecânica clássica. A expressão de perda de energia de Bethe tem boa concordância com os dados experimentais nos casos em que o espalhamento pode ser descrito

por um regime quântico perturbativo; mostra-se que isso ocorre para $Z_i/v \ll 1$ [60]. No extremo oposto, temos que a expressão de Bohr descreve bem o espalhamento de íons no regime clássico. Como descrito através de uma dedução alternativa na ref. [60] (empregando, no entanto, uma notação diferente da utilizada neste trabalho), uma expressão para a perda de energia que interpole os dois regimes é dada através da correção de Bloch para a perda de energia.

Como descrito em [59], a expressão da transferência de energia por parâmetro de impacto do modelo PCA é aperfeiçoada, originando o modelo UCA, levando-se em conta um escalonamento da função de perda de energia por parâmetro de impacto para colisões próximas. O fator de escala é dado, segundo Bloch, por:

$$\eta_i = \exp\left(\frac{Z_i^2}{v^2} \sum_{l=1}^{\infty} \frac{1}{l(l^2 + Z_i^2/v^2)}\right). \quad (38)$$

O valor de η_i como função do respectivo parâmetro de perturbação é mostrado na Figura 17. Nota-se que, em um regime altamente perturbativo (isto é, baixos números atômicos e altas velocidades para o projétil), temos η_i tendendo a 1. Já no extremo oposto, o de altas perturbações, η_i , como pode ser visto no gráfico, tem crescimento linear da ordem de $\eta_i \sim 1.781 Z_i/v$, que é o valor necessário para passar do modelo de perda de energia de Bethe ao de Bohr. Dessa forma, os dois extremos (que correspondem aos dois regimes, o clássico e o quântico perturbativo) estão bem caracterizados e ainda são adequadamente interpolados. Os dois valores extremos de η_i correspondem aos dois parâmetros de corte dos cálculos de energia transferida por parâmetro de impacto de Bethe e de Bohr. O corte de Bohr vale Z/v^2 , ao passo que o corte de Bethe vale $1/v$.

Desse modo, mostrava-se que o núcleo da expressão UCA para a perda de energia para pequenos parâmetros de impacto, ao ser integrada para a obtenção da expressão da seção de choque de freamento, resulta na expressão de Bloch para a perda de energia, em vez da expressão de Bethe como descrita na ref. [56]. O escalonamento, a partir do modelo PCA, aparece se, na equação (35), o tempo que aparece no argumento da exponencial for substituído por $\eta_i t$. O parâmetro η_i , como visto, cresce sem limites à medida que o regime de espalhamento se torna menos perturbativo e tende a 1 para o regime puramente perturbativo.

Assim, resta somente, no limite em que η_i tende a infinito, a expressão de transferência de energia obtida através da chamada aproximação súbita (*sudden approximation*), que origina uma expressão idêntica à da transferência clássica de energia por parâmetro de impacto.

Com isso em mente, e considerando-se a inexistência até o presente de uma expressão

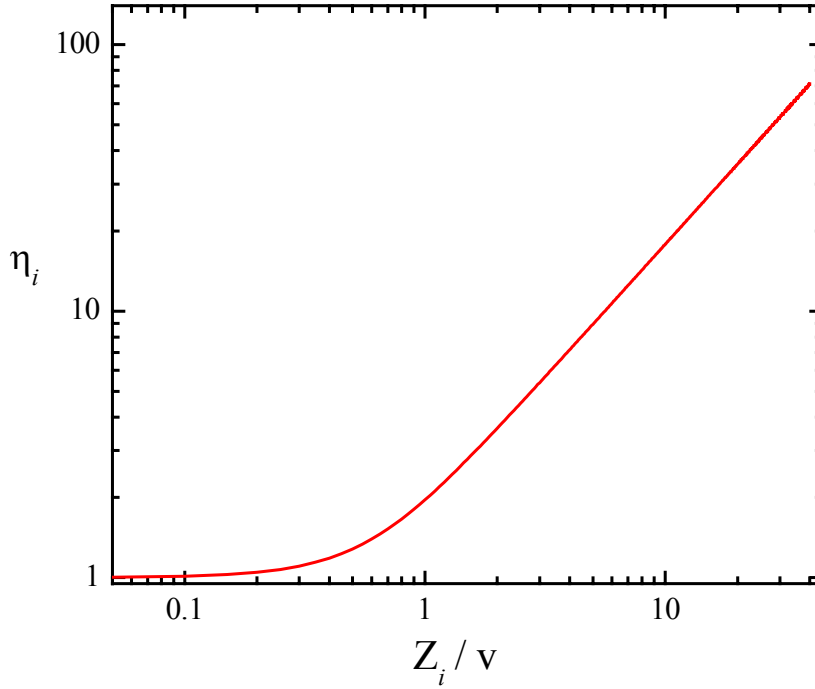


Figura 17: Parâmetro de correção de Bloch η como função da perturbação Z_i/v sobre o sistema. Em um regime altamente perturbativo, η_i tende a 1, resgatando, assim, o resultado perturbativo de Bethe para a perda de energia. Para grandes valores de perturbação, temos o regime clássico.

equivalente à de Bloch para projéteis moleculares (apesar da existência de uma expressão semelhante à de Bethe, obtida por meio do formalismo dielétrico [10]), o *ansatz* empregado para o aperfeiçoamento do modelo MPCA foi o uso do escalonamento do tempo para cada projétil ($\eta_i t$ em cada termo do potencial). Surgem escalonamentos nos argumentos das funções de Bessel e no termo em cosseno. Com isso, obtém-se a seguinte expressão para o núcleo da convolução:

$$K_{MPCA}(\vec{b}) = \frac{2}{v^2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) h \left(\frac{2v b_i}{\eta_i} \right) + \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos \left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v} \right) \times \right. \\ \left. \left(\frac{2\vec{b}_j \cdot \vec{b}_m}{(b_j b_m)^2} h_{\text{int}} \left(\frac{2v \vec{b}_i}{\eta_i}, \frac{2v \vec{b}_j}{\eta_j} \right) g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{\sqrt{b_i^2 + b_{\text{min}}^2} \sqrt{b_j^2 + b_{\text{min}}^2}} \right) \right] \quad (39)$$

onde:

$$h_{\text{int}}(x_j, x_m) = \frac{x_j x_m}{2} \int_0^1 dq q^2 \cos \left[2v q^2 \left(\frac{d_{jz}}{\eta_j} - \frac{d_{mz}}{\eta_m} \right) \right] \sqrt{1-q^2} \left[K_1(q^2 x_m) J_1(q x_j \sqrt{1-q^2}) + K_1(q^2 x_j) J_1(q x_m \sqrt{1-q^2}) \right] \quad (40)$$

Se $\eta_i = 1$, temos novamente o modelo MPCA.

4.2.3.1. Resultados do modelo MUCA

Como visto nos resultados no modelo MPCA, os termos de interferência praticamente não exercem nenhuma influência sobre a energia transferida se um dos núcleos estiver blindado. Neste caso, os resultados e as análises serão feitos somente para o caso de projéteis induzindo sobre o alvo potenciais de Coulomb, do contrário, não há efeitos moleculares apreciáveis para serem analisados.

Na Figura 18, temos os resultados do modelo MUCA (linhas contínuas) para uma molécula diatômica de H_2 com ângulos $\theta = 90^\circ$ e $\phi = 0^\circ$ e energia de 300 keV/amu incidindo em um átomo de H, juntamente com os resultados AO+ (triângulos para cima), AO- (triângulos para baixo) e a média entre AO+ *indep.* e AO- *indep.* (quadrados vazados), utilizados, como comentado no início da seção, como *benchmark*. A concordância entre o modelo MUCA e os resultados de cálculos de canais acoplados (AO) envolvendo 800 estados finais é bastante adequada (dentro de 5% em relação à média entre os cálculos AO) para colisões próximas e virtualmente exata para grandes parâmetros de impacto. Ainda na figura, temos os resultados dos cálculos de canais acoplados realizados sob as mesmas condições, mas para íons independentes entre si. Neste caso, fez-se a média entre AO+ e AO-, a fim de se simplificar a comparação, visto que os efeitos de ordens de perturbação de potências ímpares não são computados no modelo MUCA. Com isso, notam-se claramente os efeitos de interferência (superiores a 50%) para grandes parâmetros de impacto, de forma semelhante à vista para o modelo MPCA.

Na Figura 19, temos outro resultado, mas agora para a molécula alinhada com a direção do movimento. Além dos efeitos de interferência, nota-se uma discrepância bem mais acentuada entre MUCA, AO+ e AO- para colisões próximas. Vários são os fatores, entre eles o fato de os dois íons atingirem o alvo ao mesmo tempo com parâmetros de impacto individuais muito pequenos, resultando assim na intensificação dos efeitos moleculares de ordens mais altas; o fato de o elétron do alvo não estar em repouso (um problema que atinge também o modelo MPCA e que será estudado a seguir); o efeito de captura de elétrons pelo projétil molecular, e o fato de o segundo

projétil alcançar um alvo em um estado já perturbado pelo primeiro. Esses últimos dois efeitos não são levados em conta no modelo MUCA, que consiste simplesmente em um reescalonamento do modelo MPCA, perturbativo.

Os problemas vistos aqui, como esperado, intensificam-se ainda mais para a molécula a 150 keV/amu, como será visto mais adiante. Neste caso, os efeitos não lineares se tornam ainda mais

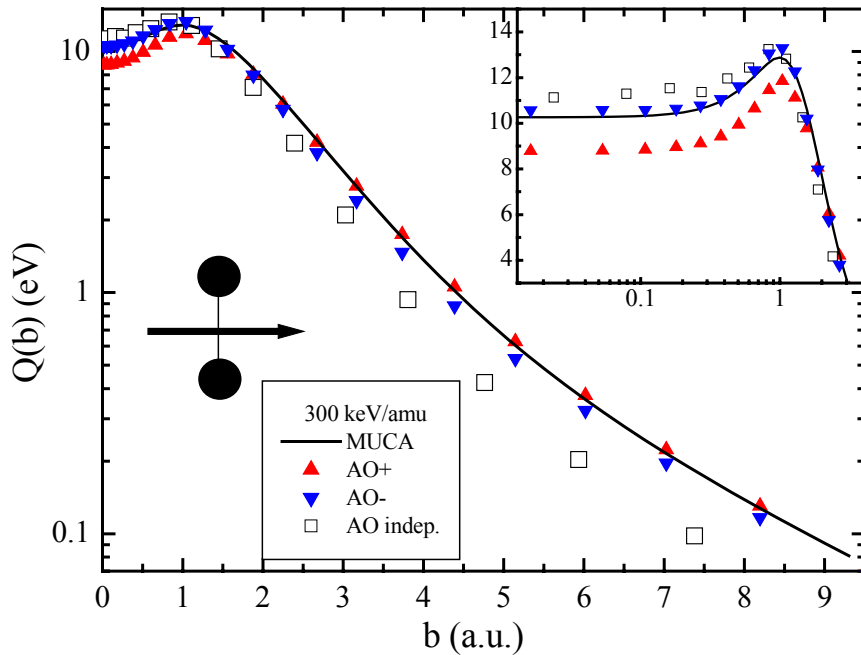


Figura 18: Energia transferida por uma molécula de H_2 a 300 keV/amu em função do parâmetro de impacto segundo o modelo MUCA. A molécula está orientada a $\theta = 90$ graus e a $\phi = 0$ graus. No detalhe, tem-se uma ampliação da região de colisões próximas. Nota-se a concordância entre MUCA e AO, especialmente AO realizado para anti- H_2 (AO-) para pequenos parâmetros de impacto e com AO+ para grandes parâmetros de impacto, e como os efeitos de interferência são importantes para grandes parâmetros de impacto com relação a AO para íons descorrelacionados. No detalhe: os mesmos resultados, mas ressaltando-se os efeitos que surgem para pequenos parâmetros de impacto.

visíveis, e a probabilidade de captura de elétrons pelo projétil se torna ainda maior. Em todo caso, a esta energia, os modelos deduzidos neste trabalho começam a perder validade. A descrição deste caso será feita na próxima seção, em que será empregado um método de correção que leve em conta no modelo a velocidade não nula dos elétrons do alvo.

4.2.4. As correções de camada / distribuição de velocidades eletrônicas

Para aprimorarmos os modelos MPCA e MUCA, faz-se necessário levar em conta o fato físico de que a nuvem eletrônica do alvo foi considerada congelada nos cálculos mas que, na verdade, o valor esperado para a velocidade do elétron é da ordem da velocidade de um projétil de poucas centenas de keV/amu. Com isso, baseando-se em um trabalho de P. Sigmund [61] sobre a correção das expressões de perda de energia eletrônica para elétrons em movimento, e baseando-se em um modo alternativo de se levar em conta a distribuição de velocidades eletrônicas como no procedimento baseado na seção de choque de transporte descrito por N.R. Arista [62,63,64], implementaram-se as correções de distribuição de velocidades (*shell corrections*, segundo a

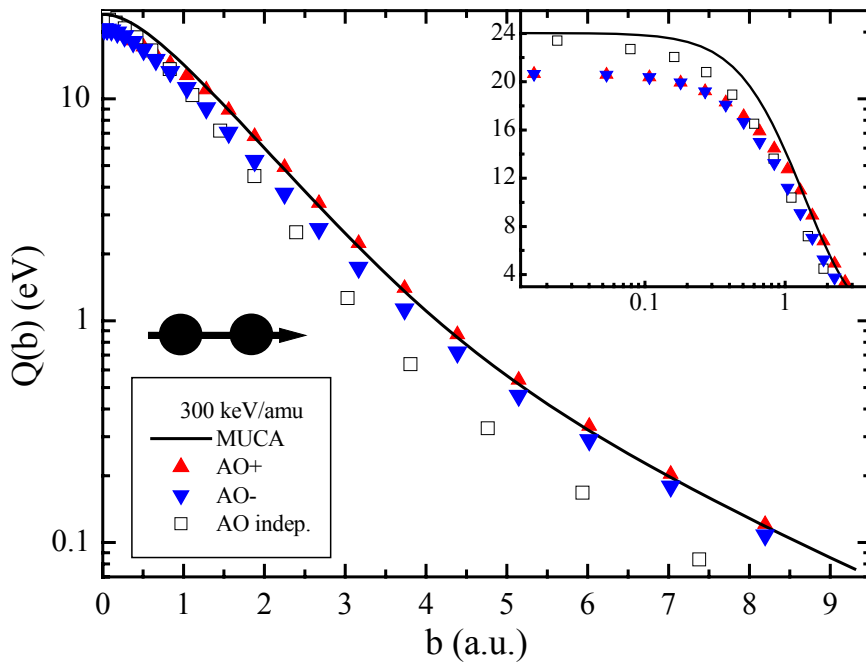


Figura 19: Resultados análogos aos da Figura 18. A molécula está orientada a $\theta = 0$ graus e a $\phi = 0$ graus. No detalhe, tem-se uma ampliação da região de colisões próximas. A concordância entre MUCA, AO+ e AO- para colisões próximas não é tão precisa quanto a vista na figura anterior. A diferença (perto de 20%) é atribuída a efeitos não lineares decorrentes do fato de os dois íons da molécula participarem de colisões próximas ao mesmo tempo.

terminologia de Sigmund) que levam em conta a velocidade dos elétrons em cada orbital do átomo alvo.

Os dois formalismos de correção pela distribuição de velocidades são totalmente equivalentes

se a distribuição de velocidades dos elétrons utilizada por Sigmund, obtida a partir da densidade eletrônica das camadas do alvo, for substituída pela distribuição de velocidade dos elétrons dentro da esfera de Fermi.

Para isso, consideremos os termos dos modelos MPCA e MUCA correspondentes às colisões próximas. Seja, ainda, v_2 a velocidade do elétron no referencial do laboratório. Para a massa do alvo (no caso o elétron) muito menor do que a do projétil, temos a seguinte expressão para a perda de energia, dada por Sigmund:

$$S(v) = \int d^3 v_2 \frac{\vec{v} \cdot \vec{v}_r}{v v_r} S(v_r) \quad (41)$$

e, para o núcleo MPCA/MUCA, a mesma idéia foi empregada em todos os termos, exceto os termos de colisões distantes, formando a seguinte expressão:

$$\begin{aligned} K_{MPCA}(\vec{b}) = & 2 \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) \int \frac{d^3 v_2}{v_r^2} \frac{\vec{v} \cdot \vec{v}_r}{v v_r} f(v_2) h\left(\frac{2 v_r b_i}{\eta_i}\right) + \right. \\ & \left. \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\ & \left. \left(\frac{2 \vec{b}_j \cdot \vec{b}_m}{(b_j b_m)^2} g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) \int \frac{d^3 v_2}{v_r^2} \frac{\vec{v} \cdot \vec{v}_r}{v v_r} f(v_2) h_{\text{int}}\left(\frac{2 v_r \vec{b}_i}{\eta_i}, \frac{2 v_r \vec{b}_j}{\eta_j}\right) + \right. \right. \\ & \left. \left. \frac{2 g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{\sqrt{b_i^2 + b_{\text{min}}^2} \sqrt{b_j^2 + b_{\text{min}}^2}} \int \frac{d^3 v_2}{v_r^2} \frac{\vec{v} \cdot \vec{v}_r}{v v_r} f(v_2) \right) \right] \end{aligned} \quad (42)$$

Onde $f(v_2)$ é a função de distribuição de velocidades eletrônicas das camadas eletrônicas, obtida via transformação de Fourier da função de onda associada às camadas eletrônicas e $\vec{v}_r = \vec{v} - \vec{v}_2$. No caso particular do átomo de H como alvo, com estado inicial 1s, esta função pode ser obtida analiticamente. Deve ser mencionado que as correções de camada não se aplicam bem para muito baixos parâmetros de impacto, visto que são correções baseadas em velocidade (ou, em outros termos, em momentum) implementadas em uma expressão que, por envolver parâmetros de impacto, está escrita no espaço de coordenadas.

Na Figura 20, pode-se notar o efeito das correções de camada. O sistema em questão é um projétil de H_2 a 300 keV/amu incidindo sobre H do mesmo modo que na Figura 19. Mostra-se que o efeito geral das correções de camada consiste em uma redução da energia transferida. No caso do modelo perturbativo (MPCA) as correções de camada melhoraram a concordância para parâmetros de impacto intermediários. No entanto, as correções de camada, nessa configuração particular para a molécula, não foram suficientes para uma boa concordância. Possíveis efeitos são o uso de

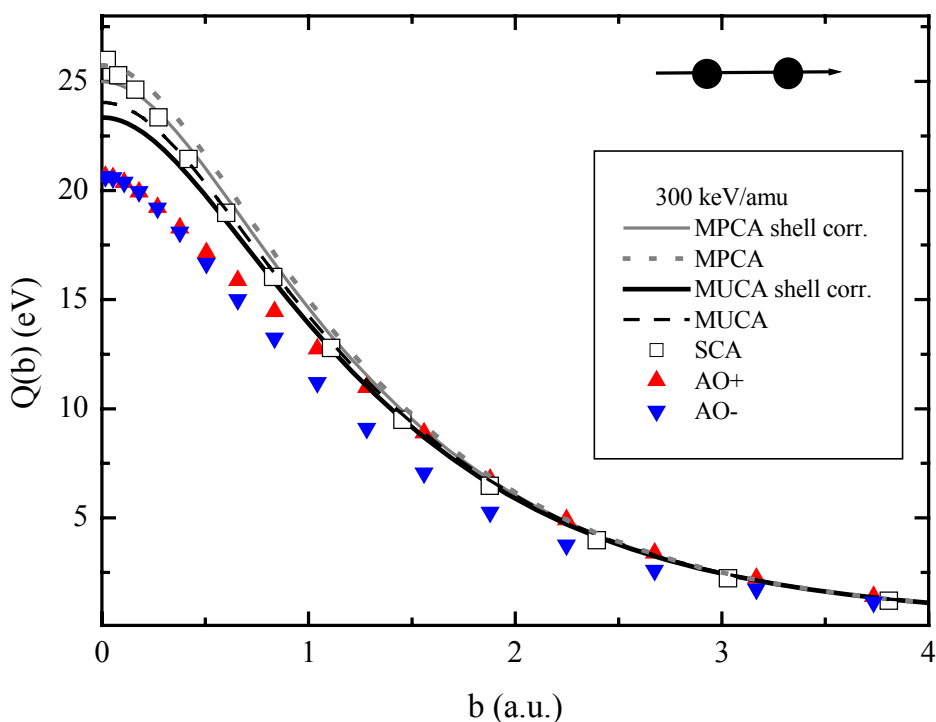


Figura 20: Efeitos da correção de camada sobre a energia transferida calculada segundo os modelos MPCA e MUCA. Embora a concordância dos valores para parâmetros de impacto intermediários tenha melhorado para MPCA, as correções de camada não melhoraram substancialmente a concordância para o modelo unitário (MUCA).

relativamente poucos estados para os cálculos de canais acoplados (cerca de 800) para esta faixa de energia e a presença de efeitos não lineares mais intensos que não são cobertos pelo escalonamento do modelo perturbativo original. Um dos possíveis efeitos não cobertos pelos modelos MPCA/MUCA pode ser entendido em termos clássicos. Nas configurações em que as moléculas se movem orientadas paralelamente à direção do movimento, e em baixos parâmetros de impacto, o elétron pode, no caso de um projétil positivo, descrever uma órbita aberta em torno do primeiro íon

do par e ser lançado à frente com uma velocidade próxima ao dobro da velocidade da molécula. Se o projétil é negativo, o elétron pode, em uma colisão quase frontal, simplesmente ser repelido à frente. Este é o efeito *slingshot* (estilingue). Nos dois casos, praticamente não há interação entre o elétron e o segundo íon, causando uma diminuição da energia transferida, revelada nos cálculos de canais acoplados e mostrada na Figura 20 para pequenos parâmetros de impacto.

A equação (42) corresponde à forma final do núcleo de convolução, incluindo efeitos não lineares e de ordens pares mais altas e incluindo os efeitos das correções de camadas. No que se segue, os resultados mostrados terão com especial ênfase a região de colisões próximas, visto que, para grandes parâmetros de impacto, todos os modelos concordam muito bem entre si.

Outro fato importante é levar em conta que, nos cálculos de primeira ordem, somente interações de pares de íons são levadas em conta nos somatórios de interferência, ao passo que, em um cálculo rigoroso de canais acoplados, os termos de interferência incluem todas as possíveis combinações entre os componentes do projétil molecular em todas as ordens.

Os resultados mostrarão a importância das correções de camadas e do uso ou não do escalonamento que inclui efeitos de ordens mais altas. Em cada figura, uma ilustração da configuração do íon molecular com relação à direção do movimento é mostrada.

Na Figura 21 podemos ver um resultado obtido em condições semelhantes às que resultaram na Figura 20, mas para outra orientação molecular (a mesma utilizada na Figura 18). Nota-se uma concordância melhor com a média entre AO+ e AO-. Apenas um dos íons realiza uma colisão frontal. Desse modo, muitos efeitos não lineares que surgem em colisões próximas são atenuados, exceto o efeito de antiligação.

Os testes foram conduzidos também para uma molécula de H₂ a 150 keV/amu. Os resultados são mostrados na Figura 22 para a molécula alinhada à direção do movimento. Nesta geometria, nota-se o sucesso do uso das correções de camada para a concordância entre MUCA e AO (após a média entre AO+ e AO-) e entre MPCA e SCA. O efeito *slingshot* que foi visto na Figura 20 é atenuado devido à menor velocidade do projétil, tornando-se menos importante.

Na Figura 23, notamos como as correções de camada não conseguem reproduzir os resultados do caso unitário (AO). O modelo MUCA está claramente afastado da média entre AO+ e AO-. Uma causa possível é a não simetria do efeito de antiligação; o antiprojétil pode causar muito mais perturbações nos níveis de energia do alvo do que o projétil, assim, enquanto o antiprojétil causa um grande aumento da energia transferida pelo efeito de antiligação, o projétil causa somente uma pequena redução na transferência de energia. Por isso, o modelo MUCA se encontra praticamente concordando com AO+ para pequenos parâmetros de impacto em vez de concordar

com a média entre AO+ e AO-.

A possível falta de estados para os cálculos de canais acoplados que se verificou nos projéteis a 300 keV/amu é atenuada no caso de 150 keV/amu. Com energias menores, menos ondas parciais são necessárias para representar adequadamente os sistemas estudados, especialmente no caso em que $\theta = 90^\circ$. Não foi possível usar mais de 800 estados para os cálculos de canais acoplados devido a limitações computacionais, visto que a matriz de transição ocupa um espaço na memória que é proporcional ao quadrado do número de estados empregados na base e visto que o número de cálculos numéricos necessários segue a mesma progressão do tamanho da matriz.

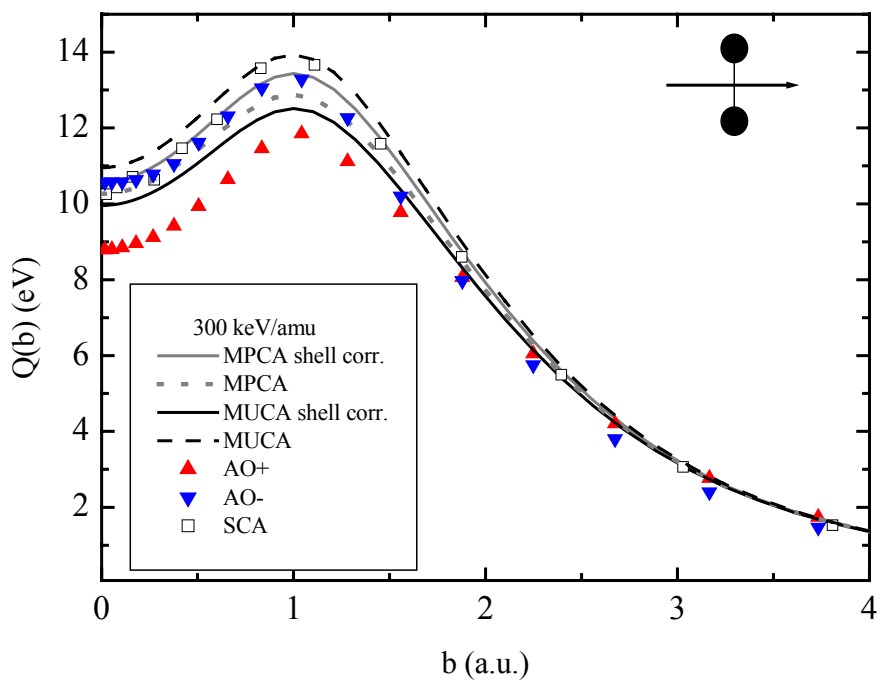


Figura 21: Efeitos da correção de camada para projéteis de H₂ em H a 300 keV/amu, com o eixo da molécula perpendicular à direção da velocidade. A concordância melhora com a correção de camada.

Como teste final para o modelo MUCA, considerou-se o uso de projéteis moleculares de He₂ e Li₂ a velocidades equivalentes a 150 keV/amu (2.45 unidades atômicas de velocidade) e 300 keV/amu (3.466 unidades atômicas) sobre o alvo de H. Dessa forma, nos cálculos de canais acoplados, enfatizam-se os efeitos não lineares que podem, assim, ser confrontados com o modelo MUCA.

Os resultados são vistos na Figura 24. Nela, podemos notar primeiramente uma grande

discrepância entre os resultados de MUCA e os resultados de canais acoplados para colisões

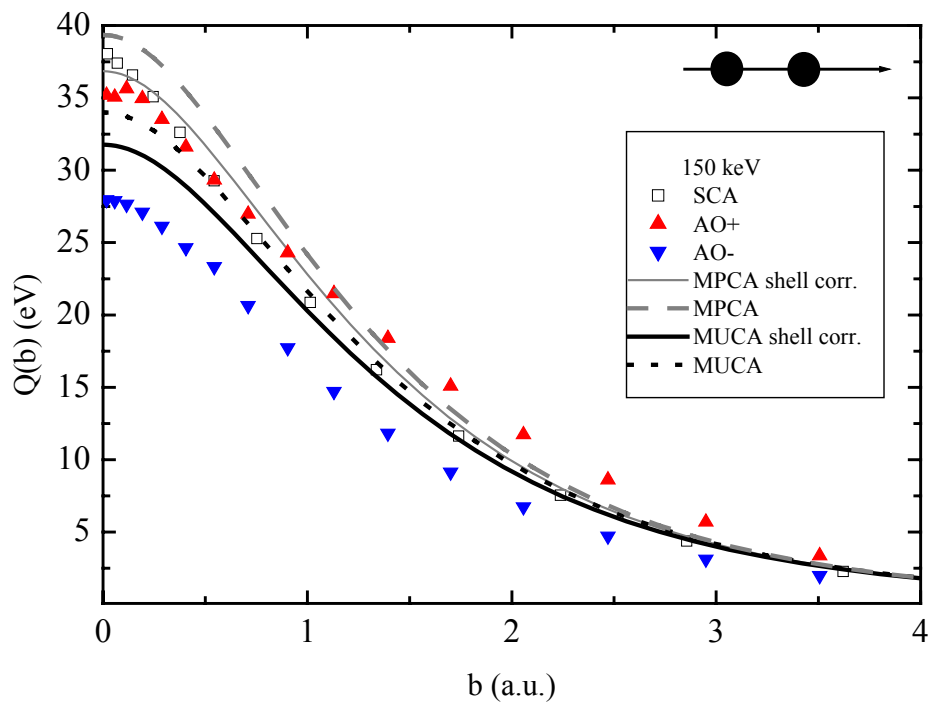


Figura 22: Resultados dos modelos MPCA e MUCA mostrando os efeitos das correções de camada. Nesta geometria, nota-se a eficiência das correções.

próximas. Isso se deve basicamente ao fato de o modelo MUCA, sendo um reescalonamento de uma teoria de primeira ordem, não leva em conta aspectos chave da interação entre as moléculas e o alvo, como os processos já citados de captura e de polarização. Em menor escala, temos ainda a não implementação das correções de camada neste caso, embora não se esperem reduções consideráveis na discrepância com tais correções. No entanto, o reescalonamento aparentemente simples do modelo MUCA realmente melhora muito a concordância com os cálculos de canais acoplados. O modelo MPCA, mostrado para fins de comparação, comete um erro que, para pequenos parâmetros de impacto, pode chegar a um fator 3, ao passo que o modelo MUCA tem uma concordância muito melhor.

Em resumo, em todos os casos de orientações moleculares, pode-se notar, para grandes parâmetros de impacto, que o modelo MUCA está situado em posição intermediária com relação aos resultados de canais acoplados para íons moleculares e anti-íons moleculares. Tal comportamento é esperado, visto que o modelo MUCA não leva em conta o efeito de polarização (Barkas).

