

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE FÍSICA

**ESTUDO DA PERDA DE ENERGIA DE Be, B e O EM DIREÇÕES  
ALEATÓRIAS E CANALIZADAS DE ALVOS DE Si E  
DETERMINAÇÃO DA RESPECTIVA CONTRIBUIÇÃO BARKAS \***

Leandro Langie Araujo

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

Porto Alegre, 17 de Junho de 2004.

---

\* Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq)

## A G R A D E C I M E N T O S

Em primeiro lugar, a Deus, por simplesmente Tudo.

Aos meus pais, Manoel e Sônia, por toda dedicação, criação, educação, preocupação, por todo empenho, carinho, auxílio, amor... enfim, por tudo que só pais maravilhosos como vocês sabem dar.

Às minhas irmãs, Cíntia e Paula, por terem me agüentado nesse período e por serem as pessoas especiais que são.

À minha amada Raquel Giulian, por todo amor, carinho, companheirismo, entusiasmo e compreensão. Por ser essa pessoa tão linda, radiante, única e por ter escolhido compartilhar comigo o mesmo caminho na vida.

Ao Prof. Dr. Moni Behar, pela oportunidade de trabalho junto ao grupo do Implantador de Íons, pela orientação, dedicação, paciência, ensinamentos e conselhos durante os seis anos em que me orientou (mestrado e doutorado).

Ao Prof. Dr. Pedro Luís Grande, por ter blindado efetivamente meu potencial repulsivo em relação à física teórica, pela coorientação, ensinamentos e oportunidades (Bariloche).

Aos Profs. Drs. do Lab. de Implantação Iônica Johnny F. Dias, Henri Boudinov, Lívio Amaral, José Henrique R. dos Santos, Fernando C. Zawislak e Paulo F. P. Fichtner pelos ensinamentos, conferências e conselhos.

Ao Prof. Dr. Néstor R. Arista, do Centro Atômico Bariloche, pela hospitalidade, pelos ensinamentos e valiosas contribuições para esta tese.

Aos funcionários do Implantador: Eng<sup>o</sup> Agostinho Bulla e técnicos Paulo R. Borba, Clodomiro Castello, Péricles Castello, Manoel R. P. da Silva, Ivo Bello e André L. do Prado, pela presteza e eficiência com que realizam seu trabalho, permitindo-nos levar adiante nossas pesquisas. Também pelo ótimo ambiente de trabalho, pelo cafezinho e pelas “saboteagens”.

A todos os colegas e amigos de laboratório e de sala, pela convivência agradável e por terem me aturado. Em especial, aos amigos Márcio Mörschbacher, Douglas L. da Silva, Daniel Baptista, Agenor Hentz, Suzana Peripolli, João Marcelo Lopes, José Ricardo Galvão, Lúcia Schünemann, Fabiano Bernardi e Márcio Soares, com os quais convivi por mais tempo.

A alguns funcionários exemplares do IF-UFRGS, que não se preocuparam apenas em fazer greve mas também em não deixar os alunos na mão, desempenhando suas tarefas com boa vontade, conhecimento e eficiência: Wanda Knebel, Seu Joaquim, Silvana Tavares, Luísa Ferrero, Rubem Neckel e Lúcia Soares Moreira.

Por fim, a todos aqueles que contribuíram de maneira direta ou indireta para a realização deste trabalho.

# ÍNDICE

<b>RESUMO</b> .....	5
<b>ABSTRACT</b> .....	7
<b>INTRODUÇÃO</b> .....	9
<b>CAPÍTULO 1 – INTERAÇÃO ÍONS-MATÉRIA</b>	
1.1 – Introdução .....	15
1.2 – Evolução histórica do estudo da interação entre íons e matéria .....	15
1.3 – Conceitos básicos .....	19
1.3.1 – Poder de freamento e regimes de velocidade .....	19
1.3.2 – Seção de choque de perda de energia .....	21
1.4 – Poder de freamento eletrônico .....	22
1.4.1 – Teoria de Bohr .....	23
1.4.2 – Teoria de Bethe .....	26
1.4.3 – Método dos deslocamentos de fase .....	30
1.4.4 – Teoria da resposta linear .....	32
1.4.5 – Método dos canais acoplados .....	34
1.4.6 – Método semi-empírico de Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL) .....	38
1.5 – Efeito da canalização sobre a perda de energia .....	39
1.5.1 – O modelo contínuo para a canalização .....	41
1.5.2 – Energia transversal .....	45
1.5.3 – Ângulo crítico de canalização .....	45
1.5.4 – Fluxo de íons dentro de um canal .....	47
<b>CAPÍTULO 2 – EFEITO BARKAS, EFEITO BLOCH, CORREÇÕES DE CAMADAS E CARGA EFETIVA</b>	
2.1 – Introdução .....	51
2.2 – A fórmula de Bloch .....	52
2.3 – Correções de Camadas .....	56
2.4 – Efeito Barkas .....	57
2.4.1 – Medidas de massa e alcance realizadas por Walter H. Barkas <i>et al.</i> ....	58
2.4.2 – Medidas de poder de freamento realizadas por H. H. Andersen <i>et al.</i> ..	60

2.4.3 – Teoria clássica de Ashley, Ritchie e Brandt para o efeito $Z_1^3$ .....	62
2.4.4 – Teoria de Jackson e McCarthy para o efeito $Z_1^3$ .....	63
2.4.5 – Teoria semiclássica de Hill e Merzbacher para o efeito $Z_1^3$ .....	64
2.4.6 – Análise de Lindhard sobre a correção Barkas ( $Z_1^3$ ) .....	65
2.4.7 – Medidas de correções de alta ordem em direção canalizada .....	68
2.4.8 – A polêmica da contribuição das colisões próximas ao efeito Barkas ....	73
2.5 – A questão da carga efetiva .....	82
<b>CAPÍTULO 3 – TÉCNICAS EXPERIMENTAIS</b>	
3.1 – Introdução .....	93
3.2 – Implantação iônica .....	93
3.2.1 – Distribuição espacial de íons implantados .....	94
3.3 – Espectrometria de retroespalhamento Rutherford (RBS) .....	96
3.3.1 – Princípio da técnica .....	97
3.3.2 – Conceitos físicos fundamentais .....	98
3.3.2.1 – Fator cinemático .....	98
3.3.2.2 – Seção de choque de espalhamento .....	100
3.3.2.3 – Perda de energia e seção de choque de freamento .....	102
3.3.2.4 – Escala em profundidade .....	103
3.3.2.5 – “Stragglings” em energia .....	105
3.3.3 – Instrumentação .....	106
3.4 – Canalização .....	108
3.4.1 – Arranjo experimental .....	111
<b>CAPÍTULO 4 – TEORIAS MAIS RECENTES PARA A PERDA DE ENERGIA ELETRÔNICA</b>	
4.1 – Introdução .....	113
4.2 – Teoria binária para a perda de energia eletrônica .....	114
4.2.1 – Modelo físico .....	115
4.2.2 – Blindagem do projétil .....	119
4.2.3 – Correções de camadas .....	120
4.2.4 – Correção quântica .....	121
4.2.5 – Excitação e ionização do projétil .....	122

4.2.6 – Efeito Barkas .....	123
4.2.7 – Exemplos de resultados obtidos com a teoria binária .....	124
4.3 – Abordagem não-linear “TCS-EFSR” para a perda de energia em um gás de elétrons .....	128
4.3.1 – A abordagem da seção de choque de transporte .....	129
4.3.2 – A regra da soma de Friedel estendida .....	129
4.3.3 – Cálculo do poder de freamento .....	131
4.3.4 – O potencial de espalhamento .....	131
4.3.4.1 – Modelo do íon .....	132
4.3.4.2 – Potencial de blindagem .....	133
4.3.5 – Exemplos de resultados obtidos com a abordagem TCS-EFSR .....	133
4.3.5.1 – Resultados para íons lentos .....	134
4.3.5.2 – Resultados para íons velozes .....	135
4.3.5.3 – Resultados para prótons e antiprótons e o efeito Barkas .....	136
4.4 – A Aproximação de Convolução Unitária .....	138
4.4.1 – A Aproximação de Convolução Perturbativa – PCA .....	139
4.4.2 – A Aproximação de Convolução Unitária – UCA .....	144
4.4.3 – A incorporação do efeito de blindagem .....	147

## **CAPÍTULO 5 – PROCEDIMENTOS E RESULTADOS**

5.1 – Introdução .....	155
5.2 – Medidas de poder de freamento em alvos de Si amorfo .....	156
5.2.1 – Be em Si amorfo .....	161
5.2.2 – B em Si amorfo .....	162
5.2.3 – O em Si amorfo .....	163
5.3 – Medidas de “straggling” em alvos de Si amorfo .....	165
5.4 – Medidas do poder de freamento em alvos de Si cristalino .....	169
5.4.1 – Poder de freamento de Be em Si <100> e <110> .....	174
5.4.2 – Poder de freamento de B em Si <100> e <110> .....	176
5.4.3 – Poder de freamento de O em Si <100> .....	177
5.5 – Cálculos teóricos para o poder de freamento em direção canalizada e determinação da contribuição Barkas .....	178
5.5.1 – Cálculos realizados com o programa CASP .....	179

---

5.5.2 – Cálculos realizados com o programa HISstop .....	188	
5.5.3 – Cálculos baseados na teoria binária .....	189	
5.5.4 – Cálculos para o poder de freamento canalizado combinando os resultados dos programas CASP e HISstop .....	190	
5.5.5 – Resultados para a contribuição Barkas ao poder de freamento na direção <100> do Si, para íons de He, Li, Be, B e O .....	192	
<b>CAPÍTULO 6 – DISCUSSÃO E CONCLUSÕES</b>		
6.1 – Introdução .....	195	
6.2 – Medidas do poder de freamento em direção aleatória .....	195	
6.3 – Medidas do “straggling” no poder de freamento aleatório .....	197	
6.4 – Medidas do poder de freamento em direção canalizada .....	197	
6.4.1 – Análise do poder de freamento canalizado e do efeito Barkas.....	198	
6.4.2 – Dependência do efeito Barkas com a carga e a energia dos íons .....	200	
<b>APÊNDICE A – MÉTODO DE INTERPOLAÇÃO PARA A OBTENÇÃO DAS FRAÇÕES DE CARGA E DA CARGA MÉDIA DE ÍONS DE Be</b>		
A.1 – Introdução .....	203	
A.2 – Procedimento para obtenção da carga média.....	203	
A.3 – Procedimento para obtenção das frações de carga.....	206	
<b>APÊNDICE B – PUBLICAÇÕES RELACIONADAS A ESTE TRABALHO ....</b>		213
<b>REFERÊNCIAS.....</b>	219	

## RESUMO

Neste trabalho de tese, foi estudada a perda de energia de íons de Be, B e O incidindo em direção aleatória e ao longo dos canais axiais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si. Os intervalos de energia nos quais as medidas experimentais foram realizadas variaram entre 0,5 e 10 MeV para Be, entre 0,23 e 9 MeV para B e entre 0,35 e 15 MeV para O. Posteriormente, o efeito do “straggling” (flutuação estatística da perda de energia) nas medidas em direção aleatória também foi analisado, para íons de Be e O, nas regiões de energia entre 0,8 e 5 MeV e 0,35 e 13,5 MeV, respectivamente.

As medidas relacionadas à perda de energia em direção aleatória e ao “straggling” em função da energia dos íons foram realizadas combinando-se a técnica de retroespalhamento Rutherford (RBS) ao emprego de amostras de Si implantadas com marcadores de Bi. Os resultados relativos à perda de energia ao longo dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si em função da energia dos íons foram obtidos através de medidas de RBS canalizado feitas em amostras tipo SIMOX (Separated by IMplanted OXYgen).

A perda de energia foi calculada teoricamente, através de três abordagens diferentes: a) a Aproximação de Convolução Unitária (UCA); b) o método não-linear baseado na seção de choque de transporte e na regra da soma de Friedel estendida (TCS-EFSR); c) a teoria binária.

A combinação dos cálculos UCA com os resultados experimentais para a perda de energia canalizada de Be, B e O em Si permitiu isolar a contribuição do efeito Barkas para a perda de energia. Essa contribuição mostrou ser bastante grande, chegando a 45% do valor das outras contribuições para o caso do Be, 40% para o caso do B e 38% para o caso do O. Esses resultados são comparáveis aos previamente obtidos no Laboratório de Implantação Iônica da UFRGS para íons de He e Li. As teorias TCS-EFSR e binária permitiram o cálculo do efeito Barkas para a perda de energia devida aos elétrons de valência. Os resultados teóricos e experimentais para a contribuição Barkas total e relativa foram comparados e analisados em função da carga média e da energia dos íons para as energias de 300, 400, 500 e 700 keV/uma. O acordo teórico-experimental é razoável para as energias mais baixas, melhorando com o aumento da energia dos íons incidentes.

---

## ABSTRACT

In the present work we have studied the Be, B and O random stopping power in Si, as well as the channeled one, in the Si  $\langle 100 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  axial directions. The energy ranges probed for each of the ions under study were: 0.5 – 10 MeV for Be, 0.23 – 9 MeV for B and 0.35 – 15 MeV for O, respectively. In addition, we have measured the energy straggling for Be and O in the 0.8 – 5 MeV and 0.35 – 13.5 MeV energy ranges, respectively.

For the random stopping power and straggling measurements, we have used Bi markers implanted into amorphous Si, together with the Rutherford Backscattering technique (RBS). On the other hand, the channeling stopping powers were determined using the RBS/channeling technique together with a SIMOX (Separated by Implanted OXygen) target.

The stopping powers were theoretically calculated using three different approaches: a) the Unitary Convolution Approximation (UCA), b) a non-linear method based on the transport cross section plus the extended Friedel sum rule (TCS-EFSR) and c) the binary theory.

A combination of the experimental results and the UCA calculations enabled us to determine the contribution of the Barkas effect to the total stopping power. This contribution have shown to be rather large: for the Be case, it amounted to 45% of the other contributions, for the B ions it was of the order of 40% and for O it reached 38%. These results are comparable with those obtained previously for He and Li in Si, using the same technique as in the present work. The TCS-EFSR and binary theories allowed us to calculate the Barkas effect due to the valence electrons. The theoretical-experimental results for the relative and total Barkas contributions were compared and analysed as a function of the mean charge for the 300, 400, 500 and 700 keV/amu energies. The theoretical-experimental agreement was reasonable for the lower energies, improving with increasing ion energies.

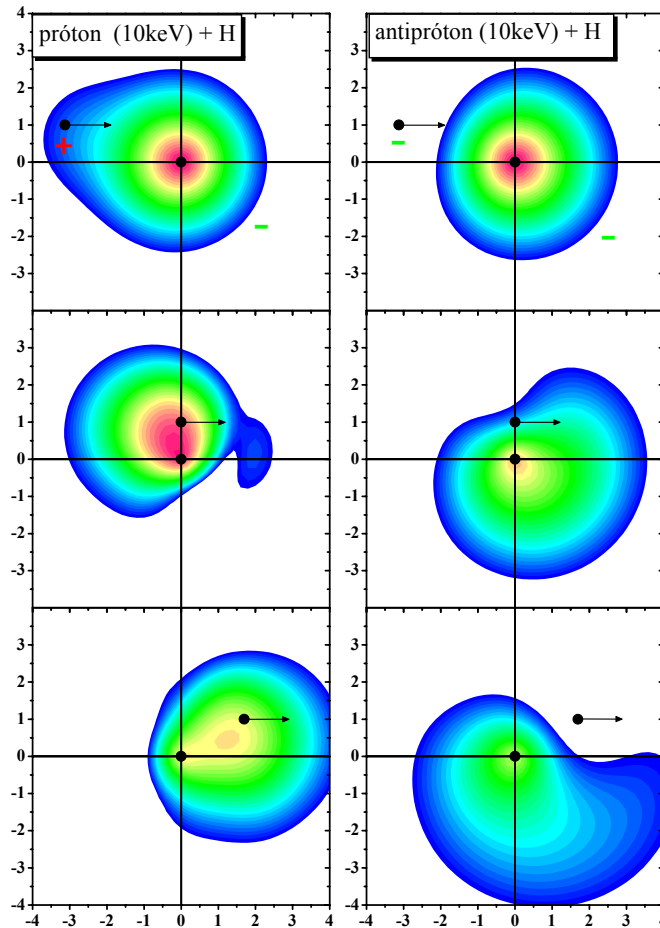


# INTRODUÇÃO

Os fenômenos envolvidos na interação de partículas energéticas com a matéria têm sido pesquisados há mais de cem anos, e embora muito já se tenha descoberto, ainda há mais a se fazer. Mesmo que já tenham surgido teorias consistentes, baseadas em enfoques distintos, explicando vários efeitos, assim como medidas experimentais tenham sido realizadas, com diversas técnicas, objetivando clarificar diferentes questões, ainda se busca uma melhor compreensão do assunto.

Frente à essa necessidade, o objetivo deste trabalho de tese foi estudar os processos envolvidos na perda de energia de íons velozes, parcialmente carregados, na matéria. Em particular, será enfocada uma melhor identificação da contribuição do efeito Barkas à perda de energia total dos íons.

O efeito Barkas está relacionado com a perda de energia devida à polarização dos átomos do alvo pela passagem dos íons através deste. Ele foi primeiramente observado nos anos 50, por Walter H. Barkas e colaboradores [103], enquanto mediam o alcance de píons em emulsões. Nesse estudo, perceberam que píons positivos e negativos ( $\pi^+$  e  $\pi^-$ ), incidindo com as mesmas velocidades nos mesmos alvos, apresentavam alcances diferentes. Isso foi associado a uma diferença nos poderes de freamento do  $\pi^+$  e do  $\pi^-$ , oriunda das diferenças na polarização do alvo causadas pelo sinal da carga do projétil. Assim, no âmbito das teorias perturbativas para a perda de energia, esse efeito foi relacionado a contribuições dependentes de potências ímpares do número atômico, ficando também conhecido como “efeito  $Z_1^3$ ”. A figura 1 ilustra as distintas polarizações da nuvem eletrônica de um átomo de H quando um próton (lado esquerdo) e um antipróton (lado direito) incidem com energia de 10 keV. Enquanto o próton, por ser positivo, atrai a nuvem eletrônica, o antipróton, por ser negativo, a repele, causando uma diferença na perda de energia eletrônica de ambos.



**Figura 1** – Ilustração das diferentes polarizações causadas na nuvem eletrônica de um átomo de H pela passagem de um próton (esquerda) e um antipróton (direita), ambos com energia de 10 keV. As variações da densidade eletrônica foram calculadas pelo método de canais acoplados, que será descrito no capítulo 1 deste trabalho de tese.