Para pequenos parâmetros de impacto, além dos possíveis efeitos de captura, surgem efeitos puramente moleculares que levam à intensificação dos efeitos não lineares. Em particular, para o caso de orientação transversal da molécula, nota-se uma inversão de tendências nos cálculos de canais acoplados: anti-íons têm perda de energia superiores aos íons para parâmetros de impacto até a ordem da separação entre os íons. E, para o caso de orientação paralela, temos o efeito

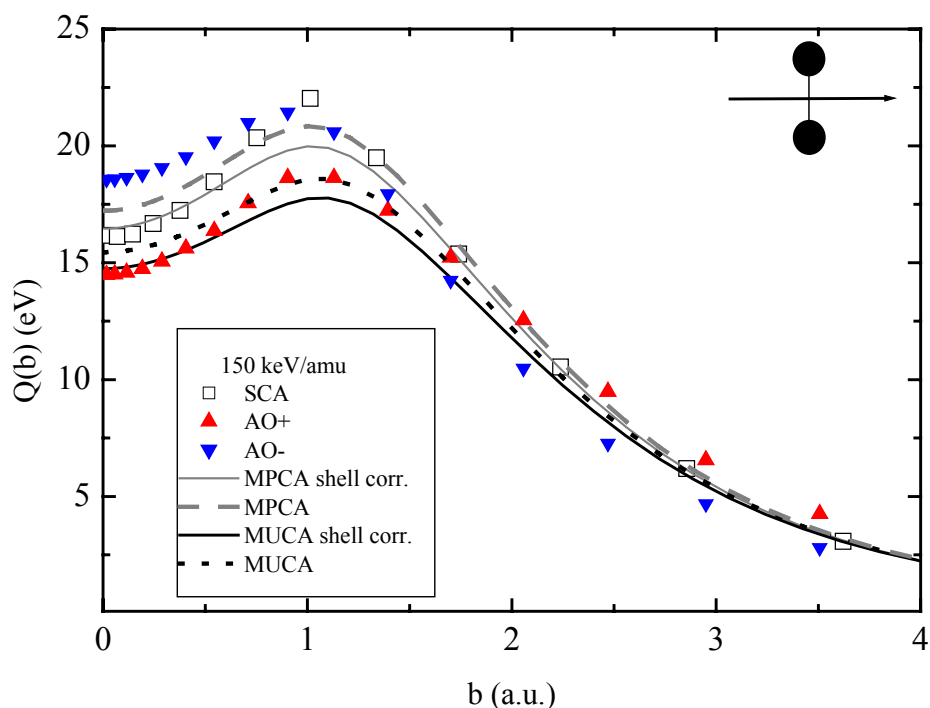


Figura 23: Resultados dos modelos MPCA e MUCA para a molécula perpendicular ao movimento. Notam-se os efeitos não lineares diretamente pelas referências SCA e AO. Os dois cálculos envolvendo centenas de estados fornecem praticamente os mesmos resultados, se efeitos de ordens ímpares forem desconsiderados.

clássico de órbita aberta (*slingshot*) para altas velocidades.

No caso de alinhamento entre os íons em baixas velocidades, nota-se o efeito de dupla excitação do alvo. Especialmente para pequenos parâmetros de impacto, a passagem do primeiro íon deixa o alvo em um estado excitado. Esse estado perdura tipicamente por um intervalo de tempo superior ao necessário à passagem do segundo íon. O segundo íon, portanto, encontra um alvo já excitado e, assim, deposita uma quantidade diferente de energia do que o faria com o alvo no estado fundamental. Esse efeito não é levado em conta no modelo MUCA. Com isso, temos a descrição de dois modelos simplificados, porém com conteúdo físico, para a determinação da

transferência de energia entre um projétil molecular e um alvo. Tal grandeza, embora não mensurável diretamente em laboratório, é essencial para a simulação de processos de canalização

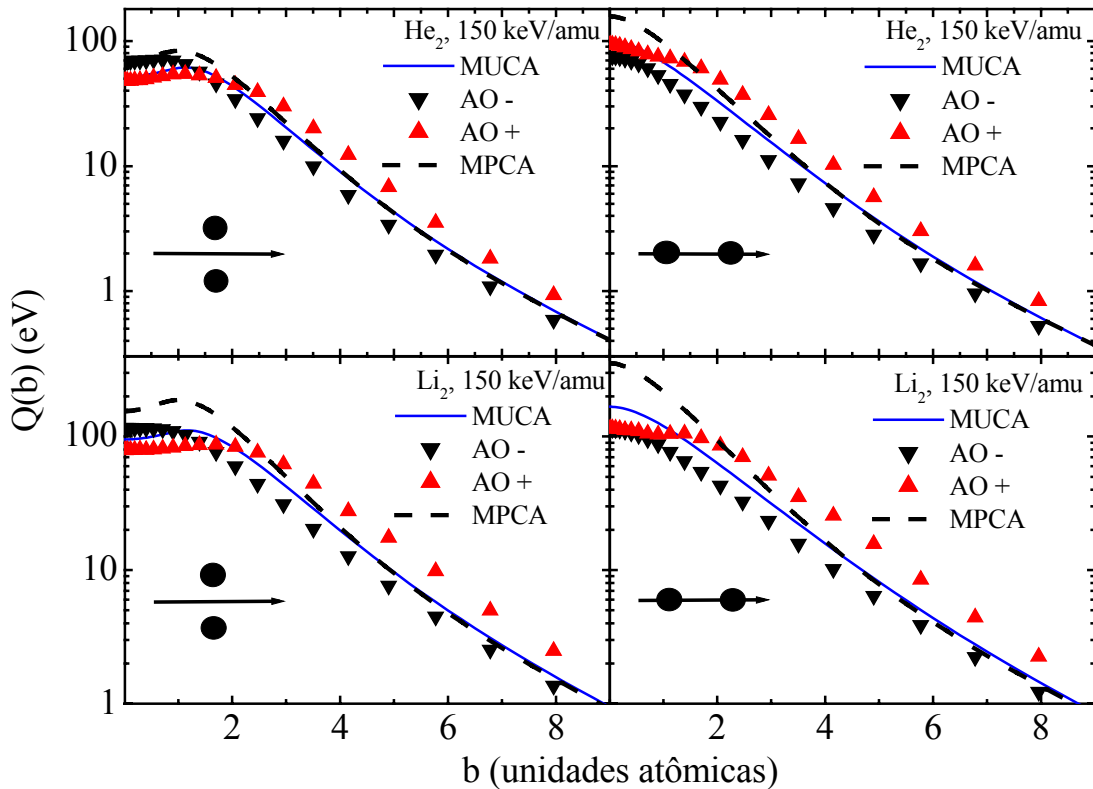


Figura 24: Comparação entre o modelo MUCA e os resultados dos cálculos de canais acoplados (AO). Os resultados de AO são mostrados para projéteis de He₂ e Li₂ (AO+) e anti-He₂ e anti-Li₂ (AO-). Nota-se como o modelo SCA superestima as transferências de energia.

capazes de estimar a perda de energia por unidade de comprimento de íons moleculares, uma grandeza, esta sim, mensurável em laboratório. Embora o modelo MUCA não leve em conta diversos efeitos físicos, que são levados em conta nos cálculos de canais acoplados, seu grande trunfo é a rapidez com que a perda de energia pode ser obtida. Uma única curva de quinze pontos para a perda de energia obtida via resolução numérica da equação de canais acoplados consome, em um computador de 2 GHz, algumas horas de tempo computacional. Por outro lado, o modelo MUCA pode fornecer uma curva de sessenta pontos em poucos minutos, tornando-se uma alternativa muito mais viável para simulações de procedimentos de canalização do que os cálculos de canais acoplados.

5. Simulações de canalização

5.1. O potencial de rede usado

A simulação, cujos resultados serão comparados com os resultados experimentais do próximo capítulo, consiste essencialmente em um procedimento de Monte Carlo clássico. Os íons (moleculares ou monoatômicos) sofrem forças causadas pelo potencial de rede e (no caso de íons moleculares) pelo potencial entre eles. As trajetórias dos íons são, assim, obtidas através de integração da aceleração, utilizando-se o método numérico de Euler com passo variável. O passo depende tanto da força que a rede cristalina aplicava sobre os íons quanto das forças entre os íons. Pode-se mostrar, com base em uma aproximação para o potencial de rede no centro do canal, que os tempos característicos da explosão coulombiana da molécula (tipicamente 10^{-14} s ou 400 unidades atômicas de tempo) são tipicamente uma ordem de grandeza menores do que os tempos característicos de canalização (tipicamente 10^{-13} s ou 4000 unidades atômicas de tempo). Dessa forma, o passo de integração no método de Euler necessita acompanhar os fenômenos mais velozes da explosão coulombiana, sendo regulado tanto pela velocidade do projétil como um todo quanto pela velocidade da explosão.

Assim, os potenciais da rede e entre os íons (no caso de íons moleculares) foram usados para guiar o movimento dos íons entre os átomos da rede do Si. Os íons são aleatoriamente posicionados dentro do canal $\langle 100 \rangle$ do Si, aos pares ou aos trios (para simular íons de H_2^+ e H_3^+) com velocidade inicial dada a partir de sua energia. Os íons moleculares têm o centro de massa posicionado aleatoriamente da mesma forma que os íons monoatômicos e têm, ainda, as suas orientações escolhidas aleatoriamente. Para a simulação dos íons monoatômicos, bastou-se desligar as interações entre os pares ou trios de íons.

O potencial de rede usado é o potencial contínuo empregando a blindagem de Molière, cuja função integrada de blindagem é dada na equação (22). Dezesesseis cadeias de átomos foram consideradas, formando quatro a quatro, na seção transversal, os vértices de quadrados, com posições e distâncias compatíveis com o canal $\langle 100 \rangle$ do silício. As regiões simuladas têm 1600 angstroms de espessura, para a determinação do efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia (uma espessura compatível com a espessura da camada de Si cristalino dos experimentos de reação nuclear, que envolveram SIMOX), e 4000 angstroms de espessura, para a

determinação, além da perda de energia, da redistribuição de fluxo de íons devido à explosão coulombiana (o aquecimento de Coulomb propriamente dito, que, no trabalho experimental, foi medido para uma amostra de Si cristalino, de espessura da ordem de milímetros).

Temos na Figura 25 o potencial empregado supondo-se uma rede sem vibrações. As unidades dos eixos estão em unidades atômicas de comprimento (1 a. u. = 0.529 angstrom) e as linhas são equipotenciais em unidades atômicas de energia (1 a. u. de energia = 27.21 eV).

Na simulação para a determinação da redistribuição de fluxo, realizada por nós em conjunto com C.D. Denton, da Universidade Técnica Federico Santa Maria (Chile), a rede foi considerada sem defeitos, mas com vibrações cuja amplitude unidimensional r.m.s. era da ordem de 0.15 a. u. de comprimento, empregando os métodos de [65]. Não foram encontradas, no entanto, grandes discrepâncias para o valor médio da energia transversal dos projéteis se o canal fosse considerado sem vibrações. De fato, se o íon estiver próximo o suficiente da cadeia para que as vibrações da rede tenham um efeito substancial (um evento improvável para íons canalizados, dado o elevado valor do potencial de rede nessa região do canal), o potencial de rede seria forte o suficiente para que o íon sofresse decanalização, isto é, passasse a ter seu movimento guiado por colisões descorrelacionadas entre si com as cadeias do alvo. Pode-se mostrar, ainda, que a transferência de energia varia fracamente com o parâmetro de impacto perto de uma dada cadeia, ao passo que o potencial de rede sobre o íon varia muito mais rapidamente. Dessa forma, vibrações térmicas não desempenham um papel relevante sobre a perda de energia eletrônica do íon.

Assim, na simulação para a determinação do efeito sobre a perda de energia, a rede foi considerada rígida por simplicidade. Uma dispersão aleatória da direção de cada íon do feixe, ou seja, uma divergência do feixe, de cerca de 0.05 graus foi acrescentada, no entanto, para simular os efeitos de dispersão do feixe de íons a partir do acelerador e para simular uma pequena camada de óxido superficial amorfo.

5.2. O potencial entre os íons

Para a simulação da passagem de íons moleculares, no caso, H_2^+ e H_3^+ , considera-se o potencial entre eles como a soma entre o potencial de Coulomb e o potencial de *wake* induzido por um íon sobre o outro ou, alternativamente, a soma é substituída pelo potencial de Yukawa (para detalhes sobre este potencial, ver, por exemplo, ref. [62]). O potencial de *wake*, assim, agia como a função de blindagem entre os íons. Ele foi obtido a partir do formalismo dielétrico com o uso de funções dielétricas de Mermin (eq. (6)) [28] e armazenado numericamente no programa.

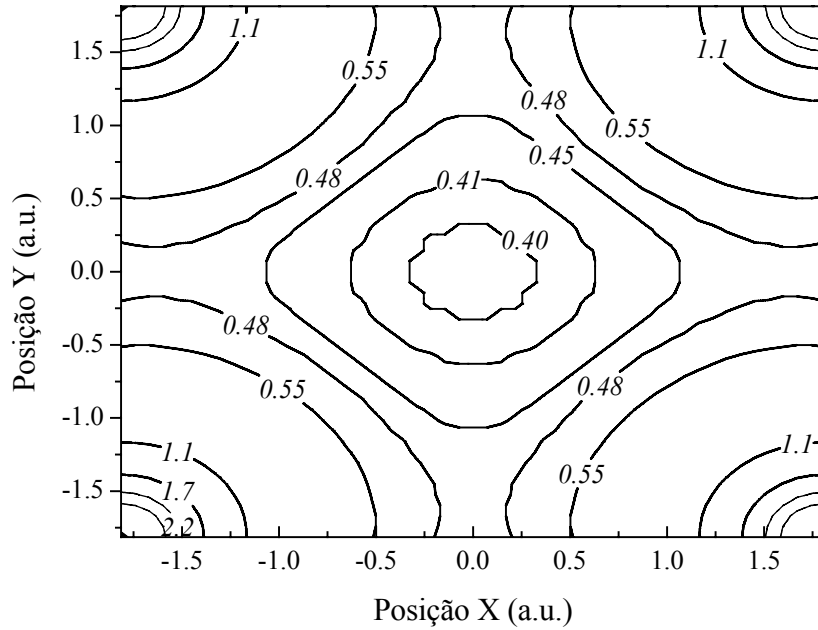


Figura 25: Mapa do potencial de rede utilizado na simulação do canal $\langle 100 \rangle$. As energias estão em unidades atômicas (1 a. u. = 27.21 eV).

Sendo o potencial de *wake* um potencial não central, efeitos de alinhamento dos fragmentos de íons ao longo da passagem pelo sólido são levados em consideração, juntamente com os efeitos da explosão coulombiana já causada pelo termo coulombiano do potencial. Para velocidades do projétil superiores às velocidades características dos elétrons do alvo, o potencial de wake forma uma blindagem mais realista para os íons se comparado com o potencial de Yukawa. A energia dos íons nesta simulação, em particular, é 150 keV/a.m.u., o que resulta em uma velocidade de $2.451 v_0$, onde v_0 é a velocidade de Bohr.

Para baixas velocidades, no entanto, o comportamento da blindagem do projétil se aproxima da blindagem exponencial do potencial de Yukawa. Este potencial é esféricamente simétrico e, portanto, origina entre os íons somente forças centrais, incapazes de alterar o estado de alinhamento do par de íons com a direção do movimento do par.

5.3. Resultados da simulação para modificação de fluxo

Os principais resultados da simulação foram o fluxo de íons ao longo do canal e a

distribuição de energias transversais para 4000 angstroms de profundidade. Na Figura 26 temos a distribuição de energias transversais. O efeito da explosão coulombiana se faz notável pelo deslocamento das curvas para a região de maiores energias. Um ajuste feito por translação da curva para H^+ nessa região de energias mostra que os valores estimados para o aumento da energia transversal são 2.5 eV para H_2^+ e 4.5 eV para H_3^+ , com erro de 0.2 eV [66].

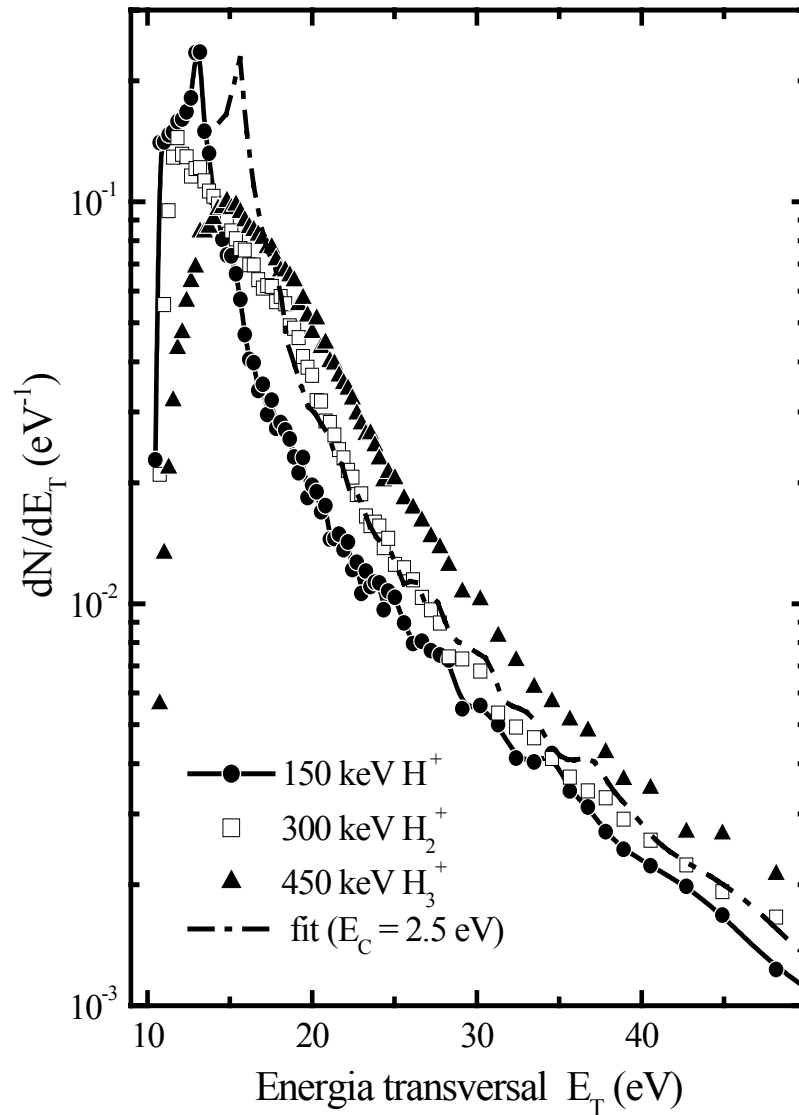


Figura 26: Distribuição de energia transversal para H^+ , H_2^+ e H_3^+ a 150 keV simulada. Pode-se notar o deslocamento das energias para maiores valores no caso de feixes moleculares devido à explosão coulombiana.

Quanto ao fluxo, pode-se ver na Figura 27, o *flux peaking* é consideravelmente afetado pela

presença da explosão coulombiana. O feixe ainda está em condição canalizada, mas os íons podem, agora, ocupar regiões mais distantes do centro do canal do que poderiam ocupar sem a transferência de energia transversal causada pela explosão coulombiana.

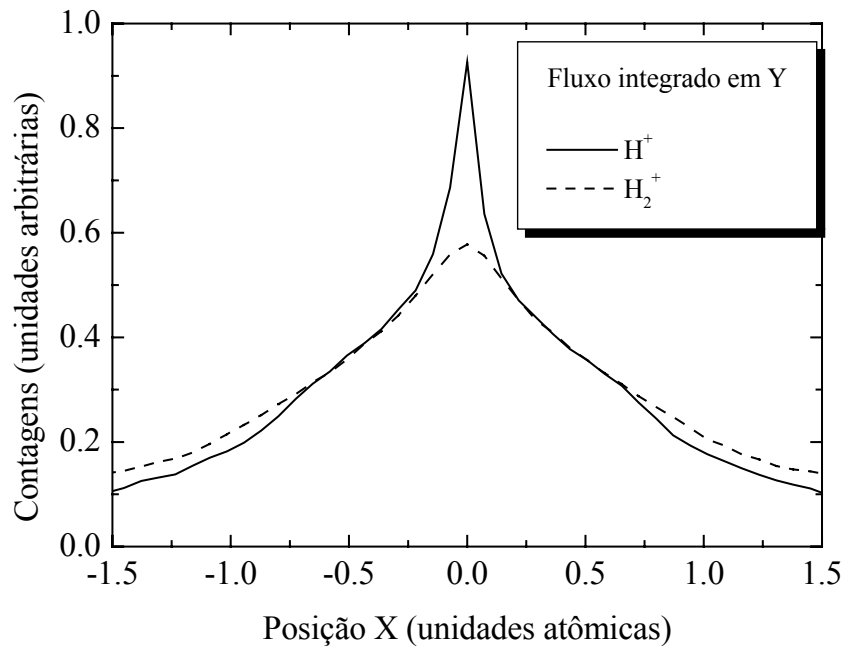


Figura 27: Fluxo de íons integrado ao longo da direção Y do canal $\langle 100 \rangle$ de Si. Nota-se o efeito da explosão coulombiana na redução do fluxo relativo ao se usar feixes de H_2^+ na simulação. Ambas as curvas estão normalizadas.

5.4. Resultados computacionais para o efeito do fluxo sobre a perda de energia

O principal resultado desta série de simulações foi a perda de energia em função do ângulo de inclinação da amostra. Como descrito, foi empregada uma espessura de 1600 angstroms. Os ângulos de inclinação da amostra variaram de 0 a 4.5 graus, com um azimute de 22.5 graus em relação ao plano $\{100\}$ do Si, a fim de se evitarem efeitos planares. Para a simulação das trajetórias dos íons moleculares (diatômicos), levou-se em conta a interação entre os dois íons, com um componente coulombiano ou *single-zeta* (dependendo do estado de carga dos íons) e, opcionalmente, uma interação entre os íons via forças de *wake*. Para a simulação de feixes de íons

monoatômicos, o programa simplesmente simulava a trajetória de pares de íons sem nenhuma interação entre eles, como descrito anteriormente.

O programa, de um modo análogo à simulação anteriormente descrita, calculou as trajetórias dos íons via um procedimento de Monte Carlo clássico, com vistas à obtenção do fluxo de íons. A distribuição dos íons no equilíbrio estatístico não foi empregada para a obtenção do fluxo, visto que o equilíbrio estatístico não é ainda alcançado a 1600 angstroms. Com as trajetórias, o fluxo era então determinado. Para a perda de energia, empregou-se o modelo UCA para íons independentes, por estarmos interessados aqui somente no efeito da redistribuição de fluxo de íons sobre a perda de energia, e não nos efeitos de vizinhança que estão naturalmente contidos no termo de interferência ao se utilizar o MUCA completo. Em um futuro próximo, no entanto, será feita a simulação com o modelo MUCA completo, levando-se em conta também o efeito de vizinhança. Outra vantagem é a independência do UCA sobre a orientação relativa dos pares de íons usados. Assim, não é necessário calcular a expressão para $Q(b)$ a cada passo da trajetória, bastando calcular uma única vez antes da simulação e armazenar os resultados na memória.

Os íons têm até 10% de probabilidade de serem neutralizados na simulação [67,68]. Acontecendo isso, a força entre eles passa a ser da forma *single-zeta*, fortemente atenuada em comparação à força de Coulomb, mas não nula. Para a expressão da energia transferida $Q(b)$, levou-se em conta também essa probabilidade, através do emprego do estado de carga médio no cálculo da perda de energia. O único caso em que a neutralização não foi implementada é no caso em que o potencial de Yukawa foi empregado. No entanto, testes com simulações sem neutralização mostraram alteração da perda de energia menor do que 0.1%.

Tendo o fluxo $\Phi(x, y, z, \psi)$ e a expressão da transferência de energia $Q(b)$, pode-se calcular a perda de energia em função da inclinação ψ pela seguinte expressão:

$$S(\psi) = \frac{\int dx dy dz \Phi(x, y, z, \psi) \bar{Q}(x, y)}{d \int dx dy dz \Phi(x, y, z, \psi)}. \quad (43)$$

Onde d é a distância longitudinal entre os átomos de Si (no nosso caso, ao longo da direção z) e

$$\bar{Q}(x, y) = \sum_{i=1}^{N_c} Q(b_i), \quad (44)$$

onde b_i são os parâmetros de impacto relativos a cada cadeia que forma o canal (definidos a partir das posições x e y do canal central) e N_c é o número de cadeias utilizadas para simular o alvo. No caso de feixes de íons monoatômicos, procedimentos semelhantes a este já vêm sendo empregados [69]. Para uma simulação razoável das trajetórias e das perdas de energia foram empregadas, como descrito antes, 16 cadeias. As quatro cadeias centrais definem o canal a ser analisado, ao passo que as demais, fora do canal central, asseguram, dentro de 0.1% de erro (erro este percebido como perturbações da simetria do canal simulado), as simetrias necessárias ao potencial e à perda de energia no interior do canal central (se fossem empregadas somente quatro cadeias, a linha correspondente a um máximo local do potencial não passaria ao longo do lado do canal, mas sim, estaria mais próximo do centro do canal e o valor do potencial teria um erro superior a 5%; os resultados mostraram-se muito sensíveis a esse efeito nos testes realizados). As funções potencial e perda de energia têm simetria de um único canal. As integrais são calculadas ao longo de toda a profundidade envolvida e ao longo da área do canal central.

Os resultados são mostrados na Figura 28, onde temos a distribuição de perda de energia em função do ângulo de inclinação. Pode-se ver como a distribuição é menos profunda para H_2^+ , para qualquer potencial internuclear, mostrando o efeito da explosão coulombiana sobre o fluxo e, conseqüentemente, sobre a perda de energia. No ângulo 0° (alinhamento entre o feixe e o eixo), temos, assim, que o valor do efeito de aquecimento sobre a perda de energia é 0.036 eV / \AA , levando-se em conta o potencial de *wake*, 0.052 eV / \AA para o potencial de Yukawa e 0.064 eV / \AA para a simulação sem o potencial de *wake*. No ângulo 4.5° , o valor médio da perda de energia é $8.432 \pm 0.006 \text{ eV / \AA}$. Variando-se parâmetros como o número de moléculas usado e o número de camadas do alvo levadas em conta, encontrou-se que o erro dos valores simulados é da ordem de 10^{-3} eV / \AA .

Os valores do efeito de aquecimento sobre a perda de energia são comparáveis aos valores experimentais descritos no próximo capítulo. Mesmo no caso em que forças de *wake* não foram levadas em conta na simulação, o efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia corresponde a um valor menor do que o valor médio obtido experimentalmente, embora, como será visto na seção que trata do experimento de reação nuclear, os dados desta simulação podem ser comparados com os dados do efeito de aquecimento medidos na amostra que contém uma camada de Si de 1600 angstroms. A diferença entre os valores experimentais e os simulados pode ser devido à falta de efeitos de espalhamento eletrônico múltiplo, não levados em conta nesta simulação.

O valor do efeito de aquecimento para o caso em que se empregou as forças de *wake* é

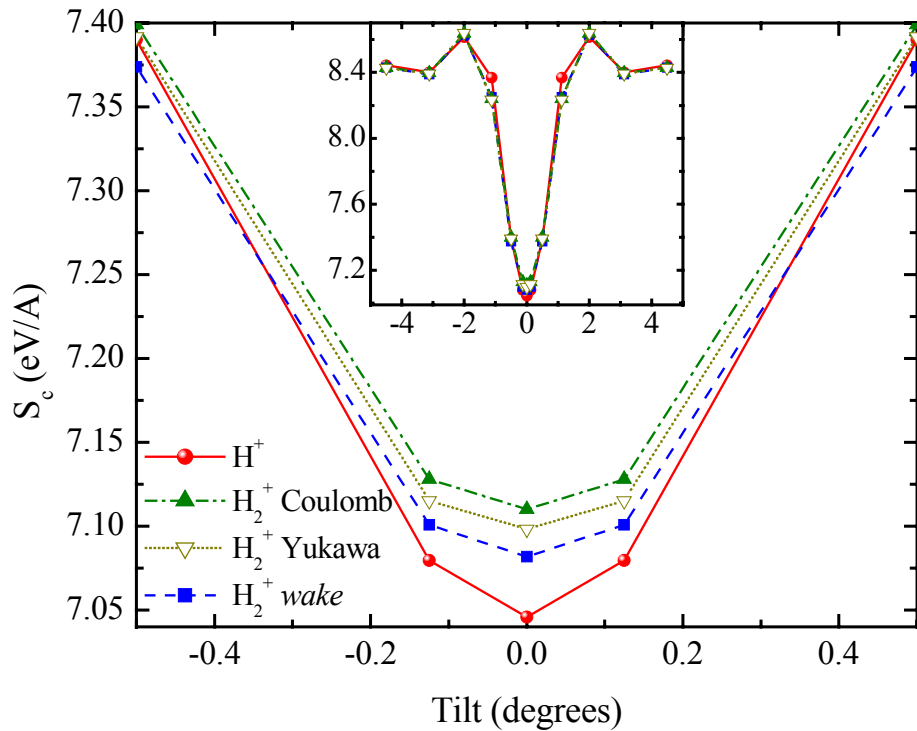


Figura 28: Resultados da simulação de perda de energia de H^+ e H_2^+ em Si, em torno do canal $\langle 100 \rangle$, para um alvo de 1600 Å. Foram escolhidas três possibilidades para a interação entre os íons que compõem a molécula de H_2^+ : Coulomb puro (triângulos cheios), Yukawa (triângulos vazados) e Coulomb + *wake* (quadrados cheios).

consideravelmente menor do que o caso que envolveu o potencial de Coulomb puro. Isso se deve a dois fatos: primeiramente, as forças de *wake* tendem a alinhar o eixo da molécula diatômica com a direção do movimento, reduzindo, assim, a energia transversal final dos fragmentos; finalmente, as forças de *wake* também reduzem o valor efetivo do potencial entre os íons, como uma blindagem.

No caso da simulação envolvendo o potencial de Yukawa, o valor da perda de energia no centro do canal é um pouco inferior ao valor obtido para a perda de energia de H_2^+ sob potencial coulombiano puro. Isso se deve à menor energia que a molécula pode transferir para o movimento transversal de seus fragmentos, devido à blindagem exponencial. O valor um pouco mais elevado da perda de energia na comparação com a simulação feita com o potencial de *wake* indica uma menor tendência ao alinhamento dos componentes da molécula, resultando, assim, em uma explosão quase coulombiana isotrópica.