Embora o efeito Barkas já venha sendo estudado há mais de 50 anos, ele ainda não está bem caracterizado. Determiná-lo através de medidas experimentais tem-se mostrado uma tarefa difícil, como ficará evidente na descrição contida no capítulo 2. As primeiras medidas, relativas ao alcance de partículas exóticas em emulsões (e, portanto, indiretas, uma vez que se obtinha a perda de energia através do alcance), além de apresentarem uma precisão limitada, foram realizadas em energias muito altas, onde a contribuição do efeito deve ser pequena. Medidas posteriores [105, 111], comparando a perda de energia de íons de diferentes números atômicos incidindo com as mesmas

velocidades, nos mesmos alvos, mostraram que há um desvio do comportamento proporcional a  $Z_1^2$  previsto pela teoria de perturbação de primeira ordem. Isso reforçou a evidência de um efeito  $Z_1^3$ , porém não permitiu identificá-lo especificamente, uma vez que outros efeitos, como as correções de camadas e o efeito Bloch (proporcional a  $Z_1^4$ ), também contribuem para o poder de freamento total.

No final dos anos 70, foram realizadas medidas de perda de energia empregando as técnicas de transmissão e canalização para vários íons incidentes em alvos de Au e Si. Porém, o efeito Barkas não foi conclusivamente observado [87, 88, 118], devido a que as medidas foram realizadas para íons muito pesados e em energias muito altas, onde o efeito é muito pequeno. Já no final dos anos 80, com o advento dos feixes de antiprótons, foi possível determinar precisamente o efeito Barkas, através da diferença nas perdas de energia medidas para prótons e antiprótons, incidindo nos mesmos alvos, com as mesmas energias. Isso foi feito para diversos alvos [131], e o efeito, embora modesto em comparação com as outras contribuições, ficou claramente identificado. Tais resultados serviram como teste para os vários modelos propostos para representar a contribuição Barkas, os quais serão apresentados no capítulo 2. Porém, para outros íons, esse método não pode ser empregado no estudo do efeito Barkas, pois, além de não ser possível produzir feixes de antiíons para qualquer caso, exceto o do H, também, para íons mais pesados, os efeitos de blindagem devidos aos seus elétrons ligados estão presentes.

Entretanto, o Grupo de Implantação Iônica do Instituto de Física da UFRGS desenvolveu recentemente um método para determinar a contribuição do efeito Barkas para a perda de energia [119], que pode ser aplicado para muitos tipos de íons incidentes, em energias baixas e intermediárias, onde o efeito Barkas deve ser mais apreciável. Esse método consiste em aliar medidas de perda de energia em cristais de Si, através da técnica de RBS canalizado [46, 204], com um desenvolvimento teórico recente para o cálculo da perda de energia, chamado de Aproximação de Convolução Unitária (UCA – Unitary Convolution Approximation) [33-35]. As medidas de perda de energia são realizadas em direção canalizada porque, nessa condição, outros efeitos, que geralmente mascaram o efeito Barkas (como os efeitos de captura e perda de elétrons e as correções de camadas), são fortemente suprimidos. Enquanto isso, os cálculos

baseados no modelo UCA conseguem reproduzir precisamente quase todas as outras contribuições para a perda de energia, incluindo o efeito Bloch e o efeito da blindagem devida aos elétrons ligados ao íon, e não incluindo apenas o efeito de polarização. Dessa forma, a única diferença entre o resultado experimental e os cálculos UCA deve ser o efeito Barkas, que é obtido pela subtração de ambos. Esse método foi empregado para determinar a contribuição Barkas na perda de energia de íons de He e Li canalizados em alvos de Si [119], onde se verificou que a contribuição Barkas para íons de Li no canal  $\langle 110 \rangle$  do Si pode chegar a 50% do valor das outras contribuições. Esse resultado foi o primeiro a revelar uma contribuição tão significativa, tendo dado origem ao termo “efeito Barkas gigante”.

Em função do resultado obtido para o Li, surgiu o interesse em estudar o comportamento do efeito Barkas para outros íons próximos, a fim de verificar se o efeito também seria “gigante”. Nesse âmbito, o presente trabalho de doutoramento foi proposto com o objetivo de determinar o efeito Barkas para íons de Be, B e O incidindo ao longo das direções axiais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  de alvos de Si cristalino. Com essa finalidade, foi necessário realizar medidas para a perda de energia dos íons em condição canalizada, nas direções citadas acima, e os respectivos cálculos UCA, para poder efetuar a subtração de ambos. Além disso, uma vez que a análise das medidas canalizadas requer o conhecimento da perda de energia em direção aleatória, também a perda de energia de íons de Be, B e O em alvos de Si amorfo foi medida, utilizando-se a técnica de RBS. O Si foi escolhido como alvo pois, além de ser um material de grande interesse do ponto de vista tecnológico, permite a produção de amostras tipo SIMOX, especialmente adequadas para o estudo da perda de energia por RBS canalizado, em função das suas características, que serão descritas no capítulo 5 deste trabalho.

A técnica de RBS utilizada no presente estudo apresenta vantagens sobre a técnica de medida de poder de freamento por transmissão, uma vez que ela permite realizar medidas em energias mais baixas, onde o efeito Barkas deve ser mais apreciável para os íons em questão. Além disso, ela não necessita de filmes auto-suportados, com espessura razoável ( $> 0,5 \mu\text{m}$ ), de maneira que os efeitos de decanalização e espalhamento múltiplo são suprimidos.

Em condição canalizada, a distribuição de fluxo dos íons incidentes é bastante peculiar, uma vez que eles são “empurrados” para o centro do canal pelas colunas de

átomos, dando origem ao que se denominou “flux peaking” [73]. Neste estudo de tese, a distribuição dos íons ao longo dos canais foi calculada pelo programa Barret (tipo Monte-Carlo) [70]. Dessa forma, a interação ocorre principalmente com os elétrons de valência do cristal, de maneira que um cenário simples é obtido, onde, por exemplo, um modelo de gás de elétrons pode ser usado para descrever o alvo. Com base nisso, o modelo não-linear TCS-EFSR (Transport Cross Section – Extended Friedel Sum Rule), que emprega a abordagem da seção de choque de transporte e permite realizar cálculos autoconsistentes para a perda de energia em um gás de elétrons, foi utilizado para calcular a perda de energia canalizada e o efeito Barkas. De maneira similar, a abordagem binária para a perda de energia, considerando apenas a interação com os elétrons de valência, foi empregada para calcular o efeito Barkas. Os resultados fornecidos por essas abordagens foram comparados com os resultados obtidos a partir dos dados experimentais, verificando-se um bom acordo teórico-experimental.

Esta tese está estruturada em seis capítulos e um apêndice. No capítulo 1, uma revisão histórica do problema da interação dos íons com a matéria é feita, e as principais teorias que surgiram para descrever o problema são apresentadas. A seguir, no capítulo 2, as correções à abordagem perturbativa da perda de energia são comentadas, com especial ênfase ao efeito Barkas. Já no capítulo 3, descrevem-se as técnicas experimentais empregadas neste trabalho, enquanto, no capítulo 4, as teorias mais recentes para a perda de energia são expostas de forma resumida. No capítulo 5, relatam-se os procedimentos desenvolvidos durante este estudo, e destacam-se os resultados obtidos a partir deles. No capítulo 6, as conclusões da tese são apresentadas. Por fim, no apêndice A é descrito o procedimento de interpolação de frações de carga e no apêndice B são exibidas as publicações relacionadas com este trabalho.

# CAPÍTULO 1

## INTERAÇÃO ÍONS-MATÉRIA

### 1.1– Introdução

O freamento de íons energéticos na matéria tem sido um assunto bastante estudado nos últimos cem anos. Físicos renomados, como Ernest Rutherford, Niels Bohr, Jens Lindhard, Hans A. Bethe e Felix Bloch, dedicaram-se ao tema, contribuindo grandemente para o esclarecimento dos mecanismos que governam a interação entre íons e matéria. Mas, ainda que muito já tenha sido feito, o assunto não está esgotado. Embora se tenha conhecimento de que íons penetrando um material podem provocar ejeção de elétrons ou átomos da superfície, deslocamento de átomos do alvo de suas posições, ionização e excitação de elétrons do alvo (e emissão de raios-X pela excitação dos elétrons internos) e cascatas de colisões no interior do material, entre outros efeitos, ainda não se estabeleceu uma teoria que descreva adequadamente os detalhes dessa interação, composta de vários processos, para todos íons em todos regimes de velocidade. Tampouco existem medidas experimentais para todas combinações íon-alvo que possam ser de interesse tecnológico e úteis no uso de técnicas baseadas em feixes de íons. Assim, o assunto continua sendo tanto de interesse do ponto de vista da física fundamental como do ponto de vista de aplicações tecnológicas. Neste capítulo, será feita primeiramente uma síntese da evolução desse estudo através dos anos, destacando as etapas mais importantes. A seguir, serão descritos os conceitos físicos que permeiam a interação e apresentadas as principais teorias sobre ela.

### 1.2 – Evolução histórica do estudo da interação entre íons e matéria

O estudo da interação entre íons e matéria remonta ao início do século passado, quando se começou a observar que materiais radioativos emitiam partículas energéticas [1], as quais tinham sua velocidade atenuada (podendo ser totalmente freadas) ao atravessar alvos finos. Essa perda de energia por parte dos íons, juntamente com as

modificações observadas posteriormente nos materiais usados como alvo, suscitou o interesse no estudo dos mecanismos que governam a interação entre ambos.

As tentativas iniciais nesse sentido foram frustradas por ainda não haver um modelo atômico coerente. O primeiro tratamento teórico sobre o espalhamento de duas cargas pontuais foi desenvolvido por J. J. Thomson em seu livro clássico sobre eletricidade [2], o qual introduziu um tratamento amplo para o espalhamento coulombiano clássico entre partículas energéticas carregadas. Entretanto, a questão da perda de energia não foi diretamente abordada nessa obra. Alguns anos mais tarde, em 1909, Geiger e Marsden observaram, ao medir a distribuição angular das trajetórias de partículas alfa incidindo sobre alvos finos, que, enquanto a grande maioria delas era transmitida através do alvo, apenas 0.01% eram retroespalhadas. Em 1911, Ernest Rutherford, com seu modelo de átomo, demonstrou em bases teóricas que o retroespalhamento era devido a colisões únicas isoladas dos íons com os núcleos dos átomos do alvo [3], onde deveria haver uma grande concentração de cargas positivas. Essa foi a base para o consagrado modelo do átomo proposto por Niels Bohr em 1913 [4], que finalmente permitiu o desenvolvimento de uma análise do freamento de partículas carregadas pela matéria. Foi o próprio Bohr [5], em 1915, que formulou a primeira tentativa de uma teoria unificada para a perda de energia, abordando os problemas essenciais que viriam a ser novamente tratados em trabalhos posteriores.

Uma importante conclusão desse primeiro trabalho de Bohr foi que a perda de energia de íons passando através da matéria pode ser dividida em duas contribuições: **perda de energia nuclear** (interação com os núcleos positivos dos átomos do meio) e **perda de energia eletrônica** (interação com os elétrons do meio). Ele deduziu corretamente que a perda de energia eletrônica deve ser bem maior que a nuclear para íons leves de alta energia, tais como os emitidos por fontes radioativas. Essa conclusão foi baseada na cinemática de recuo, considerando somente as massas relativas e abundâncias dos elétrons e núcleos do alvo.

Um avanço significativo no entendimento da perda de energia aconteceu vinte anos mais tarde, quando Bethe [6-8] e Bloch [9, 10] analisaram o problema na perspectiva da mecânica quântica e desenvolveram, na aproximação de Born, as equações fundamentais para a perda de energia de partículas muito rápidas devida a colisões com os elétrons do meio.

No final dos anos trinta, outra questão veio à tona: como tratar um íon pesado parcialmente desnudo (privado de apenas alguns de seus elétrons ligados, e não de todos). Esse tópico foi chamado de “problema da carga efetiva”, pois se esperava poder usar as teorias tradicionais de perda de energia caso um grau de ionização do projétil pudesse ser estimado. Bohr [11, 12] sugeriu que se poderia considerar que o íon estava desnudo de todos elétrons com velocidades orbitais menores que a velocidade com a qual o íon se desloca. Usando o modelo estatístico do átomo de Thomas-Fermi [13, 14], ele pôde mostrar que:

$$Z_1^* = Z_1^{1/3} \cdot \frac{v}{v_0}, \quad (1.1)$$

onde  $Z_1$  é o número atômico do íon,  $Z_1^*$  é sua carga efetiva na perda de energia para os elétrons do alvo, a qual deveria representar o estado de carga do íon no interior do material-alvo.  $v$  é a velocidade do íon e  $v_0$  é a velocidade de Bohr ( $\sim 2.2 \times 10^8$  cm/s).

Durante os anos 50, surgiram trabalhos analisando de um ponto de vista fundamental tanto a transferência de energia de partículas lentas para os elétrons do alvo quanto a perda de energia para núcleos do mesmo. O estudo do freamento de uma partícula em um gás de elétrons livres é o primeiro passo para calcular a perda de energia de um íon para os elétrons do alvo. Após os tratamentos de Bohr, Bethe e Bloch [4-10], Fermi foi adiante e considerou como uma partícula carregada polarizaria um meio de elétrons clássico, modificando dessa maneira a interação partícula/plasma. Ele estendeu essa análise para um gás de elétrons livres degenerado [15] e verificou que para partículas lentas a perda de energia deveria ser diretamente proporcional à velocidade da partícula. Bohr observou [16] que atrás da partícula deveria surgir uma configuração oscilante de carga, semelhante às oscilações geradas na água pela passagem de um barco. Isso foi verificado mais rigorosamente pelo próprio Bohr [17] e por Neufeld e Ritchie [18]. Um tratamento completo do problema de uma partícula carregada penetrando num gás de elétrons foi apresentado praticamente ao mesmo tempo por Lindhard [19], Neufeld e Ritchie [18] e Fano [20].

Em 1963, a primeira abordagem unificada para a perda de energia e alcance de íons na matéria foi desenvolvida por Lindhard, Scharff e Schiott [21], dando origem à chamada *teoria LSS*. Esse trabalho reuniu os vários fragmentos abordados em diversos outros e interligou-os através de aproximações razoáveis num único modelo. Essa



grande conquista foi o resultado de mais de uma década de estudos por parte de Lindhard e colaboradores [19, 21-25], sendo as principais equações da teoria LSS demonstradas em detalhes nas últimas publicações.

Durante o restante dos anos 60 e nos anos 70, foram publicados artigos de revisão sobre o assunto [26-30] e os principais avanços vieram através da aplicação de métodos numéricos a abordagens teóricas tradicionais, uma vez que o uso de computadores permitiu a incorporação de átomos Hartree-Fock, mais realísticos, nas teorias. Esses passos importantes foram iniciados por Rousseau, Chu e Powers [31], no estudo da perda de energia eletrônica, e por Wilson, Haggmark e Biersack [32], no estudo da perda de energia nuclear.

Ultimamente, os esforços têm-se dirigido para descrições melhores do processo de interação íon-matéria, em especial no que diz respeito à perda de energia eletrônica e a correções para as teorias existentes, como as correções de camadas e os chamados efeitos de alta ordem, como o efeito Bloch e o efeito Barkas. Essas correções serão abordadas no capítulo 2. Dentre as novas abordagens à questão da perda de energia, destacam-se os trabalhos de Grande e Schiwietz com os modelos de convolução unitária e perturbativa [33-35], de Arista e Lifschitz com o modelo não-perturbativo baseado na regra da soma de Friedel estendida e na seção de choque de transporte [36, 37] e de Sigmund com a teoria binária da perda de energia [38-40]. Esses trabalhos serão apresentados mais detalhadamente no capítulo 4.

Vale citar que, nos últimos anos, artigos e livros trouxeram revisões interessantes sobre o tema [41-44].

### 1.3 – Conceitos básicos

#### 1.3.1 – Poder de freamento e regimes de velocidade

**Poder de freamento** é o termo utilizado para designar a taxa de perda de energia por unidade de comprimento percorrida por um íon. Considerando-se um alvo de composição conhecida e de espessura  $\Delta x$ , e sendo  $\Delta E$  a diferença de energia dos íons de um feixe monoenergético antes e depois da sua passagem através do alvo, o poder de freamento na energia  $E$  é definido como:

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta x} \equiv \left. \frac{dE}{dx} \right|_E, \quad (1.2)$$

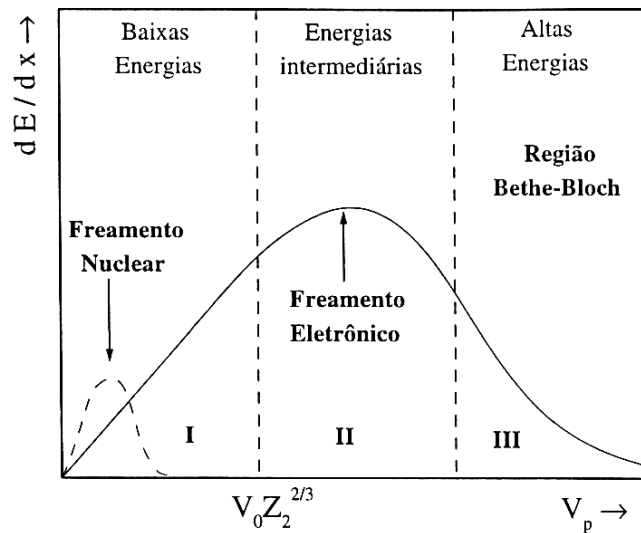
para determinados íons, em determinado alvo, a uma determinada energia.

Como mencionado anteriormente para a perda de energia, o poder de freamento total pode ser dividido em duas contribuições: a parcela do poder de freamento correspondente aos processos de excitação e ionização é chamada de **poder de freamento eletrônico**, ao passo que a parcela devida à transferência de energia cinética aos átomos do alvo é denominada **poder de freamento nuclear**. Essas duas contribuições têm sido consideradas independentes, pois essa é uma boa aproximação, mesmo que alguns estudos indiquem uma correlação entre elas. Dessa forma, considera-se que:

$$\frac{dE}{dx} = \left. \frac{dE}{dx} \right|_n + \left. \frac{dE}{dx} \right|_e. \quad (1.3)$$

A figura 1.1 mostra o comportamento dessas contribuições em função da velocidade do íon, segundo aferido dos resultados experimentais ao longo do tempo. Conforme pode ser visto na figura, há três regiões de velocidade (ou energia) para as quais podemos esperar que diferentes processos (ionização, excitação, troca de carga, ...) sejam dominantes em maior ou menor escala. Pode-se observar que o poder de freamento nuclear só é importante para projéteis com baixa velocidade instantânea ( $v_1$ ) em relação à velocidade típica dos elétrons ligados aos átomos do alvo ( $v_0 Z_2^{2/3}$ ), ou seja, na região I da figura, onde ( $v_1 \ll v_e = v_0 Z_2^{2/3}$ ), sendo  $v_0$  a velocidade de Bohr e  $Z_2$  o número atômico do alvo. Nessa região, a interação com os elétrons do alvo pode ser

entendida como uma interação com um gás de elétrons, resultando num freamento friccional, proporcional à velocidade do íon. Já nas outras regiões, o freamento é dominado pelo poder de freamento eletrônico: na região III, predominam a excitação e ionização dos átomos do alvo, enquanto que na região II vários mecanismos participam competitivamente. Nessa região, a velocidade do projétil é alta o suficiente para que ocorra excitação e ionização dos átomos do alvo, assim como baixa o suficiente para que ocorra captura e perda de elétrons pelo projétil. É justamente a natureza complicada do problema nessa região de velocidades que torna difícil gerar uma equação para o poder de freamento que seja válida e precisa para todos regimes de velocidade.



**Figura 1.1** – Representação da tendência comportamental das componentes nuclear e eletrônica do poder de freamento ( $dE/dx$ ) em função da velocidade do projétil ( $v_1$ ).

### 1.3.2 – Seção de choque de perda de energia

Os fenômenos relacionados ao freamento de íons na matéria são de natureza essencialmente estatística. Durante o processo de freamento, um íon sofre um grande número de colisões. Em cada colisão, tanto o estado do projétil (velocidade, carga, direção) quanto o do alvo (vibrações térmicas em alvos cristalinos ou flutuações na densidade local em alvos amorfos) estarão sujeitos a flutuações estatísticas, sendo impossível prever qual será a seqüência de colisões experimentada pelo íon durante o seu freamento. Entretanto, sabe-se que, após percorrer uma distância  $\Delta x$  num alvo, um feixe de íons perde, em média, uma quantidade de energia  $\langle \Delta E \rangle$ . A **seção de choque de perda de energia (ou de freamento)** relaciona justamente essa quantidade com a informação sobre o que acontece numa colisão isolada.

No caso de um feixe uniforme de partículas incidindo sobre um alvo no qual os átomos estejam aleatoriamente distribuídos com uma densidade de  $N$  átomos por centímetro cúbico, o número médio  $\langle N_i \rangle$  de colisões em que uma energia  $T_i$  é transferida a um átomo do alvo, após percorrida uma distância  $\Delta x$ , é dado por:

$$\langle N_i \rangle = N \cdot \sigma_i \cdot \Delta x, \quad (1.4)$$

onde  $\sigma_i$  é a seção de choque diferencial para que seja transferida uma energia entre  $T_i$  e  $T_i + dT_i$ . Assim, a energia transferida média será:

$$\langle \Delta E \rangle = \sum_i \langle N_i \rangle \cdot T_i = N \cdot \Delta x \cdot \sum_i \sigma_i \cdot T_i. \quad (1.5)$$

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

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \frac{\langle \Delta E \rangle}{\Delta x} = \frac{dE}{dx} = N \int T \cdot \frac{d\sigma(E, T)}{dT} \cdot dT = N \cdot \varepsilon(E), \quad (1.6)$$

onde  $E$  é a energia inicial do projétil e a quantidade  $\varepsilon(E)$  é justamente a seção de choque de freamento.

É possível demonstrar que as colisões das partículas de um feixe uniforme incidindo sobre um alvo sem estrutura obedecem à estatística de Poisson [45]. Por exemplo, a probabilidade  $P_i$  de ocorrer uma colisão com transferência de energia  $T_i$  é:

$$P_i = \exp(-\langle N_i \rangle) \cdot \frac{\langle N_i \rangle^{N_i}}{N_i!} \quad (1.7)$$

em torno do valor médio  $\langle N_i \rangle$ . Nesse caso, é possível determinar a **flutuação estatística da perda de energia** (ou **straggling**) em torno do valor médio  $dE/dx$  [45]:

$$\Omega^2 = \langle E - \langle E \rangle \rangle^2 = N \cdot \Delta x \cdot \int_0^\infty T^2 \cdot \frac{d\sigma(E, T)}{dT} \cdot dT. \quad (1.8)$$

Considerando apenas situações onde sempre há uma relação unívoca entre energia transferida e **parâmetro de impacto** (distância entre o átomo alvo e a direção de deslocamento do íon) numa dada colisão, é possível reescrever as equações acima como:

$$\frac{dE}{dx} = N \int_0^\infty T(b) \cdot 2\pi \cdot b \cdot db, \quad (1.9)$$

onde  $T(b)$  é a energia transferida em função do parâmetro de impacto  $b$  na colisão. Alguns dos estudos apresentados nesta tese se enquadram nessa situação.

## 1.4 – Poder de freamento eletrônico

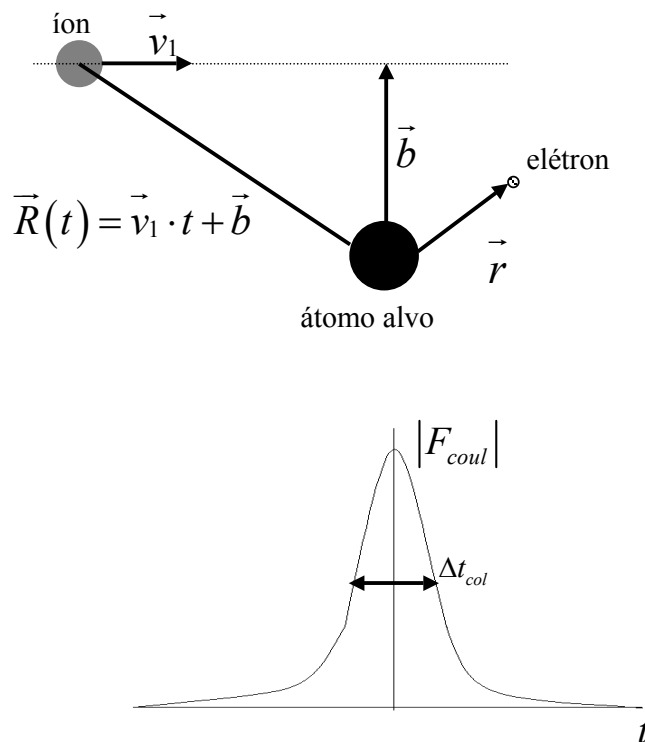
Como o objeto de estudo do presente trabalho de tese é o poder de freamento eletrônico apenas, sem incluir o poder de freamento nuclear, esse último não será abordado aqui. Uma boa descrição do poder de freamento nuclear pode ser encontrada nas referências [41, 46], por exemplo.

A avaliação do poder de freamento eletrônico ao longo dos vários regimes de velocidade de um íon penetrando na matéria é um problema complicado, pois envolve vários mecanismos de interação e uma competitividade entre eles; aqui serão apresentadas as principais teorias já estabelecidas sobre o tema, e no capítulo 4 serão abordadas as teorias mais recentes, uma vez que a tese se baseia no estudo desse poder de freamento.

### 1.4.1 – Teoria de Bohr

De acordo com Bohr [4, 5, 17], o freamento eletrônico pode ser considerado como um processo em que a energia é transferida do íon incidente para elétrons livres em repouso, contanto que o tempo de interação seja muito menor do que o período do movimento orbital dos elétrons do alvo. Caso contrário, o elétron terá tempo para ajustar seu movimento de acordo com o potencial de interação elétron-projétil, absorvendo muito menos energia na colisão. Em termos da velocidade do projétil  $v_1$ , um elétron pode ser considerado em repouso se  $v_1 \gg v_e$ , sendo  $v_e$  a velocidade orbital do elétron. Uma boa medida do tempo de colisão é a duração da força Coulombiana devida ao projétil na posição do alvo. Como pode ser visto na figura 1.2, essa força é proporcional à  $1/R^2$ , de forma que a sua intensidade na posição do alvo será:

$$|F_{coul}| \sim \frac{v_1^2}{\left(\frac{b}{v_1}\right)^2 + t^2}. \quad (1.10)$$



**Figura 1.2** – Esquema de uma colisão íon-elétron e definição do tempo de colisão.

Dessa forma, o tempo de colisão é dado por  $\Delta t_{col} = b/v_1$  e, em termos do parâmetro de impacto  $b$ , pode-se considerar colisões com elétrons livres aquelas onde  $b \ll \frac{v_1}{\omega_0} \equiv b_0$ , sendo  $\omega_0$  a **frequência orbital do elétron** e  $b_0$  o **raio adiabático** (limita a distância até onde se pode considerar que os elétrons se ajustam adiabaticamente durante a colisão). Para colisões com parâmetros de impacto maiores que o raio adiabático, o efeito da ligação do elétron com o átomo alvo tem que ser levado em conta. Com esta finalidade, Bohr considerou o alvo como sendo um conjunto de osciladores harmônicos excitados pela interação com o campo Coulombiano do projétil.

Para parâmetros de impacto menores que  $b_0$ , onde o efeito de ligação com o átomo pode ser desprezado, a energia transferida  $Q$  como função do parâmetro de impacto pode ser calculada através da transferência de energia numa colisão binária entre o íon e o elétron livre [27, 43], resultando:

$$Q(b)_{b < b_0} = \frac{2(Z_1 e^2)^2}{m_e v_1^2} \cdot \frac{1}{b^2 + \alpha^2}, \quad (1.11)$$

onde  $m_e$  é a massa do elétron,  $Z_1$  o número atômico do íon e  $\alpha = \left( \frac{Z_1 e^2}{m_e v_1^2} \right)^2$ , de forma que

$$Q(b=0) = 2m_e v_1^2.$$

No caso de uma colisão com  $b > b_0$ , onde o efeito de ligação tem que ser levado em conta, é plausível assumir que o íon descreve uma trajetória retilínea dada por  $\vec{R}(t) = \vec{v}_p t + \vec{b}$ . O potencial de interação íon-elétron será dado por:

$$V_{ion-elet} = -\frac{Z_1 e^2}{|\vec{R} - \vec{r}|}. \quad (1.12)$$

Como  $r_0 \ll |\vec{R} - \vec{r}|$ , onde  $r_0$  é o raio do átomo, a expansão de multipolos pode ser utilizada para simplificar a equação do potencial acima, resultando:

$$V_{ion-elet} \approx \frac{-Z_1 e^2}{R^2} + \vec{r} \cdot \vec{R} \cdot \frac{Z_1 e^2}{R^3}. \quad (1.13)$$

Dessa forma, a força dependente do tempo que atua sobre o elétron será:

$$\vec{F} = -\vec{\nabla}_r (V_{ion-elet}) = \frac{Z_1 e^2}{R^3} \cdot \vec{R}. \quad (1.14)$$

Na aproximação de dipolo, a energia transferida ao elétron é dada por [27]:

$$Q(b) = \frac{\pi}{m} |\widehat{F}(\omega_0)|^2, \quad (1.15)$$

onde  $\widehat{F}$  é a transformada de Fourier da força  $\vec{F}$ . Ao calcular essa transformada, o que se tem para a energia transferida é:

$$Q(b)_{b>b_0} = \frac{2(Z_1 e^2)^2 \omega_0^2}{m_e v_1^4} \left[ K_0^2 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right) + K_1^2 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right) \right], \quad (1.16)$$

onde  $K_0$  e  $K_1$  são as funções de Bessel modificadas de ordem zero e um, respectivamente.

A seção de choque de freamento eletrônico é dada pela seguinte expressão:

$$\varepsilon_e = \frac{1}{NZ_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_e = \int_0^\infty Q(b) \cdot 2\pi b \cdot db. \quad (1.17)$$

As equações acima, porém, divergem quando  $b \rightarrow 0$ ; Bohr contornou esse problema dividindo a análise em duas partes, uma considerando colisões com  $b < b_{\min}$  e outra colisões com  $b > b_{\min}$ , onde  $b_{\min}$  é um parâmetro que serve como limite inferior para a integral definida. Para determiná-lo, exige-se que o integrando em (1.16) forneça o valor da energia transferida no encontro binário frontal entre o projétil e o elétron quando avaliado em  $b_{\min}$ , levando a  $b_{\min} = \frac{|Z_1| e^2}{m_e v_1^2}$ . Dessa forma, a **fórmula de Bohr**

para o poder de freamento eletrônico é obtida:

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_{Bohr} = NZ_2 \left[ \int_0^{b_{\min}} 2\pi b Q(b)_{b<b_0} db + \int_{b_{\min}}^\infty 2\pi b Q(b)_{b>b_0} db \right], \quad (1.18)$$

resultando em:

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_{Bohr} = \frac{4\pi N (Z_1 e^2)^2 Z_2}{m_e v_1^2} \cdot \ln \left( \frac{1,123 \cdot m_e v_1^3}{|Z_1| \omega_0 e^2} \right), \quad (1.19)$$

que é independente da escolha de  $b_{\min}$ .



A teoria de Bohr para o poder de freamento eletrônico descreve bem os resultados experimentais, desde que  $v_1 \gg v_0$ , sendo  $v_0 = \frac{c}{137}$  a velocidade de Bohr, e  $\frac{Z_1}{(v_1/v_0)} \gg 1$ , que é a condição limite de aplicabilidade da mecânica clássica.

A seguir, será apresentada a teoria de Bethe, que emprega a mecânica quântica, sendo aplicável além do limite clássico. A diferença básica entre as teorias de Bohr e Bethe reside no uso de idéias clássicas (órbitas bem definidas, parâmetros de impacto) pelo primeiro e idéias quânticas de espalhamento (amplitudes de espalhamento) pelo segundo.

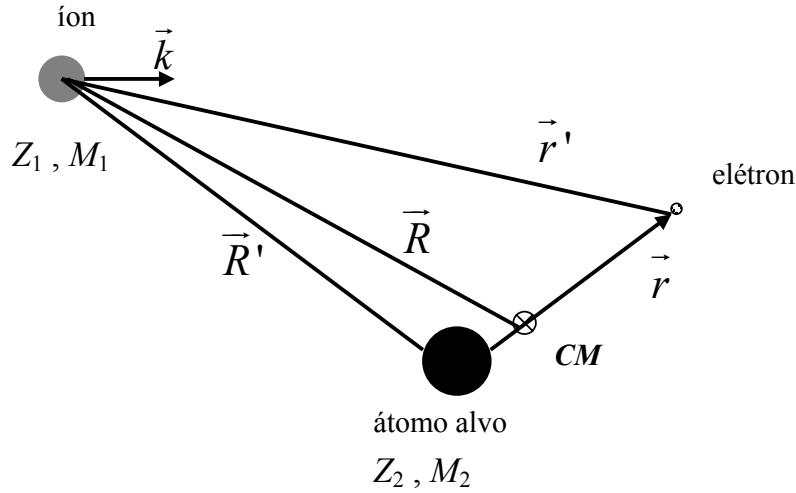
### 1.4.2 – Teoria de Bethe

A teoria de Bethe [6-8] descreve bem o comportamento funcional da perda de energia eletrônica na região de altas energias (velocidades) do projétil, onde o processo dominante é a excitação dos elétrons das camadas internas dos átomos do alvo. Ela é baseada na **aproximação de Born de onda plana** (Plain Wave Born Approximation – PWBA), onde se considera o projétil como uma onda plana, ou um pacote de onda, que se aproxima de um centro espalhador (átomo alvo). Após a colisão, o pacote de onda continua se movendo na direção original, enquanto o centro espalhador emite uma frente de onda esférica. A figura 1.3 mostra um esquema da colisão entre um íon incidente de massa  $M_1$  e número atômico  $Z_1$  e o sistema formado por um átomo alvo de massa  $M_2$  e número atômico  $Z_2$  com um elétron, cujo centro de massa é denotado por  $CM$ . O íon incide com momentum inicial  $\hbar\vec{k}_i$  e energia cinética não relativística  $T_i = \frac{\hbar^2 k_i^2}{2M_1}$ . Após a colisão, seu momentum será  $\hbar\vec{k}_f$ , enquanto o átomo que estava no seu estado fundamental com energia  $E_i$  é levado a um estado final com energia  $E_f$ . Sendo  $\sigma_{i \rightarrow f}$  a seção de choque total para que este evento ocorra, a seção de choque de freamento pode ser escrita como:

$$\varepsilon_e = \sum_f (E_f - E_i) \sigma_{i \rightarrow f}, \quad (1.20)$$

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

Por uma questão de simplicidade, é conveniente fazer a análise com unidades atômicas, de forma que  $\hbar = e = m_e = 1$ .



**Figura 1.3** – Representação esquemática de uma colisão entre um íon e o sistema formado por um átomo alvo e seu elétron. O centro de massa desse sistema está indicado como *CM*.

Se  $\chi = \frac{2Z_1 e^2}{\hbar v_1} \ll 1$ , ou seja, a interação do projétil com o alvo puder ser tratada como uma pequena perturbação, a seção de choque diferencial para ocorrer uma transferência de momentum  $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$  do projétil para o elétron, indo este do estado inicial  $|\phi_i\rangle$  ao estado final  $|\phi_f\rangle$ , será dada por:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{i \rightarrow f} = \frac{\mu^2}{4\pi^2} \frac{k_f}{k_i} |T_{i \rightarrow f}|^2, \quad (1.21)$$

onde  $\mu$  é a massa reduzida do sistema átomo-elétron e  $T_{i \rightarrow f}$  é a matriz de transição do estado inicial  $i$  para o estado final  $f$ . Nessa aproximação de Born, ela é dada por [43, 47]:

$$T_{i \rightarrow f} = \left\langle e^{i\vec{k}_f \cdot \vec{R}} \Phi_f(\vec{r}) \middle| V_{per}(\vec{r}, \vec{R}) \middle| e^{i\vec{k}_i \cdot \vec{R}} \Phi_i(\vec{r}) \right\rangle, \quad (1.22)$$

sendo

$$\left[ -\frac{1}{2\mu} \nabla_r^2 + V_{a-e}(\vec{r}) \right] \Phi_a = \varepsilon_a \Phi_a. \quad (1.23)$$

Aqui  $V_{per}$  é o potencial perturbativo e  $V_{a-e}$  é o potencial entre o átomo e seu elétron. Se  $V_a$  é o potencial eletrostático gerado pelo núcleo do átomo, a energia potencial  $V_{a-e}(r)$  é igual a  $V_a(r)$ . Aqui, estamos considerando o modelo de elétrons independentes. O potencial  $V_a$  pode ser obtido, por exemplo, através do método Hartree-Fock-Slater.