A simulação mostrou-se muito sensível à forma e aos valores do potencial, mas a mesma sensibilidade não foi percebida nos outros parâmetros. Tal sensibilidade pode explicar tanto os

valores abaixo dos esperados para as perdas simuladas de energia quanto para os efeitos de aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia. Além disso, os efeitos de vizinhança no caso dos feixes moleculares foram totalmente desprezados, resultando em uma redução dos valores da

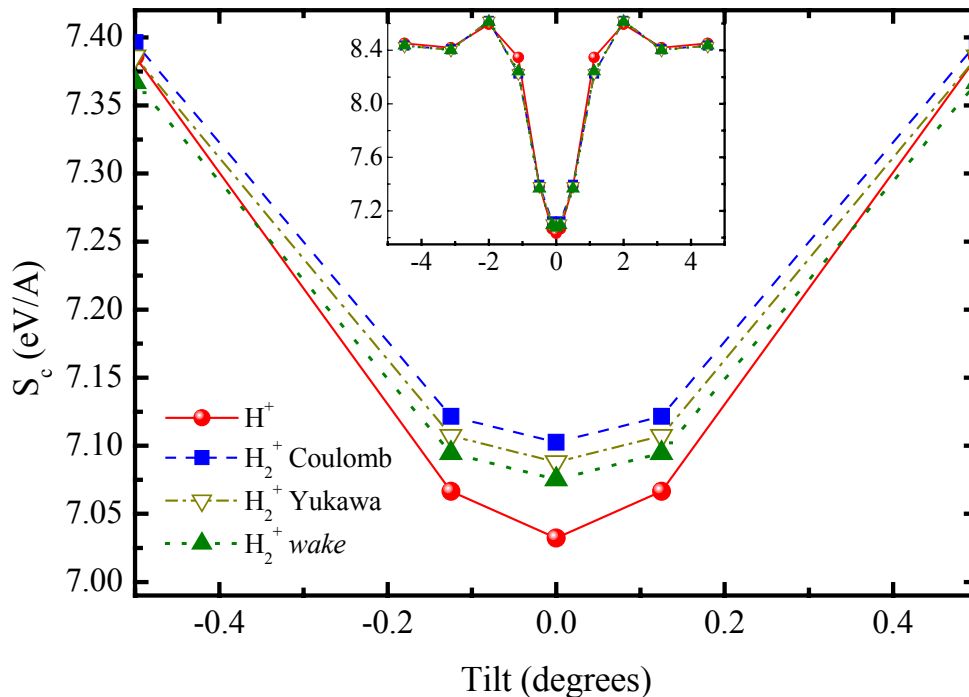


Figura 29: Resultados da simulação da perda de energia para H e H₂ em Si para uma espessura de 4000 angstroms. Como esperado, os efeitos do aquecimento de Coulomb a 4000 angstroms são um pouco mais pronunciados do que a 1600 angstroms, embora os efeitos qualitativos sejam análogos.

perda de energia de H₂⁺.

Finalmente, realizou-se uma simulação semelhante, mas desta vez com uma espessura de 4000 angstroms. Os resultados são mostrados na Figura 29, que, qualitativamente, são semelhantes aos resultados da simulação a 1600 angstroms de profundidade. Quantitativamente, temos que o valor médio da perda de energia em condição não alinhada é cerca de 8.439 ± 0.007 eV /Å. Para o potencial internuclear de *wake*, temos o valor do efeito do aquecimento de Coulomb de 0.043 eV /Å, para o potencial de Yukawa temos 0.056 eV /Å e para a explosão coulombiana pura temos 0.071 eV /Å. Como esperado, os valores para o efeito do aquecimento de Coulomb ao longo de 4000 angstroms se mostraram de maior magnitude do que ao longo de 1600 angstroms. Isso se deve ao fato de a explosão quase coulombiana alterar a energia cinética transversal média dos

fragmentos de íons (e, por extensão, o fluxo de íons), levando-os a alcançar regiões de maior transferência de energia, em um efeito que perdura por toda a extensão da amostra.

Em suma, foram realizadas simulações que permitiram estimar tanto a variação da energia transversal dos íons devido à explosão coulombiana em condições de canalização quanto o efeito de tal variação sobre a perda de energia molecular. Ambos os valores podem ser comparados diretamente com seus correspondentes valores experimentais. Além disso, foi possível visualizar a alteração do fluxo de íons no canal devido à explosão coulombiana.

6. Procedimentos experimentais e resultados

6.1. Medidas de perda de energia via RBS/c

Para as medidas de RBS/c, foi utilizada uma amostra de SIMOX. A amostra, após limpa em solução de 10% de HF para remoção de óxido nativo superficial, foi posicionada no goniômetro da câmara de RBS, sendo a pressão final na câmara menor do que 3×10^{-6} mbar. Efetuou-se o procedimento de canalização descrito na seção de Canalização. Assim, incidiu-se na amostra um feixe de H^+ de 150 keV e foram levantados espectros de RBS semelhantes aos da Figura 5 para diversos ângulos de inclinação da amostra (ψ) e para quatro azimutes ($\phi = 15^\circ, 30^\circ, 60^\circ$ e 75°). O procedimento foi, depois, repetido para feixes de H_2^+ e H_3^+ , todos com energia de 150 keV por nucleon e corrente de partículas correspondente a 10 nA. Sobre cada espectro de RBS, aplica-se o procedimento descrito na ref. [44] para a determinação da perda de energia do feixe em função do ângulo de incidência entre o feixe e o canal $\langle 100 \rangle$. Foi realizada uma média sobre os quatro azimutes, dentro da idéia da regra de compensação angular de Lindhard. O resultado pode ser visto na Figura 30, que mostra a perda de energia dos feixes como função da inclinação da amostra. Próximo ao alinhamento com o canal, a perda de energia sofre uma redução, visto que grande parte dos íons passa agora a sofrer colisões com os átomos do alvo com parâmetros de impacto maiores.

Desses resultados, subtraem-se os resultados correspondentes ao feixe de H^+ , ajustados por duas gaussianas. O que resta, representado na Figura 31, corresponde à contribuição de dois fenômenos para a perda de energia: o efeito de vizinhança [10] e da explosão coulombiana sobre o fluxo de íons em condição canalizada (o aquecimento de Coulomb) [23]. Para a separação desses dois efeitos, empregou-se a regra de compensação angular de Lindhard [49] do modo descrito na ref. [70] que será descrito a seguir.

Primeiramente, faz-se um ajuste das curvas representadas na Figura 31 com uma função composta por duas partes:

$$S_{\text{viz+exp}}(H_n^+, \Psi) = \Delta S_{\text{vic}}(H_n^+) + \Delta S_{\text{exp}}(H_n^+, \Psi), \quad (45)$$

onde Ψ é o ângulo de inclinação entre o feixe e a normal à amostra, ΔS_{vic} é o termo associado aos efeitos de vizinhança e ΔS_{exp} é o termo associado aos efeitos da explosão coulombiana. A função

$S_{vic+exp}$ foi escolhida de acordo com os seguintes critérios:

a) ΔS_{vic} é praticamente independente de Ψ . Foi mostrado na referência [10] que o efeito de vizinhança tem uma dependência fraca com a direção do feixe. Assim, este termo é somente uma constante aditiva;

b) de acordo com a regra de compensação angular de Lindhard, o valor médio de ΔS_{exp} é zero, isto é, $\int d\Psi \sin \Psi \Delta S_{exp}(\Psi) = 0$;

c) para maiores valores de Ψ , ΔS_{exp} deve tender a zero. Em condições não alinhadas, o fluxo de íons é uniforme. Tal condição não pode ser modificada pela explosão coulombiana e, assim, o efeito da explosão é nulo;

d) ΔS_{exp} deve ser uma função par em Ψ .

Dessa forma, uma função simples que satisfaça as quatro condições é dada por:

$$\Delta S_{exp} = C \sin(k|\Psi| + \gamma) \exp\left(-\frac{k|\Psi|(1 - \cos \gamma)}{\sin \gamma}\right), \quad (46)$$

onde C , k e γ são parâmetros de ajuste. Com isso, uma vez feito o ajuste das curvas, o valor do efeito da explosão coulombiana sobre a perda de energia no centro do canal é dado por $C \sin \gamma$.

O método assim empregado permite separar as contribuições associadas aos dois fenômenos. Ele também fornece diretrizes para o uso de uma função conveniente de ajuste de dados capaz de fornecer um resultado preciso para a contribuição do efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia. No entanto, ele não fornece, por limitações experimentais, resultados precisos para o efeito de vizinhança. Os valores negativos para o efeito do aquecimento de Coulomb, preditos pela lei de compensação angular de Lindhard, são atribuídos à possibilidade de recanalização de parte dos íons devido à explosão coulombiana, que causa uma alteração efetiva do ângulo de incidência de cada fragmento do projétil. Os ângulos em que isso ocorre são compatíveis com a estimativa da alteração de ângulo devido à explosão.

Com isso, foi possível isolar o efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia. Mostra-se que o valor de tal contribuição para a perda de energia no canal $\langle 100 \rangle$ de Si é $0.18 \text{ eV}/\text{\AA}$ para H_2^+ e $0.49 \text{ eV}/\text{\AA}$ para H_3^+ , com erro de $0.05 \text{ eV}/\text{\AA}$.

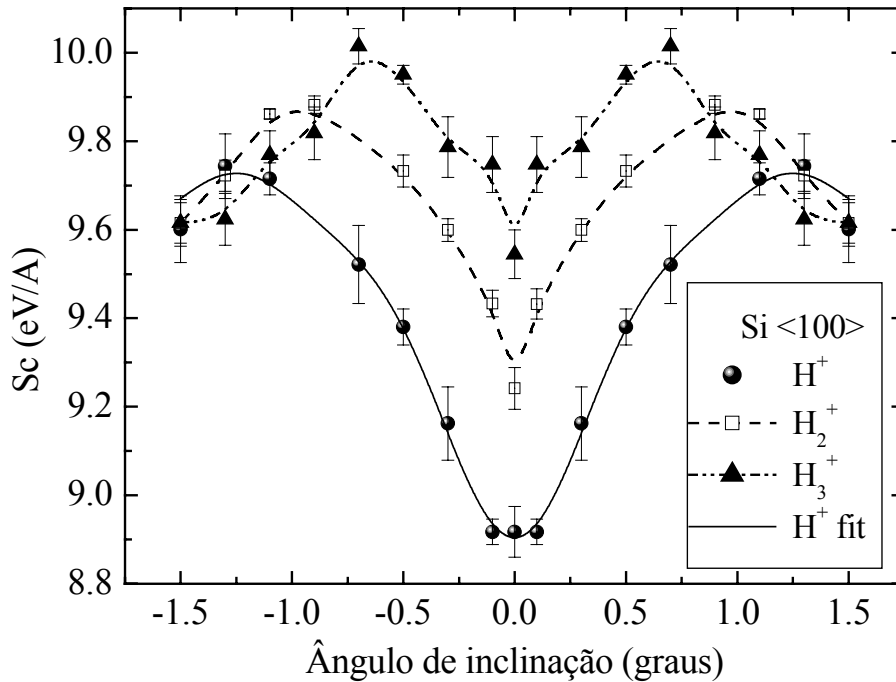


Figura 30: Perda de energia dos feixes de H⁺, H₂⁺ e H₃⁺ como função do ângulo de inclinação da amostra.

6.2. Resultados da análise de emissão de raios X induzida por partículas (PIXE)

O procedimento da análise de PIXE é semelhante ao usado para a análise de RBS. As grandes diferenças neste experimento são o alvo, que é silício cristalino, e o uso de um único azimute ($\phi = 22.5^\circ$) devido às altas taxas de dano sofridas pelo Si. A amostra foi alinhada segundo o procedimento de canalização e, após, procedeu-se à medida simultânea de emissão de raios X e de contagens de RBS como função do ângulo de inclinação para os feixes de H⁺, H₂⁺ e H₃⁺ a 150 keV/ u.m.a. Os resultados para a emissão de raios X são mostrados na Figura 32, onde pode-se notar o aumento do número de fótons de raios X emitidos com os feixes moleculares em condição canalizada em relação ao feixe de H⁺ na mesma condição.

Para a análise dos resultados de RBS (detalhada no Apêndice D) e de emissão de raios X, leva-se em conta o hamiltoniano associado ao movimento transversal dos íons no canal, como descrito no capítulo 0. Com isso, tendo-se em mente que a explosão coulombiana, por se completar antes da formação do *flux peaking* da canalização, equivale a uma divergência angular do feixe de

íons [12], tem-se que a relação entre o número de contagens de raios X para feixes moleculares e para feixes atômicos passa a ser

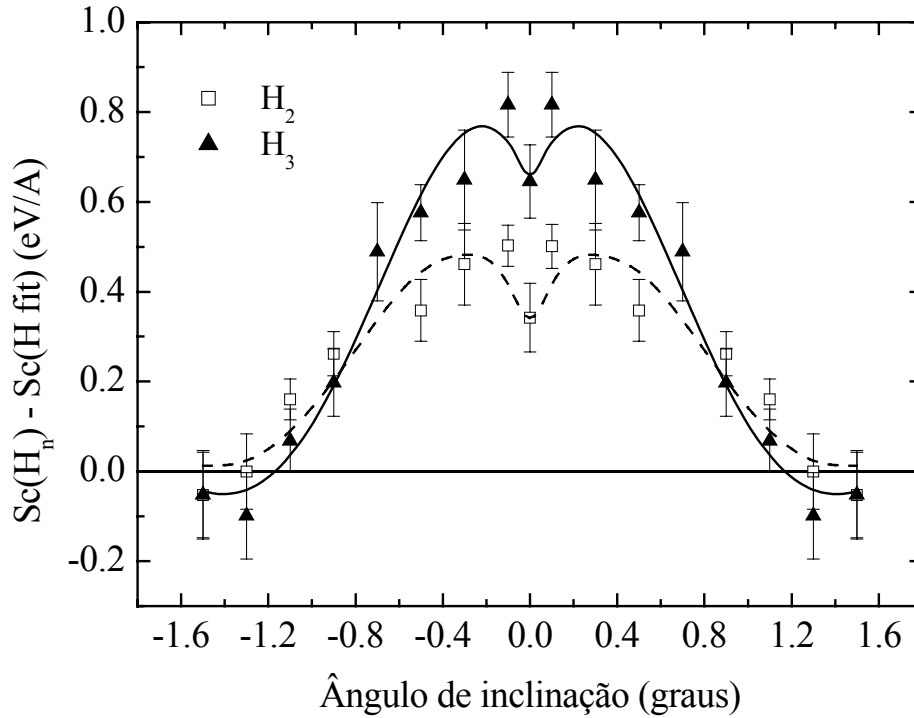


Figura 31: Contribuições dos efeitos de vizinhança e da explosão coulombiana sobre a perda de energia de H_2^+ e H_3^+ . As linhas são ajustes obtidos com uma função escolhida de acordo com a lei de Lindhard.

$$Y_{molecular}(\psi) = Y_{atomic}(\sqrt{\psi^2 + \delta E_c/E}) \quad (47)$$

onde δE_c é o aquecimento de Coulomb procurado e E é a energia do feixe por partícula.

No entanto, essa análise tem de ser refinada por ela não levar em conta que a explosão coulombiana não acontece imediatamente após a penetração da molécula no alvo, mas sim cerca de 40 nm depois, como foi constatado pelo uso de um procedimento de ajuste baseado no modelo de dois feixes [71](mostrado no Apêndice D) para canalização empregado nos espectros de PIXE e de RBS. Esse fato se tornou evidente quando o processo de ajuste baseado no modelo de dois feixes foi utilizado no experimento auxiliar de RBS/c.

O procedimento do modelo de dois feixes foi, então, usado para a obtenção da taxa de decanalização α em função do número total de contagens de emissão de raios X por ângulo de inclinação. Ainda com base no hamiltoniano dos íons no canal, usou-se, então, a expressão:

$$\alpha_{molecular}(\psi) = \alpha_{atomic} \left(\sqrt{\psi^2 + \delta E_c / E} \right). \quad (48)$$

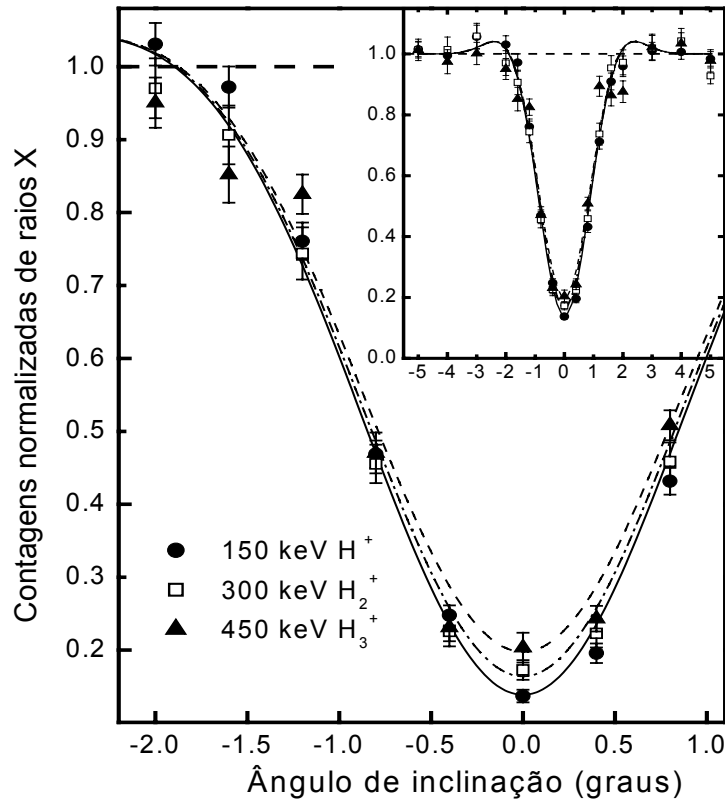


Figura 32: Medidas de emissão de raios X induzidos por feixes de H⁺, H₂⁺ e H₃⁺ em Si como função do ângulo de inclinação. A figura enfatiza as medidas próximas ao centro do canal. As curvas são ajustes com gaussianas. O espectro completo é mostrado na figura menor.

Dessa forma, temos os resultados obtidos para o valor do aquecimento de Coulomb mostrados na tabela abaixo, onde t é a profundidade de penetração antes do aquecimento de Coulomb e TBM representa o resultado obtido através do modelo de dois feixes, detalhado no apêndice D. Os resultados mais precisos, e empregados para a elaboração dos valores finais do aquecimento de Coulomb, estão na linha inferior da tabela. Todos os valores estão em elétron-volts. Evidentemente, o procedimento simplificado para a análise de dados de raios X não leva em

conta a profundidade da manifestação da explosão coulombiana. Assim, os dados da primeira coluna não se aplicam para o retardo de 400 Å da explosão coulombiana.

t (Å)	H ₂ raios X (eq.(47))	H ₃ raios X (eq.(47))	H ₂ RBS (TBM)	H ₃ RBS (TBM)	H ₂ raios X (TBM)	H ₃ raios X (TBM)
0	1.8 ± 1.0 eV	4.8 ± 2.0 eV	2.9 ± 0.7 eV	4.4 ± 1.0 eV	1.5 ± 1.0 eV	4.7 ± 2.0 eV
400	n. a.	n. a.	3.0 ± 1.0	5.0 ± 1.0 eV	2.0 ± 1.0 eV	5.9 ± 2.0 eV

O resultado final do procedimento, após aplicado para o número de contagens de raios X e para os espectros de RBS, mostra que o acréscimo da energia transversal do movimento dos íons devido à explosão coulombiana vale 2.6 ± 0.6 eV para H₂⁺ e 5.1 ± 0.8 eV para H₃⁺, resultados estes obtidos por meio da expressão (48) e compatíveis com os resultados da simulação mostrados na seção introdutória.

6.3. Resultados da análise por reação nuclear (NRA)

Para a análise por reação nuclear, empregou-se uma amostra similar de SIMOX com espessura de 1600 angstroms de Si-c e com uma camada de óxido de silício enriquecida com ¹⁸O. A amostra foi, então, alinhada com o feixe utilizando-se a técnica de RBS/c e, assim, a análise por reação nuclear foi feita com feixes de H⁺ e H₂⁺ em condição de canalização e de não alinhamento. Os resultados estão representados na Figura 33 e na Figura 34, onde podemos notar que a diferença entre os resultados de H⁺ em condição alinhada e não alinhada é essencialmente uma translação dos valores de energia da borda associada à interface Si/SiO₂. Um resultado semelhante pode ser visto para H₂⁺. Comparando-se os resultados entre H⁺ e H₂⁺, nota-se, tanto no caso alinhado quanto no caso não alinhado, para o feixe molecular, um alargamento da borda da interface. Esse alargamento se deve à explosão coulombiana longitudinal, que acrescenta uma largura em energia ao feixe no interior da amostra.

Através das diferenças de posição de energia entre o pico e a borda (ΔE_{sf}), pode-se encontrar valores para a contribuição média dos efeitos de vizinhança e do aquecimento de Coulomb para a perda de energia. Para isso, são feitas as seguintes definições, bem como os resultados obtidos:

$$\begin{aligned}
\delta\Delta E_{sf}^{chan} &= \Delta E_{sf}^{chan}(H_2) - \Delta E_{sf}^{chan}(H) = 532 \pm 81 \text{ eV} / \text{amu} \\
\delta\Delta E_{sf}^{ran} &= \Delta E_{sf}^{ran}(H_2) - \Delta E_{sf}^{ran}(H) = 331 \pm 74 \text{ eV} / \text{amu} \\
\delta\Delta E_{sf}^{Flux-peaking1} &= \Delta E_{sf}^{ran}(H) - \Delta E_{sf}^{chan}(H) = 1200 \pm 75 \text{ eV} / \text{amu} \\
\delta\Delta E_{sf}^{Flux-peaking2} &= \Delta E_{sf}^{ran}(H_2) - \Delta E_{sf}^{chan}(H_2) = 999 \pm 81 \text{ eV} / \text{amu} \quad (49)
\end{aligned}$$

Vicinage em 1600 Å: $331 \pm 74 \text{ eV} / \text{amu}$

Aquecimento em 1600 Å: $201 \pm 110 \text{ eV}$

A primeira linha fornece os efeitos de vizinhança e do aquecimento de Coulomb juntos (é importante lembrar que, enquanto a explosão coulombiana acontece em qualquer condição de alinhamento entre o feixe e o alvo cristalino, seus efeitos sobre o fluxo de íons no canal somente podem acontecer em condição canalizada, visto que, se o fluxo de íons fosse uniforme, como no caso não alinhado, a explosão coulombiana não alteraria tal uniformidade). A segunda linha fornece somente o efeito de vizinhança, visto que, no caso não alinhado, não há efeito do aquecimento de Coulomb sobre a distribuição de fluxo de íons, que permanece uniforme. A terceira e a quarta linhas fornecem o efeito da formação do *flux peaking* sobre a perda de energia. Considerando-se o efeito de vizinhança independente da orientação do feixe [10], subtraindo-se o resultado da segunda linha do resultado da primeira, resta o efeito total da explosão coulombiana sobre a perda de energia. Usando-se dados de perda de energia em condição não alinhada de Konac et al. [72], pode-se estimar o comprimento da camada cristalina pela medida de H^+ em condição não alinhada e, levando-se isso em conta, obter-se os valores médios para os efeitos de vizinhança e do aquecimento de Coulomb. Além disso, para o cálculo da média do efeito da explosão coulombiana, os primeiros 400 angstroms são excluídos, pois a alteração de fluxo devido à explosão é desprezível antes dessa profundidade (Apêndice D).

Assim, os resultados obtidos foram $0.17 \pm 0.09 \text{ eV} / \text{Å}$ para o efeito médio do aquecimento de Coulomb e $0.21 \pm 0.05 \text{ eV} / \text{Å}$ para o efeito de vizinhança médio. Nota-se que a contribuição sobre a perda de energia devido ao efeito da explosão coulombiana é compatível com o correspondente resultado encontrado nas medidas de RBS/c.

Outra informação que pode ser extraída destas curvas é o componente longitudinal da explosão coulombiana. Isso pode ser visto pelas larguras da distribuição. A partir dos experimentos, temos os seguintes valores para os *stragglings* (larguras): $\sigma(H^{chan}) = 1479 \pm 58 \text{ eV}$, $\sigma(H^{ran}) = 1617 \pm 60 \text{ eV}$, $\sigma(H_2^{chan}) = 2175 \pm 64 \text{ eV}$ e $\sigma(H_2^{ran}) = 1803 \pm 57 \text{ eV}$. Por si sós, estes

resultados já mostram a já falada intensificação do componente longitudinal da explosão coulombiana na condição canalizada para o feixe de H_2^+ . O *straggling* total chega a superar, para o feixe canalizado de H_2^+ , o *straggling* do mesmo feixe em condição não alinhada. É o comportamento oposto ao comportamento para os feixes de H^+ . É uma indicação da tendência de alinhamento adicional do feixe de íons molecular pelo efeito de canalização, antes ou durante a explosão coulombiana, além da intensificação do *straggling* que seria naturalmente possível pela explosão coulombiana isotrópica.

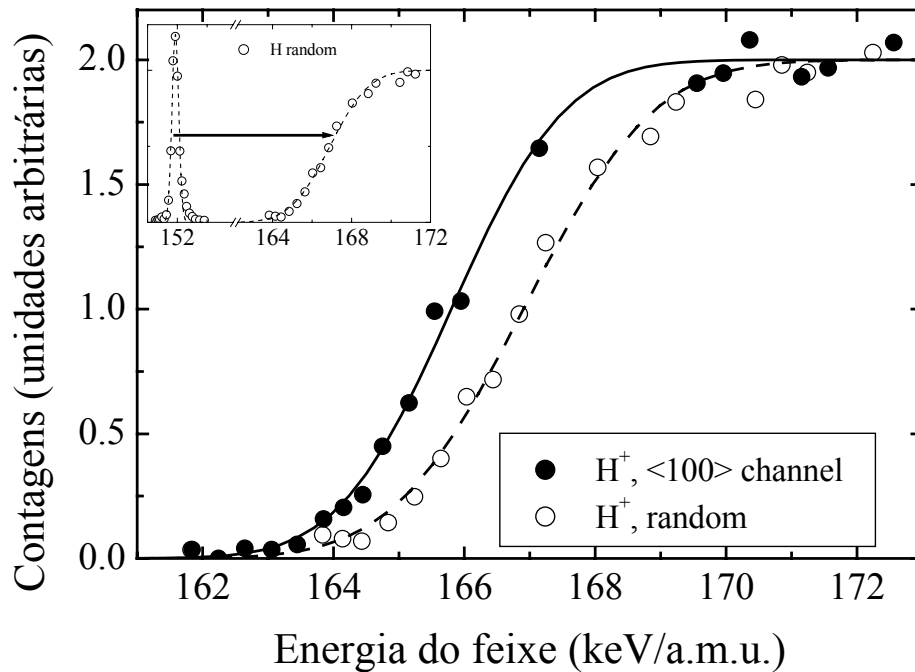


Figura 33: Resultados das análises por reação nuclear ressonante realizadas em uma mesma amostra com feixes de H^+ em condição alinhada e em condição não alinhada. Em primeiro plano, vemos as bordas associadas à interface Si-c / SiO_2 . No canto, está representada uma das curvas de excitação completas, mostrando o pico associado à superfície e a borda de interface. As linhas correspondem a ajustes com gaussianas (para o pico) e funções erro (para as bordas).

No caso dos *straggling*s dos feixes moleculares (σ_2), pode-se considerá-los como o resultado de uma soma de quadratura do *straggling* dos feixes atômicos (σ_1) com um termo decorrente do efeito da explosão coulombiana longitudinal (δE_p), ou seja, $\sigma_2 = \sqrt{\sigma_1^2 + (\delta E_p)^2}$. Assim sendo, a

partir dos dados experimentais e fazendo-se $\delta E_p = \sqrt{\sigma_2^2 - \sigma_1^2}$, temos que o valor do termo da explosão longitudinal vale 1.595 ± 0.103 keV para o caso canalizado e 0.798 ± 0.177 keV para o caso não alinhado.

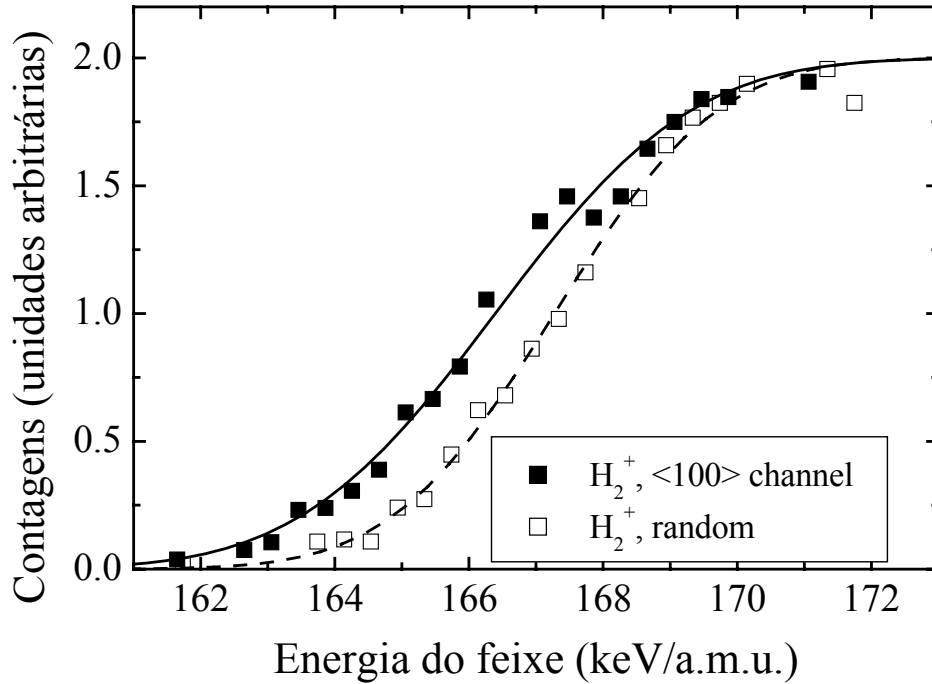


Figura 34: Resultados das análises de reação nuclear para feixes de H₂⁺ em condição não alinhada e canalizada. Em comparação com os resultados para H⁺, nota-se que o feixe molecular apresenta larguras mais pronunciadas na distribuição.

Uma análise dos resultados dos *stragglings* pode ser feita com base na energia cinética total dos íons ao longo do movimento longitudinal:

$$\Delta E_p = U_0 \cos^2 \theta + 2\sqrt{E_0 U_0} \cos \theta, \quad (50)$$

onde U_0 é a energia potencial armazenada pela molécula por partícula, E_0 é a energia inicial do feixe e θ é o ângulo entre a direção do movimento do feixe e a direção seguida pelo fragmento da molécula sob explosão no referencial centro de massa. Seja, agora, $\Delta E_p = E_p - E_0$. A média angular de ΔE_p é $U_0 / 3$, como esperado, e, para a molécula de H₂, tal valor é tipicamente muito menor do que as energias envolvidas do feixe. Assim, a explosão praticamente não altera o valor da

diferença de energia entre o pico de superfície e a borda do SiO₂. Já a variância de ΔE_p , desprezando-se termos da ordem de $(U_0/E_0)^2$, é dada por:

$$\sqrt{\langle \Delta E_p^2 \rangle_\Omega - \langle \Delta E_p \rangle_\Omega^2} \approx \frac{2\sqrt{3}}{3} \sqrt{E_0 U_0}. \quad (51)$$

Os valores da variância deverão ser, assim, comparados com os valores δE_p obtidos experimentalmente. O valor da energia armazenada U_0 pode ser obtido por duas expressões: ou pelo potencial coulombiano ou pelo potencial de Yukawa que, por sua vez, leva em conta o fato de que a molécula está imersa em um sólido. Dessa forma, encontra-se para a variância, via potencial de Yukawa, o valor de 0.848 keV, valor este em notável concordância com δE_p encontrado na condição não alinhada. No entanto, o valor experimental de δE_p para a condição canalizada não pode ser reproduzido nem mesmo empregando-se o potencial coulombiano puro se a suposição da explosão coulombiana isotrópica for mantida. Neste caso, a análise dos resultados de *straggling* em condição canalizada pode ser feita à luz dos valores estimados do *straggling* para uma explosão puramente longitudinal:

$$\Delta E_l \approx 2\sqrt{E_0 U_0}. \quad (52)$$

Para o potencial de Coulomb, este valor é aproximadamente 1.95 keV, ao passo que, para o potencial de Yukawa, temos 1.469 keV. O valor elevado de δE_p para a condição canalizada pode ser atribuído, assim, a uma combinação de dois fatores: primeiro, algum efeito extrínseco de alinhamento da molécula durante a explosão, provavelmente induzida pela canalização e, segundo, a uma redução da blindagem do potencial de Yukawa em condição canalizada, visto que a densidade eletrônica do alvo é menor próximo ao centro do canal, onde se encontra a maior parte dos íons canalizados.