O valor do termo perturbativo  $V_{per}$  é dado pela equação:

$$V_{per}(\vec{r}', \vec{R}') = V_{p-e}(\vec{r}') + V_{p-a}(\vec{R}'), \quad (1.24)$$

onde  $V_{p-e}$  e  $V_{p-a}$  são os potenciais de interação entre o íon e o elétron e entre o íon e o átomo, respectivamente.

Da figura 1.3 se afere que  $\vec{r}' \simeq \vec{R} - \vec{r}$  e  $\vec{R}' \simeq \vec{R}$ . Assim,

$$V_{per}(\vec{r}', \vec{R}') \simeq V_{per}(\vec{r}, \vec{R}) = V_{p-e}(\vec{R} - \vec{r}) + V_{p-a}(\vec{R}), \quad (1.25)$$

com

$$V_{p-e}(\vec{R} - \vec{r}) = \frac{-Z_1}{|\vec{R} - \vec{r}|}, \quad (1.26)$$

e

$$V_{p-a}(\vec{R}) = Z_1 V_a(\vec{R}). \quad (1.27)$$

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

$$\sigma_{i \rightarrow f} = 8\pi (Z_1 \mu)^2 \frac{k_f}{k_i} \int_{q_{\min}}^{q_{\max}} dq \frac{q}{k_i k_f} \frac{|\Gamma_{if}(q)|^2}{q^2}, \quad (1.28)$$

onde:

$$\Gamma_{if}(\vec{q}) = \langle \Phi_f | e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} | \Phi_i \rangle. \quad (1.29)$$

Se o átomo for considerado como tendo um raio  $a$ , então  $\hbar/a$  corresponderá ao momentum médio de um elétron do alvo. Portanto, levando-se em conta apenas

transferências de momentum tais que  $q \gg \sim 1/a \equiv q_a$ , o termo exponencial em  $\Gamma_{if}(\vec{q})$  só oscilará rapidamente, fazendo com que o elemento de matriz seja muito pequeno, a menos que o estado final do elétron cancele tal oscilação (quando  $\phi_f \sim e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}}$ , correspondendo a um elétron livre que absorveu momentum  $\vec{q}$ ). Grandes momenta transferidos correspondem a colisões com parâmetro de impacto menor que  $r_0$  na teoria de Bohr. O momentum máximo que pode ser transferido ao elétron é  $q = 2v_1$ . Para  $q \gg q_a$  pode-se escrever, lembrando que estão sendo utilizadas unidades atômicas:

$$(\varepsilon_e)_{q>q_a} = \frac{4\pi N Z_1^2 Z_2}{v_1^2} \ln\left(\frac{2v_1}{q_a}\right), \quad (1.30)$$

onde, no cálculo das integrais, foi utilizada a regra da soma de Bethe:

$$\sum_f (E_f - E_i) \left| \langle \phi_f | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | \phi_i \rangle \right|^2 = \left(\frac{q}{2}\right)^2. \quad (1.31)$$

Considerando agora transferências de momentum menores que  $q_a$ , deve ser determinado o momentum transferido mínimo que seja compatível com a condição  $v_1 \gg v_e$ , sendo  $v_e$  a velocidade média dos elétrons do alvo. Nesse caso,  $q_{\min} = \frac{(E_f - E_i)}{v_1}$

[43]. Para pequenos valores de  $q$ , a exponencial contida no potencial da equação (1.27) pode ser expandida em série de Taylor até primeira ordem. Neste caso, pode-se demonstrar que:

$$(\varepsilon_e)_{q<q_a} = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2}{v_1^2} \ln\left(\frac{q_a v_1}{I}\right), \quad (1.32)$$

onde  $I$  é a energia de excitação média de um átomo alvo, sendo determinada através da relação:

$$\ln I \equiv \frac{1}{Z_2} \sum_i \sum_f f_{i \rightarrow f} \ln(\varepsilon_f - \varepsilon_i), \quad (1.33)$$

com  $\varepsilon_f$  e  $\varepsilon_i$  sendo as energias dos estados final e inicial do elétron do átomo alvo e  $f_{i \rightarrow f}$  sua força de oscilador generalizada na aproximação de dipolo, dada por:

$$f_{i \rightarrow f} \equiv (\varepsilon_f - \varepsilon_i) \left| \langle \phi_f | z | \phi_i \rangle \right|^2. \quad (1.34)$$

Combinando as equações (1.30) e (1.32), obtém-se finalmente a **fórmula de Bethe** (abandonando agora o uso de unidades atômicas) [43]:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi N Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v_1^2} \ln \frac{2m_e v_1^2}{I}. \quad (1.35)$$

Vale lembrar que este resultado está baseado em duas aproximações essenciais:

- i. o potencial de interação entre o íon e o átomo deve ser suficientemente fraco para poder ser considerado como um termo perturbativo dentro da aproximação de Born;
- ii. a velocidade do projétil deve ser muito maior que a velocidade orbital de qualquer elétron no alvo.

Quando  $\frac{Z_1 e^2}{\hbar v_1} \gg 1$ , modelos não-perturbativos devem ser usados. Além da teoria de

Bohr, mencionada anteriormente, para esse regime de velocidades do íon também é possível aplicar o método dos deslocamentos de fase.

### 1.4.3 – Método dos deslocamentos de fase

Para o cálculo do poder de freamento eletrônico, o **método dos deslocamentos de fase** (Phase Shifts Method) também aparece como uma alternativa razoável. Inicialmente desenvolvido para baixas velocidades do projétil, teve posteriormente seu limite de aplicação estendido para regiões de velocidade mais altas [36, 37]. Utilizando o modelo de gás de elétrons livres, com a suposição adicional de que o espalhamento dos elétrons é individual e independente, é possível calcular o poder de freamento eletrônico de um íon lento em termos dos deslocamentos de fase da função de onda dos elétrons do alvo. Esses deslocamentos ocorrem devido ao espalhamento pelo potencial efetivo do íon incidente. O efeito do princípio de Pauli é incluído, restringindo-se os estados eletrônicos possíveis após a colisão somente àqueles estados que ficam fora da esfera de Fermi.

Nessa abordagem, o poder de freamento eletrônico pode ser expresso em termos da seção de choque de transporte [48]:

$$\begin{aligned} \left(\frac{dE}{dx}\right)_e &= \int d\vec{v}_e f_0(\vec{v}_1 + \vec{v}_e) |\vec{v}_e| m_e \vec{v}_e \sigma_{Tr}(|\vec{v}_e|) \\ &= 2\pi m_e \int_0^\infty x^2 f_0(x) dx \int_{-1}^1 \sigma_{Tr}(y) y (xu - v_1) du \end{aligned} \quad (1.36)$$

Aqui,  $m_e$  e  $v_e$  são a massa e a velocidade do elétron, respectivamente,  $f_0$  é a função distribuição de partículas em um gás de elétrons,  $v_1$  é a velocidade do íon,  $\vec{x} \equiv \vec{v}_1 + \vec{v}_e$  e:

$$y \equiv \sqrt{v_1^2 + x^2 - 2xv_1 u} . \quad (1.37)$$

Por sua vez,  $\sigma_{Tr}$  é a **seção de choque de transporte** para elétrons, a qual é definida em termos da seção de choque diferencial de espalhamento  $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta)$  através da seguinte expressão:

$$\sigma_{Tr} = 2\pi \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) (1 - \cos\theta) d\theta . \quad (1.38)$$

Para um potencial esfericamente simétrico, a seção de choque de transporte pode ser escrita como:

$$\sigma_{Tr} = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=0}^{\infty} (l+1) \text{sen}^2 [\delta_l(k) - \delta_{l+1}(k)] , \quad (1.39)$$

onde os  $\delta_l$ 's são os **deslocamentos de fase** para espalhamento por um potencial esfericamente simétrico e  $k$  é o número de onda do elétron que corresponde à velocidade do projétil. A fim de calcular o deslocamento  $\delta_l$  da  $l$ -ésima onda parcial  $\chi_l$  da função de onda do elétron, é necessário resolver a parte radial da equação de Schrödinger:

$$\frac{d^2\chi_l}{dr^2} + \left[ k^2 + u(r) - \frac{l(l+1)}{r^2} \right] \chi_l = 0 , \quad (1.40)$$

onde  $u(r) \equiv \left( \frac{2m_e}{\hbar^2} \right) U(r)$ , sendo  $U(r)$  a energia potencial que descreve a interação entre um elétron do alvo e o íon. Para  $U(r) = 0$ , a solução da equação (1.40) tem a forma assintótica:

$$\chi_l \sim \text{sen} \left( kr - \frac{1}{2} l\pi \right) . \quad (1.41)$$

O deslocamento de fase pode então ser calculado encontrando-se a diferença entre os nodos da função de onda radial obtida da resolução da equação (1.40) e da solução (1.41) para grandes valores de  $r$ .

#### 1.4.4 Teoria da resposta linear

Ao contrário das teorias apresentadas anteriormente, a teoria da resposta linear [49, 50] constitui uma abordagem aplicável em qualquer intervalo de velocidades ao estudo do poder de freamento eletrônico de íons energéticos.

No caso de o meio ser um gás de elétrons homogêneo, o papel do íon incidente será gerar um campo elétrico externo que constitua uma perturbação ao gás de elétrons, gerando um campo elétrico induzido:

$$\vec{E}_{ind} = \left[ \frac{1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} - 1 \right] \vec{E}_{ext}, \quad (1.42)$$

onde  $\vec{E}_{ext}$  e  $\vec{E}_{ind}$  são as transformadas de Fourier dos campos elétricos externo e induzido, respectivamente, e  $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$  é a **constante dielétrica** longitudinal do plasma eletrônico.

A energia dissipada por unidade de tempo pelo íon é dada por:

$$\frac{dW}{dt} = \vec{F} \cdot \vec{v} = \vec{v} \cdot \int \rho_{ion}(\vec{r}, t) \vec{E}_{ind}(\vec{r}, t) d^3\vec{r}. \quad (1.43)$$

A distribuição de carga de um íon de carga nuclear  $Z_1$ , movendo-se a uma velocidade  $v_1$ , com  $N$  elétrons ligados a ele, é dada por:

$$\rho_{ion}(\vec{r}, t) = Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t) - \rho_{ion}^e(\vec{r} - \vec{v}t), \quad (1.44)$$

com o vínculo  $\int \rho_{ion}^e(\vec{r}) d^3\vec{r} = N$ .

Substituindo  $\rho_{ion}$  da equação (1.44) em (1.43), obtém-se [51]:

$$\left( \frac{dE}{dx} \right)_e = \frac{1}{v_1} \frac{dW}{dt} = \frac{2Z_1^2 e^2}{\pi v_1^2} \int \frac{dk}{k} |\rho_{ion}^e(k)|^2 \int_0^{kv_1} \omega \text{Im} \left[ \frac{-1}{\varepsilon(\vec{k}, \omega)} \right] d\omega, \quad (1.45)$$

onde  $\rho_{ion}^e(k)$  é a transformada de Fourier de  $\rho_{ion}^e(\vec{r})$  no sistema de coordenadas do íon incidente.

A equação (1.45) não considera efeitos de excitação e/ou ionização dos elétrons do íon incidente, assim como pressupõe que a densidade eletrônica do íon não se deforma quando este se aproxima do átomo alvo. O efeito da excitação do gás de elétrons, por sua vez, está todo contido na constante dielétrica  $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$ .

Para o caso restrito de um íon “nu” (sem elétrons ligados), o poder de freamento eletrônico em um gás de elétrons pode ser escrito na forma:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m v_1^2} n L(n, v_1), \quad (1.46)$$

onde  $n$  é a densidade eletrônica do gás e  $L$  é uma função que depende somente de  $n$  e da velocidade do projétil.

Para o caso de  $v_1 \leq v_F$ , chega-se a [52]:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e \sim f(n) \frac{v_1}{v_F(n)}, \quad (1.47)$$

onde  $f$  depende só da densidade eletrônica do alvo e  $v_F = \frac{\hbar}{m_e} (3\pi^2 n)^{1/3}$  é a **velocidade de Fermi** do gás de elétrons.

Já para o caso de  $v_1 \gg v_F$ , o que se obtém é [49]:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_e \sim Z_1^2 \frac{n}{v_1^2} \ln \left[ \frac{2v_1^2}{\omega_p(n)} \right], \quad (1.48)$$

com  $\omega_p = \sqrt{4\pi e^2 n / m_e}$  sendo a **freqüência de excitação de plásmons**.

As formas funcionais de  $f$  e  $L$  dependem do tipo de aproximação usada para calcular  $\varepsilon(\vec{k}, \omega)$  [50, 52].

É possível estender essa análise feita com o íon penetrando em um gás de elétrons homogêneo para o caso do íon penetrando em um sólido com densidade eletrônica que não seja uniforme.

Lindhard e Scharff [22] e Lindhard e Winther [23] adaptaram a equação (1.46) para o caso de o meio ser um sólido, escrevendo-a localmente. Isso foi feito aplicando-se a



**aproximação de densidade local** (LDA – Local Density Approximation), onde se considera que o volume total do gás de elétrons do alvo está subdividido em células de volume  $\Delta V$  e que em cada célula o potencial  $V(\vec{r})$  varia tão lentamente que pode ser considerado constante. Ainda supõe-se que existam elétrons em cada célula em número suficiente para que se possa utilizar as propriedades de um gás de elétrons livres no equilíbrio estatístico. Com essa abordagem, chegaram a:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m_e v_1^2} n(\vec{r}) L[n(\vec{r}), v_1], \quad (1.49)$$

sendo  $L(n, v_1)$  o chamado **número de freamento**.

A seção de choque de freamento pode então ser calculada através de:

$$\varepsilon_e = \frac{4\pi Z_1^2 e^4}{m_e v_1^2} \int n_a(\vec{r}) L[n(\vec{r}), v_1] d^3 r, \quad (1.50)$$

onde  $n_a(\vec{r})$  é a densidade de elétrons por átomo do alvo, sendo:

$$\int n_a(\vec{r}) d^3 \vec{r} = Z_2. \quad (1.51)$$

Para baixas velocidades do íon incidente ( $v_1 \ll v_0 Z_1^{2/3}$ ), Lindhard e Scharff [53] chegaram à seguinte aproximação:

$$\varepsilon_e = 8\pi e^2 a_0 \xi \frac{Z_1 Z_2 v_1}{Z_{efe} v_0}, \quad (1.52)$$

onde  $a_0$  e  $v_0$  são o raio (0,59 Å) e a velocidade de Bohr, respectivamente,  $\xi \approx Z_{efe}^{1/6}$  e:

$$Z_{efe} = (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}. \quad (1.53)$$

### 1.4.5 – Método dos canais acoplados

O método dos canais acoplados (Coupled Channels – CC) [54] é uma teoria quântica para o cálculo do poder de freamento de íons com energias intermediárias (~50 keV/uma) e altas. Ele incorpora funções de onda atômicas exatas centradas no alvo, pacotes de onda contínuos amortecidos e trajetórias do projétil dinâmicas e curvas.

Para um sistema de três corpos, o operador Hamiltoniano (que envolve os processos de excitação e ionização) é dado por:

$$H = T_p(\vec{r}_p) + T_t(\vec{r}_t) + T_e(\vec{r}_e) + V_{pt}(\vec{R}) + V_{te}(\vec{r}) + V_{pe}(\vec{R} - \vec{r}), \quad (1.54)$$

onde  $T$  e  $V$  denotam energias cinéticas e potenciais, respectivamente, e os índices  $p$ ,  $t$  e  $e$  referem-se ao projétil, ao átomo alvo e ao elétron, nessa ordem. A figura 1.4 mostra um esquema da colisão envolvendo esses três corpos e o centro de massa do sistema, denotado por  $cm$ . Por simplicidade, o tratamento emprega unidades atômicas.

Emprega-se também o método do parâmetro de impacto, ou seja, supõe-se que  $\vec{r}_p(t)$  e  $\vec{r}_t(t)$  são trajetórias clássicas:

$$\begin{cases} \vec{r}_p = \vec{r}_p(t, b) \\ \vec{r}_t = \vec{r}_t(t, b) \end{cases} \quad (1.55)$$

Isso é válido contanto que [55]:

$$\frac{Z_p Z_t M_p}{q_{i \rightarrow f}} \approx \frac{Z_p Z_t M_p v_p}{\Delta E_{i \rightarrow f}} \gg 1, \quad (1.56)$$

onde  $q_{i \rightarrow f}$  é a transferência de momentum na colisão. Esse critério será válido se o íon tiver ao menos energias térmicas.

Supondo que os elétrons tenham um movimento independente, é possível resolver a equação de Schrödinger para um elétron ativo:

$$\left[ i \frac{\partial}{\partial t} - H_e(t) \right] \Phi_e(t) = 0, \quad (1.57)$$

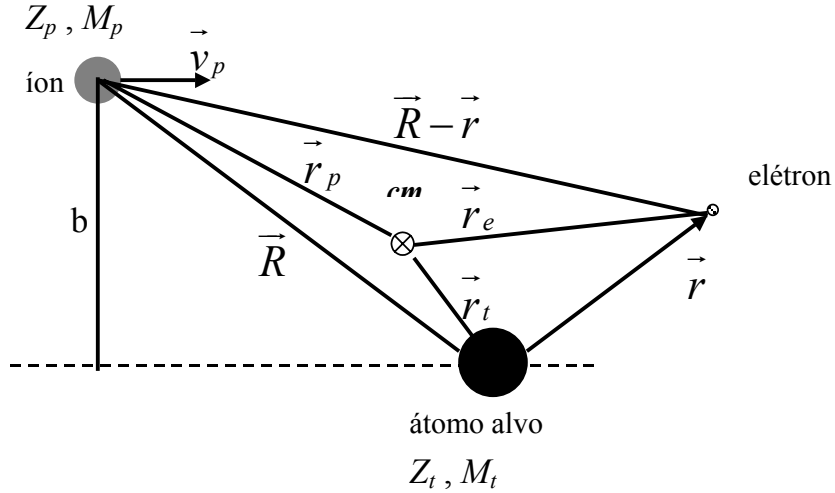
com:

$$H_e(t) = H_{te} + V_{pe}(\vec{R}(t), \vec{r}), \quad (1.58)$$

$$V_{pe}(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{-Z_p}{|\vec{R}(t) - \vec{r}|}, \quad (1.59)$$

$$H_{te} = -V_t(\vec{r}_e - \vec{r}_t(t)) + T_e(\vec{r}_e). \quad (1.60)$$

O potencial  $V_t$  é considerado do tipo Hartree-Fock-Slater, o que exclui as correlações entre os estados eletrônicos inicial e final que vão além da teoria de campo médio.