Em resumo, foram feitos experimentos de RBS, PIXE e NRA para a determinação do acréscimo médio da energia transversal dos íons (PIXE e RBS) e para a separação e quantificação dos efeitos de vizinhança e do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia. Os resultados se mostraram consistentes, mesmo dada a natureza distinta dos experimentos empregados.

7. Conclusões

Os resultados finais do trabalho reiteram a importância das propriedades não-aditivas da interação de moléculas com a matéria, devido à interferência entre os íons que compõem o projétil e devido aos efeitos decorrentes da explosão coulombiana, tanto no caso canalizado (aquecimento de Coulomb) quanto na condição não canalizada (alterações do *straggling*). Pela primeira vez, foi feita uma separação sistemática destes dois efeitos.

O trabalho se subdividiu em três grandes frentes: a frente teórica, a frente experimental e a frente computacional. Cada uma das frentes permitiu uma melhor compreensão das demais, e uma melhor compreensão dos efeitos de feixes moleculares em alvos cristalinos.

No trabalho teórico, foram obtidos resultados da transferência molecular de energia por parâmetro de impacto por cálculos *ab-initio*. Eles mostram tanto a existência dos termos de interferência quanto, no caso dos cálculos de canais acoplados, a presença de fenômenos de ordens altas, como o efeito Barkas (em especial, para íons moleculares alinhados à direção do movimento em baixas velocidades), o efeito *slingshot* (para íons moleculares alinhados e rápidos) que induz a uma grande redução da perda de energia e o efeito de antiligação (que produz resultados inversos aos do efeito Barkas para baixos parâmetros de impacto e é intensificado para o caso de íons moleculares transversalmente alinhados com relação à direção do movimento). Ao mesmo tempo, duas expressões simplificadas para a transferência de energia entre um íon molecular e um átomo alvo como função do parâmetro de impacto (MPCA e MUCA) foram obtidas. A concordância entre MPCA e o cálculo SCA completo (envolvendo milhares de estados) é muito boa. Já o modelo MUCA contém, além dos termos de primeira ordem, alguns dos termos de ordens mais altas. Nessas expressões, de uma forma semelhante às expressões de Arista [10], pode-se distinguir claramente a soma de termos associados à transferência de energia de cada íon como se estivesse isolado e a soma que origina os termos de interferência. Esta última explica os efeitos de vizinhança da transferência de energia entre o aglomerado e o único átomo alvo. Outro dado importante dos cálculos MPCA e MUCA, apesar de utilizar somente a aproximação de dipolo, e não todos os termos da expansão multipolar do potencial de Coulomb, é a junção dos termos de dipolo com os termos de colisões próximas. Desta forma, obteve-se, pela primeira vez, uma expressão de transferência de energia por parâmetro de impacto para íons moleculares. Esta

expressão é válida para todos os parâmetros de impacto, e não apenas para colisões distantes como no trabalho de Jensen. E, no caso do modelo MUCA, é válida também para maiores valores de carga do projétil e para menores velocidades.

No trabalho experimental, com o uso da análise de emissão de raios X induzidos por partículas (PIXE), em conjunto com uma medida simultânea e posterior análise de RBS/c, obteve-se, pela primeira vez, um valor para o aumento da energia transversal do feixe de íons moleculares devido à explosão coulombiana. Estes valores são 2.6 ± 0.6 eV para H_2^+ e 5.1 ± 0.8 eV para H_3^+ . Tais valores não são compatíveis com os valores que seriam esperados se o potencial entre os íons fosse puramente coulombiano, mas são compatíveis com os valores obtidos através do emprego do potencial de Yukawa. Dessa forma, os resultados de PIXE fornecem uma medida direta da blindagem que o sólido induz aos íons, uma vez que, às velocidades empregadas, os íons têm pouca probabilidade de manter elétrons ligados a eles.

Obteve-se, com o uso da técnica de RBS/c, a perda de energia de H_n^+ em Si como função do ângulo entre o feixe e o canal $\langle 100 \rangle$ de Si. Ficam claros os efeitos da explosão coulombiana sobre a perda de energia com o progressivo aumento da perda de energia com o tamanho da molécula no centro do canal, devido ao aumento da energia armazenada na molécula sob a forma de energia de ligação que, durante a dissociação da molécula, transforma-se em energia cinética. O emprego da regra de compensação angular de Lindhard permitiu, ainda, a quantificação desse efeito fornecendo os valores de 0.18 eV /Å para H_2^+ e 0.49 eV /Å para H_3^+ , com erro de 0.05 eV /Å.

Finalmente, a análise de reação nuclear permitiu obter um valor médio para o efeito de vizinhança sobre a perda de energia para o feixe de H_2^+ em Si, cerca de 0.21 ± 0.05 eV /Å, além de fornecer um valor para o efeito causado pelo aquecimento de Coulomb de cerca de 0.17 ± 0.09 eV /Å, compatível, portanto, com o resultado mais preciso obtido via RBS/c. O resultado dos *stragglings* para feixes monoatômicos mostram, como esperado, o *stragglings* em condição não canalizada maior do que o *stragglings* em condição canalizada. No entanto, os resultados dos *stragglings* para feixes moleculares em condição não canalizada se mostraram menores do que no caso canalizado, indicando a presença de alinhamento da molécula sob condição canalizada. Considerando-se o potencial de Yukawa, temos que o valor do componente longitudinal da explosão coulombiana fornece resultados de *stragglings* compatíveis com os experimentos.

Com isso, têm-se estes experimentos integrando, a partir de agora, o elenco de resultados experimentais para a interação entre moléculas e sólidos cristalinos na literatura.

Nas simulações, o grande elo de ligação entre o trabalho teórico e o experimental, obteve-se resultados para a alteração do fluxo de íons devido à explosão coulombiana e resultados para o

aumento da energia associada ao movimento transversal dos íons. Fica estabelecido que, para moléculas de H_2^+ e H_3^+ a 150 keV / u.m.a., os valores para o incremento da energia associada ao movimento transversal são 2.5 eV para H_2^+ e 4.5 eV para H_3^+ , com erro de 0.2 eV. Estes valores são inferiores aos que seriam encontrados se o potencial entre os íons fosse coulombiano, evidenciando a importância da blindagem induzida pelo sólido. Fica clara, ainda, a importância da explosão coulombiana como redutor do *flux peaking*. Uma inspeção rápida da Figura 25 mostra como, para as partículas confinadas ao centro do canal, um aumento de 0.15 unidades atômicas de energia transversal (cerca de 4.5 eV) causa um aumento dramático na área permitida ao movimento transversal das partículas, enquanto que, para partículas que já se situem longe do canal, um aumento médio de 4.5 eV não causa conseqüências tão dramáticas sobre a área já permitida. Por serem os resultados experimentais de medida de aquecimento de Coulomb compatíveis com os resultados das simulações, pode-se inferir que a distribuição de fluxo de íons no interior do canal tem um comportamento compatível com o observado nos experimentos. Ao mesmo tempo, os resultados das simulações para a determinação do efeito do aquecimento de Coulomb sobre a perda de energia foram obtidos para três potenciais distintos. Os valores resultantes, considerando-se uma profundidade de 1600 Å, são 0.036 eV /Å, considerando-se o potencial de *wake*, 0.052 eV /Å para o potencial de Yukawa e 0.064 eV /Å para a simulação sem o potencial de *wake*. Levando-se em conta a barra de erro dos experimentos de reação nuclear, os valores do efeito do aquecimento de Coulomb usando-se potenciais de Yukawa e Coulomb são compatíveis com os valores medidos. Já para a profundidade de 4000 Å, temos, para o potencial internuclear de *wake*, o valor do efeito do aquecimento de Coulomb de 0.043 eV /Å, para o potencial de Yukawa temos 0.056 eV /Å e para a explosão coulombiana pura temos 0.071 eV /Å. Apesar de a profundidade ter sido praticamente triplicada nesta segunda simulação, os valores do efeito de aquecimento de Coulomb se alteraram em uma escala muito menor, mostrando que a alteração de fluxo de íons perdura por todo o comprimento de penetração. Ou seja, maiores espessuras da camada de Si-c, se usadas em um experimento de NRA, por exemplo, mostrariam uma diferença ainda maior entre as energias da borda de $Si^{18}O_2$ para H^+ e para H_2^+ do que as reveladas neste trabalho, ao passo que o efeito total de vizinhança manter-se-ia praticamente o mesmo.

Com isso, realizou-se um trabalho de pesquisa sobre os efeitos da penetração de íons moleculares em alvos cristalinos. Pela primeira vez, os valores da explosão coulombiana foram quantificados, bem como seus efeitos sobre a perda de energia foram separados dos efeitos de vizinhança. Além do mais, investigou-se efeitos de altas ordens de interação de moléculas com a matéria

8. Apêndice A: o cálculo do modelo MPCA

8.1. Aproximação de dipolo

Para o modelo de dipolo, suponhamos que o íon (ou, como no presente caso, o aglomerado de íons) efetue uma colisão com um átomo alvo a valores de parâmetros de impacto suficientemente grandes com relação às dimensões da nuvem eletrônica do alvo. Assim sendo, os termos individuais do potencial induzido pelo aglomerado sofrerão a seguinte expansão:

$$V_i \left(\left| \vec{r} - \vec{R}_i(t) \right| \right) \approx V_i \left(R_i(t) \right) + \vec{r} \cdot \nabla_r V_i \left(\left| \vec{r} - \vec{R}_i(t) \right| \right) \Big|_{\vec{r}=\vec{0}} \quad (53)$$

Devido à ortogonalidade dos estados, o termo da expansão do potencial que independe de \vec{r} não será usado, pois os elementos de matriz a ele associados serão nulos exceto se o estado final for igual ao inicial (mas, neste caso, $\omega_{\beta 0} = 0$, assim não haverá nenhuma contribuição para a perda de energia por parte deste termo).

Desse modo, passamos a ter a amplitude de probabilidade dependendo da transformada de Fourier do campo elétrico e de elementos de matriz do operador posição:

$$a_\beta = \sum_{j=1}^N i \langle \beta | \vec{r} | 0 \rangle \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp \left[i(\varepsilon_\beta - \varepsilon_0) t \right] \vec{E}_j \left(b_j, t \right) = i \sum_{j=1}^N \langle \beta | \vec{r} | 0 \rangle \cdot \hat{\vec{E}}_j \left(b_j, \omega_{\beta 0} \right) \quad (54)$$

Os elementos de matriz podem ser escritos de um modo mais simples levando-se em conta o somatório que aparece na expressão da perda de energia. Para isso, seja um campo elétrico genérico no espaço de Fourier $\hat{\vec{E}} \left(b, \omega_{f_0} \right)$:

$$\begin{aligned} Q^{dipolo} \left(b \right) &= \sum_{\beta} \left| \langle \beta | \vec{r} | 0 \rangle \cdot \hat{\vec{E}} \left(b, \omega_{\beta 0} \right) \right|^2 \omega_{\beta 0} \\ &= \sum_{\beta, i, j} \langle 0 | x_i | \beta \rangle \langle \beta | x_j | 0 \rangle \hat{E}_i^* \left(b, \omega_{\beta 0} \right) \hat{E}_j \left(b, \omega_{\beta 0} \right) \omega_{\beta 0} \end{aligned} \quad (55)$$

Para isso, calculamos os elementos de matriz, separando as partes radial e angular dos estados:

$$\begin{aligned}
\langle \beta | x_i | 0 \rangle &= \int d^3 r \phi_\beta^* (\vec{r}) x_i \phi_0 (\vec{r}) \\
&= \int dr r^2 R_\beta^* (r) r R_0 (r) \int d\Omega Y_{l_\beta}^{m_\beta^*} (\Omega) \hat{e}_i (\Omega) Y_0^0 (\Omega) \\
&= \frac{1}{\sqrt{4\pi}} \int dr r^2 R_\beta^* (r) r R_0 (r) \int d\Omega Y_{l_\beta}^{m_\beta^*} (\Omega) \hat{e}_i (\Omega) \\
&\equiv \frac{1}{\sqrt{4\pi}} R_{\beta 0} \int d\Omega Y_{l_\beta}^{m_\beta^*} (\Omega) \hat{e}_i (\Omega)
\end{aligned} \tag{56}$$

sendo $Y_l^m (\Omega)$ os harmônicos esféricos e sendo o operador da parte angular:

$$\hat{e}_i = \sqrt{\frac{2\pi}{3}} \begin{cases} -Y_1^{1*} (\Omega) - Y_1^1 (\Omega), & \text{para } x_i \\ -iY_1^{1*} (\Omega) + iY_1^1 (\Omega), & \text{para } y_i \\ \sqrt{2} Y_1^{0*} (\Omega) = \sqrt{2} Y_1^0 (\Omega), & \text{para } z_i \end{cases} \tag{57}$$

Podemos ver, assim, que as integrais envolvendo somente termos radiais não permanecem dentro dos somatórios em i e j . Ou seja, o valor da parte radial dos elementos de matriz é o mesmo se o operador é x , y ou z . Desse modo, para a simplificação dos elementos de matriz, basta calcularmos, para dados i e j , os valores de:

$$\sum_\beta |R_{\beta 0}|^2 \int d\Omega Y_{l_\beta}^{m_\beta^*} (\Omega) \hat{e} (\Omega) \int d\Omega' Y_{l_\beta}^{m_\beta} (\Omega') \hat{e}^* (\Omega') \hat{E}_i^* (b, \omega_{\beta 0}) \hat{E}_j (b, \omega_{\beta 0}) \omega_{\beta 0} \tag{58}$$

Dessa expressão, pode-se mostrar que a soma vale zero se $i \neq j$ e vale $2R_{\beta 0} \beta \rightarrow (\epsilon_\beta, l_\beta)$ caso contrário, novamente não importando se o operador é x , y ou z . Resta, assim:

$$\begin{aligned}
Q^{dipolo}(b) &= \sum_{\beta, i} \langle 0 | x_i | \beta \rangle \langle \beta | x_i | 0 \rangle \hat{E}_i^*(b, \omega_{\beta 0}) \hat{E}_i(b, \omega_{\beta 0}) \omega_{\beta 0} = \\
&= \sum_{\beta} \langle 0 | z | \beta \rangle \langle \beta | z | 0 \rangle \omega_{\beta 0} \sum_i \hat{E}_i^*(b, \omega_{\beta 0}) \hat{E}_i(b, \omega_{\beta 0}) = \\
&= \sum_{\beta} |\langle \beta | z | 0 \rangle|^2 \omega_{\beta 0} |\hat{E}(b, \omega_{\beta 0})|^2
\end{aligned} \tag{59}$$

Podemos, assim, escrever a expressão da perda de energia de uma forma mais simplificada como:

$$Q^{dipolo}(b) = \frac{1}{2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left| \hat{E}(b, \omega_{\beta 0}) \right|^2 \tag{60}$$

onde $f_{\beta} = 2 |\langle \beta | z | 0 \rangle|^2 (\epsilon_{\beta} - \epsilon_0)$.

Com isso, resta agora calcularmos a transformada de Fourier do campo elétrico. Os elementos de matriz estão definidos em termos de valores de forças de oscilador, tabelados.

No nosso problema, temos dois potenciais individuais para levarmos em conta: o potencial de um núcleo de H e o potencial do outro. Eles estão separados por uma distância definida como $2d$. Todas as grandezas sem índice corresponderão ao centro da molécula.

Assim, podemos escrever:

[1]

$$\vec{R}_i = \vec{v}t + \vec{b} + \vec{d}_i = \vec{b}_i \vec{e}_\rho + (vt + d_{iz}) \vec{e}_z \tag{61}$$

[2]

Onde \vec{d}_i é o vetor que une o ponto do centro de massa do aglomerado ao i -ésimo íon que o compõe e \vec{b}_i é o parâmetro de impacto individual do i -ésimo íon. Maiores detalhes estão mostrados na Figura 15.

8.1.1. Potencial de Bohr

Com isso, o nosso primeiro potencial perturbativo passa a ser o potencial com blindagem de

Bohr. É o potencial de uma carga puntiforme imersa em um gás de elétrons e é dado pela seguinte expressão:

$$V = -\sum_{i=1}^N \frac{Z_i \exp(-\alpha_i |\vec{r} - \vec{R}_i|)}{\sqrt{(x-b-d_{ix})^2 + (y-d_{iy})^2 + (z-vt-d_{iz})^2}} \quad (62)$$

Os parâmetros α_i podem ser obtidos a partir do comprimento de blindagem de Debye [73] ou da generalização da regra de soma de Friedel [62] para velocidades finitas.

Ainda de acordo com a aproximação de dipolo, podemos escrever a parte coulombiana dos potenciais usando a seguinte expansão:

$$\frac{1}{|\vec{r} - \vec{R}_i(t)|} \approx \frac{1}{R_i \left(1 - 2 \frac{\vec{r} \cdot \vec{R}_i}{R_i^2}\right)^{1/2}} \approx \frac{1}{R_i} \left(1 + \frac{\vec{r} \cdot \vec{R}_i}{R_i^2}\right) \quad (63)$$

Resta, assim, o campo elétrico dado por:

$$\vec{E} \approx -\sum_{i=1}^N \left(\frac{Z_i e^{-\alpha_i \sqrt{(vt+d_i \cos \theta_i)^2 + b_i^2}} \left[1 + \alpha_i \sqrt{(vt+d_i \cos \theta_i)^2 + b_i^2}\right] \vec{R}_i}{\left[(vt+d_i \cos \theta_i)^2 + b_i^2\right]^{3/2}} \right) \quad (64)$$

Assim, temos todos os ingredientes para calcularmos a perda de energia para colisões distantes.

Para o cálculo da transformada de Fourier, fazemos a separação do campo elétrico em componentes transversal ao movimento e paralelo ao movimento (que, por definição, ocorre ao longo da direção z do sistema de referência adotado).

Com isso, temos que a transformada de Fourier do campo na direção transversal é dada por:

$$\hat{\vec{E}}_{\perp}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2}{v} \sum_{j=1}^N \left[Z_j e^{-i \frac{\omega_{\beta 0} d_j \cos \theta_j}{v}} \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0}}{v}\right)^2 + \alpha_j^2} K_1 \left(b_j \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0}}{v}\right)^2 + \alpha_j^2} \right) \frac{\vec{b}_j}{b_j} \right] \quad (65)$$

Reescrevemos o campo elétrico usando a definição:

$$g_{\perp}(b_i) = \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2} K_1 \left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2} \right) \quad (66)$$

onde K_1 é uma função de Bessel.

Com isso, o campo pode ser escrito de uma forma abreviada:

$$\hat{E}_{\perp}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2}{v} \sum_{j=1}^N Z_j \left[\exp\left(-i \frac{\omega_{\beta 0} d_j \cos \theta_j}{v}\right) \frac{g_{\perp}(b_j) \vec{b}_j}{b_j} \right] \quad (67)$$

Assim, repetindo-se o procedimento temos, na direção paralela (sendo K_0 uma outra função de Bessel):

$$\hat{E}_{\parallel}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2i}{v} \left(\frac{\omega_{\beta 0}}{v}\right) \sum_{j=1}^N \left[Z_j \exp\left(-i \frac{\omega_{\beta 0} d_j \cos \theta_j}{v}\right) K_0 \left(b_j \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0}}{v}\right)^2 + \alpha_j^2} \right) \right] \quad (68)$$

Ou, com uma definição análoga à usada no caso transversal:

$$g_{\parallel}(b_i) = \left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) K_0 \left(b_i \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0}}{v}\right)^2 + \alpha_i^2} \right) \quad (69)$$

Resta-nos:

$$\hat{E}_{\parallel}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2i}{v} \sum_{j=1}^N Z_j \left[\exp\left(-i \frac{\omega_{\beta 0} d_j \cos \theta_j}{v}\right) \frac{g_{\parallel}(b_j)}{b_j} \right] \quad (70)$$

Agora, basta fazermos $\left| \hat{E}(b_1, b_2, \omega_{\beta 0}) \right|^2 = \left| \hat{E}_{\parallel}(b_1, b_2, \omega_{\beta 0}) \right|^2 + \left| \hat{E}_{\perp}(b_1, b_2, \omega_{\beta 0}) \right|^2$ e teremos o módulo quadrado do campo no espaço de Fourier:

$$\begin{aligned} \left| \hat{E}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) \right|^2 = & \frac{4}{v^2} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + 2 \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \frac{\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{b_i b_j} \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \frac{g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j)}{b_i b_j} \right] + \\ & \frac{4}{v^2} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} + 2 \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \frac{g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right] \end{aligned} \quad (71)$$

onde $d_{ijz} = d_i \cos \theta_i - d_j \cos \theta_j$.

Com isso, a perda de energia por parâmetro de impacto para colisões distantes, segundo a aproximação de dipolo para função de blindagem de Bohr, vale:

$$\begin{aligned} Q^{dipolo}(\vec{b}) = & \frac{2}{v^2} \sum_b f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) + 2 \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\ & \left. \left(\frac{\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{b_i b_j} \frac{g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j)}{b_i b_j} + \frac{g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right) \right] \end{aligned} \quad (72)$$

8.1.2. Potencial “single-zeta”

O potencial “single-zeta” é o potencial induzido por um núcleo atômico que tenha um ou até dois elétrons. Considera-se, para efeito de cálculo, que a eletrosfera do projétil não sofre alterações devido à colisão com o alvo. O potencial, assim, é dado por:

$$V_i(\vec{r} - \vec{R}(t)) = - \frac{(Z_i - n_i)}{|\vec{r} - \vec{R}_i|} - n_i \left[1 + \frac{\alpha_i |\vec{r} - \vec{R}_i|}{2} \right] \frac{\exp(-\alpha_i |\vec{r} - \vec{R}_i|)}{|\vec{r} - \vec{R}_i|} \quad (73)$$

Neste caso, n_i é o número de elétrons em torno do projétil (este potencial fornece bons resultados para $n_i = 1$ ou 2) e $\alpha_i = 2Z_{ef}$, onde Z_{ef} é a carga efetiva do íon.

Novamente usando a aproximação de dipolo, temos de obter a transformada de Fourier do campo elétrico (rigorosamente, da força) obtido do potencial “single-zeta” na vizinhança de $\vec{r} = \vec{0}$.

Como muitos passos do cálculo da perda de energia para o potencial single-zeta são análogos aos feitos para o potencial de Bohr, serão tratadas somente as diferenças entre os dois cálculos. O campo na direção paralela ao movimento, neste caso, vale:

$$E_{\parallel}(b, t) = -\sum_{j=1}^N \frac{(Z_j - n_j)(vt + d_{jz})}{\left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right]^{\frac{3}{2}}} - \frac{n_j e^{-\alpha_j \sqrt{b_j^2 + (vt + d_{jz})^2}} (vt + d_{jz})}{\left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right]^{\frac{3}{2}}} \times \left\{ 1 + \alpha_j \sqrt{b_j^2 + (vt + d_{jz})^2} + \frac{\alpha_j^2}{2} \left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right] \right\} \quad (74)$$

E, quanto à direção transversal, temos:

$$\vec{E}_{\perp}(b, t) = -\sum_{j=1}^N \frac{(Z_j - n_j) \vec{b}_j}{\left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right]^{\frac{3}{2}}} - \frac{n_j e^{-\alpha_j \sqrt{b_j^2 + (vt + d_{jz})^2}} \vec{b}_j}{\left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right]^{\frac{3}{2}}} \times \left\{ 1 + \alpha_j \sqrt{b_j^2 + (vt + d_{jz})^2} + \frac{\alpha_j^2}{2} \left[b_j^2 + (vt + d_{jz})^2\right] \right\} \quad (75)$$

A definição de b_j é análoga à usada para o caso de potencial de Bohr e, novamente, $d_{iz} \equiv d_i \cos \theta_i$.

Após o cálculo das integrais, adotamos a seguinte definição:

$$\mathbf{g}_{\perp}(b_i) = \left(1 - \frac{n_i}{Z_i}\right) \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_1\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) + \frac{n_i}{Z_i} \frac{(\alpha_i b_i)^2}{2} K_0\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2}\right) + \frac{n_i}{Z_i} \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2} K_1\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2}\right) \quad (76)$$

Com isso, o campo transversal, no espaço de Fourier, é escrito como:

$$\vec{E}_{\perp}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2}{v} \sum_{j=1}^N Z_j \left(\frac{e^{-i\omega_{\beta 0} \frac{d_{jz}}{v}} \vec{b}_j}{b_j} \frac{\vec{b}_j}{b_j} \mathbf{g}_{\perp}(b_j) \right) \quad (77)$$

Calculando as integrais, resta:

$$\begin{aligned} \hat{E}_{\parallel}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = & -\frac{2}{vb_1} \exp\left(-i\omega_{\beta 0} \frac{d_{1z}}{v}\right) \times \\ & \left\{ (Z_1 - n_1) \frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v} K_0\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v}\right) + n_1 \frac{\omega_f b_1}{v} K_0\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v}\right)^2 + (\alpha_1 b_1)^2}\right) + \right. \\ & \left. + \frac{n_1 (\alpha_1 b_1)^2}{2} \frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v} K_1\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v}\right)^2 + (\alpha_1 b_1)^2}\right) / \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_1}{v}\right)^2 + (\alpha_1 b_1)^2} \right\} \end{aligned} \quad (78)$$

Definimos, agora, uma nova função auxiliar:

$$\begin{aligned} g_{\parallel}(b_i) = & \left(1 - \frac{n_i}{Z_i}\right) \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_0\left(\frac{\omega_f b_i}{v}\right) + \frac{n_i}{Z_i} \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_0\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2}\right) + \\ & + \frac{n_i (\alpha_i b_i)^2}{2Z_i} \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_1\left(\sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2}\right) / \sqrt{\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right)^2 + (\alpha_i b_i)^2} \end{aligned} \quad (79)$$

Com isso, temos, no espaço de Fourier, o campo paralelo associado à molécula dado por:

$$\hat{E}_{\parallel}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) = -\frac{2}{v} \sum_{j=1}^N Z_j \left(\frac{e^{-i\omega_{\beta 0} \frac{d_{jz}}{v}}}{b_j} g_{\parallel}(b_j) \right) \quad (80)$$

Tendo agora os dois componentes do campo explícitos, podemos obter o módulo quadrado do campo transformado. Como os dois componentes são ortogonais, basta tomarmos a soma dos módulos quadrados de cada componente.

Temos, no final, uma expressão totalmente análoga à expressão obtida a partir do potencial de Bohr, tendo somente diferentes funções g_{\perp} e g_{\parallel} :

$$\begin{aligned} \left| \hat{E}(\vec{b}, \omega_{\beta 0}) \right|^2 &= \frac{4}{v^2} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + 2 \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \frac{\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{b_i b_j} \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \frac{g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j)}{b_i b_j} \right] + \\ &\frac{4}{v^2} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} + 2 \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \frac{g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right] \end{aligned} \quad (81)$$

Desse modo, a perda de energia por parâmetro de impacto para o modelo de dipolo aplicado ao potencial “single-zeta” vale:

$$\begin{aligned} Q^{dipolo}(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) + \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\ &\left. \left(\frac{2\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{b_i b_j} \frac{g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j)}{b_i b_j} + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right) \right] \end{aligned} \quad (82)$$

ou seja, precisamente a mesma estrutura vista para a expressão derivada a partir do potencial de Bohr, na equação (72).

Tanto para o potencial “single-zeta” quanto para o potencial de Bohr, pode-se escrever uma expressão para o potencial de Coulomb se, no caso do potencial de Bohr, calcularmos o limite $\alpha_i \rightarrow 0$ e se, no caso do potencial “single-zeta”, fizermos $\alpha_i \rightarrow 0$ e $n_i = 0$. Nesse caso, as funções auxiliares passam a ser

$$g_{\perp}^c(b_i) = \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_1\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) \quad (83)$$

e

$$g_{\parallel}^c(b_i) = \frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v} K_0\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) \quad (84)$$

com os resultados para a perda de energia mantendo a mesma estrutura vista nos dois casos anteriores.

8.2. Aproximação de colisões próximas

Passamos aos cálculos com colisões próximas. Para isso, usa-se a seguinte aproximação para a função de onda, dentro da teoria de perturbação de primeira ordem, que se segue.

Seja $H_0\phi_f = \varepsilon_f\phi_f$, onde H_0 é o hamiltoniano que rege o alvo.

Como condição inicial: $|\psi(t)\rangle = \exp(-i\varepsilon_0 t)|\phi_0\rangle$ antes da perturbação.

Assim, temos, da teoria de perturbação de primeira ordem:

$$\begin{aligned} |\psi(t)\rangle &= e^{-i\varepsilon_0 t} |\phi_0\rangle - i \int_{-\infty}^t dt' e^{i(H_0 - \varepsilon_0)t'} V_p(t') |\phi_0\rangle \\ \langle\psi(t)| &= \langle\phi_0| e^{i\varepsilon_0 t} + i \int_{-\infty}^t dt' \langle\phi_0| V_p(t') e^{-i(H_0 - \varepsilon_0)t'} \end{aligned} \quad (85)$$

Para encontrar a perda de energia, faz-se o cálculo do observável energia transferida:

$$\begin{aligned} Q^{prox}(b) &= \langle\psi(t \rightarrow \infty)| H_0 - \varepsilon_0 |\psi(t \rightarrow \infty)\rangle \\ Q^{prox}(b) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \langle\phi_0| V_p(t'') e^{-i(H_0 - \varepsilon_0)t''} (H_0 - \varepsilon_0) e^{i(H_0 - \varepsilon_0)t'} V_p(t') |\phi_0\rangle \end{aligned} \quad (86)$$

Podemos, agora, trabalhar somente com o integrando dessa expressão e, no final calcular as duas integrais temporais. Neste momento, faz-se a inserção de duas identidades de estados de momentum linear:

$$\begin{aligned} &\langle\phi_0| V_p(t'') e^{-i(H_0 - \varepsilon_0)t''} (H_0 - \varepsilon_0) e^{i(H_0 - \varepsilon_0)t'} V_p(t') |\phi_0\rangle = \\ &\int_{-\infty}^{\infty} d^3 k_1 \int_{-\infty}^{\infty} d^3 k_2 \langle\phi_0| V_p(t'') e^{-i(H_0 - \varepsilon_0)t''} |k_1\rangle \times \\ &\times \langle k_1 | (H_0 - \varepsilon_0) |k_2\rangle \langle k_2 | e^{i(H_0 - \varepsilon_0)t'} V_p(t') |\phi_0\rangle \end{aligned} \quad (87)$$

Após, uma substituição do operador de energia transferida, $H_0 - \varepsilon_0 = (\vec{P} - \vec{P}_0)^2 / 2$, onde todos os termos sem índice zero são operadores quânticos. Como, no sistema atômico de unidades, $\hbar = 1$, temos que $\vec{P} = \vec{K}$. Assim, temos: $\vec{P}|k_i\rangle = \vec{k}_i|k_i\rangle$. Inserindo mais uma identidade, desta vez usando autoestados de posição, e rearranjando os termos, temos:

$$\frac{1}{2} \int d^3 r \int d^3 k_1 \int d^3 k_2 e^{\frac{i}{2}(k_2^2 t' - k_1^2 t'')} \langle \phi_0 | V_p(t'') | k_1 \rangle \langle k_1 | (\vec{P} - \vec{P}_0) | r \rangle \cdot \langle r | (\vec{P} - \vec{P}_0) | k_2 \rangle \langle k_2 | V_p(t') | \phi_0 \rangle \quad (88)$$

Passamos, agora, a trabalhar com os dois termos centrais da integral. Para isso, na representação de coordenadas, temos:

$$\vec{P} - \vec{P}_0 \rightarrow -i \left(\nabla - \frac{\nabla \phi_0}{\phi_0} \right) \quad (89)$$

Assim, temos:

$$\langle k_1 | (\vec{P} - \vec{P}_0) | r \rangle \cdot \langle r | (\vec{P} - \vec{P}_0) | k_2 \rangle = \frac{1}{(2\pi)^3} \left(-i\vec{k}_1 - \frac{\nabla \phi_0^*}{\phi_0^*} \right) \cdot \left(i\vec{k}_2 - \frac{\nabla \phi_0}{\phi_0} \right) \exp \left[i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r} \right] \quad (90)$$

Resta ao integrando:

$$\frac{1}{2(2\pi)^6} \int d^3 k_1 \int d^3 k_2 e^{\frac{i}{2}(k_2^2 t' - k_1^2 t'')} \int d^3 r e^{i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} \times \\ \times \langle \phi_0 | V_p(t'') | k_1 \rangle \left(-i\vec{k}_1 - \frac{\nabla \phi_0^*}{\phi_0^*} \right) \cdot \left(i\vec{k}_2 - \frac{\nabla \phi_0}{\phi_0} \right) \langle k_2 | V_p(t') | \phi_0 \rangle$$

Finalmente, abrimos os últimos colchetes de Dirac na representação de coordenadas, restando:

$$\frac{1}{2(2\pi)^6} \int d^3 k_1 \int d^3 k_2 e^{\frac{i}{2}(k_2^2 t' - k_1^2 t'')} \int d^3 r e^{i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} \times \\ \times \left(-i \int d^3 r_1 \phi_0^*(\vec{r}_1) V(\vec{r}_1, t'') \vec{k}_1 e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} - \frac{\nabla \phi_0^*}{\phi_0^*} \int d^3 r_1 V(\vec{r}_1, t'') e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \phi_0^*(\vec{r}_1) \right) \cdot \quad (91) \\ \cdot \left(i \int d^3 r_2 \phi_0(\vec{r}_2) V(\vec{r}_2, t') \vec{k}_2 e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} - \frac{\nabla \phi_0}{\phi_0} \int d^3 r_2 V(\vec{r}_2, t') e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \phi_0(\vec{r}_2) \right)$$

Nas integrais que contém k_i , fazemos uma integração por partes:

$$\begin{aligned}
& -i \int d^3 r_1 \phi_0^*(\vec{r}_1) V(\vec{r}_1, t'') \vec{k}_1 e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} = \\
& \left[-\phi_0^*(\vec{r}_1) V(\vec{r}_1, t'') e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} \right]_{r_1 \rightarrow \infty} + \int d^3 r_1 \nabla_1 [\phi_0^*(\vec{r}_1) V(\vec{r}_1, t'')] e^{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1} ; \\
& i \int d^3 r_2 \phi_0(\vec{r}_2) V(\vec{r}_2, t') \vec{k}_2 e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} = \\
& \left[-\phi_0(\vec{r}_2) V(\vec{r}_2, t') e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2} \right]_{r_2 \rightarrow \infty} + \int d^3 r_2 \nabla_2 [\phi_0(\vec{r}_2) V(\vec{r}_2, t')] e^{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2}
\end{aligned} \tag{92}$$

Os termos entre colchetes fora das integrais são zero, pois são calculados na região onde a função de onda dos estados ligados e o potencial são ambos nulos, ao passo que a exponencial complexa tem módulo finito.

Agora, explicitamos as integrais em relação aos momenta:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{2(2\pi)^6} \int d^3 r_1 \int d^3 r_2 \int d^3 r \times \\
& \times \left\{ -\frac{\nabla \phi_0^*}{\phi_0^*} V(\vec{r}_1, t'') \phi_0^*(\vec{r}_1) + [\nabla_1 \phi_0^*(\vec{r}_1)] V(\vec{r}_1, t'') + [\nabla_1 V(\vec{r}_1, t'')] \phi_0^*(\vec{r}_1) \right\} \cdot \\
& \cdot \left\{ -\frac{\nabla \phi_0}{\phi_0} V(\vec{r}_2, t') \phi_0(\vec{r}_2) + [\nabla_2 \phi_0(\vec{r}_2)] V(\vec{r}_2, t') + [\nabla_2 V(\vec{r}_2, t')] \phi_0(\vec{r}_2) \right\} \times \\
& \times \int d^3 k_1 \exp \left\{ i \left[\vec{k}_1 \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}) - \frac{k_1^2}{2} t'' \right] \right\} \int d^3 k_2 \exp \left\{ -i \left[\vec{k}_2 \cdot (\vec{r}_2 - \vec{r}) - \frac{k_2^2}{2} t' \right] \right\}
\end{aligned} \tag{93}$$

Para as funções de onda, fazemos $\vec{r}_1 \approx \vec{r}_2 \approx \vec{r}$ (aproximação “peaking”, usada em ref [56]), obtendo:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{2(2\pi)^3} \int d^3 r_1 [\nabla_1 V(\vec{r}_1, t'')] \cdot \int d^3 r_2 [\nabla_2 V(\vec{r}_2, t')] \int d^3 r \rho(\vec{r}_1) \\
& \times \int d^3 k_1 \exp \left\{ i \left[\vec{k}_1 \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}) - \frac{k_1^2}{2} t'' \right] \right\} \int d^3 k_2 \exp \left\{ -i \left[\vec{k}_2 \cdot (\vec{r}_2 - \vec{r}) - \frac{k_2^2}{2} t' \right] \right\}
\end{aligned} \tag{94}$$

Onde $\rho(\vec{r}) = |\phi(\vec{r})|^2$ é a densidade eletrônica inicial do alvo. Após o seguinte rearranjo de termos:

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{2(2\pi)^6} \int d^3 k_1 \exp\left\{-\frac{ik_1^2}{2} t''\right\} \int d^3 k_2 \exp\left\{\frac{ik_2^2}{2} t'\right\} \\
& \times \int d^3 r_1 \rho(\vec{r}_1) \exp\{i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}_1\} [\nabla_1 V(\vec{r}_1, t'')] \cdot \\
& \cdot \int d^3 r_2 \exp\{-i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}_2\} [\nabla_2 V(\vec{r}_2, t')] \int d^3 r \exp[i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}]
\end{aligned} \tag{95}$$

pode-se calcular explicitamente a última integral, originando $(2\pi)^3 \delta(\vec{k}_2 - \vec{k}_1)$. Assim, uma das variáveis k_i pode ser eliminada das integrações e a variável restante pode ser renomeada para k :

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= \frac{1}{2(2\pi)^3} \int_{-\infty}^{\infty} dt' \int_{-\infty}^{\infty} dt'' \int d^3 k \exp\left\{\frac{ik^2(t' - t'')}{2}\right\} \times \\
& \int d^3 r_1 \rho(\vec{r}_1) \exp\{i\vec{k} \cdot \vec{r}_1\} [\nabla_1 V(\vec{r}_1, t'')] \cdot \int d^3 r_2 \exp\{-i\vec{k} \cdot \vec{r}_2\} [\nabla_2 V(\vec{r}_2, t')]
\end{aligned} \tag{96}$$

Nesse momento, fazemos a escolha do potencial usado. Como este é o caso de colisões próximas, será usado o potencial de Coulomb para um aglomerado, isto é, sem blindagem:

$$V(\vec{r}, t) = -\sum_{i=1}^N \frac{Z_i}{|\vec{r} - \vec{R}_i(t)|} = -\sum_{i=1}^N \frac{Z_i}{\sqrt{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_i|^2 + (z - vt - d_{iz})^2}} \tag{97}$$

Serão utilizadas as mesmas definições adotadas no caso de colisões distantes, já vistas antes. Este é um procedimento análogo ao usado por de Azevedo et al. em ref. [57] para o caso atômico.

Começamos, então, calculando as integrais que envolvem tempo. Elas são formalmente idênticas a menos do sinal do argumento da exponencial.

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= \frac{1}{2(2\pi)^3} \int d^3k \int d^3r_1 \rho(\vec{r}_1) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_1) \times \\
&\int_{-\infty}^{+\infty} dt' \exp\left(\frac{ik^2 t'}{2}\right) \sum_{j=1}^N Z_j \int d^3r_2 \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}_2) \frac{\vec{r}_{2\perp} - \vec{b}_j + (z_2 - vt' - d_{jz})\vec{e}_z}{\left[|\vec{r}_{2\perp} - \vec{b}_j|^2 + (z_2 - vt' - d_{jz})^2\right]^{3/2}}. \quad (98) \\
&\cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dt'' \exp\left(-\frac{ik^2 t''}{2}\right) \sum_{m=1}^N Z_m \frac{\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m + (z_1 - vt'' - d_{mz})\vec{e}_z}{\left[|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|^2 + (z_1 - vt'' - d_{mz})^2\right]^{3/2}}
\end{aligned}$$

Voltamo-nos para a integral em \vec{r}_2 . Para isso, propomos a mudança de variáveis $\vec{x} = \vec{r}_2 - \vec{b}_j - \vec{v}t' - \vec{d}_{jz}$, cujo jacobiano é 1. Resta:

$$\begin{aligned}
&\int d^3r_2 \exp(-i\vec{k} \cdot \vec{r}_2) \frac{\vec{r}_{2\perp} - \vec{b}_j + (z_2 - vt' - d_{jz})\vec{e}_z}{\left[|\vec{r}_{2\perp} - \vec{b}_j|^2 + (z_2 - vt' - d_{jz})^2\right]^{3/2}} = \\
&= -4\pi i \frac{\vec{k}}{k^2} \exp\left[-i\vec{k} \cdot (\vec{b}_j + \vec{v}t' + \vec{d}_{jz})\right]
\end{aligned}$$

Assim, a perda de energia se torna, após integração em t' :

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= -\frac{i}{2\pi} \int \frac{d^3k}{k^2} \delta\left(\frac{k^2}{2} - \vec{k} \cdot \vec{v}\right) \int d^3r_1 \rho(\vec{r}_1) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_1) \times \\
&\sum_{j=1}^N Z_j \exp\left[-i\vec{k} \cdot (\vec{b}_j + \vec{d}_{jz})\right] \vec{k} \cdot \\
&\cdot \sum_{m=1}^N Z_m \int_{-\infty}^{+\infty} dt'' \exp\left(-\frac{ik^2 t''}{2}\right) \frac{\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m + (z_1 - vt'' - d_{mz})\vec{e}_z}{\left[|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|^2 + (z_1 - vt'' - d_{mz})^2\right]^{3/2}} \quad (99)
\end{aligned}$$

Agora, a integração em t'' .

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{v} \int_{-\infty}^{+\infty} d(v t'') \exp\left(-\frac{ik^2 v t''}{2v}\right) \frac{\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m + (z_1 - v t'' - d_{mz}) \vec{e}_z}{\left[|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|^2 + (z_1 - v t'' - d_{mz})^2\right]^{3/2}} = \\
& \frac{\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m}{v} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \frac{\exp(-ik^2 x/2v)}{\left[|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|^2 + (z_1 - x - d_{mz})^2\right]^{3/2}} + \frac{\vec{e}_z}{v} \int_{-\infty}^{+\infty} dx \frac{\exp(-ik^2 x/2v)(z_1 - x - d_{mz})}{\left[|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|^2 + (z_1 - x - d_{mz})^2\right]^{3/2}} = \\
& = \frac{k^2}{v^2} \exp\left(\frac{-ik^2(z_1 - d_{mz})}{2v}\right) \left\{ \frac{(\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|} K_1\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) + i\vec{e}_z K_0\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) \right\}
\end{aligned}$$

Resta para a perda de energia a seguinte expressão:

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= -\frac{i}{2\pi v^2} \int d^3 r_1 \rho(\vec{r}_{1\perp}, z) \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}_1) \times \\
& \int d^3 k \delta\left(\frac{k^2}{2} - \vec{k} \cdot \vec{v}\right) \sum_{j=1}^N Z_j \exp[-i\vec{k} \cdot (\vec{b}_j + \vec{d}_{jz})] \vec{k} \cdot \\
& \cdot \sum_{m=1}^N Z_m \exp\left[\frac{-ik^2(z_1 - d_{mz})}{2v}\right] \left[\frac{(\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|} K_1\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) + i\vec{e}_z K_0\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) \right]
\end{aligned} \tag{100}$$

Para o cálculo da integral em \vec{k} , consideraremos o eixo z do espaço k paralelo a \vec{v} e consideraremos $\vec{r}_{2\perp} - \vec{b}_j = \vec{r}_{1\perp} - \vec{b}_j \parallel \vec{e}_y$. Resta:

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= -\frac{i}{2\pi v^2} \int d^3 r \rho(\vec{r}_{\perp}, z) \times \\
& \int_0^{\infty} dk k^3 \int_0^{\pi} d\Theta \sin \Theta \delta\left(\frac{k^2}{2} - kv \cos \Theta\right) \exp\left[-i\left(\frac{k^2}{2} - kv \cos \Theta\right) \frac{z}{v}\right] \times \\
& \sum_{j=1}^N Z_j \int_0^{2\pi} d\Phi \exp\left[ik |\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_j| \sin \Theta \sin \Phi\right] \left[\frac{(\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_j)}{|\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_j|} \sin \Theta \sin \Phi + \cos \Theta \vec{e}_z \right] \cdot \\
& \cdot \sum_{m=1}^N Z_m \exp\left[\frac{i}{v} \left(\frac{k^2 d_{mz}}{2} - kv \cos \Theta d_{jz}\right)\right] \left[\frac{(\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_m|} K_1\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) + i\vec{e}_z K_0\left(\frac{k^2 |\vec{r}_{\perp} - \vec{b}_m|}{2v}\right) \right]
\end{aligned} \tag{101}$$

Para facilitarmos a integração em Φ , fazemos:

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= -\frac{i}{2\pi v^2} \int d^3 r \rho(\vec{r}_\perp, z) \times \\
&\int_0^\infty dk k^3 \int_0^\pi d\Theta \sin \Theta \delta\left(\frac{k^2}{2} - k v \cos \Theta\right) \exp\left[-i\left(\frac{k^2}{2} - k v \cos \Theta\right)\frac{z}{v}\right] \times \\
&\sum_{j=1}^N Z_j \int_0^{2\pi} d\Phi \left(\frac{1}{i} \frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_j)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j|^2} \frac{\partial}{\partial k} \exp\left[ik|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta \sin \Phi\right] + \right. \\
&\left. + \cos \Theta \exp\left[ik|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta \sin \Phi\right] \vec{e}_z \right) \cdot \\
&\cdot \sum_{m=1}^N Z_m \exp\left[\frac{i}{v} \left(\frac{k^2 d_{mz}}{2} - k v \cos \Theta d_{jz}\right)\right] \left[\frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|} K_1\left(\frac{k^2 |\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|}{2v}\right) + i\vec{e}_z K_0\left(\frac{k^2 |\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|}{2v}\right) \right]
\end{aligned} \tag{102}$$

Agora, a integração em Φ :

$$\int_0^{2\pi} d\Phi \exp\left[ik|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta \sin \Phi\right] = 2\pi J_0\left(k|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta\right) \tag{103}$$

E, completando, temos:

$$\frac{\partial}{\partial k} \left[J_0\left(k|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta\right) \right] = -|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta J_1\left(k|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta\right) \tag{104}$$

O que nos leva a:

$$\begin{aligned}
Q^{prox}(\vec{b}) &= \frac{1}{v^2} \int d^3 r \rho(\vec{r}_\perp, z) \times \\
&\int_0^\infty dk k^3 \int_0^\pi d\Theta \sin \Theta \delta\left(\frac{k^2}{2} - k v \cos \Theta\right) \exp\left[-i\left(\frac{k^2}{2} - k v \cos \Theta\right)\frac{z}{v}\right] \times \\
&\sum_{j=1}^N Z_j \left(\frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_j)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j|} J_1\left(k|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta\right) \sin \Theta - iJ_0\left(k|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j| \sin \Theta\right) \cos \Theta \vec{e}_z \right) \cdot \\
&\cdot \sum_{m=1}^N Z_m \exp\left[\frac{i}{v} \left(\frac{k^2 d_{mz}}{2} - k v \cos \Theta d_{jz}\right)\right] \left[\frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|} K_1\left(\frac{k^2 |\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|}{2v}\right) + i\vec{e}_z K_0\left(\frac{k^2 |\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|}{2v}\right) \right]
\end{aligned}$$

(105)

Faz-se, agora, a última integral angular. Para isso, temos de levar em conta a delta de Dirac.

Uma análise rápida de momentum transferido mostra que os valores possíveis para k não variam de zero a infinito, mas sim, de 0 a $2v$.

Cabe, aqui, a seguinte mudança de variável: $u = \cos \theta$, $q = k / (2v)$. O jacobiano dessa transformação vale $-\sin \theta / (2v)$.

Resta, lembrando que $\delta\left(\frac{k^2}{2} - k v \cos \theta\right) = \delta(2v^2 q^2 - 2v^2 qu) = \frac{1}{2v^2 q} \delta(u - q)$:

$$Q^{prox}(\vec{b}) = 8 \int d^3 r \rho(\vec{r}_\perp, z) \int_0^1 dq q^2 \times$$

$$\sum_{j=1}^N Z_j \left(\frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_j)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j|} J_1(2vq|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j|\sqrt{1-q^2})\sqrt{1-q^2} - iJ_0(2vq|\vec{r}_\perp - \vec{b}_j|\sqrt{1-q^2})q\vec{e}_z \right) \cdot \quad (106)$$

$$\cdot \sum_{m=1}^N Z_m \exp[2ivq^2(d_{mz} - d_{jz})] \left[\frac{(\vec{r}_\perp - \vec{b}_m)}{|\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|} K_1(2vq^2|\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|) + i\vec{e}_z K_0(2vq^2|\vec{r}_\perp - \vec{b}_m|) \right]$$

Agora, calculando-se o produto escalar, resta, separando-se os termos atômicos dos moleculares e usando os vínculos entre b_j e b_m :

$$Q^{prox}(\vec{b}) = \int d^2 r_\perp \left\{ K_{atom}^{prox}(\vec{r}_\perp - \vec{b}) + K_{int}^{prox}(\vec{r}_\perp - \vec{b}) \right\} \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_\perp, z) \quad (107)$$

Onde:

$$\begin{aligned}
K_{atom}^{prox}(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \int_0^1 dq q^2 \times \\
&4v^2 \sum_{j=1}^N Z_j^2 \left\{ \sqrt{1-q^2} K_1(2vq^2 b_j) J_1(2vqb_j \sqrt{1-q^2}) + \right. \\
&q J_0(2vb_j \sqrt{1-q^2}) K_0(2vq^2 b_j) \left. \right\};
\end{aligned} \tag{108}$$

$$\begin{aligned}
K_{int}^{prox}(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \sum_{j>m=1}^N Z_j Z_m \frac{4v^2 b_j b_m}{2} \int_0^1 dq q^2 \cos(2vq^2 d_{mjz}) \times \\
&\frac{2}{b_j b_m} q \left[K_0(2vq^2 b_m) J_0(2vqb_j \sqrt{1-q^2}) + K_0(2vq^2 b_j) J_0(2vqb_m \sqrt{1-q^2}) \right] \\
&\frac{2\vec{b}_j \cdot \vec{b}_m}{(b_j b_m)^2} \sqrt{1-q^2} \left[K_1(2vq^2 b_m) J_1(2vqb_j \sqrt{1-q^2}) + K_1(2vq^2 b_j) J_1(2vqb_m \sqrt{1-q^2}) \right]
\end{aligned}$$

8.3. Construção do modelo MPCA

Agora, comparamos lado a lado as expressões para colisões distantes e para colisões próximas. É importante notar que, nos cálculos para colisões próximas, o termo associado à direção paralela do campo induzido (isto é, o termo que contém o coeficiente $2/b_j b_m$) não tende a 1 para $b \gg 1/v$ e tende a zero para $b \rightarrow 0$. Além disso, o termo correspondente à direção do campo elétrico induzido no modelo de dipolo paralelo ao movimento é nulo para colisões próximas. Portanto, a comparação entre os cálculos feitos para o termo de interferência a grandes parâmetros de impacto e a pequenos parâmetros de impacto será feita somente com os termos transversais (isto é, os termos que contêm o produto escalar entre os vetores de posição dos íons individuais):

$$\begin{aligned}
Q(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) + \sum_{i>j}^N Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\
&\left. \left(\frac{2\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{(b_i b_j)^2} g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right) \right]
\end{aligned} \tag{109}$$

$$\begin{aligned}
K_{close}(\vec{b}) &= K_{atom}(\vec{b}) + K_{int}(\vec{b}) \quad ; \\
K_{atom}(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \sum_{j=1}^N \frac{Z_j^2}{b_j^2} h(2v b_j)
\end{aligned} \tag{110}$$

$$K_{int}(\vec{b}) = \frac{2}{v^2} \sum_{j>m=1}^N \frac{2\vec{b}_j \cdot \vec{b}_m}{(b_j b_m)^2} Z_j Z_m h_{int}(2v b_i, 2v b_j)$$

onde $h(x)$ já é definida em refs. [56,74] e

$$\begin{aligned}
h_{int}(x_j, x_m) &= \frac{x_j x_m}{2} \int_0^1 dq q^2 \cos(2v q^2 d_{mjz}) \times \\
&\left. \sqrt{1-q^2} \left[K_1(q^2 x_m) J_1(q x_j \sqrt{1-q^2}) + K_1(q^2 x_j) J_1(q x_m \sqrt{1-q^2}) \right] \right\} .
\end{aligned} \tag{111}$$

Pode-se mostrar que, para grandes parâmetros de impacto, as funções $h(2vb)$ e $h_{int}(2vb_i, 2vb_j)$ tendem a 1. Ou seja, a expressão para colisões próximas, fora de seu limite de validade, tende à expressão clássica.

Enquanto isso, as funções $g_{\perp}(x)$ tendem a 1, no caso do potencial de Coulomb e $g_{\parallel}(x)$ tendem a zero para pequenos valores dos parâmetros de impacto. Com isso, podemos propor a seguinte expressão, capaz de fornecer valores de perda de energia em uma ampla faixa de parâmetros de impacto, interpolando suavemente os casos de parâmetros de impacto pequenos e grandes:

$$Q_{MPCA}(\vec{b}) = \int d^2 r_{\perp} K_{MPCA}(\vec{r}_{\perp} - \vec{b}) \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_{\perp}, z) \tag{112}$$

onde

$$\begin{aligned}
K_{MPCA}(\vec{b}) &= \frac{2}{v^2} \sum_{\beta} f_{\beta} \left[\sum_{i=1}^N Z_i \left(\frac{g_{\perp}^2(b_i)}{b_i^2} + \frac{g_{\parallel}^2(b_i)}{b_i^2} \right) h(2v \vec{b}_i) + \sum_{i>j} Z_i Z_j \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \right. \\
&\left. \left(\frac{2\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{(b_i b_j)^2} h_{int}(2v b_i, 2v b_j) g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{\sqrt{b_i^2 + b_{\min}^2} \sqrt{b_j^2 + b_{\min}^2}} \right) \right]
\end{aligned} \tag{113}$$

e, conforme a ref. [75], no termo paralelo, faz-se um corte análogo ao parâmetro de impacto de

corte de Bohr:

$$b_{\min}^i = |Z_i|/v^2 \quad (114)$$

A equação (112) é o modelo MPCA, enquanto a equação (113) é denominada núcleo da convolução. Pode-se ver, assim, que o modelo é essencialmente uma convolução entre um núcleo e a densidade eletrônica do alvo, daí o nome dado à aproximação. Na equação (113), temos a separação nítida entre a soma de termos puramente atômica (PCA) e a soma que origina os termos de interferência (contendo ambas as variáveis i e j).

Tomando-se os termos de interferência para colisões distantes e próximas e comparando-as com o modelo MPCA para uma molécula diatômica para diversas orientações do projétil (duas dessas orientações são mostradas na Figura 35), nota-se que o MPCA, para colisões distantes concorda com resultado para a aproximação de dipolo, enquanto que o modelo concorda bem com o resultado de colisões próximas para pequenos parâmetros de impacto. A análise dos termos atômicos não será mostrada aqui, por já ter sido realizada na ref. [56].

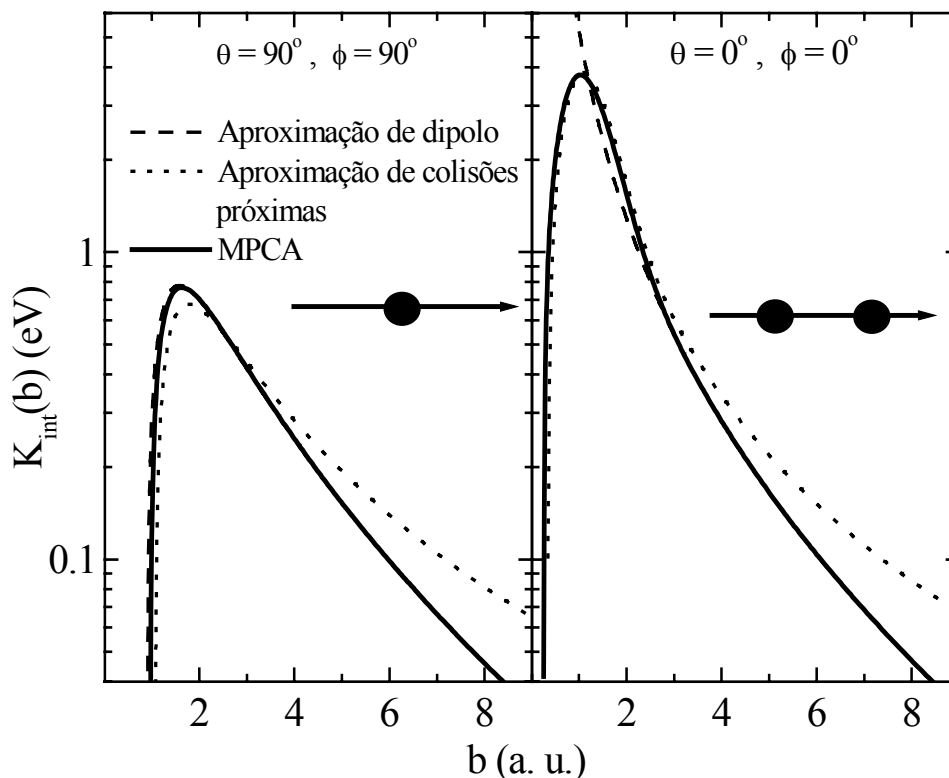


Figura 35: Comparação entre os termos de interferência de colisões distantes, colisões próximas e o modelo MPCA. O modelo MPCA interpola com sucesso todas as regiões de parâmetros de impacto.

9. Apêndice B: trabalhos publicados e aceitos

Neste apêndice, serão mostrados os trabalhos que, até 19 de fevereiro de 2005 foram publicados ou aceitos para publicação e que são derivados do tema desta tese.

Todas as publicações citadas neste apêndice seguem em anexo.

9.1. Trabalho publicado

FADANELLI, R.C. et al. Coulomb heating of channeled H_2^+ and H_3^+ molecules in Si. *Physical Review B*, Melville, v. 69, p. 212104-1 – 212104-4, 2004.

9.2. Trabalhos aceitos para publicação

FADANELLI, R.C.; GRANDE, P.L.; SCHIWIETZ, G. Impact-parameter dependence of the electronic energy-loss of fast cluster projectiles. *Nuclear Instruments and Methods B*, Amsterdam.

FADANELLI, R.C. et al. The influence of the Coulomb explosion on the energy loss of H_2^+ and H_3^+ molecules channeling along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. *Nuclear Instruments and Methods B*, Amsterdam.

Coulomb heating of channeled H_2^+ and H_3^+ molecules in Si

R. C. Fadanelli, P. L. Grande, M. Behar, and J. F. Dias

Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Avenida Bento Gonçalves 9500, 91501-970, Porto Alegre, Rio Grande do Sul, Brazil

G. Schiwietz

Hahn-Meitner-Institut, Abteilung, SF4 Glienicke Strasse 100, D-14109 Berlin, Germany

C. D. Denton

Departamento de Física, UTFSM, Valparaiso, Chile

(Received 17 March 2004; published 16 June 2004)

Si- K x-ray and backscattering yields have been measured as a function of the projectile entrance angle for atomic and molecular (H_2^+ and H_3^+) hydrogen ions channeling at kinetic energies of 150 keV per proton along the Si $\langle 100 \rangle$ crystal direction. A large enhancement of the x-ray production has been observed for well-aligned H_3^+ molecule beams. It is shown that this effect results from the Coulomb explosion of the molecule fragments during the channeling motion. Moreover, the shape and intensity of the measured angular distribution allows a quantitative determination of the corresponding heating of the transversal ion motion (2.6 ± 0.6 eV for H_2^+ and 5.1 ± 0.8 eV for H_3^+ molecules) in the channel. These values are consistent with the stored potential energies per particle and they depend significantly on the collective wake forces and molecular alignment conditions.