**Figura 1.4** – Diagrama vetorial da colisão envolvendo um íon nu ( $Z_p, M_p, v_p$ ), um átomo alvo ( $Z_t, M_t$ ) e seu elétron ativo.  $\vec{r}_p$ ,  $\vec{r}_t$  e  $\vec{r}_e$  são as posições no sistema de referência do centro de massa.

A coordenada do elétron deve ser medida a partir do núcleo do alvo e consiste na única variável dinâmica. Assim, o sistema de referência deve estar centrado no alvo. Nesse tipo de sistema, surgem forças não inerciais, de forma que o Hamiltoniano deve ficar como:

$$H_{ie} = -V_t(\vec{r}) + T_e(\vec{r}) + V_{recuo}(\vec{r}, \vec{r}_t(t)). \quad (1.61)$$

É razoável desprezar o termo  $V_{recuo}$ , exceto para colisões muito próximas ( $b < 10^{-3}$  u. a.). Dessa forma, pode-se assumir que o assim chamado efeito de recuo leva a contribuições insignificantes para as seções de choque totais.

Dada a função de onda eletrônica dependente do tempo  $\Phi_e$ , um Hamiltoniano clássico para partículas pesadas pode ser assim definido:

$$H_h = T_p(\vec{r}_p) + T_t(\vec{r}_t) + V_{pt}(\vec{R}) + \langle \Phi_e | V_{ie}(\vec{r}) | \Phi_e \rangle + \langle \Phi_e | V_{pe}(\vec{R} - \vec{r}) | \Phi_e \rangle, \quad (1.62)$$

com  $V_{pt}(\vec{R}) = Z_p V_t(\vec{R})$ .

Essa equação é resolvida através das leis do movimento de Newton. O último termo da equação (1.62) pode ser desprezado, devido à sua pequena influência sobre o movimento do núcleo do alvo, no caso de uma função de onda eletrônica fortemente centrada no alvo. Vale ressaltar que a equação (1.62) introduz pela primeira vez uma

trajetória de projétil curva no método do parâmetro de impacto, de maneira tal que o movimento do projétil fica acoplado ao do elétron.

É necessário expandir a função de onda  $\Phi_e$  em termos de autofunções  $\varphi_i$  do Hamiltoniano  $H_{te}$  do alvo, pelo seguinte caminho:

$$\Phi_e(\vec{r}, t) = \Phi_B(\vec{r}, t) + \Phi_C(\vec{r}, t), \quad (1.63)$$

$$\Phi_B(\vec{r}, t) = \sum_{n,l,m} a_{n,l,m}(t) e^{-iE_{n,l}t} \varphi_{n,l,m}(\vec{r}), \quad (1.64)$$

$$\Phi_C(\vec{r}, t) = \sum_{l,m} \int_0^\infty d\varepsilon b_{l,m}(\varepsilon, t) e^{-i\varepsilon t} \varphi_{\varepsilon,l,m}(\vec{r}), \quad (1.65)$$

$$\varphi_{n,l,m}(\vec{r}) = \frac{1}{r} u_{n,l}(r) Y_{l,m}(\theta, \phi) \quad (1.66)$$

e:

$$E_{n,l} u_{n,l}(r) = \left[ -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{l(l+1)}{2r^2} - V_l(r) \right] u_{n,l}(r), \quad (1.67)$$

onde  $E_{n,l}$  e o subscrito  $n$  devem ser substituídos por  $\varepsilon$  para estados contínuos.

A solução das únicas incógnitas, os coeficientes  $a_{n,l,m}$ , é direta. A definição de  $\Phi_e$  acima, para pequenos tempos, é introduzida na equação (1.57):

$$i \frac{d}{dt} a_{j',l',m'}(t) = \sum_{j,l,m} a_{j,l,m}(t) e^{i(E_{j',l'} - E_{j,l})t} v_{pe}^{j,l,m \rightarrow j',l',m'}(\vec{R}(t)), \quad (1.68)$$

com:

$$v_{pe}^{j,l,m \rightarrow j',l',m'}(\vec{R}(t)) \equiv \langle \varphi_{j',l',m'} | V_{pe}(\vec{R}(t) - \vec{r}) | \varphi_{j,l,m} \rangle \quad (1.69)$$

e:

$$\lim_{t \rightarrow -\infty} a_{n,l,m}(t) = \delta_{n_0, l_0, m_0; n, l, m}. \quad (1.70)$$

As probabilidades de excitação e ionização são dadas pela projeção sobre as funções de estado centradas no alvo assintóticas:

$$P_{n,l,m}(b) = \lim_{t \rightarrow \infty} \left| \langle \varphi_{n,l,m} | \Phi_e(p, t) \rangle \right|^2 = \lim_{t \rightarrow \infty} |a_{n,l,m}(b, t)|^2. \quad (1.71)$$

Supondo que o projétil siga trajetórias retilíneas, e fazendo  $a_{j,l,m}(t) = \delta_{n_0, l_0, m_0; n, l, m}$  na equação (1.68), obtém-se a chamada **aproximação semi-clássica** (Semi-Classical Approximation – SCA) [56], o que corrobora a validade do método de canais acoplados:

$$a_{j,l,m}(b) = -i \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(E_{j,l} - E_{j_0,l_0})t} \langle \varphi_{j,l,m} | V_{pe}(b, t; \vec{r}) | \varphi_{j_0,l_0,m_0} \rangle dt. \quad (1.72)$$

A cada estado excitado ou estado ionizado (contínuo) corresponde uma transferência de energia  $\Delta E$  (ou  $\varepsilon + I_B$ ) bem definida, onde  $I_B$  é a energia de ligação do estado inicial. O valor médio dessa transferência de energia,  $\bar{Q}(b)$ , pode ser definido como:

$$\bar{Q}(b) = n_e \sum_{f=1}^{\infty} P_{i \rightarrow f}(b) \Delta E_{i \rightarrow f} + n_e \int_0^{\infty} \frac{dP_{i \rightarrow f}(b, \varepsilon)}{d\varepsilon} (\varepsilon + I_B) d\varepsilon, \quad (1.73)$$

onde  $n_e$  é o número de elétrons na subcamada.

Finalmente, a seção de choque de freamento eletrônico pode ser então calculada através da integral:

$$\varepsilon_e = \int_0^{\infty} b \bar{Q}(b) db. \quad (1.74)$$

A maior desvantagem do método de canais acoplados é consumir muito tempo computacional com cálculos pesados.

#### 1.4.6 – Método semi-empírico de Ziegler, Biersack e Littmark (ZBL)

Ziegler *et al.* [42] realizaram uma compilação de dados experimentais do poder de freamento eletrônico, estando a maioria deles concentrada nas regiões de energia intermediária e alta. Com estes dados, desenvolveram um procedimento de escalonamento, onde, primeiramente, escalonaram os poderes de freamento eletrônico experimentais para diversos íons em diferentes alvos com os poderes de freamento de prótons nos mesmos alvos. Então, calcularam a correspondente carga efetiva fracional e o comprimento de blindagem  $\Lambda$ , em função da fração de ionização  $q$ . Encontraram uma função empírica  $\Lambda = f(qZ_1^{2/3})$ , similar para todas as combinações íon-alvo. Aí, relacionaram a  $q$  de um íon em um meio com a velocidade efetiva  $y_r$ . Estabelecendo que essa relação deveria ser uma função universal para todas as combinações tabuladas, obtiveram:  $q = 1 - \exp(0,803 \cdot y_r^{0,3} - 1,3167 \cdot y_r^{0,6} - 0,3815 \cdot y_r - 0,00898 \cdot y_r^2)$ .

Para o caso de baixas energias, onde existiam poucos dados experimentais para proceder com o escalonamento, eles utilizaram a dependência linear com a velocidade do projétil, exceto para  $Z_2 = 6, 14$  e  $32$ , onde  $p = 0,75$ .

Finalmente, o procedimento ZBL (Ziegler, Biersack e Littmark) para obter  $S_e$  para qualquer  $Z_1, Z_2$  e  $v_1$  consiste no seguinte procedimento:

- i. determinar a velocidade do íon relativa à velocidade dos elétrons do meio,  $v_r$ ;
- ii. calcular a “velocidade efetiva”,  $y_r \equiv v_r/v_0 Z_1^{2/3}$ , a partir de  $v_r$ ;
- iii. calcular  $q$  com a “função universal” apresentada anteriormente;
- iv. calcular  $\Lambda$  pela relação empírica citada no texto acima;
- v. calcular a carga efetiva, por:  $Z_1^* = Z_1 \left\{ q + \frac{1}{2}(1-q) \ln \left[ 1 + \left( \frac{2v_r \Lambda}{a_0 v_0} \right)^2 \right] \right\}$ ;
- vi. calcular  $S_e$  pela relação de escalonamento:  $\frac{S_e(Z_1, Z_2, v_1)}{S_e(Z_1 = 1, Z_2, v_1)} = (Z_1^*)^2$ .

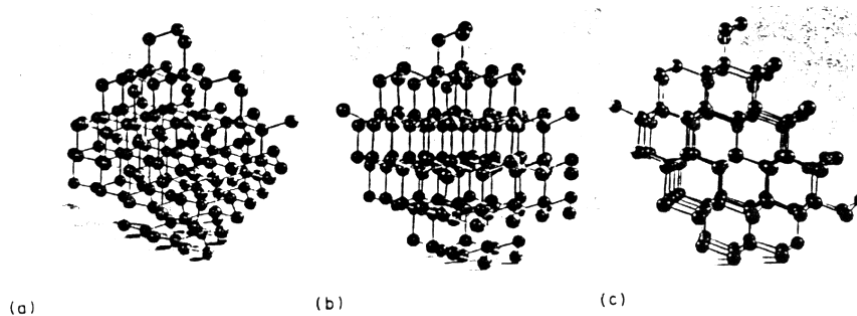
Esse procedimento vem sendo refinado com o passar do tempo, à medida que novos resultados experimentais são disponibilizados. O poder de freamento eletrônico ZBL é utilizado no pacote do conhecido programa de computador TRIM/SRIM, amplamente usado para obtenção dos poderes de freamento para qualquer combinação íon-alvo [57].

### 1.5 – Efeito da canalização sobre a perda de energia

Tudo o que foi discutido neste capítulo, até a seção anterior sobre perda de energia de íons em materiais sólidos, está baseado na suposição de que o sólido (alvo) é **amorfo**, ou seja, seus átomos estão aleatoriamente distribuídos em seu interior. Porém, desde 1912, já se tem conhecimento de que em certos sólidos (chamados de **crystalinos**) os átomos se organizam de forma extremamente regular, criando famílias de planos e colunas (eixos) de átomos, entre as quais existem verdadeiros espaços “vazios”, nos quais praticamente não há átomos. Essas “trilhas” existentes entre as colunas de átomos são chamadas de **canais**. Isso está representado na figura 1.5, que mostra a estrutura

esquemática dos átomos em um cristal tipo diamante, com os planos e colunas de átomos e com os canais entre os mesmos. Também se pode observar na figura que, dependendo da direção em que se observa o cristal, este pode se parecer com um alvo amorfo, sem canais (figura 1.5 (a)), apresentar canais entre planos de átomos (figura 1.5 (b)) ou apresentar canais entre colunas de átomos (figura 1.5 (c)). Já em 1912, Stark<sup>(1)</sup> sugeriu que prótons interagindo com cristais deveriam perder menos energia se incidissem em uma direção de forma a encontrar uma situação como a da figura 1.5 (c) do que se incidissem em uma direção como a da figura 1.5 (a) (ou sobre um alvo amorfo). Dessa forma, o tratamento para perda de energia tem que ser modificado para levar em conta essa dependência direcional.

Nas seções anteriores, foi possível considerar o material alvo homogêneo e isotrópico, de forma que uma distribuição de parâmetros de impacto  $\sim 2\pi b$  pôde ser considerada independente da orientação relativa entre o feixe de íons e o alvo. Já num alvo cristalino, a distribuição de parâmetros de impacto e os processos físicos de interação são fortemente dependentes da orientação relativa entre o feixe de íons e o alvo. Esse efeito é chamado de **canalização**.



**Figura 1.5** – Esquema da estrutura cristalina dos átomos de um cristal tipo diamante. As três representações mostram a mesma estrutura, visualizada por diferentes direções: (a) direção não alinhada com a estrutura atômica, onde não se observam canais; (b) direção perpendicular aos planos formados pelos átomos onde se observam canais entre os planos; (c) direção perpendicular às linhas de átomos, onde se observam canais entre as mesmas.

---

(1) STARK, J. *Physikalische Zeitschrift*, v. 13, p. 973, 1912.

A canalização começou a ser efetivamente estudada em 1963, quando Oen e Robinson [58-60] perceberam, em suas simulações computacionais, que o tempo de computação das trajetórias de íons com direções de incidência próximas às direções principais de simetria de alvos cristalinos era anormalmente longo. Desde então, o fenômeno de canalização foi extensivamente abordado, tanto do ponto de vista experimental [61-65] como teórico [66-69]. A seguir, serão ressaltados os aspectos básicos e a influência da canalização sobre a perda de energia, enquanto que a técnica e procedimentos serão abordados nos capítulos 3 e 5, respectivamente.

### **1.5.1 – O modelo contínuo para a canalização**

A interação entre os íons de um feixe incidente e os átomos de um alvo cristalino, estejam os primeiros incidindo em direção canalizada ou não, se dá basicamente por meio de um potencial coulombiano blindado. Dessa forma, não se pode pensar no fenômeno de canalização como um simples vôo em linha reta de alguns íons do feixe incidente ao longo de um canal.

O efeito de canalização pode ser qualitativamente explicado pelo seguinte raciocínio: a direção de incidência de um feixe de íons é tomada como sendo aproximadamente paralela a uma das direções principais de simetria de um cristal. Ao encontrar a primeira camada de átomos do alvo, alguns íons colidirão com eles em eventos com pequeno parâmetro de impacto. Esses íons sofrerão grandes deflexões em suas trajetórias, não conseguindo atingir uma situação canalizada. Entretanto, a maioria (~98%) dos íons passará longe o suficiente da primeira camada de átomos para que suas trajetórias praticamente não sejam defletidas na primeira colisão. Devido à estrutura ordenada do alvo cristalino, as partículas que não foram espalhadas com grande deflexão na superfície colidirão com os átomos da segunda camada, com parâmetro de impacto muito semelhante ao da primeira colisão, sendo espalhadas num pequeno ângulo. E o processo se repetirá, à medida que os íons forem penetrando no alvo. Em outras palavras, a trajetória dos íons será governada por uma seqüência de colisões binárias com pequenos ângulos de espalhamento e altamente correlacionadas à estrutura cristalina do alvo. A figura 1.6 ilustra uma série de colisões seqüenciais de um íon com

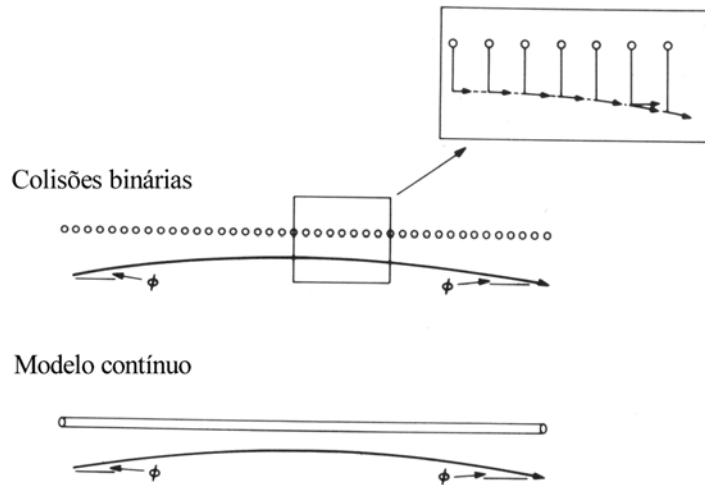


uma coluna de átomos do cristal, onde pode se observar que o efeito líquido da seqüência de colisões experimentada pelo íon consiste na sua repulsão pela coluna de átomos com um ângulo de saída igual ao de entrada.

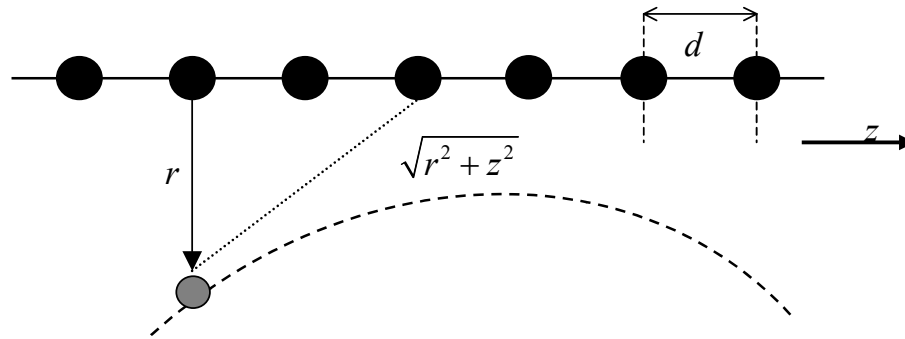
Como a interação íon-coluna envolve colisões com muitos átomos, é possível considerar válido um modelo em que a carga dos átomos que formam a coluna seja promediada ao longo da mesma. Dessa forma, a interação passa a ser descrita por um potencial contínuo  $U(r)$  [68, 70-72], onde  $r$  é a distância perpendicular do íon até a coluna e  $U(r)$  é dado por:

$$U(r) = \frac{1}{d} \int_{-\infty}^{\infty} V(\sqrt{z^2 + r^2}) dz, \quad (1.75)$$

sendo  $d$  a distância interatômica ao longo da direção de canalização  $z$  e  $V$  o potencial interatômico que governa cada colisão binária, conforme ilustrado na figura 1.7.



**Figura 1.6** – Representação da trajetória de um íon canalizado que sofre várias colisões binárias correlacionadas com os átomos de uma coluna do cristal (acima) e correspondente descrição segundo o modelo contínuo.