DOI: 10.1103/PhysRevB.69.212104

PACS number(s): 61.85.+p, 34.50.Bw, 36.40.-c, 68.55.Ln

Beams of molecules and cluster ions are useful tools in fundamental research with promising applications in material science and plasma physics. In particular, significant coherence effects (vicinage effects) have been predicted theoretically and in some cases experimental stopping forces for these structured projectiles show clear deviations from simple additive rules concerning the projectile constituents.^{1,2} Other effects related to the correlated motion of cluster atoms, such as Coulomb explosion,³ enhanced electron emission,⁴ desorption and sputtering^{5,6} have also been reported and reviewed in recent publications.⁷

In the case of crystalline materials, ions entering nearly parallel to a particular crystal axis or plane become channeled as their motion is guided by correlated collisions with target atoms. The average transversal momentum of channeled atomic particles increases due to the inelastic scattering with the target electrons and scattering at displaced target atoms. This effect enhances the number of close encounters with the atomic rows and is named transverse heating. Recently, it has been observed that charge changing processes of fast heavy ions may even lead to transversal cooling, namely, a reduction of the transversal energy.⁸

In addition to the channeling motion, molecular ions undergo a breakup process, since they lose their bonding electrons due to ionization in the first monolayers of the material. The combination of these two correlated motions, namely, the ion channeling and the breakup of the cluster under quasi-Coulombic forces, leads to a transverse Coulomb heating. Pioneering investigations of this Coulomb heating have been performed in transmission⁹ as well as using measured energy spectra of backscattered protons from H^+ , H_2^+ , and H_3^+ beams.¹⁰ However, although the effect is visible in the dechanneling profile, it was not evaluated quantitatively and has been strongly overestimated by recent computer simulations.¹¹

This paper reports on a quantitative determination of the transverse Coulomb-heating energy (abbreviated Coulomb heating) using the Si- K x-ray production and also the backscattering yield of molecular beams channeling along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. Vicinage effects do not affect the K -shell x-ray and backscattering yields, because the characteristic impact parameters for both processes are much smaller than the typical distance for vicinage effects ($2-3$ Å for the present energies).² Thus, differences between experimental results for incident protons and molecular hydrogen ions are directly linked to the Coulomb explosion during the channeling motion. Finally, the experimental results for the Coulomb heating will be compared to results of advanced computer simulations.

The experiments were carried out at the Ion-Implantation Laboratory of the Federal University of Rio Grande do Sul. The 500 kV electrostatic accelerator has delivered beams of H^+ , H_2^+ , and H_3^+ at 150 keV/amu with an average current reduced down to about 35 nA for H_3^+ , 50 nA for H_2^+ , and 100 nA for H^+ . In order to ensure identical conditions, we kept the same proton flux hitting the target for all particles and clusters under study. Furthermore, the currents were reduced by an additional factor of 10 in the case of backscattering measurements. The Si $\langle 100 \rangle$ crystal was mounted on a goniometer for the alignment procedure.¹² We have fixed the azimuthal angle $\phi = 22.5^\circ$ (relative to the plane $\{100\}$) in order to avoid a full azimuthal averaging procedure around the $\langle 100 \rangle$ channel, which would be time consuming and could lead to unacceptable damage of the sample. The vacuum system of the analyzing chamber consists of an oil-free turbomolecular drag pump with a liquid nitrogen trap, capable of reaching a final pressure below 10^{-7} mbar. The samples were cleaned and etched using 10% HF before each measurement to remove the native surface oxide film.

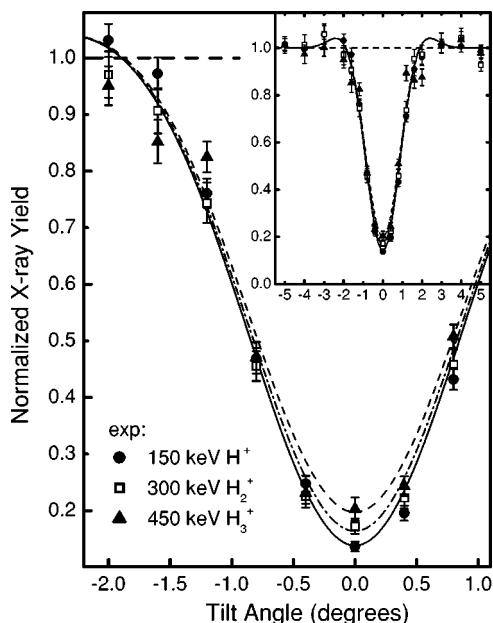


FIG. 1. Normalized x-ray yield as a function of the tilt angle for different projectiles. Increasing x-ray yields at the center of the channel are the signature of the transversal heating for H_2^+ and H_3^+ due to the Coulomb explosion. The lines are fit curves according to Eq. (1). See text for further details.

The backscattered particles were detected by a Si surface-barrier detector located at 170° with respect to the incoming beam. The overall resolution of the detection system was around 7 keV for protons. The 1.74 keV K_α x rays emitted from the target were detected by a high purity Ge detector with an energy resolution of 180 eV at 5.9 keV. This detector was mounted at 135° with respect to the beam. This constrained the measurements only to directions about the Si $\langle 100 \rangle$ one.

In order to control the damage of the Si crystal and the deposition of hydrocarbons on the surface during the angular scanning procedure, we have performed the measurements sequentially from negative tilt angles to positive ones and no differences (within the error bars) have been observed. This is a very stringent condition, since the x-ray emission is sensitive to defect creation and amorphization inside the target. Furthermore, other parameters such as target temperature, beam spot size and current density have been slightly changed and no influence has been observed on our final results.

Measurements of close encounter events giving rise to x-ray emission and backscattering under channeling conditions provide a sensitive method to investigate variations and redistribution of the ion flux close to a row of atoms, and can be used to quantify heating or cooling processes inside crystal channels. The results for the x-ray emission induced by H^+ , H_2^+ , and H_3^+ beams at 150 keV/amu are depicted in Fig. 1 as a function of the projectile entrance angle (tilt angle) for the nonplanar azimuthal angle $\phi=22.5^\circ$ relative to the plane $\{100\}$. Here, large tilt angles correspond to a nearly random direction. As can be observed from the figure, atomic and molecular beams at the same energy, flux and fluence per

atom act differently in the induced x-ray production in Si. First it is emphasized that we do not observe any molecular effects at random directions (the yields normalized to the incident proton flux are equal to within our relative errors of 4% for the difference of two spectra). Thus, we conclude that vicinage effects play no significant role for our case and correspondingly we have renormalized the spectra by about $\pm 2\%$ to exactly match each other at large angles. However, there are significant deviations at small polar angles. In comparison to H^+ , the yields are 26% larger for H_2^+ and much larger for H_3^+ (48%) at the central channel direction. This is a clear signature of the heating of the transversal motion due to Coulomb explosion. The fragment ions are pushed against the channel walls, thereby increasing the number of close encounters. In what follows we will focus on the minimal value at the axial position (and not on the shape of the channeling dip) because it is less affected by the present experimental uncertainties.

In order to estimate the value of heating or enhancement of the transversal energy, we assume that the time for the Coulomb explosion is much shorter than the typical time for a single particle to get channelled (typically the period of a channel oscillation). Under this assumption, the Coulomb explosion acts like an initial beam divergence or “astigmatic lens”¹³ and increases the initial transversal energy by an effective Coulomb-heating energy δE_C . Since the initial transversal energy E_T depends on the incident entrance angle [through the relation $E_T = E\Psi^2 + U(\vec{r})$, where E is the ion energy and U is the channeling potential], the additional Coulomb energy component δE_C will be equivalent to a tilt offset ($\Psi \rightarrow \sqrt{\Psi^2 + \delta E_C/E}$). Thus, the yield for the molecular channeling will be modified in comparison to the atomic one by

$$Y_{\text{molecular}}(\Psi) = Y_{\text{atomic}}(\sqrt{\Psi^2 + \delta E_C/E}). \quad (1)$$

This scaling behavior can also be derived considering the angular distribution due to the Coulomb explosion and a parabolic dependence for the yield. Using the equation above and an analytic expression for Y_{atomic} which fits the H dip curve very well (solid curve), we obtain the broken curves in Fig. 1 that fit the experimental data best for molecular beams. In this way, the transverse Coulomb heating energies evaluated for H_2^+ and H_3^+ are $\delta E_C = 1.8 \pm 1.0$ eV and 4.8 ± 2.0 eV, respectively.

The transverse Coulomb energy is regarded to be an averaged value and is about the stored internal energy per particle \mathcal{U} inside the solid (namely, $2\mathcal{U}/3$ in the case of spherical averaging). The above heating energies are consistent with \mathcal{U} evaluated from the Yukawa potential with the screening length given by the ion velocity v and plasmon energy ω_p ($\lambda = v/\omega_p$). However, the free-Coulomb energies of 5.8 eV for H_2^+ and 14.4 eV per proton for H_3^+ molecules are completely inconsistent with the experimental results.

Despite its simplicity, providing values for the transverse heating energies in a straightforward manner, it must be stressed that the above estimate does not take into account the fact that the Coulomb explosion is indeed not instantaneous, and therefore acts as a beam divergence only after the

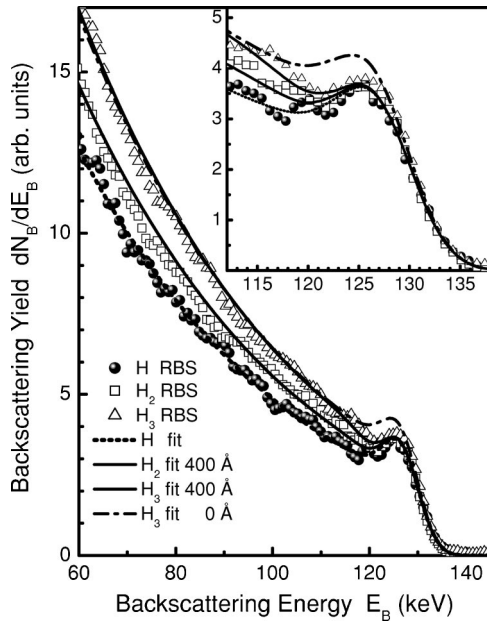


FIG. 2. RBS yield as a function of the energy. Curves stand for the fitting procedure according to the two-beam model assuming that the Coulomb explosion effectively takes place at the surface (0 Å: dashed-dotted curve for H_3^+) and at a critical depth of 400 Å (solid lines).

ions penetrate a given distance in the solid. This effect can be observed in the backscattering data since the measured final proton energy contains information on the depth scale of the backscattering/dechanneling events.

Figure 2 shows Rutherford backscattering spectra (RBS) for well channeled ($\Psi=0$) H^+ , H_2^+ , and H_3^+ incident ions at 150 keV/amu normalized to the spectra taken at a random incidence. As can be observed from this figure, the backscattering yield just below the surface peak is nearly the same for atomic and molecular ions, whereas for detected energies below 110 keV (deep inside the solid) the yields and slopes are indeed different. This shows that the effect of the Coulomb explosion enhances the dechanneling only after a certain penetration depth. The data have been fitted (see solid and dashed lines) using the two-beam model.¹⁴ The dechanneled beam fraction χ is given by

$$\frac{d\chi}{dx} = \alpha[1 - \chi(x)], \quad (2)$$

where α is the dechanneling rate and $1 - \chi(x)$ is the channeled fraction of the beam. The dechanneling rate α was chosen to be independent on the penetrated distance x for H^+ ions and its value has been determined for each incident angle Ψ . The dashed curve for H_3^+ was obtained by fixing all parameters as for H^+ projectiles except for the α parameter that was changed according to the ansatz from Eq. (1), namely, $\alpha_{\text{molecular}} = \alpha_{\text{atomic}}(\Psi = \sqrt{\delta E_C/E})$. Moreover, the best fitting (solid lines) is obtained by introducing a depth Δx_C below which the α parameter is taken to be the same as for H^+ ions for $\Psi=0$. For this analysis we have used the electronic stopping to convert the energy loss in depth x as well

TABLE I. Experimental Coulomb-heating energies (in eV) obtained in this work for two critical depths Δx_C using Eq. (1) and also the two-beam model (TBM). The last row contains the most accurate results (see text).

Δx_C	x ray [Eq. (1)]		RBS (TBM)		x ray (TBM)	
	H_2	H_3	H_2	H_3	H_2	H_3
0 Å	1.8 ± 1.0	4.8 ± 2.0	2.9 ± 0.7	4.4 ± 1.0	1.5 ± 1.0	4.7 ± 2.0
400 Å			3.0 ± 1.0	5.0 ± 1.0	2.0 ± 1.2	5.9 ± 2.0

the Rutherford cross section to determine the backscattering yield.¹⁵ In addition, the spectrum has been convoluted with the experimental resolution and energy loss straggling.

The RBS results for the Coulomb heating are displayed in Table I for $\Delta x_C=0$ and $\Delta x_C=400$ Å (the best fit). The x-ray data have also been evaluated more rigorously using the above discussed two-beam model by integrating the x-ray yield arising from different depths. The main difference with RBS simulations is the use of the x-ray production cross section.¹⁶

The improved x-ray results, also included in Table I, are in very good agreement with those from the RBS analysis. It is pointed out that the results presented in Table I do not change significantly for different choices of Δx_C . In addition, the distance of 400 Å is also consistent with the simulation using full wake forces to describe the breakup process. We note that the simple assumption of a screened Coulomb potential such as the Yukawa potential would lead to much shorter breakup distances.

These results have been compared to full calculations of the molecular breakup under the influence of quasi-Coulombic forces, channeling, and electronic energy loss (elastic and inelastic scattering processes) as the calculations from Ref. 17. Briefly, the breakup force, which is present only in the case of molecular projectiles, is the screened Coulomb repulsion between the fragments. The screening is modeled by a wake-type potential obtained by the linear dielectric formalism. The description of the dielectric properties of the target (silicon) is based on a Mermin dielectric function.¹⁸ In addition, the channeling force is the repulsive interaction with the crystal nuclei and it is modeled using a Molière potential and thermal vibrations with a 1D r.m.s. amplitude of $\sigma=0.08$ Å.¹⁹ Fluctuations in the energy loss and inelastic multiple scattering of the projectile are also included in the calculations. We have considered the possibility that about 10% of the protons may be neutralized in Si, which reduces the Coulomb explosion. However, this small presence of H^0 would affect the Coulomb heating only by less than 5%. Using this program we are able to obtain fundamental quantities such as the flux distribution of particles within the channel as well as the distribution of transversal energies as a function of the penetration depth.

Theoretical values for the distribution of transversal energies are plotted in Fig. 3 for protons, H_2^+ and H_3^+ molecules after penetrating a distance of 4000 Å (for larger distances the Si- K ionization cross section is negligible). In the case of protons, the plot corresponds essentially to the initial transversal energy distribution since inelastic multiple scattering

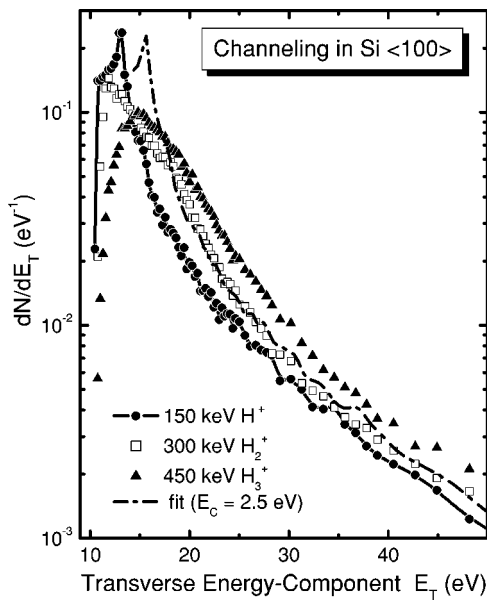


FIG. 3. Simulated transversal-energy distribution for H^+ , H_2^+ , and H_3^+ ions. The dashed-dotted curve shows the H^+ data shifted by a heating energy of 2.5 eV in order to match the H_2^+ distribution at energies above 20 eV.

is of minor importance. As observed in Fig. 3, the transversal energy distributions for the molecular ions are shifted to higher energies, a consequence of the Coulomb-heating process. The theoretical values of the Coulomb heating (2.5 ± 0.2 for H_2^+ and 4.5 ± 0.2 for H_3^+) were obtained by shifting the atomic distribution (solid curve) to agree with the molecular one at higher transversal energies (dashed-dotted curve), since close encounter events are mainly due to these energies.

The theoretical values for δE_C agree with the experimental ones to within our error bars. These values are much

smaller than the stored free-Coulomb energy because of the solid-state screening and alignment conditions due to the wake and channeling forces. Fragments such as H_2^+ tend to align themselves because the wake forces have a larger longitudinal (along the velocity direction) component. Once the molecule is aligned, the explosion is fully longitudinal, and the heating effect disappears. This alignment condition may also explain the conflicting interpretation in Ref. 11. The simulations in this reference have strongly overestimated the experimental data for H_2^+ projectiles, because no wake forces have been included in these calculations.

In summary, we have investigated the proton backscattering yield and Si-K x-ray production due to channeling of molecular ions along the Si $\langle 100 \rangle$ direction as a function of the projectile entrance angle. Measurements using atomic and molecular H_2^+ and H_3^+ beams at kinetic energies of 150 keV per proton have been used to test a method for obtaining direct information about the interplay of molecular Coulomb explosion, screening, and wake forces inside of solid. We have shown that the present method of analyzing angle-dependent x-ray and backscattering data is an excellent tool for determining the ion-flux redistribution related to the Coulomb explosion against the channel walls.

A heating of the transversal fragment-ion motion is observed in the x-ray yield and also evaluated quantitatively for both types of measurements. Our method provides consistent values for the Coulomb-heating energy in a straightforward manner. Furthermore, the experimental values are in good agreement with theoretical results. In future applications, the Coulomb heating might be used to tailor high-energy channeling-implantation profiles of heavy molecular ions by a proper choice of the number of cluster constituents.

This work was partially supported by the Brazilian agencies CNPq, CAPES and by the cooperation programs PROBRAL 166/04 and SETCIP/CAPES 33/01.

- ¹W. Brandt, A. Ratkowski and R. H. Ritchie, *Phys. Rev. Lett.* **33**, 1325 (1974).
- ²N. R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 108 (2000).
- ³D. S. Gemmell *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 1420 (1975).
- ⁴H. Rothard *et al.*, *Phys. Rev. B* **41**, 3959 (1990).
- ⁵T. Yamaguchi *et al.*, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **99**, 237 (1995).
- ⁶N. Toyoda, J. Matsuo, and I. Yamada, *Proceedings of the 14th International Conference on Application of Accelerators in Research and Industry*, AIP Conf. Proc. No. 392 (AIP Press, New York, 1997), p. 483.
- ⁷I. Yamada, J. Matsuo, and N. Toyoda, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **206**, 820 (2003).
- ⁸W. Assmann *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1759 (1999).
- ⁹J. C. Poizat and J. Remillieux, *J. Phys. B* **5**, L94 (1972).
- ¹⁰J. M. Caywood, T. A. Tombrello, and T. A. Weaver, *Phys. Lett.*

- 37A**, 350 (1971); T. A. Tombrello and J. M. Caywood, *Phys. Rev. B* **8**, 3065 (1973).
- ¹¹V. A. Khodyrev, V. S. Kulikauskas, and C. Yang, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **195**, 259 (2002).
- ¹²G. de M. Azevedo *et al.*, *Phys. Rev. B* **65**, 075203 (2002).
- ¹³P. Sigmund, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **67**, 11 (1992).
- ¹⁴G. Götz and K. Gärtner, *High Energy Ion Beam Analysis of Solids* (Akademie-Verlag, Berlin, 1988).
- ¹⁵W. K. Chu, J. W. Mayer, M.-A. Nicolet, *Backscattering Spectrometry* (Academic Press, New York, 1978).
- ¹⁶J. L. Campbell and J. A. Maxwell, *Compilation of the atomic physics database for the GUPIX program*.
- ¹⁷S. Heredia-Avalos *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 079601 (2002).
- ¹⁸I. Abril *et al.*, *Phys. Rev. A* **58**, 357 (1998).
- ¹⁹W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interaction* (Springer-Verlag, Berlin, 1991).



Impact-parameter dependence of the electronic energy loss of fast cluster projectiles

R.C. Fadanelli ^{a,*}, P.L. Grande ^a, G. Schiwietz ^b

^a Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Avenida Bento Gonçalves 9500, C.P. 15051, CEP 91501-970, Porto Alegre, Brazil

^b Hahn-Meitner-Institut, Abteilung SF4, Glienicke Strasse 100, D-14109 Berlin, Germany

Abstract

Electronic energy loss of molecular clusters as a function of impact-parameter is less understood than atomic energy loss. Vicinage effects due to mutual interference between cluster fragments play a key role in the determination of the cluster electronic energy loss. In this work, we describe a molecular extension of the perturbative convolution approximation (PCA) energy loss model, namely MPCA (molecular PCA), which yields remarkable agreement with first-order Born semiclassical approximation (SCA) results. The physical inputs of the model are the oscillators strengths of the target atoms and the projectile electron density. A very good agreement is obtained with time consuming full first-order calculations for bare incident molecular clusters for several angles between cluster axis and velocity direction.

© 2004 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 34.50.Bw; 61.85.+p; 36.40.–c

Keywords: Cluster; Energy loss; Impact-parameter

1. Introduction

Beams of molecules and ionic clusters are useful tools in both fundamental research and in material science and plasma physics. The effects of a cluster clearly deviate from the sum of individual effects of each cluster component.

In particular, cluster-beam experiments were reported in mid 70s by Poizat and Remillieux [1] and, not much time after, the first evidence of the vicinage effect was reported by Brandt et al. [2]. Since then, it is established that the cluster energy loss is different from the sum of energy losses of its separated components. An increased energy transfer due a cluster may even be used in inertial nuclear fusion processes [3,4].

If the ions enter along a principal axis of a crystalline target, their motion will be guided due the

* Corresponding author. Tel.: +55 51 3316 6517; fax: +55 51 3316 7286.

E-mail address: raul@if.ufrgs.br (R.C. Fadanelli).

correlated collisions with the target atoms. These ions, then, are said to be channeled. The channeling motion of a molecule (or a cluster) will also depend on the Coulomb heating phenomenon (i.e. an increased transverse energy of the cluster fragments due to the mutual Coulomb repulsion), discovered in mid 70s by Caywood et al. and Poizat and Remillieux [5,6]. Recently, the Coulomb heating was simulated [7,8] and experimentally determined in a quantitative way [8].

The cluster stopping-power can be theoretically treated by the united-atom model [9,10], that describes the cluster as an equivalent single atom, with atomic number and mass being the sum of atomic number and mass of each component. However, that model is limited to the very beginning of the interaction between the cluster and the target, therefore, it cannot be used to understand several channeling key effects, for instance, the Coulomb heating effect. An important theoretical treatment is the dielectric formalism in a homogenous electron gas target [2,11] (a detailed review about vicinage effect and dielectric formalism for clusters can be found in [12]) and, to account for the target-core effect, the local density approximation (LDA) model (used for clusters in [13]). However, although successful for homogeneous targets, the dielectric formalism cannot be used to easily describe the cluster energy loss under channeling conditions, where the target cannot be treated as being homogeneous. Then, a theoretical investigation of the cluster stopping-power under channeling conditions, considering the Coulomb heating, requires the use of the impact-parameter method, as presented by Jensen et al. [14] but for distant-collisions only.

This work describes an extension of the perturbative convolution approximation (PCA) model [15,16], based on the impact-parameter method, for molecules and clusters, namely MPCA (molecular perturbative convolution approximation). MPCA gives the energy loss as a function of impact-parameter without time consuming first-order calculations using a set of thousands of final states for both distant- and close-collisions. The starting point of the model is the diatomic molecule. The physical inputs of the model are the target oscillator strengths, the target electronic density, the pro-

jectile screening function and the molecular alignment angles.

2. Model

The MPCA (molecular perturbative convolution approximation) model is an extension of PCA model [15,16] made for cluster projectiles. Here, we present only a short outline of the PCA method but special attention will be draw to the interference terms that arise from the sum of all ionic potentials. The electronic energy loss is calculated from the expression

$$Q(b) = \sum_{\beta} \left| a_{\beta}(\vec{b}) \right|^2 (\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0), \quad (1)$$

which involves a sum of all final target states with energy ε_{β} (ε_0 is the ground-state energy) and the corresponding calculation of all transition amplitudes a_{β} for each cluster impact-parameter b (the minimum distance between the center of the cluster and the target nucleus). In order to calculate the energy loss due to target ionization and excitation in a first order perturbation framework, we have to consider the amplitudes for each electronic transition between the initial state $|0\rangle$ to a final state $|\beta\rangle$ due to the cluster with N ions.

$$a_{\beta}(\vec{b}) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i(\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0)t} \left\langle \beta \left| \sum_{i=1}^N V_i(\vec{r} - \vec{R}_i(t)) \right| 0 \right\rangle, \quad (2)$$

where V_i is the interacting potential between the i th ion (whose charge is Z_i) in the cluster and the target electron. The i th ion position in space is $\vec{R}_i(t)$ and \vec{r} is the target electron coordinate, both relative to the target nucleus. In the first-order treatment the transition amplitude is only a coherent sum of amplitudes due to each ion of the cluster. If not indicated otherwise, all calculations throughout this work are in atomic units ($\hbar = m_e = e = 1$).

The characteristic time of interaction between the cluster and the target is much smaller than the characteristic times of vibrational and rotational cluster transitions. Therefore, the corresponding degrees of freedom can be neglected.

Taking these assumptions into account, all calculations shall be done for a cluster projectile with impact-parameter \vec{b} with respect to the cluster center. For a straight-line projectile motion without vibrational and rotational degrees of freedom, the time dependent position of the i th projectile nucleus is given by $\vec{R}_i(t) = \vec{b}_i + \vec{v}t + \vec{d}_{iz}$, where \vec{d}_i is the distance between the molecule center and the i th ion, d_{iz} is the z -component of \vec{d}_i (being $d_{iz} = \|\vec{d}_{iz}\|$), $\vec{d}_{i\rho}$ is the transversal component of \vec{d}_i (being $d_{i\rho} = \|\vec{d}_{i\rho}\|$), \vec{b}_i is given by $\vec{b}_i = \vec{b} + \vec{d}_{i\rho}$, which is the i th ion impact-parameter and \vec{v} (parallel to the z direction) is the cluster velocity. Fig. 1 shows these vectors for a diatomic molecule. The angle θ in Fig. 1 refers to the angle between the diatomic molecule axis and the z -axis. Finally, for the same molecule, the angle ϕ refers to the angle between $\vec{d}_{i\rho}$ and the x -axis.

The interacting potential V_i may be one of the following (more details about these potentials are given in [16]):

- (a) the Coulomb potential, that describes the potential induced by a moving point charge in vacuum;
- (b) the Bohr potential, that describes a potential produced by a external point charge immersed in a homogenous electron gas. The screening parameter (α_i) can be obtained either from the Debye screening length [17] or from the

generalization of the Friedel sum rule for finite velocities derived by Lifschitz and Arista [18];

- (c) the single-zeta potential, that describes the potential due a projectile carrying one or two bound electrons ($n_i = 1, 2$) in hydrogen-like 1s orbitals.

It is important to point out that not all ions of the cluster are necessarily generating the same kind of potential. Due to dynamic capture-loss processes, it is possible to find one ion of projectile cluster completely ionized, while its neighbors, after capturing an electron during ion–matter interactions, can have a single-zeta potential. This possibility must be taken into account in computer simulation codes.

According to the atomic PCA model, in a first step we shall find approximations for $Q(b)$ (Eq. (1)) that are valid for a limited range of impact-parameters and in a second step these approximations should be linked. At large impact-parameters the dipole-approximation for V_i can be used, and thus, an analytical expression [19,20] for $Q(b)$ may be obtained. Inserting the cluster interacting potential, we have, for large impact-parameters, an expression of the form

$$Q^{\text{dipole}}(b) = \sum_{i=1}^N Q_{\text{atomic}}^{\text{dipole}}(\vec{b}_i) + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N Q_{\text{int}}^{\text{dipole}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j), \quad (3)$$

where

$$Q_{\text{int}}^{\text{dipole}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j) = \sum_{\beta} f_{\beta} \frac{2Z_i Z_j}{v^2} \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \left[\frac{2\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{(b_i b_j)^2} g_{\perp}(b_i) g_{\perp}(b_j) + \frac{2g_{\parallel}(b_i) g_{\parallel}(b_j)}{b_i b_j} \right], \quad (4)$$

where, for the Coulomb potential, the functions $g_{\parallel}(b_i)$ and $g_{\perp}(b_i)$ read

$$g_{\parallel}(b_i) = \left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) K_0\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) \quad (5)$$

and

$$g_{\perp}(b_i) = \left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right) K_1\left(\frac{\omega_{\beta 0} b_i}{v}\right), \quad (6)$$

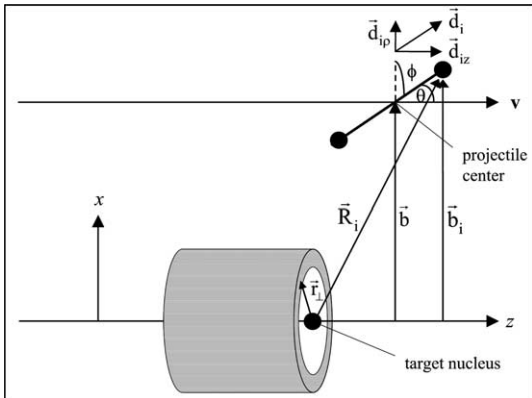


Fig. 1. Representation of the collision geometry, showing the target nucleus, the target electronic distribution, the projectile nuclei, the impact-parameter vectors and the projectile velocity.

where $K_0(x)$ and $K_1(x)$ are second kind Bessel functions (for the Bohr and single-zeta potentials, expressions are given in [16]), $f_\beta = 2|\langle\beta|z|0\rangle|^2(\varepsilon_\beta - \varepsilon_0)$ are the oscillator strengths, $d_{ijz} = d_i \cos\theta_i - d_j \cos\theta_j$ and θ_i is the angle between the z -axis and \vec{d}_i . The first term in Eq. (3) corresponds to the individual $Q_{\text{atomic}}^{\text{dipole}}(b)$ associated to each ion (see expressions in [16]) and the last one is associated to interference effects (vicinage). The first interference term in Eq. (4), the one associated with g_\perp , corresponds to the classical sudden approximation. It is important to point out that for small b_i the function $g_\perp(b_i)$ approaches 1 and $g_\parallel(b_i)$ approaches 0.

For small impact-parameters, the influence of the target potential can be neglected at high projectile energies, allowing for an analytical expression for $Q^{\text{close}}(b)$ by replacing the final target-continuum states by plane waves. Thus, the energy transfer reads

$$Q^{\text{close}}(b) = \sum_{i=1}^N Q_{\text{atomic}}^{\text{close}}(\vec{b}_i) + \int d^2 r_\perp K_{\text{int}}^{\text{close}}(\vec{r}_\perp - \vec{b}) \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_\perp, z), \quad (7)$$

where again the first term corresponds to a incoherent sum of energy losses due to each ion from the cluster (already defined in [15]) and

$$K_{\text{int}}^{\text{close}}(\vec{b}) = \frac{2}{v^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N Z_i Z_j h_{\text{int}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j) \quad (8)$$

is the interference term with

$$h_{\text{int}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j) = 4v^2 \int_0^1 dq q^2 \times \cos(2vq^2 d_{ijz}) \left\{ q \left[J_0(2vqb_i \sqrt{1-q^2}) K_0(2vq^2 b_j) + J_0(2vqb_j \sqrt{1-q^2}) K_0(2vq^2 b_i) \right] + \sqrt{1-q^2} \frac{\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{b_i b_j} \left[K_1(2vq^2 b_j) J_1(2vqb_i \sqrt{1-q^2}) + K_1(2vq^2 b_i) J_1(2vqb_j \sqrt{1-q^2}) \right] \right\}, \quad (9)$$

where J_0 and J_1 are first kind Bessel functions.

The function $h_{\text{int}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j)$ approaches zero for $b_i \ll 1/v$ or $b_j \ll 1/v$ and, for large values of b (i.e. large values for both b_i and b_j), it reaches

$$h_{\text{int}}(\vec{b}_i, \vec{b}_j) \approx 2 \frac{\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{(b_i b_j)^2}, \quad (10)$$

recognized as the interference part of the classical sudden approximation result [20] for a diatomic molecule.

In what follows, we propose the following general formula, applicable to all impact-parameters, namely

$$Q(b) = \int d^2 r_\perp K_{\text{MPCA}}(\vec{r}_\perp - \vec{b}) \int_{-\infty}^{\infty} dz \rho(\vec{r}_\perp, z), \quad (11)$$

where the kernel is defined as

$$K_{\text{MPCA}}(\vec{b}) = K_{\text{atomic}}^{\text{MPCA}}(\vec{b}) + K_{\text{int}}^{\text{MPCA}}(\vec{b}), \quad (12)$$

where $K_{\text{atomic}}^{\text{MPCA}}$ corresponds to the sum of the energy losses due to each individual ion from the cluster as presented in [15] for a single ion projectile and

$$K_{\text{int}}^{\text{MPCA}}(\vec{b}) = \sum_\beta f_\beta \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{2Z_i Z_j}{v^2} \cos\left(\frac{\omega_{\beta 0} d_{ijz}}{v}\right) \times \left[h_{\text{int}}(2v\vec{b}_i, 2v\vec{b}_j) g_\perp(b_i) g_\perp(b_j) + \frac{2g_\parallel(b_i) g_\parallel(b_j)}{\sqrt{b_i^2 + b_{\text{min}}^2} \sqrt{b_j^2 + b_{\text{min}}^2}} \right], \quad (13)$$

where $b_{\text{min}} = 1/v^2$ is defined in [20]. This is the molecular perturbative convolution approximation (MPCA).

As can be observed the kernel function in Eq. (13) is based on the expression for large impact-parameters (Eq. (3)) by replacing the interference term $\frac{2\vec{b}_i \cdot \vec{b}_j}{(b_i b_j)^2}$ by $h_{\text{int}}(b_i, b_j)$. In this way, according to Eq. (10), the above energy loss ansatz interpolates smoothly small and large impact-parameters.

In Fig. 2, we compare the dipole and close-collision interference terms with the corresponding MPCA term for two bare diatomic molecule orientations. For both orientations, we can see that MPCA and close-collision interference terms (from Eqs. (13) and (8), respectively) agree with each other for small impact-parameters and the same is observed between MPCA and dipole-approximations (from Eqs. (13) and (4) for large impact-parameters, thus reinforcing the validity of our proposed general formula (11). It should be stressed that the sudden approximation, which

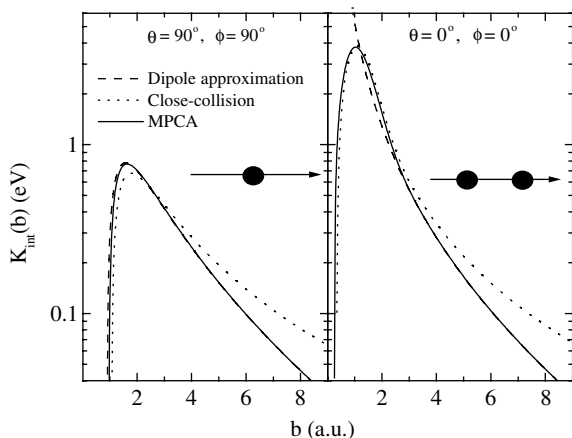


Fig. 2. Comparison between the MPCA model (solid lines), close-collision (dotted lines) and dipole-approximation (dashed lines) interference terms for bare molecules for two possible molecule orientations. In both orientations, we can see an accordance between MPCA and close-collision approximations for small impact-parameters as well as between MPCA and dipole-approximations for large impact-parameters.

was used in [15] to link close- and distant-collisions for atomic projectiles, in fact does not link the interference terms for close- and distant-collisions properly. This comes from the fact that the classical sudden approximation does not contain the interference terms due to the phase difference along the z -direction (e.g. the cosine term in Eq. (4) and in Eq. (9)).

It is important to point out that Eq. (11) is valid only for a one-electron system. In the framework of the independent particle model, however, it is possible to use Eq. (11) considering the electronic density and the dipole oscillator strengths for each electron of all occupied target shells.

In what follows, only an analysis of the interference term will be performed. The corresponding analysis of the monoatomic terms was already done in [15]. The cluster under consideration will be the diatomic hydrogen molecule. The angles θ and ϕ shown in Fig. 1 will fix the diatomic molecular orientation.

3. Discussions and conclusions

In Fig. 3 we see the results of the present model, for two molecule orientations (where $\phi = 0^\circ$), for

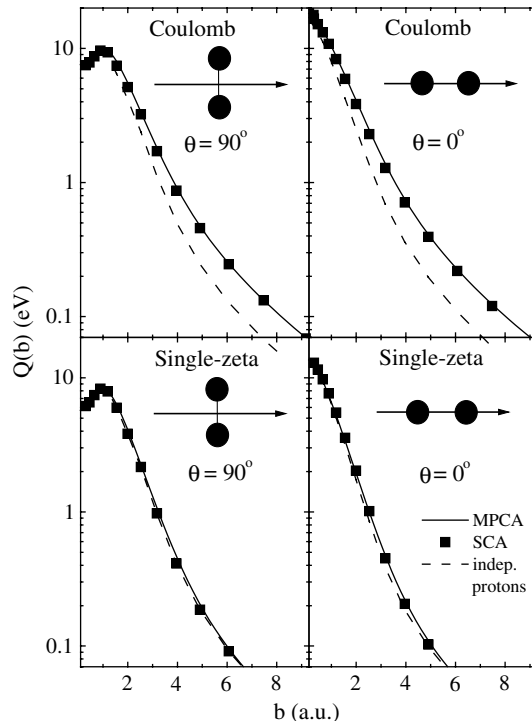


Fig. 3. Comparison between MPCA model and full first-order SCA calculations for 500 keV/amu bare (on top panel) and single-zeta screened (on bottom panel) H_2 projectile colliding with H target. The full lines stand for energy loss as a function of impact-parameter as given by the MPCA (Eq. (11)) model. The squares stand for molecular SCA calculations and, to show the interference effect, the dashed lines stand for independent protons SCA calculation.

the impact-parameter dependence of the mean energy loss of bare (top) and single-zeta screened (bottom) H_2 molecular projectiles, both at 500 keV/amu, colliding with atomic H (full line). We compare our results with full first-order molecular SCA (semiclassical approximation), similar to the numerical procedure seen in [21] calculations (squares) and with full first-order SCA for two independent protons with the same screen function and impact-parameters as used in molecular SCA (dashed line). In our tests, the interatomic distance was set to 2 a.u. (about 1.06 Å).

About 3500 target states were used in SCA calculations, to ensure an adequate number of partial waves, necessary to calculate $Q(b)$ accurately. Here we have considered two cases. The first one the

molecule has no bound electrons (two protons traveling together, interacting with Coulomb forces) and the second one where one of the proton has captured one electron from the medium (H^+ and H^0 traveling together).

Fig. 3 (on the top panel) shows a fairly good agreement between molecular SCA and MPCA model. Moreover, it is possible to appreciate the interference terms effect, shown by the difference between MPCA and independent protons SCA. For $\theta = 90^\circ$ and $\phi = 0^\circ$ (i.e. the molecule has its axis orthogonal to its motion and parallel to the impact-parameter direction), the increase of energy loss up to impact-parameter about 1 a.u. is due the choice of the coordinated system. In that orientation and for $b = 1$ a.u., one of the ions (namely the second) will have a head-on-collision with the target. In all orientations, the effect of interference terms leads to an increase in energy loss of about 50% for distant-collisions and less than 10% for close-collisions. That result agrees with the united-atom model for distant-collisions, where the energy loss is proportional to $(Z_1 + Z_2)^2$ (4, for H_2^+) and the independent atom model for close-collisions, where S_c is proportional to $Z_1^2 + Z_2^2$ (2, for H_2^+).

Fig. 3 (on the bottom panel) shows similar results for a molecule projectile, whose first ion has a single-zeta screening with $\alpha = 2$ ($Z_{\text{eff}} = 1$). It is pointed out that the interference between the projectile components is notably reduced, since the characteristic screening length $1/\alpha$ is only one quarter of the molecule length. Then, the interaction between the bare ion and the target electron is much larger than the one from the screened partner. This explains the significantly reduced difference between molecular SCA and independent proton SCA calculations for screened projectiles. Qualitatively similar results were found for different values of ϕ and for the case of Bohr screening for $\alpha = 2$ (not shown).

In conclusion, we have developed a simple formula (Eqs. (11)–(13)) to evaluate the electronic energy loss as a function of impact-parameter for cluster projectiles, valid for high clusters energies and for a wide range of impact-parameters, including the effect of screening. The input parameters are only the target density and the oscillator

strengths, as well as the projectile screening parameter for all cluster components. This model reproduces the results of full SCA calculations and is much less time consuming. Thus, the MPCA model is very adequate for use in computer channeling simulations.

Acknowledgements

This work was partially supported by Conselho Nacional Científico e Tecnológico (CNPq) and by Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES).

References

- [1] J.C. Poizat, J. Remillieux, Phys. Lett. 34A (1971) 53.
- [2] W. Brandt, A. Ratkowski, R.H. Ritchie, Phys. Rev. Lett. 33 (1974) 1325.
- [3] C. Deutsch, Laser Part. Beams 8 (1990) 541;
C. Deutsch, Laser Part. Beams 10 (1992) 355;
C. Deutsch, N.A. Tahir, Phys. Fluids B 4 (1992) 3735.
- [4] R.J. Beuhler, G. Friedlander, L. Friedman, Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 1292.
- [5] J.M. Caywood, T.A. Tombrello, T.A. Weaver, Phys. Lett. 37A (1971) 350;
T.A. Tombrello, J.M. Caywood, Phys. Rev. B 8 (1973) 3065.
- [6] J.C. Poizat, J. Remillieux, J. Phys. B: Atom. Mol. Phys. 5 (1972) L94.
- [7] V.A. Khodyrev, V.S. Kulikauskas, C. Yang, Nucl. Instr. and Meth. B 195 (2002) 259.
- [8] R.C. Fadanelli, P.L. Grande, M. Behar, J.F. Dias, G. Schiwietz, C.D. Denton, Phys. Rev. B 69 (2004) 212104.
- [9] D. Ben-Hamu, A. Baer, H. Feldman, J. Levin, O. Heber, Z. Amitay, Z. Vager, D. Zajfman, Phys. Rev. A 56 (1997) 4786.
- [10] P. Sigmund, I.S. Bitensky, J. Jensen, Nucl. Instr. and Meth. B 112 (1996) 1.
- [11] N.R. Arista, Phys. Rev. B 18 (1978) 1.
- [12] N.R. Arista, Nucl. Instr. and Meth. B 164–165 (2000) 108.
- [13] Y.N. Wang, T.C. Ma, Phys. Rev. A 50 (1994) 3192.
- [14] J. Jensen, H.H. Mikkelsen, P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B 88 (1994) 191.
- [15] P.L. Grande, G. Schiwietz, Phys. Rev. A 58 (1998) 3796.
- [16] G. de M. Azevedo, P.L. Grande, G. Schiwietz, Nucl. Instr. and Meth. B 164 (2000) 203.
- [17] M.G. Calkin, P.J. Nicholson, Rev. Mod. Phys. 39 (1967) 361.

- [18] A.F. Lifschitz, N.R. Arista, *Phys. Rev. A* 57 (1998) 200.
- [19] C.O. Reinhold, J. Burgdoerfer, *J. Phys. B: Atom. Mol. Opt. Phys.* 26 (1993) 3101.
- [20] Jackson J.D., *Classical Electrodynamics*, Wiley, 1975, Chapter 13.
- [21] G. Schiwietz, *Phys. Rev. A* 42 (1990) 296;
G. Schiwietz, P.L. Grande, *Nucl. Instr. and Meth. B* 69 (1992) 10;
P.L. Grande, G. Schiwietz, *Phys. Rev. A* 47 (1993) 1119;
P.L. Grande, G. Schiwietz, *Nucl. Instr. and Meth. B* 132 (1997) 264.



The influence of the Coulomb explosion on the energy loss of H_2^+ and H_3^+ molecules channeling along the Si $\langle 100 \rangle$ direction

R.C. Fadanelli ^{a,*}, P.L. Grande ^a, M. Behar ^a, J.F. Dias ^a, G. Schiwietz ^b

^a Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Avenida Bento Gonçalves 9500, C.P. 15051, CEP 91501-970, Porto Alegre, Brazil

^b Hahn-Meitner-Institut, Abteilung SF4, Glienicker Strasse 100, D-14109 Berlin, Germany

Abstract

In this work we have measured the contribution of the Coulomb explosion to the electronic stopping power of molecular hydrogen ions (H_2^+ and H_3^+) channeling along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. We have used a SIMOX target, consisting of crystalline Si $\langle 100 \rangle$ with a buried layer of SiO_2 . The measurements of the energy loss of H^+ , H_2^+ and H_3^+ have been carried out using the standard channeling Rutherford backscattering spectrometry. The energy loss has been measured around the Si $\langle 100 \rangle$ channel at a fixed energy per nucleon (150 keV/amu) as a function of the tilt and azimuthal angles. The present results show the effect of Coulomb explosion, which enlarges the protons traversal energy and consequently the channeling energy loss. This heating effect due to H_3^+ ions is about two times larger than H_2^+ molecules and amounts to about 5% of the total stopping power.

© 2004 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 34.50.Bw; 61.85.+p; 68.55.Ln; 61.46.+w; 36.40.-c

Keywords: Channeling; Energy loss; Coulomb explosion

1. Introduction

Beams of ionic clusters are useful tools in both fundamental and applied researches, namely mate-

rial science, plasma and nuclear physics. It is well established that the effects of a molecular beam clearly deviates from those related with its individual components. The first evidence of interference effects among the projectile constituents, namely the vicinage effect, was first reported by Brandt et al. [1] and it was further studied by several authors, e.g. [2,3]. A detailed review of the subject is given in [4].

* Corresponding author. Tel.: +55 51 3316 6517; fax: +55 51 3316 7286.

E-mail address: raul@if.ufrgs.br (R.C. Fadanelli).

A swift molecular beam, when entering a solid, shows a second effect. The projectile loses its bonding electrons in the target and its components undergo a molecular breakup process due to quasi-Coulomb repulsive forces. This is the so-called Coulomb explosion (see, for example, [5] for experiments and [6] for its theoretical description).

When a molecular beam enters a crystal under channeling conditions, these two effects may compete. From one hand, the vicinage effect leads to a non-additive stopping power, i.e. an enhancement or a reduction dependent on the projectile speed. On the other hand, the Coulomb explosion of the molecule tends to enlarge the transversal energy of the components (the so called transverse Coulomb heating [7,8]), increasing consequently the total stopping power. The transverse Coulomb heating can occur only under channeling conditions, where it affects the ion flux distribution. In principle, both effects cannot be separated and therefore, the interplay between them in the stopping power remains still unclear. In fact, differences in stopping power results of H^+ ions and H_2^+ and H_3^+ molecules have been attributed alternatively to vicinage effects [4] or to the Coulomb explosion of the molecules [9].

In order to study the role of the Coulomb explosion in the energy-loss processes, we have undertaken the present experiment where, by measuring the electronic stopping power of H^+ , H_2^+ and H_3^+ under channeling conditions as a function of the tilting angle, we were able not only to isolate the effect of the Coulomb explosion but also to estimate its contribution to the total stopping power.

2. Experimental setup and procedure

The measurements of the H^+ , H_2^+ and H_3^+ stopping powers were done using a SIMOX target composed by a 200 nm Si $\langle 100 \rangle$ film on top of a 400 nm SiO_2 film, both being constructed over a Si $\langle 100 \rangle$ wafer. Beams of H^+ , H_2^+ and H_3^+ of 150 keV/amu incident on the SIMOX target were backscattered in the target and collected by a surface barrier detector. The resolution of the detector plus the electronic system was better than 7 keV.

In the first place a H^+ channeling spectrum was obtained. With this aim we first located the $\langle 100 \rangle$ axis. Then, we tilted the sample at 6° and subsequently a complete scanning on the z axis was performed in order to identify the $\{100\}$ and $\{110\}$ planes. Following, a channeling spectrum was acquired at 15° with respect to the $\{100\}$ plane. In the sequence, a random spectrum was recorded. This procedure was repeated at 30° , 60° and 75° with respect to the $\{100\}$ plane by selection of a new irradiation area on the sample. Typical backscattering spectra are shown in Fig. 1 for H^+ projectiles. Finally, the whole procedure was repeated with the H_2^+ and H_3^+ molecules taking care that the energy per amu and the current per particle were the same in all experiments.

According to the procedure outlined in [10], the electronic stopping power can be determined directly from the spectrum of backscattered particles by fitting a particular function that takes into account the contribution of the dechanneling particles. The results of the H^+ , H_2^+ and H_3^+ channeling stopping powers as a function of the incident angle are displayed in Fig. 2. Each datapoint was obtained by the following procedure: in the first place, we have done the average between the four individual azimuth measurements. Then, we have taken the mean value between each pair of symmetrical tilt angles (e.g. $+0.2^\circ$ and -0.2°). This mean value is the one plotted at each side of the

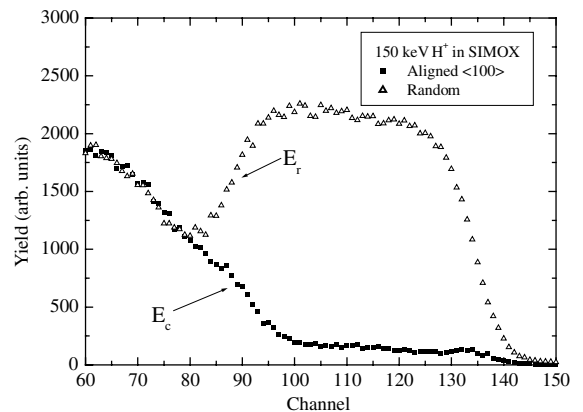


Fig. 1. RBS/channeling spectra of the SIMOX target. Open triangles stand for random spectrum and the squares stand for the $\langle 100 \rangle$ channeling spectrum.

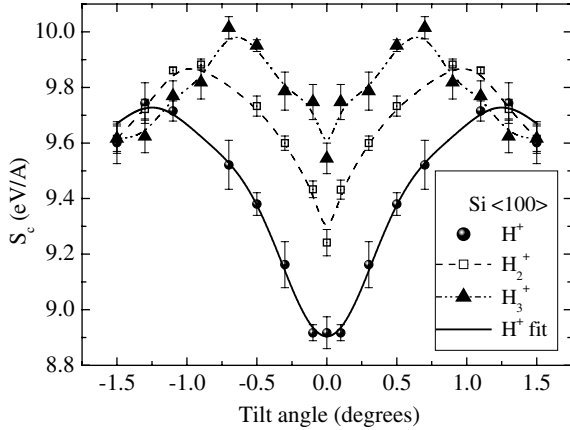


Fig. 2. Channeling stopping power as a function of the tilt angle. Full circles correspond to H^+ ions, open squares correspond to H_2^+ molecule and full triangles to H_3^+ molecules. The full line is the fitting to the H^+ data (using two gaussian functions) and the other lines are plotted only to guide the eyes.

curve shown in Fig. 2. The error bars represent the statistical uncertainty involved in the overall procedure described previously. As can be observed, the H^+ scanning shows the most pronounced dip and the most distant shoulders with respect to the center of the channel, followed by the one corresponding to H_2^+ and, finally, the shallower one belonging to the H_3^+ molecule, having the nearest shoulders.

3. Data analysis and results

For the analysis of the H_2^+ and H_3^+ stopping powers we assume that the molecular stopping power S_m as a function of the tilt angle Ψ and averaged over the azimuthal angles has three components,

$$S_m(H_n^+, \Psi) = S(H^+, \Psi) + \Delta S_{vic}(H_n^+) + \Delta S_{exp}(H_n^+, \Psi) \quad (1)$$

with $S(H^+, \Psi)$ corresponding to uncorrelated H^+ fragments, the contributions due to the vicinage and the Coulomb explosion effects ΔS_{vic} and ΔS_{exp} , respectively. The sum of these last two contributions is shown in Fig. 3. For this sake, we have subtracted from the H_2^+ and H_3^+ distributions the one corresponding to the $S(H^+, \Psi)$. Here we

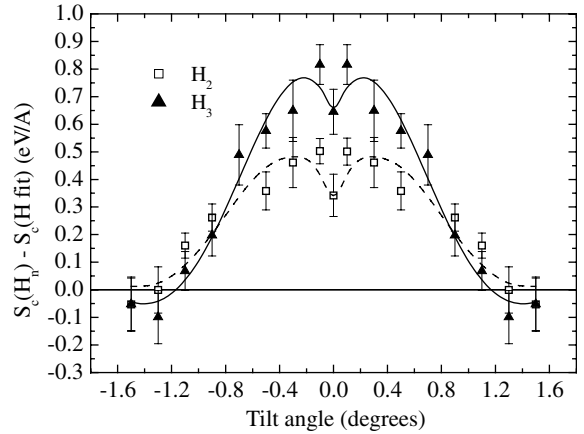


Fig. 3. Molecular H_2^+ and H_3^+ stopping powers after subtracting the H^+ contribution.

have used a fitting curve for $S(H^+, \Psi)$ (displayed in Fig. 2 with a full line).

The contributions of the vicinage and Coulomb explosion effects on the molecular stopping power shown in Fig. 3 have a peculiar shape as a function of the tilt angle and can be easily interpreted by invoking the angular compensation rule proposed by Lindhard [11]. The angular average over all tilt and azimuthal angles washes out any crystalline effects and its mean value shall correspond to the one for an amorphous target. In that way, if there is an enhancement of the energy loss for $\Psi \approx 0$ due to vicinage and/or the transversal heating during the molecular breakup, there should be a compensating effect that shall lead to a decreasing of the energy loss at some other tilt angle Ψ . Physically, this decreasing at larger tilt angles can be explained in terms of a rechanneling of one of the H^+ fragments. In the case of H_2^+ projectiles at 150 keV/amu, the aperture angle (after the explosion) is about the angle where the shoulders appear.

The angular shape in Fig. 3 can be modeled by considering the following conditions:

- ΔS_{vic} should be nearly independent of Ψ . It has been shown in [4] that the vicinage effect has a weak dependence on the projectile orientation. Therefore, it basically affects the whole $S_m(\Psi)$ angular distribution without modifying its shape;

- (b) the mean value of ΔS_{exp} has to be equal to zero in accordance to the Lindhard's angular compensation rule [11] ($\int d\Psi \sin(\Psi) \times \Delta S_{\text{exp}}(\Psi) = 0$);
- (c) for larger Ψ , the function ΔS_{exp} should vanish. In non-aligned conditions, the ion flux distribution is nearly uniform. Therefore, the effect of the Coulomb explosion should be negligible;
- (d) $\Delta S_{\text{exp}}(\text{H}_n^+, \Psi)$ should be an even function.

We found that the simplest function (for $\Psi \ll 10^\circ$) that fulfills all these conditions is

$$\Delta S_{\text{exp}}(\text{H}_n^+, \Psi) = C \sin(k |\Psi| + \gamma) e^{\frac{k|\Psi|(1-\cos\gamma)}{\sin\gamma}}, \quad (2)$$

where C , k and γ are constants. These constants and ΔS_{vic} (tilt independent) have been used as fitting parameters.

In Fig. 3, with full and dashed lines the fitting of Eq. (2) to the H_2^+ and H_3^+ results are shown. As can be observed our proposed ansatz Eq. (2) describes very well the experimental data. The contribution of the Coulomb explosion for $\Psi = 0$ are following ones: for H_2^+ , $0.18 \pm 0.05 \text{ eV/\AA}$; and for H_3^+ , $0.49 \pm 0.05 \text{ eV/\AA}$. These values correspond to about 2% and 5% of the stopping of H^+ in Si.

The maximum contribution of ΔS_{exp} to the stopping power occurs at about the critical angle Ψ_c . It reaches 0.3 eV/\AA for H_2 and 0.6 eV/\AA for H_3 . Finally, as already mentioned, the negative values of ΔS_{exp} indicate a rechanneling of one of the individual ions. The Coulomb explosion, acting as a astigmatic lens for the ion beam [6], can be the responsible for the rechanneling effect. In fact, it can redirect part of the molecule fragments that otherwise would not be channeled if the beam had no angular dispersion.

In summary, by performing a simple RBS/channeling experiment with H^+ , H_2^+ and H_3^+ projectiles on a SIMOX target we were able to evaluate the Coulomb explosion contribution to the total stopping power. With this aim, we have performed, for each angle, each azimuth, and each projectile, stopping power measurements. The experiments

were repeated at four different azimuths and an average has given the H^+ , H_2^+ and H_3^+ final stopping powers as a function of the incident angle. Subsequently, we have subtracted from the H_2^+ and H_3^+ stopping powers the H^+ contribution. In a next step, we have fitted the obtained results with an expression that contains the vicinage and the Coulomb explosion effects. By assuming that the vicinage effect does not affect significantly the shape of the resulting distributions and the angular compensation rule of Lindhard, we were able to extract the H_2^+ and H_3^+ Coulomb explosion contributions to the total stopping power.

Acknowledgements

This work was partially supported by Conselho Nacional Científico e Tecnológico (CNPq) and by Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES).

References

- [1] W. Brandt, A. Ratkowski, R.H. Ritchie, Phys. Rev. Lett. 33 (1974) 1325.
- [2] J.W. Tape, W.M. Gibson, J. Remillieux, R. Laubert, H.E. Wegner, Nucl. Instr. and Meth. 132 (1976) 75.
- [3] K.B. Baudin, A. Brunelle, P. Chaurand, S. Della-Negra, J. Depauw, P. Hakansson, Y.L. Beyec, Nucl. Instr. and Meth. B 94 (1994) 341.
- [4] N.R. Arista, Nucl. Instr. and Meth. B 164–165 (2000) 108.
- [5] D.S. Gemmel, J. Remillieux, J.-C. Poizat, M.J. Gaillard, R.E. Holland, Z. Vager, Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 1420.
- [6] P. Sigmund, Nucl. Instr. and Meth. B 67 (1992) 11.
- [7] J.M. Caywood, T.A. Tombrello, T.A. Weaver, Phys. Lett. 37A (1971) 350; T.A. Tombrello, J.M. Caywood, Phys. Rev. B 8 (1973) 3065.
- [8] J.C. Poizat, J. Remillieux, J. Phys. B: Atom. Mol. Phys. 5 (1972) L94.
- [9] V.A. Khodyrev, V.S. Kulikauskas, C. Yang, Nucl. Instr. and Meth. B 195 (2002) 259.
- [10] J.H.R. dos Santos, P.L. Grande, M. Behar, H. Boudinov, G. Schiwietz, Phys. Rev. B 55 (1997) 4332.
- [11] J. Lindhard, Mat.-Fys. Medd. K. Dan. Vidensk. Selsk. 34 (1965) 14.

10. Apêndice C: energia ganha pelo alvo e energia perdida pelo projétil

Neste apêndice, será provada a equivalência entre duas importantes alternativas conceituais para o cálculo da transferência de energia por parâmetro de impacto $Q(b)$ entre um projétil e um único átomo alvo. A primeira alternativa é o cálculo direto da energia perdida pelo projétil para o alvo:

$$Q(b) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{dW}{dt} \quad (115)$$

onde

$$\frac{dW}{dt} = -\nabla_{\vec{R}} V_{ind}(\vec{R}, t) \cdot \vec{v} \quad (116)$$

sendo R a posição do projétil, v a velocidade do projétil, e V_{ind} a energia potencial induzida (e não o potencial induzido) do sistema projétil-alvo, induzida pela presença do projétil como carga externa.

Do ponto de vista do formalismo de física atômica, a energia potencial é dada pela expressão

$$V_{ind}(\vec{R}, t) = \langle \psi(t) | V_p(\vec{R}) | \psi(t) \rangle - \langle \phi_0 | V_p(\vec{R}) | \phi_0 \rangle \quad (117)$$

onde $V_p(\vec{R}) = Z_p Z_t / |\vec{R}(t) - \vec{r}|$, sendo r a coordenada do sistema eletrônico do alvo, Z_p é a carga do projétil, Z_t é a carga do átomo alvo, ψ é o estado final da nuvem eletrônica do átomo alvo e ϕ_0 é o estado inicial do sistema. Vê-se que V_p é explicitamente independente do tempo, ao contrário de V_{ind} .

A segunda alternativa é dada pela energia que o alvo ganhou. Pela lei de conservação de energia, espera-se que seja igual à energia perdida pelo projétil. Para descrevermos este ganho de energia, seja H_0 o hamiltoniano não perturbado do átomo alvo. Definimos, então, a energia ganha pelo alvo como a seguinte diferença entre valores esperados:

$$Q(b) = \langle \psi(t \rightarrow \infty) | H_0 | \psi(t \rightarrow \infty) \rangle - \langle \phi_0 | H_0 | \phi_0 \rangle \quad (118)$$

Faz-se, neste momento, a expansão do estado ψ em termos dos autoestados do hamiltoniano não perturbado, usando-se:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{\beta} a_{\beta}(b,t) |\phi_{\beta}\rangle \quad (119)$$

onde vale a definição dos autoestados de H_0 : $H_0 |\phi_{\beta}\rangle = \varepsilon_{\beta} |\phi_{\beta}\rangle$.