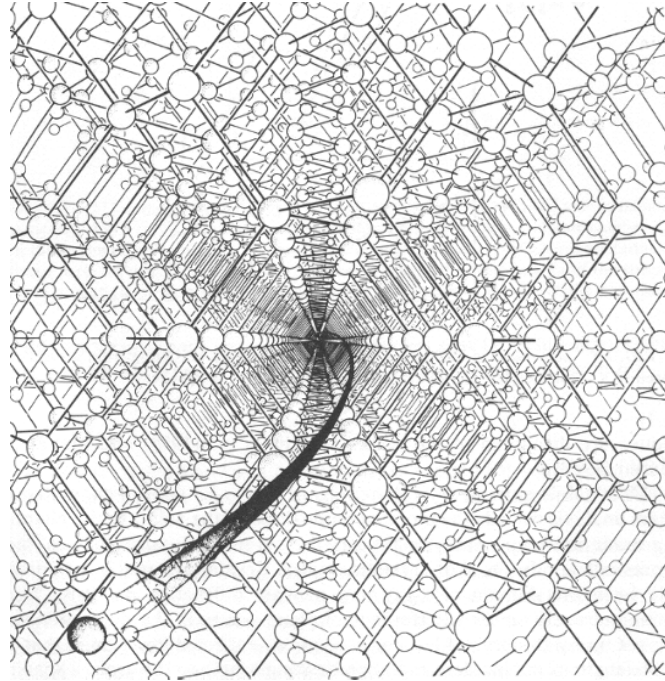
**Figura 1.7** – Ilustração das variáveis consideradas no modelo contínuo para um íon canalizado ao longo da direção  $z$ , colidindo com uma coluna de átomos do cristal estática. Obviamente, a figura está fora de escala e não é possível mostrar as centenas de átomos envolvidos na deflexão do íon.

Uma vez que os íons interagem, em princípio, com todas as colunas de átomos do cristal, quando canalizados seu movimento será espiralado, guiado por um potencial repulsivo que tende a “empurrar” o íon na direção do centro do canal. Como resultado, os íons canalizados tendem a permanecer mais tempo na região central do canal. Sendo assim, os íons sondam uma distribuição de parâmetros de impacto totalmente diferente da distribuição sondada em um material ou direção sem estrutura (amorfo). Esta é a origem dos efeitos direcionais associados ao fenômeno de canalização. Essa discussão está ilustrada na figura 1.8, representando o efeito de canalização para um íon penetrando ao longo da direção  $\langle 100 \rangle$  de um cristal de silício. Já na figura 1.9, estão esquematizadas, para essa mesma direção, curvas de contorno do potencial contínuo que governa as trajetórias canalizadas.

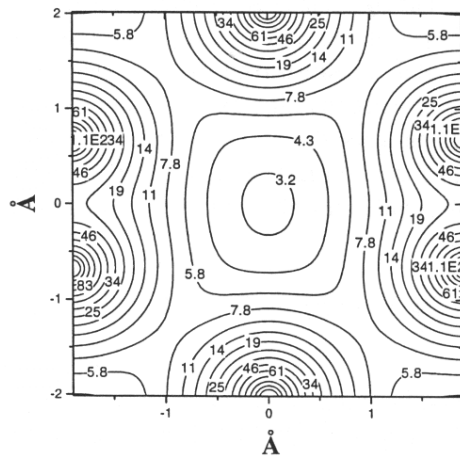
Até aqui, a discussão está levando em conta apenas a chamada **canalização axial**, que ocorre quando o feixe interage coletivamente com as colunas de átomos do cristal. Entretanto, os íons também podem incidir paralelamente às direções dos planos de átomos do cristal, configurando a chamada **canalização planar**. Analogamente ao caso axial, é possível obter um potencial contínuo para o caso planar:

$$U_p(r) = n \int_0^\infty 2\pi R V(\sqrt{r^2 + R^2}) dR, \quad (1.76)$$

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



**Figura 1.8** – Representação artística do efeito de canalização de um íon viajando ao longo da direção  $\langle 110 \rangle$  de um cristal de Si [73].



**Figura 1.9** – Curvas de contorno representando as variações do valor do potencial contínuo para íons de He canalizados ao longo da direção  $\langle 110 \rangle$  de um cristal de Si [46].

Como esta tese se baseia no estudo do poder de freamento em condição de canalização axial, apenas essa modalidade será considerada daqui em diante.

### 1.5.2 – Energia transversal

O Hamiltoniano que descreve o movimento de um íon de massa  $M_1$  submetido ao potencial contínuo devido às colunas de átomos de um cristal é dado por:

$$H = U(x, y) + \frac{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}{2M_1}. \quad (1.77)$$

Como o Hamiltoniano para a canalização axial ao longo da direção  $z$  é cíclico nessa coordenada, o momentum ao longo dessa direção será uma constante de movimento, caso sejam desprezados os efeitos dissipativos devidos a processos de perda de energia. Isso simplifica muito a determinação das trajetórias canalizadas. No modelo contínuo, basta determinar o movimento transversal dos íons canalizados. O Hamiltoniano que descreve tal movimento é:

$$H_{\perp} = U(x, y) + \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M_1}. \quad (1.78)$$

Uma vez que a energia potencial  $U$  não depende explicitamente nem da velocidade do íon nem do tempo, a energia  $E_{\perp}$  associada ao movimento transversal, que será chamada de **energia transversal**, é uma constante de movimento. Portanto, um íon canalizado que tenha energia transversal total  $E_{\perp}$  terá seu movimento restrito a uma região do plano transversal (à região do canal) de área  $A(E_{\perp})$ , definida pela condição  $U(x, y) \leq E_{\perp}$ .

### 1.5.3 – Ângulo crítico de canalização

Quando os íons canalizados têm energia suficiente para se aproximarem muito das colunas de átomos, eles passam a interagir individualmente com os átomos da rede cristalina. Nestas condições, um íon pode eventualmente sofrer uma colisão com grande ângulo de espalhamento e ser desviado da parcela canalizada do feixe, ou seja, ser **decanalizado**. Isso leva à observação de uma distância mínima de aproximação entre o íon canalizado e a coluna de átomos ( $r_{min}$ ), para a qual o conceito de canalização

continua válido. Essa distância corresponde a um **ângulo crítico de incidência**  $\Psi_c$  para o qual os íons incidentes podem ser guiados pelas colunas de átomos. Essas variáveis estão ilustradas na figura 1.10. O ângulo de incidência determina a energia cinética inicial no plano transversal pela relação:

$$E_{\perp}^c = \frac{p_x^2 + p_y^2}{2M_1} = E \text{sen}^2(\Psi) \sim E\Psi^2, \quad (1.79)$$

onde  $E$  é a energia inicial do feixe.

Sendo assim, o ângulo crítico pode ser definido igualando-se a energia transversal para um íon incidente com ângulo crítico ( $E\Psi_c^2$ ) à energia transversal na distância de máxima aproximação, ou seja:

$$E\Psi_c^2 = U(r_{\min}) \rightarrow \Psi_c = \sqrt{\frac{U(r_{\min})}{E}}. \quad (1.80)$$

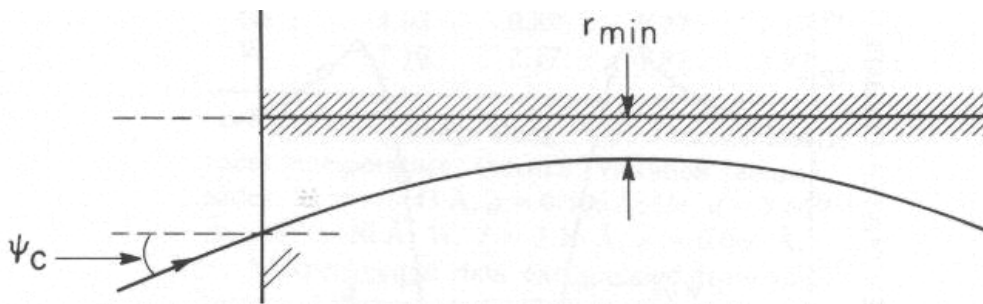
Uma estimativa para  $\Psi_c$  foi sugerida por Lindhard [68]:

$$\Psi_L = \sqrt{\frac{2Z_1Z_2e^2}{Ed}}. \quad (1.81)$$

O ângulo crítico constitui uma grandeza difícil de ser medida, então o procedimento ordinário em experiências de canalização é medir o semi-ângulo axial  $\Psi_{1/2}$  (ver capítulo 3), o qual está relacionado ao ângulo crítico de Lindhard  $\Psi_L$  através de [73]:

$$\Psi_{1/2} = \alpha_R \Psi_L, \quad (1.82)$$

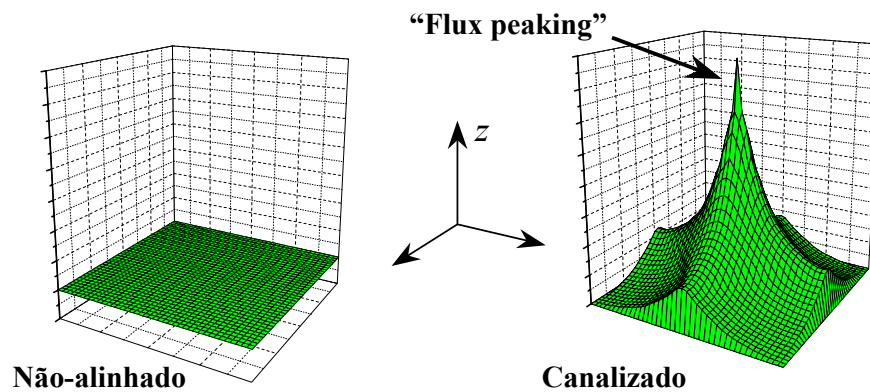
com  $\alpha_R \in [1, 2]$ .



**Figura 1.10** – Representação de uma trajetória canalizada incidindo com ângulo crítico  $\Psi_c$  e tendo uma distância de aproximação máxima  $r_{\min}$  [73].

### 1.5.4 – Fluxo de íons dentro de um canal

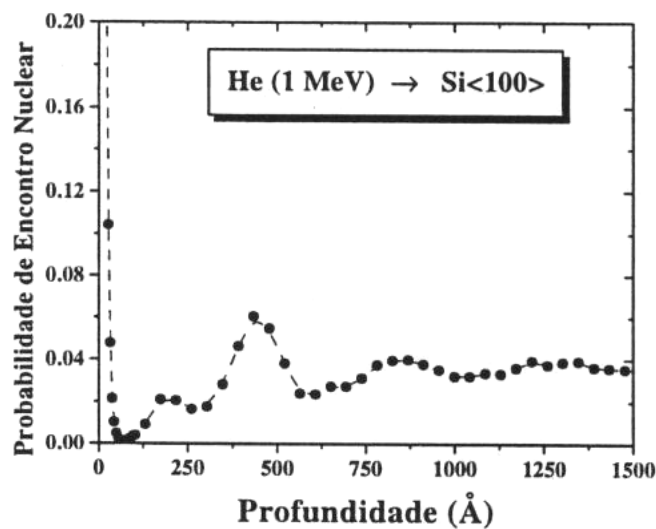
O modelo contínuo pode ser utilizado para determinar a distribuição de íons dentro de um canal. É possível demonstrar que o efeito de canalização transforma o fluxo de íons do feixe, uniforme antes de penetrar no cristal, em um fluxo fortemente focalizado no centro do canal. Esse efeito é denominado “**flux peaking**”. A figura 1.11, obtida a partir de simulações com programas do tipo Monte-Carlo [46], representa as distribuições de fluxo dos íons penetrando em um alvo ao longo de uma direção não-alinhada e ao longo de uma direção canalizada.



**Figura 1.11** – Distribuições de fluxo dos íons penetrando em um alvo ao longo de uma direção não-alinhada (esquerda) e ao longo de uma direção canalizada (direita). Os vértices do retângulo inferior representam as posições das colunas de átomos, enquanto que o seu centro representa o centro do canal, ao longo da direção de penetração  $z$ .

A figura 1.12 apresenta o resultado de simulações [46] da probabilidade de encontro nuclear ( $P_{EN}$ ) como função da profundidade de penetração para íons de He de 1 MeV canalizados ao longo da direção  $\langle 100 \rangle$  do Si. A probabilidade de encontro nuclear é definida como sendo a probabilidade de que ocorra uma colisão com parâmetro de impacto menor que a amplitude de vibração térmica dos átomos da rede. Os resultados da figura 1.12 mostram que a  $P_{EN}$  apresenta fortes oscilações logo após a entrada do feixe na amostra, as quais vão sendo amortecidas à medida que o feixe penetra mais profundamente na mesma. A  $P_{EN}$  é proporcional à magnitude do fluxo de íons próximo

das colunas de átomos que formam o cristal. O comportamento fortemente oscilatório das trajetórias da fração canalizada do feixe, logo após a entrada no canal, faz surgir as oscilações observadas na  $P_{EN}$ . O amortecimento dessas oscilações com o aumento da profundidade se deve à decanalização de parte do feixe inicialmente canalizado e à mistura de fases das trajetórias canalizadas, resultando num fluxo que tende a ficar estacionário.



**Figura 1.12** – Resultado de simulações da probabilidade de encontro nuclear como função da profundidade para íons de He canalizados na direção  $\langle 100 \rangle$  do Si [46].

Lindhard [68] sugeriu que o fluxo estacionário resulta de uma tendência ao equilíbrio estatístico no espaço de fase transversal dos íons canalizados. Isso significa, segundo a definição de equilíbrio estatístico, que um íon com energia transversal  $E_{\perp}$  ocupará com igual probabilidade todos os pontos do seu espaço de fase acessível. Embora a hipótese de Lindhard não seja estritamente correta [69], ela fornece o único método para se determinar analiticamente o fluxo de íons dentro de um canal.

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

$$\int \delta(E - E_{\perp}) d\vec{p}, \quad (1.83)$$

ou seja, é a integral sobre o espaço dos momenta restrita à condição de conservação de energia. Para a canalização axial, o espaço dos momenta é bidimensional, de forma que se pode escrever:

$$d\vec{p} = 2\pi p_{\perp} dp_{\perp} = 2\pi M_1 dE_{\perp}. \quad (1.84)$$

Portanto, a probabilidade de encontrar um íon no ponto  $\vec{r}$  é constante e independente do ponto observado. Normalizando a 1 a probabilidade total de encontrar o íon em algum ponto da sua área acessível  $A(E_{\perp})$ , chega-se à seguinte expressão para a probabilidade de encontrar o íon de energia transversal  $E_{\perp}$  no ponto  $\vec{r}$  dentro do canal:

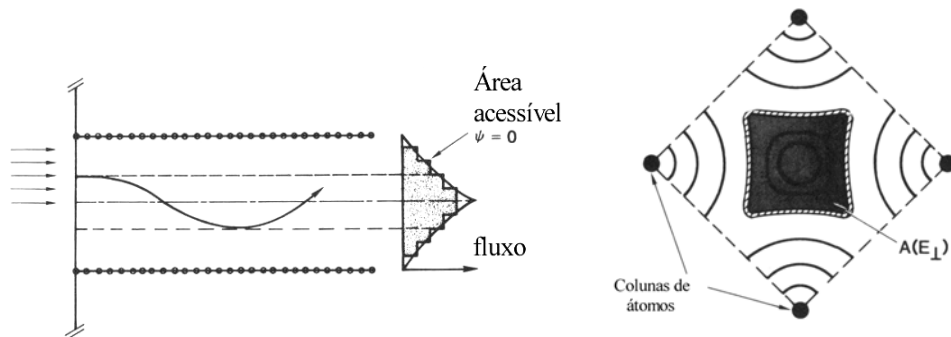
$$P(E_{\perp}, \vec{r}) = \begin{cases} \frac{1}{A(E_{\perp})}, & \text{para } E_{\perp} \geq U(\vec{r}) \\ 0, & \text{para } E_{\perp} < U(\vec{r}) \end{cases}. \quad (1.85)$$

A área  $A(E_{\perp})$  é definida por uma linha equipotencial, como as apresentadas na figura 1.9. Por exemplo, a equação (1.85) estabelece que íons com energia transversal igual a 6 eV (o que corresponde a um íon de Be de 1 MeV incidindo no centro do canal com ângulo de incidência de  $0,14^{\circ}$ ) têm igual probabilidade de serem encontrados em qualquer ponto do plano transversal interior à curva equipotencial  $U(x,y) = 6$  eV.

Agora, é possível determinar o fluxo de íons para o caso da canalização axial. As áreas acessíveis aos íons incidentes são determinadas pelas suas energias transversais. Assumindo-se que os íons incidam em direção normal ao plano transversal, o que se tem é  $E_{\perp} = U(r_{in})$ , onde  $r_{in}$  é o ponto de impacto inicial no canal. Conforme indicado na figura 1.13, a soma das contribuições do fluxo constante de íons com todas as energias transversais possíveis resulta num fluxo máximo no centro do canal. Como os íons povoam com igual probabilidade os pontos do seu espaço transversal acessível, o centro do canal é o ponto atravessado com mais frequência, por ser acessível à todas as partículas canalizadas. Pode-se então ver que a consequência principal do efeito de canalização é a focalização do feixe no centro do canal. Dito de outra maneira, a canalização modifica a estatística de colisões experimentada pelos íons do feixe, visto que, contrariamente ao que acontece num meio amorfo, colisões com grandes parâmetros de impacto são mais freqüentes que colisões com pequenos parâmetros de



impacto. Tal modificação no fluxo de íons (na estatística das colisões) é a chave para a compreensão dos efeitos direcionais associados à interação de feixes de íons com materiais cristalinos.



**Figura 1.13** – Representações da origem da focalização do fluxo de íons canalizados no centro do canal mostrando a área acessível aos íons, vista perpendicular (esquerda) e paralelamente (direita) em relação à direção de canalização[74].

Em relação à perda de energia, esse efeito pode ser visualizado levando-se em conta a equação (1.9) para a seção de choque de freamento. Ela é interpretada como o valor médio da energia transferida numa colisão  $T(b)$  com parâmetro de impacto  $b$ , promediada sobre todos os parâmetros de impacto na situação em que um feixe uniforme incide sobre um único centro espalhador. Isto é válido para o caso de um alvo amorfo. Em situações onde o feixe incidente não é uniforme, como é o caso da canalização, a seção de choque de freamento deve ser escrita como:

$$\frac{dE}{dx} = N \int T(b) P(b) d^2b, \quad (1.86)$$

onde  $P(b)$  é a probabilidade de ocorrer uma colisão com parâmetro de impacto  $b$ . No caso da canalização,  $P(b)$  está diretamente relacionada ao fluxo de partículas discutido anteriormente. Vale salientar que, para o caso de um fluxo uniforme de íons, a equação (1.86) se reduz à equação (1.9).

## CAPÍTULO 2

# EFEITO BARKAS, EFEITO BLOCH, CORREÇÕES DE CAMADAS E CARGA EFETIVA

### 2.1 – Introdução

A teoria de Bethe foi apresentada na seção 1.4.2, do capítulo anterior. Ela é baseada em cálculos de teoria de perturbação de primeira ordem (aproximação de Born) e prevê uma dependência da perda de energia com o quadrado da carga do íon incidente. A teoria, sem correções, é válida somente para casos perturbativos ( $Z_1/v_1 \ll 1$ ), e a fórmula para o poder de freamento derivada da teoria (fórmula de Bethe, equação (1.35)), além de estar sujeita à essa limitação, também está restrita à região onde a velocidade do íon é bem maior que as velocidades dos elétrons mais rápidos nos átomos do alvo. A fim de superar essas restrições, esforços teóricos foram realizados para aumentar a área de abrangência da teoria e aplicabilidade da fórmula [75–83]. Além disso, esse não é o regime de velocidades em que muitos experimentos de perda de energia são realizados. A verificação da teoria através da comparação com os resultados experimentais encontrados foi outra motivação para os esforços em corrigir e expandir a abordagem de Bethe [84–90].