Fazendo-se a expansão, resta a eq. (34):

$$Q(b) = \sum_{\beta} |a_{\beta}(b, t \rightarrow \infty)|^2 (\varepsilon_{\beta} - \varepsilon_0) \quad (120)$$

A meta deste apêndice é mostrar a equivalência entre as equações (115) e (120). Para isto, a eq.(116) será reescrita usando-se a seguinte igualdade:

$$\frac{dV_{ind}}{dt} = \nabla_R V_{ind} \cdot \vec{v} + \frac{\partial V_{ind}}{\partial t}. \quad (121)$$

Assim, a energia perdida pelo projétil passa a ser:

$$Q(b) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{dV_{ind}}{dt} - \int_{-\infty}^{+\infty} dt \frac{\partial V_{ind}}{\partial t}. \quad (122)$$

A primeira integral pode ser trivialmente calculada. Como o valor esperado do potencial é nulo nos limites de integração envolvidos, temos que somente o segundo termo de $Q(b)$ contribui para a perda de energia. Assim sendo, procede-se à aplicação do operador de derivação em V_{ind} . Notando-se que, como dito no início, V_p independe do tempo, temos:

$$Q(b) = - \int_{-\infty}^{+\infty} dt \left\{ \left(\frac{\partial}{\partial t} \langle \psi | \right) V_p | \psi \rangle + \langle \psi | V_p \left(\frac{\partial}{\partial t} | \psi \rangle \right) \right\}. \quad (123)$$

Usando, agora, a equação de Schrödinger na forma $H |\psi\rangle = i \partial |\psi\rangle / \partial t$, temos:

$$Q(b) = - \int_{-\infty}^{+\infty} dt i \langle \psi | [H, V_p] | \psi \rangle \quad (124)$$

Neste momento, será necessário calcular o comutador que surgiu. Para isso, notando-se que $[H, V_p] = [H_0, V_p]$ e usando-se a expansão mostrada na eq. (119), resta:

$$i\langle \Psi | [H, V_p] | \Psi \rangle = i \left\{ \sum_{\alpha} a_{\alpha}^* \varepsilon_{\alpha} \sum_{\beta} a_{\beta} V_{\alpha, \beta} - \sum_{\beta} a_{\beta} \varepsilon_{\beta} \sum_{\alpha} a_{\alpha}^* V_{\alpha, \beta} \right\}. \quad (125)$$

onde $V_{\alpha, \beta} = \langle \phi_{\alpha} | V_p | \phi_{\beta} \rangle$.

Usando-se o fato de que $V_{\alpha, \beta} = V_{\beta, \alpha}^{\dagger}$ e usando-se a equação de Schrödinger expandida na base de autoestados do hamiltoniano não perturbado:

$$i \frac{da_{\beta}}{dt} = \sum_{\alpha} a_{\alpha} V_{\beta, \alpha} + a_{\beta} \varepsilon_{\beta}, \quad (126)$$

temos:

$$-i \langle \Psi | [H, V_p] | \Psi \rangle = \sum_{\beta} \varepsilon_{\beta} \frac{d}{dt} |a_{\beta}(b, t)|^2, \quad (127)$$

que, por sua vez, inserida na equação (124), resulta, lembrando que $a_{\beta}(b, t \rightarrow -\infty) = \delta_{\beta, 0}$, imediatamente na eq. (120), como queríamos demonstrar.

11. Apêndice D: o modelo de dois feixes

Uma importante grandeza para se descrever teoricamente o estado de canalização de um feixe de íons no alvo é a distribuição de energias transversais $g(E_{\perp}, z)$ de um feixe de íons em função da energia transversal e da profundidade z na amostra.

Uma maneira de se obter a tal distribuição é através do modelo descontínuo [71], que divide o espectro de energias transversais em valores discretizados. Define-se, assim, uma distribuição discretizada de energias transversais como:

$$g_i(z) = \int_{E_{\perp i-1}}^{E_{\perp i}} dE_{\perp} g(E_{\perp}, z);$$

$$\sum_{i=1}^{i_{\max}} g_i(z) = 1 \quad (128)$$

onde as energias discretizadas são dadas por $E_{\perp i} = (E\psi_1^2/2)[i/(i_{\max} - i)]$, onde i_{\max} é o maior número de energias discretizadas e ψ_1 é o ângulo crítico de Lindhard.

No caso particular do modelo de dois feixes, $i_{\max} = 2$. Tem-se dois grupos de partículas no canal: $i = 1$, que corresponde aos íons canalizados e $i = 2$, que corresponde aos íons não canalizados.

Uma vez tendo-se as expressões de g_i , pode-se encontrar o valor da fração de partículas decanalizadas χ como função da profundidade (para maiores detalhes, ver referência [71]). Tal fração corresponde à fração de partículas que *podem* ser medidas e detectadas por RBS. No entanto, nem todas o serão, mas sim apenas as que emergirem da amostra sob um ângulo adequado do detector.

Tendo esta idéia em mãos, pode-se estimar a fração de íons detectados ao emergir de um alvo tipo SIMOX (que, essencialmente, são os que podem ser medidos por RBS), usando-se a soma das contribuições de RBS (ou PIXE) oriundas da fração de íons que permaneceu canalizada por toda a camada de Si (f_c) ou que decanalizou antes de chegar à camada amorfa (f_d):

$$\begin{aligned}
f_c(E_1) &= \int_{channel} d^2b \int_0^t dz [1 - \chi(z)] P_{sc}^c(z, \vec{b}) \exp\left(\frac{(E_1 - E_c(z))^2}{2\sigma_{res}^2}\right) \\
f_d(E_1) &= \int_{channel} d^2b \int_0^t dz \int_0^z d\chi(z') P_{sc}(z, z', \vec{b}) \exp\left(\frac{(E_1 - E_c(z))^2}{2\sigma_{res}^2}\right) \\
P_{sc}^c(z, \vec{b}) dz &= N_c(z, \vec{b}) \sigma(E) dz \underset{string}{\approx} N_c(\vec{b}) \sigma(E) dz \\
P_{sc}(z, z', \vec{b}) dz &= N(z, \vec{b}) \sigma(E) dz \underset{string}{\approx} N(\vec{b}) \sigma(E) dz \\
\frac{d\chi}{dz} &= \alpha(\psi)[1 - \chi]
\end{aligned} \tag{129}$$

Onde $P_{sc}(z, z', b)$ é a probabilidade de retroespalhamento (no caso de RBS) ou de ionização da camada K do Si (no caso de PIXE) de um íon decanalizado em z' e retroespalhado em z (sendo que a decanalização ocorre neste caso antes do retroespalhamento, não simultaneamente), $P_{sc}^c(z, b)$ é a mesma probabilidade que a anterior, exceto que vale para um íon canalizado retroespalhado em z (no caso, o evento de retroespalhamento coincide com o evento de decanalização), N_c é a densidade de átomos do alvo em um dado ponto b do plano transversal do canal vista pela fração canalizada dos íons, $N(b)$ é a densidade de átomos do alvo vista pela fração decanalizada dos íons, $\sigma(E)$ é a seção de choque de interação entre os íons e os átomos do alvo (a seção de Rutherford), χ é a fração de partículas decanalizadas a uma dada profundidade z , com qualquer energia, E_1 é a energia em que o evento (RBA ou PIXE) está sendo medido, E_c é a energia de saída do íon (ou do fóton de raios X), σ_{res} é a resolução experimental da medida de energia, α é a taxa de decanalização, A é a área do canal e N é a densidade do alvo. O parâmetro a ser encontrado era a taxa de decanalização α em função do ângulo de incidência dos íons, por meios de ajustes que, por meio de sucessivas comparações de decanalizações, permitiria determinar o valor do aquecimento de Coulomb levando-se em conta importantes parâmetros físicos envolvidos nos processos de RBS e PIXE.

Essencialmente, para encontrarmos os fatores de decanalização, considerou-se que a taxa de decanalização dos íons moleculares pode assumir dois valores distintos, de acordo com a profundidade: até uma profundidade t , a taxa teria um valor constante e igual à taxa para íons monoatômicos. Após essa profundidade, a taxa assume um valor constante um pouco superior (a fim de se levar em conta o pequeno retardo da explosão coulombiana, que perturba o fluxo de íons do canal essencialmente a partir de t). Sem este cuidado, haveria erros consideráveis na obtenção dos valores de decanalização que seriam bastante evidentes nos espectros de RBS.

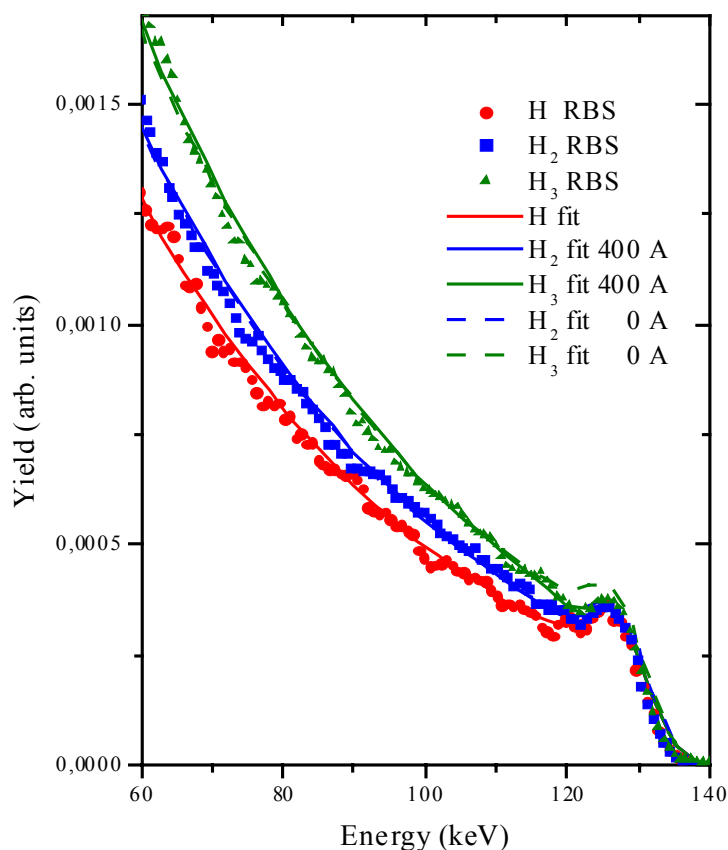


Figura 36: Ajustes dos espectros de RBS canalizados com o uso de funções baseadas no modelo de dois feixes. Nota-se, em especial para o feixe de H_3 , como a ausência do retardo da explosão coulombiana leva a um erro considerável do ajuste perto do sinal da superfície da amostra.

Isso posto, espectros de RBS e número de contagens de PIXE eram obtidos para a condição não alinhada do feixe de íons e usados como referência. A partir daí, fazia-se uma varredura angular em torno da direção do canal $\langle 100 \rangle$, obtendo-se os espectros de RBS e o número de contagens de PIXE em função do ângulo. Buscavam-se, então, os valores de α que, por meio de um programa que usava as expressões de f_c e f_d , reproduzisse os espectros de RBS ou as áreas de PIXE. Para cada ângulo ψ e para cada feixe, as taxas de decanalização foram plotadas e comparadas com o uso da eq. (48). Um exemplo dos ajustes é mostrado na Figura 36, para espectros obtidos a partir do feixe alinhado com o eixo $\langle 100 \rangle$ da amostra e que, através de tentativas nos espectros de RBS, revelou-se que o melhor valor para o retardo t da explosão coulombiana é cerca de 40 nm. Tal valor foi, então, levado para as análises de PIXE.

Uma vez tendo-se os valores de decanalização que melhor ajustavam os espectros, foram

elaborados gráficos semelhantes aos da Figura 37, em que o valor do aquecimento de Coulomb pôde ser calculado com maior exatidão do que através da análise direta das áreas dos espectros de PIXE. Para as irradiações de H₂ e H₃ em condição canalizada, procuraram-se os valores de inclinação ψ_c do feixe de H que fizessem coincidir os valores de decanalização dos feixes moleculares com os valores do feixe atômico. Por meio da análise do hamiltoniano do movimento

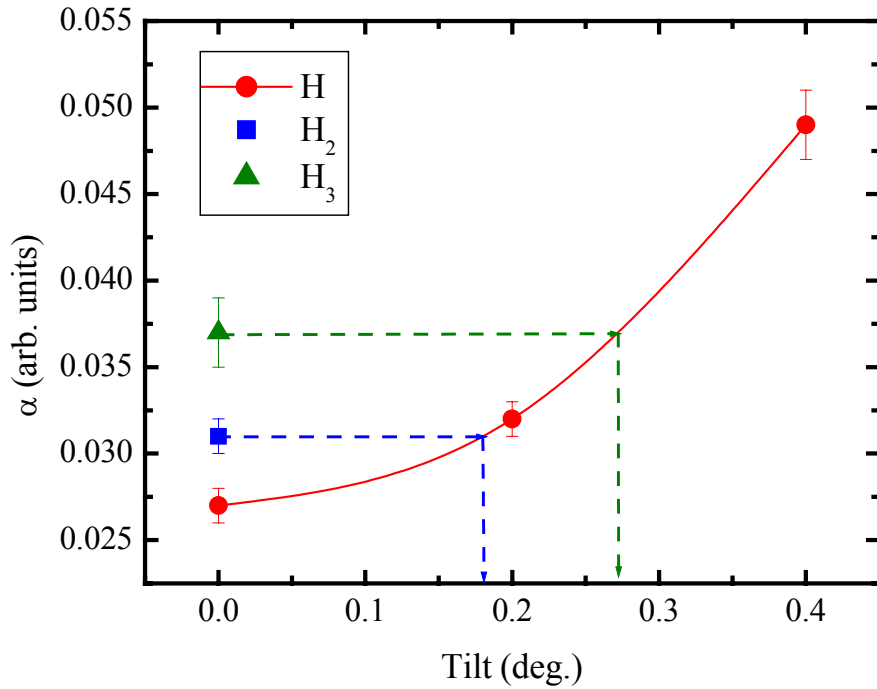


Figura 37: Os valores da taxa de decanalização em função do tipo de feixe empregado e do ângulo de incidência. As setas indicam os valores de $\sqrt{\delta E_c/E_0}$ que permitem, por sua vez, determinar o aquecimento de Coulomb.

transversal dos íons no canal, mostra-se que esse valor de inclinação correspondia ao valor médio do aquecimento de Coulomb δE_c através da expressão $\psi_c = \sqrt{\delta E_c/E_0}$, onde E_0 é a energia do feixe. Com isso, o aquecimento de Coulomb pôde ser levantado levando-se em conta o retardo da explosão coulombiana tanto usando os espectros de RBS quanto as áreas de PIXE.

12. Referências

- [1] BENGUERBA, M.; BRUNELLE, A.; DELLA-NEGRA, S.; DEPAUW, J.; JORET, H.; Le-BEYEC, Y.; BLAIN, M. G.; SCHWEIKERT, E. A.; ASSAYAG, G. B.; SUDRAUD, P. Impact of slow gold clusters on various solids: nonlinear effects in secondary ion emission. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 62, n. 1, p. 8-22, Nov. 1991.
- [2] DÖBELI, M.; NEBIKER, P. W.; MÜHLE, R.; SUTER, M. Sputtering and defect production by focused gold cluster ion beam irradiation of silicon. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 132, n. 4, p. 571-577, Dec. 1997.
- [3] YAMADA, I.; MATSUO, J.; TOYODA, N. Cluster ion beam process technology. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 206, n. 1, p. 820-829, May 2003.
- [4] ANDERSEN, H. H.; BRUNELLE, A.; DELLA-NEGRA, S.; DEPAUW, J.; JACQUET, D.; Le BEYEC, Y.; CHAUMONT, J; BERNAS, H. Giant metal sputtering yields induced by 20-5000 keV/atom gold clusters. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 80, n. 24, p. 5433-5436, June 1998.
- [5] ROTHARD, H.; KRONEBERGER, K.; VEJE, E.; CLOUVAS, A.; KEMMLER, J.; KOSCHAR, P.; KELLER, N.; LENCINAS, S.; LORENZEN, P.; HEIL, O.; HOFMANN, D.; GROENENVELD, K.-O. Experimental study of molecular and cluster effects in secondary electron emission. *Physical Review B*, Woodbury, v. 41, n. 7, p. 3959-3967, Mar. 1990.
- [6] RULE, D. W.; CRAWFORD, O. H. Nature of the beam density effect on energy loss by nonrelativistic charged particle-beams. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 52, n. 11, p. 934-937, Mar. 1984.
- [7] BEUHLER, R. J.; FRIEDLANDER, G.; FRIEDMAN, L. Cluster-impact fusion. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 63, n. 12, p. 1292-1295, Sept. 1989.
- [8] BRANDT, W.; RATKOWSKI, A.; RITCHIE, R. H. Energy loss of swift proton clusters in solids. *Physical Review Letters*, New York, v. 33, n. 22, p. 1325-1328, Nov. 1974.
- [9] BAUDIN, K.; BRUNELLE, A.; CHABOT, M.; DELLA-NEGRA, S.; DEPAUW, J.; GARDÈS, D.; HÅKANSSON, P.; Le-BEYEC, Y.; BILLEBAUD, A.; FALLAVIER, M.; REMILLIEUX, J.; POIZAT, J. C.; THOMAS, J. P. Energy loss by MeV carbon clusters and fullerene ions and solids. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 94, n. 3, p. 341-344, Nov. 1994.
- [10] ARISTA, N. R. Stopping of molecules and clusters. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, p. 108-138, Apr. 2000.
- [11] GEMMELL, D. S.; REMILLIEUX, J.; POIZAT, J. C.; GAILLARD, M. J.; HOLLAND, R. E.; VAGER, Z. Evidence for an alignment effect in the motion of swift ion clusters through solids. *Physical Review Letters*, New York, v. 34, n. 23, p. 1420-1424, June 1975.
- [12] SIGMUND, P. Scattering and stopping of swift diatomic molecules under Coulomb explosion. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v.67, n. 1/4, p. 11-16, Apr.

1992.

- [13] FARIZON, M.; FARIA, N. V. de C.; FARIZON-MAZUY, B.; GAILLARD, M. J. Interaction of hydrogen H_n^+ clusters with thin carbon foils. *Physical Review A*, Woodbury, v. 45, n. 1, p. 179-183, Jan. 1992.
- [14] FARIA, N. V. de C.; WOLFF, W.; COELHO, L. F. S.; WOLF, H. E. Center-of-mass energy distributions of the fragments from the collisional breakup reaction $H_3^+ \rightarrow H^+ + H^+ + H^-$ in argon at high velocities. *Physical Review A*, Woodbury, v. 45, n. 5, p. 2957-2964, Mar. 1992.
- [15] FARIZON, M.; FARIA, N. V. de C.; MAZUY, B. F.; GAILLARD, M. J. Model for hydrogen-atom production from the dissociation of fast H_n^+ cluster ions by thin foils. *Physical Review A*, Woodbury, v. 55, n. 1, p. 335-341, Jan. 1997.
- [16] BARRIGA-CARRASCO, M. D.; GARCIA-MOLINA, R. Vicinage forces between molecular and atomic fragments dissociated from small hydrogen clusters and their effect on energy distributions. *Physical Review A*, Mellville, v. 68, n. 6, 062902 8 p., Dec. 2003.
- [17] HEREDIA-AVALOS, S.; GARCIA-MOLINA, R.; ABRIL, I. Spatial and energy distributions of the fragments resulting from the dissociation of swift molecular ions in solids. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 190, n. 1/4, p. 131-135, May 2002.
- [18] GEMMELL, 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.
- [19] FEARICK, R. W. Approach to transverse equilibrium in axial channeling. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, p. 88-96, Apr. 2000.
- [20] COHEN, C.; DAUVERGNE, D. High energy ion channeling: principles and typical applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 225, n. 1/2, p. 40-71, Aug. 2004.
- [21] CAYWOOD, J. M.; TOMBRELLO, T. A.; WEAVER, T. A. Backscattering from crystals using molecular hydrogen ions. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 37, n. 4, p. 350-352, Dec. 1971.
- [22] TOMBRELLO, T. A.; CAYWOOD, J. M. Molecular-ion effects in backscattering from aligned silicon crystals. *Physical Review B*, New York, v. 8, n. 7, p. 3065-3070, Oct. 1973.
- [23] KHODYREV, V. A.; KULIKAUSKAS, V. S.; YANG, C. The Coulomb explosion of molecular ions in channeling conditions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 195, n. 3/4, p. 259-268, Oct. 2002.
- [24] SIGMUND, P.; BITENSKY, I. S.; JENSEN, J. Molecule and cluster bombardment: energy loss, trajectories, and collision cascades. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 112, n. 1/4, p. 1-11, May 1996.
- [25] ARISTA, N. R. Energy loss of correlated charges in an electron gas. *Physical Review B*, New York, v. 18, n. 1, p. 1-8, July 1978.
- [26] BASBAS, G.; RITCHIE, R. H. Vicinage effects in ion-cluster collisions with condensed matter

-
- and with single atoms. *Physical Review A*, New York, v. 25, n. 4, p. 1943-1962, Apr. 1982.
- [27] MERMIN, N. D. Lindhard dielectric function in the relaxation-time approximation. *Physical Review B*, New York, v. 1, n. 5, p. 2362-2363, Mar. 1970.
- [28] ABRIL, I.; GARCIA-MOLINA, R.; DENTON, C. D.; PÉREZ-PÉREZ, F. J.; ARISTA, N. R. Dielectric description of wakes and stopping powers in solids. *Physical Review A*, Woodbury, v. 58, n. 1, p. 357-366, July 1998.
- [29] WANG, Y.-N.; MA, T. C. Stopping power for hydrogen molecular ions in solids: Influence of the inner-shell electrons of the target atoms. *Physical Review A*, Woodbury, v. 50, n. 4, p. 3192-3196, Oct. 1994.
- [30] LI, H.-W.; WANG, Y.-N.; MISKOVIC, Z. Influence of wake-potential asymmetry on charge states and Coulomb explosion of fast molecular ions in solids. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 193, n. 1/4, p. 204-208, June 2002.
- [31] JENSEN, J.; MIKKELSEN, H. H.; SIGMUND, P. Orientational dependence of electronic stopping of molecule and cluster ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 88, n. 1/2, p. 191-195, Apr. 1994.
- [32] BEN-HAMU, D.; BAER, A.; FELDMAN, H.; LEVIN, J.; HEBER, O.; AMITAY, Z.; VAGER, Z.; ZAJFMAN, D. Energy loss of fast clusters through matter. *Physical Review A*, Woodbury, v. 56, n. 6, p. 4786-4794, Dec. 1997.
- [33] RAY, E.; KIRSCH, R.; MIKKELSEN, H. H.; POIZAT, J. C.; REMILLIEUX, J. Slowing down of hydrogen clusters in thin foils. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 69, n. 1, p. 133-141, June 1992.
- [34] LEVI-SETTI, R.; LAM, K.; FOX, T. R. H_2^+ traversing ultra-thin carbon foils: cluster effects in the energy loss at 12.5 and 25 keV/amu. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Amsterdam, v. 194, n. 1/3, p. 281-284, Mar. 1982.
- [35] GOLOVCHENKO, J.; LAEGSGAARD, E. Correlated scattering of protons impinging as hydrogen molecules. *Physical Review A*, Woodbury, v. 9, n. 3, p. 1215-1219, Mar. 1994.
- [36] DENTON, C. D.; ABRIL, I.; BARRIGA-CARRASCO, M. D.; GARCIA-MOLINA, R.; LANTSCHNER, G. H.; ECKARDT, J. C.; ARISTA, N. R. Effect of the neutral charge fraction in the Coulomb explosion of H_2^+ ions through aluminum foils. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 193, n. 1/4, p. 198-203, June 2002.
- [37] FARIZON, B.; FARIZON, M.; GAILLARD, M. J.; GERLIC, E.; GENRE, R.; LOUC, S.; FARIA, N. V. de C.; JALBERT, G. Direct observation of multi-ionization and multi-fragmentation in a high-velocity cluster-atom collision. *Chemical Physics Letters*, Amsterdam, v. 252, n. 1/2, p. 147-152, Apr. 1996.
- [38] GARCIA-MOLINA, R.; BARRIGA-CARRASCO, M. D. Simulation of the recombination yield for swift H_2^+ ions through thin carbon foils. *Physical Review A*, Mellville, v. 68, n. 5, 054901 4 p., Nov. 2003.

-
- [39] LAMMICH, L.; BUHR, H.; KRECKEL, K.; KROHN, S.; LANGE, M.; SCHWALM, D.; WESTER, R.; WOLF, A.; STRASSER, D.; ZAJFMAN, D.; VAGER, Z.; ABRIL, I.; HEREDIA-AVALOS, S.; GARCIA-MOLINA, R. Coulomb-explosion imaging of CH_2^+ : target-polarization effects and bond-angle distribution. *Physical Review A*, Melville, v. 69, n. 6, 062904 10 p., June 2004.
- [40] BEHAR, M.; GRANDE, P. L.; AZEVEDO, G. de M.; ALVES, E.; SILVA, M. F. da; SOARES, J. C. Molecular H_2^+ and H_3^+ energy loss measurements along the Si $\langle 111 \rangle$ direction. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v.161/163, p. 168-171, Mar. 2000.
- [41] BEHAR, M.; DIAS, J. F.; GRANDE, P. L.; SANTOS, J. H. R. dos; ARISTA, N. R. Electronic energy loss of H_3^+ ion clusters in SiO_2 films. *Physical Review A*, Melville, v. 64, n. 2, 022904 5 p., Aug. 2001.
- [42] CHU, W.-K.; MAYER, J. W.; NICOLET, M.-A. *Backscattering spectrometry*. New York: Academic Press, 1978.
- [43] MARION, J. B. *Classical dynamics of particles and systems*. New York: Academic Press, 1970.
- [44] SANTOS, J. H. R. dos; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; BOUDINOV, H.; SCHIWETZ, 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. 4332-4342, Feb. 1997.
- [45] CAMPBELL, J. L; MAXWELL, J. A. Compilation of the atomic physics database for the GUPIX program. Disponível em: <<http://www.physics.uoguelph.ca/PIXE/gupix/gupixref.html>>. Acesso em: 06 abr. 2005.
- [46] MAUREL, B.; AMSEL, G. Depth profiling with narrow resonances of nuclear reactions: theory and experimental use. *Nuclear Instruments and Methods*, Amsterdam, v. 197, n. 1, p. 1-13, June 1982.
- [47] VICKRIDGE, I.; AMSEL, G. SPACES: a PC implementation of the stochastic theory of energy loss for narrow-resonance depth profiling. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 45, n. 1/4, p. 6-11, Jan. 1990.
- [48] 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.
- [49] LINDHARD, J. Influence of crystal lattice on motion of energetic charged particles. *Danske Videnskabernes Selskab Matematisk-fysiske Meddelelser*, Copenhagen, v. 34, n. 14, p. 1-64, Nov. 1965.
- [50] KIMBALL, J. C.; PETSCHER, G.; CUE, N. Channeling and chaos. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 33, n. 1/4, p. 53-57, June 1988.
- [51] DOUMANIS, N.; PAPADAKIS, J; TRIKALINOS, Ch. Critical radii in axial channelling. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, p. 82-87, Apr. 2000.

-
- [52] GRÜNER, F.; ASSMANN, W.; BELL, F.; SCHUBERT, M.; ANDERSEN, J. U.; KARAMIAN, S.; BERGMAIER, A.; DOLLINGER, G.; GÖRGENS, L.; GÜNTHER, W.; TOULEMONDE, M. Transverse cooling and heating in ion channeling. *Physical Review B*, Mellville, v. 68, n. 17, 174104 12 p., Nov. 2004.
- [53] SCHIWIETZ, G. Coupled-channel calculation of stopping powers for intermediate-energy light ions penetrating atomic H and He targets. *Physical Review A*, Woodbury, v. 42, n. 1, p. 296-306, July 1990.
- [54] GRANDE, P. L.; SCHIWIETZ, 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.
- [55] GRANDE, P. L.; SCHIWIETZ, G. Ionization and energy loss beyond perturbation theory. In: SABIN, J. R.; BRÄNDAS, E. (Eds.). *Advances in quantum chemistry*. Amsterdam: Elsevier, 2004. v.45, p. 7-46.
- [56] GRANDE, P. L.; SCHIWIETZ, G. Impact-parameter dependence of the energy loss of fast ions. *Physical Review A*, Woodbury, v.58, n. 5, p. 3796-3801, Nov. 1998.
- [57] AZEVEDO, G. de M.; GRANDE, P. L.; SCHIWIETZ, G. Impact-parameter dependent energy loss of screened ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, n. 1/4, p. 203-211, Apr. 2000.
- [58] FADANELLI, R. C.; GRANDE, P. L.; SCHIWIETZ, G. Impact-parameter dependence of the electronic energy loss of fast cluster projectiles. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v.230, n. 1/4, p. 17-23, Apr. 2005.
- [59] SCHIWIETZ, G.; GRANDE, P. L. A unitary convolution approximation for the impact-parameter dependent electronic energy loss. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v.153, n. 1/4, p. 1-9, June 1999.
- [60] KHODYREV, V. A. The treatment of energy loss in terms of induced current density. In: SABIN, J. R.; BRÄNDAS, E. (Eds.). *Advances in quantum chemistry*. Amsterdam: Elsevier, 2004. v.45, p. 125-158.
- [61] SIGMUND, P. Kinetic theory of particle stopping in a medium with internal motion. *Physical Review A*, New York, v. 26, n. 5, p. 2497-2517, Nov. 1982.
- [62] FERRARIIS, L. de; ARISTA, N. R. Classical and quantum-mechanical treatments of the energy loss of charged particles in dilute plasmas. *Physical Review A*, Woodbury, v. 29, n. 4, p. 2145-2159, Apr. 1984.
- [63] LIFSCHITZ, A. F.; ARISTA, N. R. Velocity-dependent screening in metals. *Physical Review A*, Woodbury, v. 57, n. 1, p. 200-207, Jan. 1998.
- [64] ARISTA, N. R.; LIFSCHITZ, A. F. Non-linear approach to the energy loss of ions in solids. In: SABIN, J. R.; BRÄNDAS, E. (Eds.). *Advances in quantum chemistry*. Amsterdam: Elsevier, 2004. v.45, p. 47-77.

-
- [65] ECKSTEIN, W. *Computer simulation for ion-solid interaction*. Berlin: Springer-Verlag, 1991.
- [66] FADANELLI, R. C.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; DIAS, J. F.; SCHIWETZ, G.; DENTON, C. D. Coulomb heating of channeled H_2^+ and H_3^+ molecules in Si. *Physical Review B*, Melville, v. 69, n. 21, 212104 4 p., June 2004.
- [67] BOHR, N. Velocity-range relation for fission fragments. *Physical Review*, New York, v. 59, n. 3, p. 270-275, Feb. 1941.
- [68] SCHIWETZ, G.; GRANDE, P. L. Improved charge-state formulas. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 175/177, p. 125-131, Apr. 2001.
- [69] GRANDE, P. L.; SCHIWETZ, G. Improved calculations of the electronic loss under channeling conditions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 136/138, p. 125-131, Mar. 1998.
- [70] FADANELLI, R.C.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; DIAS, J. F.; SCHIWETZ, G. The influence of the Coulomb explosion on the energy loss of H_2^+ and H_3^+ molecules channeling along the Si $\langle 100 \rangle$ direction. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 230, n. 1/4, p. 96-99, Apr. 2005.
- [71] GÖTZ, G.; GÄRTNER, K. *High energy ion beam analysis of solids*. Berlin: Akademie-Verlag, 1988.
- [72] KONAC, G.; KLATT, Ch., KALBITZER, S. Universal fit formula for electronic stopping of all ions in carbon and silicon. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 146, n. 1/4, p. 106-113, Dec. 1998.
- [73] 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.
- [74] 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.
- [75] JACKSON, J. D. *Classical electrodynamics*. 2. ed. New York: John Wiley, 1975.