Além da restrição em velocidade citada acima, a fórmula de Bethe, representada na equação (1.35), apresenta uma outra restrição semelhante, uma vez que não pode ser aplicada para íons com velocidades relativísticas. Mas, como essa situação foge ao escopo deste trabalho de tese, as chamadas correções relativísticas à fórmula de Bethe não serão diretamente abordadas.

As deficiências das fórmulas de Bethe e de Bloch para o cálculo do poder de freamento levaram ao uso de vários modelos no estudo da perda de energia, onde os átomos são representados por sistemas não muito realísticos, como um “ensemble” de

osciladores harmônicos ou um gás de elétrons. A vantagem desses sistemas é o fato de poderem ser tratados matematicamente com bastante precisão e sem aproximações restritivas.

A seguir, serão apresentados alguns modelos e serão discutidas as seguintes correções às fórmulas de Bethe e Bloch: as chamadas correções de camadas, as correções devido ao efeito Bloch, devido ao efeito Barkas e ao fato dos íons carregarem elétrons ligados ao penetrarem na matéria quando sua velocidade não é muito grande comparada às velocidades orbitais dos elétrons no alvo.

## 2.2 – A fórmula de Bloch

A diferença entre as fórmulas de Bohr (1.19) e Bethe (1.35) para o poder de freamento despertou o interesse de Bloch, que investigou a maneira como essas abordagens, uma baseada na mecânica clássica e outra na mecânica quântica, se complementam [9]. Ele começou mostrando que a fórmula de Bohr para a perda de energia em colisões distantes (segunda integral da equação (1.18)) é completamente válida quanticamente para um sistema ligado, desde que a energia perdida por elétron em função do parâmetro de impacto,  $\Delta E(b)$ , seja interpretada como uma perda de energia média somada sobre todas as transições atômicas possíveis. Para mostrar isso, Bloch teve que impor a aproximação de dipolo (ou seja,  $b \gg r_0$ , onde  $r_0$  é o raio “típico” do átomo), e, nessa aproximação, ele percebeu que correções de alta ordem ( $S/Z_1^n$ ,  $n > 2$ ) à perda de energia desapareciam para potências ímpares de  $Z_1$  (o que posteriormente se provou incorreto) e que um termo  $Z_1^4$  aparecia como um fator  $(Z_1 e^2 r_0)^2 / (b \hbar v_1)^2$  vezes menor que o termo  $Z_1^2$ .

A seguir, Bloch analisou as colisões próximas quanticamente. Ele também considerou um parâmetro de impacto mínimo, como fez Bohr, dentro do qual os elétrons poderiam ser tratados como estando livres. Entretanto, ao contrário de Bethe, Bloch não assumiu que fosse sempre válido representar os elétrons por ondas planas no referencial do centro de momentum. De acordo com Bloch, a seção de choque de espalhamento nesse caso pode ser bem diferente da seção de choque coulombiana

quântica para espalhamento de ondas planas, dependendo do potencial de espalhamento.

A chamada **fórmula de Bloch** é dada por [91]:

$$S = \frac{4\pi N Z_1^2 e^4}{m_e v_1^2} Z_2 \left[ \ln \frac{2m_e v_1^2}{I} + \psi(1) - \operatorname{Re} \psi \left( 1 + i \frac{Z_1 \alpha}{\beta} \right) \right], \quad (2.1)$$

onde  $\psi(z)$ , também chamada de função digama, é o derivativo logarítmico de  $\Gamma(z)$ , a função gama [92],  $\alpha$  é a constante de estrutura fina e  $\beta = v_1/c$ . No limite de espalhamento fraco, tem-se  $|Z_1| \alpha / \beta \ll 1$ , e a fórmula de Bethe é obtida. Já para  $|Z_1| \alpha / \beta \gg 1$ ,

$$\operatorname{Re} \psi \left( 1 + \frac{i Z_1 \alpha}{\beta} \right) \rightarrow \ln \left( |Z_1| \frac{\alpha}{\beta} \right) \quad (2.2)$$

e  $\psi(1) = \ln(1,123/2)$ , de forma que se obtém a fórmula de Bohr. Esses resultados estão ilustrados qualitativamente na figura 2.1.

Na equação 2.1,  $I$  é o potencial de excitação médio por elétron, dado por:

$$\ln I = \sum_n f_n \ln E_n, \quad (2.3)$$

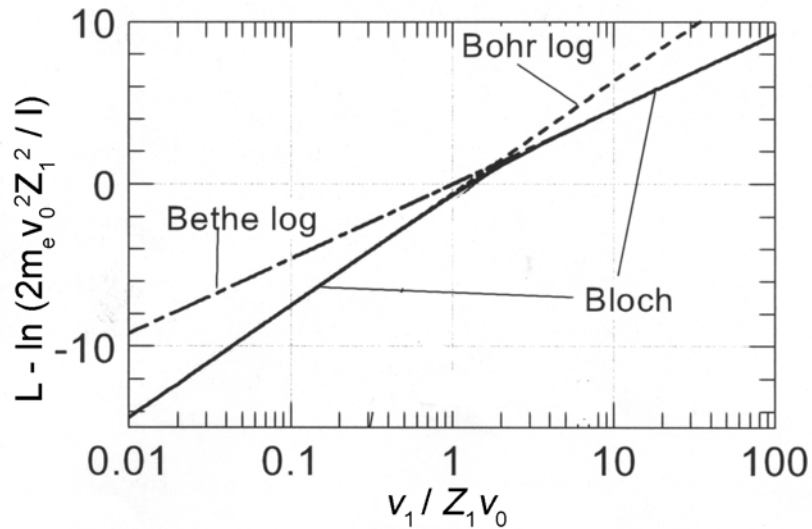
onde:

$$f_n = \frac{2mE_n}{\hbar^2 Z_2} \left| \sum_j \langle n | x_j | 0 \rangle \right|^2 \quad (2.4)$$

é a força de oscilador de dipolo para o  $n$ -ésimo nível de energia. A regra de soma de Thomas-Reiche-Kuhn diz que  $\sum_n f_n = 1$ .

Essa fórmula, embora mais completa, ainda apresenta várias limitações, como:

- A velocidade do projétil tem que ser bem maior que as velocidades orbitais características dos elétrons no alvo;
- A estrutura interna do projétil é desconsiderada;
- A contribuição de correções ímpares de alta ordem ( $Z_1^n$ ,  $n$  ímpar) não é levada em conta.



**Figura 2.1** – Números de freamento dados pelas fórmulas de Bohr, Bethe e Bloch para íons “nus” (sem elétrons ligados), em função da velocidade escalonada. Os resultados de Bloch concordam com os de Bohr a baixas velocidades e com os de Bethe a altas velocidades [93].

Ahlen [91, 94] realizou cálculos semelhantes aos de Bloch [9], porém usando funções de onda de elétrons livres, obtidas com a aproximação de Born de terceira ordem, para construir os pacotes de onda que são espalhados pelo projétil no referencial do centro de massa. Além disso, estendeu seus cálculos para velocidades relativísticas, verificando que o resultado de Bloch tinha a falha de não reproduzir o resultado de Bethe nesse limite de energia, embora o faça para velocidades não relativísticas. Ahlen argumentou que o “erro” de Bloch foi aplicar a aproximação de dipolo e negligenciar o efeito combinado de contribuições de quadrupolo e de ordem mais alta, os quais influem na seção de freamento para colisões próximas, além de gerar uma contribuição  $Z_1^3$  não observada por Bloch. Como neste estudo de doutoramento velocidades relativísticas não constituem interesse, essa correção não precisa ser ora abordada, de forma que a equação (2.1) continua sendo considerada como correta.

Fano [26] publicou um artigo de revisão, detalhando vários conceitos empregados por ele na extensão da fórmula de Bloch. Sua abordagem se baseou em considerar o momentum  $q$  transferido a um elétron ligado quando o mesmo recebe uma energia  $\Delta E$ .

Considerou três regiões para a transferência de energia, sendo  $r$  a distância em relação ao projétil:

- I. Para pequenas  $\Delta E$ , se assume que  $\vec{q} \cdot \vec{r} \ll \hbar$ , de forma que a interação entre o projétil e o elétron se reduz a elementos de matriz de dipolo;
- II. Para  $\Delta E$  medianas (e a definição de “medianas” é um tanto complexa), assumiu que somente os termos eletromagnéticos longitudinais da interação contribuem para a transferência de momentum;
- III. Para  $\Delta E$  grandes, assumiu que os elétrons do alvo podem ser considerados como se não estivessem ligados, de forma que a transferência se reduz a uma interação entre dois corpos.

Com essa abordagem, Fano obteve uma versão da fórmula de Bloch que incorpora correções relativísticas (propositalmente excluídas aqui) e a chamada “**correção de camadas**”,  $C/Z_2$ , que será discutida na seção seguinte. A equação dada por Fano [26] é:

$$S = \frac{4\pi N Z_1^2 e^4}{m_e v_1^2} Z_2 \left[ \ln \frac{2m_e v_1^2}{I} + \psi(1) - \operatorname{Re} \psi \left( 1 + i \frac{Z_1 \alpha}{\beta} \right) - \frac{C}{Z_2} \right]. \quad (2.5)$$

Mais correções foram propostas a essa formulação. A maneira mais comum de se expressar a fórmula de Bloch atualmente é como uma expansão em potências de  $Z_1$ , que adicionam correções à formulação original:

$$S = \frac{4\pi N Z_1^2 e^4}{m_e v_1^2} Z_2 \left[ L_0(v_1) + Z_1 L_1(v_1) + Z_1^2 L_2(v_1) + \dots \right], \quad (2.6)$$

onde o termo entre colchetes é definido como o **número de freamento**  $L(v_1)$ , dado por:

$$L(v_1) = L_0(v_1) + Z_1 L_1(v_1) + Z_1^2 L_2(v_1) + \dots \quad (2.7)$$

O termo  $L_0$  contém as correções oriundas da formulação de Fano, o termo  $L_1$  é chamado de **correção Barkas** ou **correção  $Z_1^3$**  e o termo  $L_2$  é chamado de **correção Bloch** ou **correção  $Z_1^4$** .

A seguir, essas correções serão revisadas, com ênfase especial ao efeito Barkas, o qual é objeto de estudo desta tese.

### 2.3 - Correções de camadas

As correções de camadas visam a adaptar as fórmulas de Bethe, de Bloch e de Bohr para a região onde não se verifica mais a condição de a velocidade do projétil ser bem maior que as velocidades orbitais características dos elétrons no alvo.

O próprio Bethe, juntamente com Livingston [75, 84], foi o primeiro a trabalhar nessa correção. Inicialmente, ela estava relacionada apenas indiretamente com as velocidades orbitais dos elétrons do alvo, não sendo associada a camadas eletrônicas do mesmo. Era simplesmente um termo para compensar as aproximações feitas na obtenção da equação para o poder de freamento, mais especificamente para incluir a contribuição dos elétrons mais internos (da camada K) de átomos pesados nessa equação, considerando apenas o caso de o projétil ser um próton.

Posteriormente, Hirschfelder e Magee [95], Brown [76], Walske [78, 79, 96], Khandelwal [97] e Bichsel [98] basearam-se nos cálculos de Bethe e os modificaram a fim de calcular a correção para as outras camadas L, M,... do alvo. Dessa forma, construíram diretamente, camada por camada, o poder de freamento para prótons incidindo sobre diversos alvos. Essa maneira de empregar a correção  $C$  é que deu origem ao nome **correção de camadas**, uma vez que ela é feita individualmente para todas as camadas eletrônicas do átomo alvo:

$$C = C_K + C_L + C_M + \dots \quad (2.8)$$

As duas principais abordagens para o cálculo das correções de camada são o uso de **funções de onda hidrogenóides** (HWF – Hydrogenic Wave Functions) para representar os elétrons que interagem com o projétil e o uso da **aproximação de densidade local** (LDA – Local Density Approximation) que considera o projétil interagindo com um gás de elétrons livres de várias densidades.

Outras abordagens para o cálculo das correções de camadas incluem sua extração a partir de dados experimentais do poder de freamento combinados com valores teóricos [26, 83, 98-101] e o uso de uma fórmula de ajuste para extrair a correção de um grande conjunto de dados experimentais [102].

No capítulo 4, uma abordagem diferente para as correções de camadas será apresentada, na teoria binária da perda de energia de Peter Sigmund.

## 2.4 – Efeito Barkas

O princípio da “saga” do efeito Barkas, ou efeito  $Z_1^3$ , como era inicialmente chamado, remonta ao ano 1953. Ao inferirem a massa de píons positivos e negativos, através de medidas do alcance dessas partículas em emulsões, Walter H. Barkas e colaboradores [103] observaram que o valor obtido para a massa do  $\pi^+$  era maior do que o obtido para a massa do  $\pi^-$ . Considerando que isso era improvável, sugeriram que, ao invés de uma diferença real nas massas, o que causava a diferença nos valores obtidos, na verdade, era uma diferença no alcance dessas partículas, a qual resultava do fato dos poderes de freamento serem diferentes para o  $\pi^+$  e o  $\pi^-$ . Posteriormente, essa suposição foi comprovada em vários trabalhos [104, 105]. A diferença no poder de freamento devida apenas à diferença de sinal de carga entre partículas de mesmo número de carga, massa e velocidade foi associada com um termo de correção à teoria de Bloch que continha potências ímpares em  $Z_1$ , sendo rotulado como termo ou correção  $Z_1^3$ . Num sentido mais amplo, essa correção foi associada com a diferença na polarização causada no alvo pela passagem de partículas positivas e negativas de mesma massa e energia. O efeito foi depois “batizado” como **efeito Barkas** por Lindhard, em seu artigo de 1976 [106], nome que ficou consagrado até hoje.

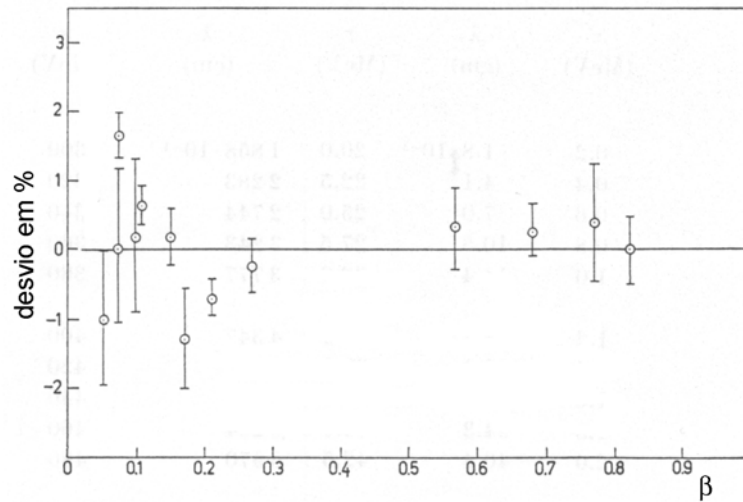
O efeito Barkas é uma correção de especial importância aqui, pois constitui objeto de estudo deste trabalho de tese. Dessa forma, nesta seção será apresentada a evolução do estudo do mesmo, incluindo os mais importantes trabalhos experimentais e teóricos sobre esse fenômeno. No capítulo 4, serão detalhadas as teorias mais recentes sobre o efeito Barkas, as quais estarão também presentes na discussão dos resultados deste trabalho.



### 2.4.1 – Medidas de massa e alcance realizadas por Walter H. Barkas *et al.*

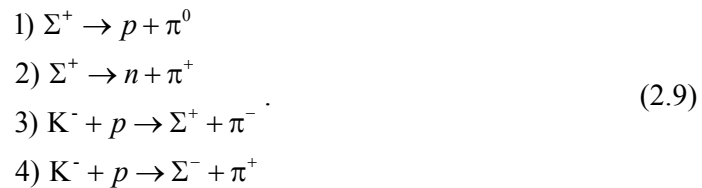
Como foi mencionado acima, a primeira observação que levou à comprovação de uma diferença entre os poderes de freamento de partículas idênticas, porém com sinais de carga opostos, foi feita por Barkas e colaboradores. No trabalho em questão [103], estavam dando continuidade ao seu objetivo de determinar a massa de mésons [107, 108] através de medidas de alcance em emulsões. Esse tipo de medidas, amplamente realizado por Barkas, tanto para partículas exóticas ( $\pi^+$ ,  $\pi^-$ ,  $\Sigma^+$ ,  $\Sigma^-$ ) [103, 104] como para íons leves e pesados (H, He, Li, C, N, O) [109, 110], está bem descrito em vários artigos [109, 90]. O efeito da diferença nos poderes de freamento entre partículas negativas e positivas só foi observado para o caso de partículas exóticas, pois apenas para elas era possível fornecer tanto um feixe de partículas negativas como um feixe de partículas positivas.

Já para o caso do poder de freamento medido para prótons de 1 a 700 MeV em emulsões, por exemplo, a abordagem foi diferente. Barkas foi um dos primeiros a seguir a tendência de comparar seus resultados experimentais com a fórmula de Bethe [90]. Nessa comparação, levou em conta correções relativísticas e as correções de camadas dadas pelas equações de Walske [78, 79], considerando como único parâmetro ajustável o potencial de ionização médio  $I$ . A curva teórica calculada ajustou bem os dados experimentais em altas energias (acima de 40 MeV), mas para energias mais baixas uma concordância melhor foi obtida com uma fórmula semi-empírica ao invés da fórmula de Bloch corrigida. Embora Barkas tenha atribuído essa discrepância à superestimação das correções de camadas dadas pela fórmula de Walske, na verdade sua análise deixou de levar em conta explicitamente duas correções importantes nesse intervalo de energias mais baixas: o efeito  $Z_1^4$  (Bloch), e, ironicamente, o efeito  $Z_1^3$ , que posteriormente viria a envergar seu nome. Na figura 2.5 são apresentados os resultados de Barkas, como desvios dos valores experimentais para os alcances dos prótons em relação aos valores teóricos de Bethe.



**Figura 2.5** – Desvios dos alcances medidos em relação aos alcances calculados teoricamente, representados em função da velocidade dos prótons ( $\beta = v/c$ ).

Posteriormente, em 1963, Barkas [104] comprovou que híperons negativos perdem energia mais lentamente do que híperons positivos com a mesma velocidade, e só então atribuiu explicitamente essa diferença a termos de segunda ordem na aproximação de Born. Nesse trabalho, as massas de híperons  $\Sigma$  e do méson  $K^-$  foram determinadas através de medidas do alcance em emulsões dos seguintes produtos das reações:



Enquanto o balanço das reações 1) a 3) era satisfatório, os resultados indicavam uma aparente quebra da conservação de momentum na equação 4), quando os valores do alcance das partículas  $K^-$  e  $\Sigma^-$  medidos eram usados. Os autores concluíram que a diferença nos alcances entre  $\Sigma^+$  e  $\Sigma^-$  e entre  $K^+$  e  $K^-$  não era devida ao fato de suas massas serem diferentes, mas sim ao fato de seus poderes de freamento diferirem por uma certa quantidade. Sugeriram, mas sem levar a cabo a sugestão, que a aproximação de Born deveria ser estendida até segunda ordem para dar conta desse efeito, que deveria estar sempre presente em medidas de perda de energia.

Com isso, embora o efeito não tenha sido explicitamente abordado, foram lançadas as sementes para que, em trabalhos subsequentes, o efeito, que veio a se chamar Barkas, fosse amplamente estudado.

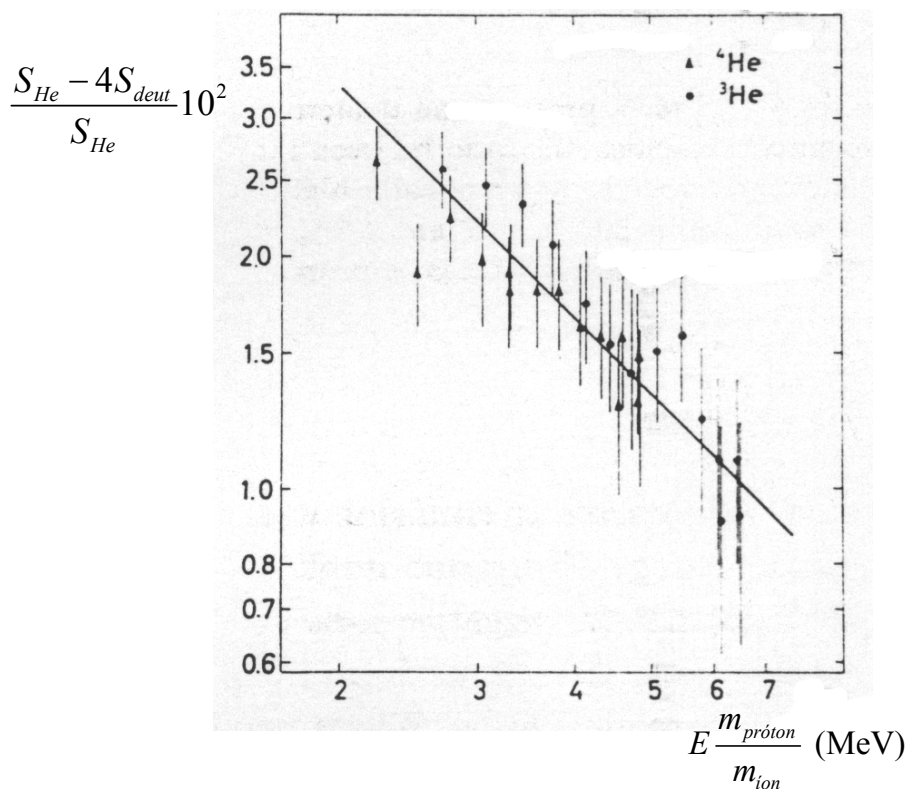
#### **2.4.2 – Medidas de poder de freamento realizadas por Hans H. Andersen *et al.***

Após sua primeira observação por Barkas, o efeito  $Z_1^3$  foi comprovado por outras medidas experimentais [105, 111], permanecendo entretanto sem uma explicação teórica consistente. Entre esses trabalhos experimentais, a análise de Hans H. Andersen e colaboradores se destacou por comprovar o efeito através de uma abordagem diferente da utilizada nos trabalhos anteriores. Ao invés de medir a diferença nos alcances de partículas negativas e positivas, da mesma espécie e com a mesma velocidade, mediram o poder de freamento para íons de H, He e deutério incidindo sobre alvos de Al e Ta [85]. Depois compararam os valores do poder de freamento para íons simples e duplamente carregados (carga  $1^+$  e carga  $2^+$ ) na mesma velocidade. A fórmula de Bethe sem correções prevê que a razão entre o poder de freamento dos íons duplamente carregados e o dos íons simplesmente carregados deveria ser igual a quatro. Ao encontrar um valor maior que quatro, provaram que havia um desvio da teoria e que uma correção era necessária (embora nada associasse essa correção ao sinal da carga das partículas). Para velocidades equivalentes a  $E_p = 2,5$  MeV ( $E_p =$  energia de um próton), o desvio encontrado em relação ao fator quatro esperado foi de 2,6% no alvo de Ta, e 1,3% no alvo de Al. Suas medidas foram realizadas através de uma técnica de compensação termométrica descrita na referência [111].

Andersen argumentou que, se os desvios observados em seu trabalho estivessem relacionados com o mesmo desvio causado pela diferença no sinal da carga observado por Barkas, então o valor na diferença para o poder de freamento de  $\Sigma^+$  e  $\Sigma^-$  a uma dada energia  $E$  deveria ser o dobro daquele valor encontrado por Andersen na energia  $(M_p/M_\Sigma)E$ . E esse foi aproximadamente o resultado encontrado por ele, sendo  $M_p$  e  $M_\Sigma$  as massas do próton e do híperon  $\Sigma$ . Mas vale notar que, embora tenha levado em conta as correções de camadas (que só dependem da partícula através de sua velocidade,

sendo iguais para íons diferentes mas com a mesma velocidade), Andersen não incluiu o efeito Bloch em sua análise. Embora isso coloque em dúvida o seu resultado do ponto de vista quantitativo (pois a diferença observada deve ser na verdade a soma de todas as correções, incluindo o efeito  $Z_1^4$ ), não invalida sua conclusão qualitativamente.

Os resultados de Andersen mostrando os desvios relativos entre os valores experimentais e a previsão de Bethe para a razão entre o poder de freamento dos íons duplamente carregados e o dos íons simplesmente carregados são apresentados na figura 2.6 para o alvo de Ta.



**Figura 2.6** – Desvio percentual, em relação à previsão da teoria de Bethe, da razão entre os poderes de freamento de He e deutério, como função da energia normalizada à energia do próton para o alvo de Ta [85].

### 2.4.3 – Teoria clássica de Ashley, Ritchie e Brandt para o efeito $Z_1^3$

A primeira teoria formal para explicar o efeito  $Z_1^3$  foi elaborada por Ashley, Ritchie e Brandt em 1972 [112], sendo, basicamente, uma extensão da teoria de Bohr. Os autores consideraram uma aproximação de impulso, onde as partículas incidentes interagem com os elétrons ligados aos átomos-alvo, os quais são representados como osciladores harmônicos clássicos de frequência  $\omega$ . A aproximação de impulso pode ser considerada como o equivalente clássico da aproximação de Born de segunda ordem.

Nesse modelo, uma partícula de carga  $Z_1e$ , incidente com um parâmetro de impacto  $b$ , interage com um elétron ligado harmonicamente à origem com uma frequência  $\omega$ . Através do emprego de uma expansão perturbativa, que assume ser pequeno o deslocamento do elétron ligado comparado com o parâmetro de impacto, e da integração desde um parâmetro de impacto mínimo até infinito, uma expressão para o poder de freamento é obtida:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_\omega = 2\pi NZ_2 F_\omega \left( \int_0^{b_\omega} b T_s(b) db + \int_{b_\omega}^\infty b T_r(b) db \right), \quad (2.10)$$

onde  $F_\omega$  é a fração de elétrons do átomo ligados com a frequência  $\omega$ ,  $T_r$  é a energia transferida a excitações ressonantes dos elétrons (colisões distantes),  $T_s$  é a energia transferida a colisões únicas (colisões próximas) e  $b_\omega$  é o limite inferior para o parâmetro de impacto. Esse limite estabelece até onde os elétrons ainda podem ser considerados como estando harmonicamente ligados. Como a aproximação de dipolo é usada,  $b_\omega$  fica limitado a valores iguais ou maiores que o raio da camada onde está o elétron. Ou seja, para uma camada de raio  $r$ , associada com a frequência de oscilador efetiva  $\omega_0(r)$ , o valor do parâmetro de impacto mínimo será dado por  $b_\omega = \eta r$ , com  $\eta$  tendo um valor próximo de um. Abaixo desse valor de  $b_\omega$ , os elétrons são tratados como se estivessem livres. Os autores supõem que, para esse último caso, a contribuição ao efeito  $Z_1^3$  será muito pequena, porque a seção de choque para espalhamento de elétrons livres é exatamente proporcional a  $Z_1^2$  (posteriormente, essa suposição será contestada), de forma que a contribuição devida a colisões próximas para o efeito Barkas foi desprezada.

Os resultados obtidos foram, a seguir, condensados num artigo [113] contendo fórmulas para o poder de freamento e para a relação alcance-energia de partículas. Também foram apresentados exemplos de como se poderia aplicá-las a vários casos. A fórmula para o poder de freamento encontrada foi:

$$S = \frac{4\pi Z_2 (Z_1 e^2)^2}{m_e v_1^2} L(y) \left[ 1 + \frac{Z_1}{Z_2^{1/2}} \frac{\kappa(\iota, y)}{y} \right], \quad (2.11)$$

onde:

$y = \frac{v_1^2}{v_0^2 Z_2}$  (sendo  $v_0$  a velocidade de Bohr),  $\iota \equiv \chi_L \eta Z_2^{1/6}$  (sendo  $\chi_L = \sqrt{2}$ ), e

$\kappa(\iota, y) = \frac{F(\iota/y^{1/2})}{y^{1/2} L(y)}$ . A forma explícita das funções  $L(y)$  e  $F(\iota/y^{1/2})$  pode ser conferida

nas referências [112, 113].

#### 2.4.4 – Teoria de Jackson e McCarthy para o efeito $Z_1^3$

Em 1972, Jackson e McCarthy publicaram sua teoria para o efeito  $Z_1^3$  [114]. Ao contrário de Ashley (e colaboradores, que serão doravante omitidos por simplicidade), levaram em conta tanto uma contribuição devida a colisões próximas como uma devida a colisões distantes. Porém, consideraram que a primeira só era importante a velocidades relativísticas, enquanto que a segunda só era efetiva a baixas velocidades, sendo semelhante àquela proposta por Ashley.

Em seu cálculo para a contribuição  $Z_1^3$  proveniente de colisões próximas, consideraram apenas regimes relativísticos de velocidade e seguiram uma análise proposta por Fermi, baseada na teoria de espalhamento de Mott. Como esse termo é essencialmente relativístico, e essa situação está fora da área de abrangência deste trabalho de tese, ele não será abordado aqui.

Já para o caso da contribuição  $Z_1^3$  originada em colisões distantes, seguiram o mesmo procedimento de Ashley (aproximação de impulso), porém sem a restrição de não considerar velocidades relativísticas. Além disso, fizeram uma escolha diferente

para o parâmetro de impacto mínimo separando colisões próximas e distantes. Estabeleceram que:

$$b_{\min} = \left( \frac{\hbar}{2m_e \omega_0} \right)^{1/2}. \quad (2.12)$$

Sua justificativa foi a de que essa é a amplitude de um oscilador clássico com energia  $E = \hbar\omega_0$ . Dessa forma, esse é o parâmetro de impacto para o qual a expansão da energia de interação em multipolos começa a falhar, e a aproximação de dipolo deixa de ser confiável. Esse critério é análogo ao utilizado por Bethe para diferenciar colisões suaves de colisões violentas em função da transferência de momentum.

Assim como Ashley, também Jackson e McCarthy combinaram sua teoria ao modelo estatístico do átomo de Lenz-Jensen<sup>(1)</sup> (descrito na referência [22]), a fim de encontrar uma descrição para um sistema de muitos elétrons e comparar seus resultados com medidas experimentais. Introduziram a variável reduzida  $V$ , definida por:

$$V = \frac{137\gamma\beta}{Z_2^{1/2}}, \quad (2.13)$$

onde  $\gamma = 1/(1-\beta^2)^{1/2}$ . De forma similar a Ashley, também usaram as funções  $L$  e  $F$ , só que ambas com dependência na variável  $V$ , ao invés de  $y$  e  $\iota$ . Com isso, encontraram a seguinte expressão para a perda de energia (para velocidades não-relativísticas):

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_2 N (Z_1 e^2)^2}{m_e v_1^2} L(V) \left[ 1 + \frac{Z_1}{Z_2^{1/2}} F(V) \right], \quad (2.14)$$

onde o segundo termo dentro do colchete dá a contribuição  $Z_1^3$ . A forma explícita das funções  $L(V)$  e  $F(V)$  pode ser encontrada na referência [114].

#### 2.4.5 – Teoria semiclássica de Hill e Merzbacher para o efeito $Z_1^3$

De forma semelhante ao que foi feito nos trabalhos anteriores, Hill e Merzbacher [115] consideraram a interação de uma partícula de carga  $Z_1 e$ , incidente com um parâmetro de impacto  $b$ , com um elétron que está ligado a um átomo e é representado por um oscilador harmônico isotrópico.

---

(1) LENZ, W. *Zeitschrift fur Physik*, Berlin, v. 77, p. 713, 1932; JENSEN, J. H. D. *ibid.*, v. 77, p. 722, 1932.

Porém, ao invés de tratar esse oscilador harmônico classicamente, aplicaram um tratamento totalmente quântico a ele. Também consideraram apenas o efeito  $Z_1^3$  para colisões distantes, correspondendo a grandes parâmetros de impacto, de forma a permitir a expansão multipolar no inverso de potências da distância projétil-alvo. Dois métodos foram empregados para calcular a contribuição  $Z_1^3$  à perda de energia média, ambos envolvendo um cálculo exato da contribuição do termo de dipolo à perda de energia e um tratamento perturbativo para encontrar a contribuição do termo de quadrupolo, sendo os termos de ordem maior desconsiderados. Em um método, a interação de dipolo foi levada em conta exatamente pela aplicação do formalismo quântico ao oscilador harmônico forçado, e a interação de quadrupolo foi tratada como uma perturbação de primeira ordem. No segundo método, ambas interações de dipolo e quadrupolo são tratadas como perturbações dependentes do tempo de segunda ordem atuando sobre o oscilador harmônico livre.

O resultado obtido em [115] está em acordo com o resultado clássico de Ashley [112], o que não representou uma surpresa, uma vez que se espera que o modelo de oscilador harmônico forneça os mesmos resultados se analisado clássica ou quânticamente.

Porém, em sua análise final Hill e Merzbacher questionam a validade da suposição de que colisões próximas não contribuem para o efeito  $Z_1^3$ , fora do limite de velocidades muito altas. Sugerem que seria interessante aplicar a teoria de perturbação de segunda ordem pelo menos para o caso das colisões próximas com grande transferência de momentum. Também consideram que a correção de Bloch não pode deixar de ser levada em conta, a menos que  $Z_1 e^2 / \hbar v_1$  seja muito pequeno.

#### 2.4.6 – Análise de Lindhard sobre a correção Barkas ( $Z_1^3$ )

Ao invés de propor uma teoria formal, Lindhard começou abordando as correções de alta ordem à teoria de Bethe com uma análise qualitativa, baseada em conceitos clássicos e argumentos dimensionais (espalhamento Rutherford de dois corpos) [106].



Ele foi o primeiro a chamar a correção  $Z_1^3$  de correção Barkas, dando origem ao termo que é empregado até hoje.

Segundo Lindhard, só há três comprimentos envolvidos no problema da interação íon-elétron: o diâmetro da colisão  $d$ , o comprimento de onda do elétron com velocidade  $v_1$  em relação ao projétil e a distância adiabática  $r_{ad}$  (a partir da qual os elétrons conseguem se adaptar ao campo do projétil rapidamente, de forma que a colisão é adiabática), dados, respectivamente, por:

$$d = \frac{2Z_1 e^2}{m_e v_1^2}, \quad \tilde{\lambda} = \frac{\hbar}{m_e v_1}, \quad r_{ad} = \frac{v_1}{\omega}. \quad (2.15)$$

Para colisões individuais, também existe o parâmetro de impacto  $b$ . Mas porque ele desaparece em quantidades totais, como a seção de choque de freamento, não foi considerado por Lindhard.

A partir das equações em (2.15), pode-se formar três parâmetros adimensionais, dois dos quais são independentes. O primeiro é o parâmetro que distingue entre uma abordagem quântica e uma abordagem clássica, conforme discutido por Bohr [16]:

$$\chi = \frac{d}{\tilde{\lambda}} = \frac{2Z_1 e^2}{\hbar v_1}. \quad (2.16)$$

Se  $\chi$  for pequeno, um tratamento de perturbação é aplicável.

O segundo parâmetro é:

$$\frac{2r_{ad}}{\tilde{\lambda}} = \frac{2m_e v_1^2}{\hbar \omega}, \quad (2.17)$$

sendo o único independente de  $Z_1$  e aparecendo no logaritmo de Bethe.

O terceiro parâmetro é:

$$\xi = \frac{d}{r_{ad}} = \frac{Z_1 e^2 \omega}{m_e v_1^3}, \quad (2.18)$$

sendo o único parâmetro existente numa análise clássica, uma vez que os outros dois dependem da constante de Planck. Dessa forma, aparece no logaritmo da fórmula de Bohr para o poder de freamento. Então, ao se calcular o efeito Barkas classicamente, o mesmo deverá depender de  $\xi$ .

Essencialmente partindo da fórmula de Rutherford para o espalhamento de dois corpos (íon-elétron):

$$\tan \frac{1}{2} \theta = \frac{d}{2b} = \frac{Z_1 e^2}{m_e v_1^2 b} = \frac{Z_1 e^2}{D v_1}, \quad (2.19)$$

Lindhard derivou, baseado em argumentos, as fórmulas de Bohr e de Bethe para o poder de freamento.

A fim de derivar então uma contribuição  $Z_1^3$  para o poder de freamento, Lindhard considerou mais adequado trabalhar com o modelo do gás de elétrons livres, uma vez que ele trata de um processo de espalhamento simples, onde se pode aplicar argumentos semelhantes aos utilizados para obter as fórmulas do poder de freamento. No sistema de coordenadas do íon, os elétrons livres com velocidade  $v_1$  são espalhados por um potencial blindado autoconsistente. Lindhard considerou que esse potencial deveria ser do tipo Yukawa, consistindo de um termo coulombiano mais um termo de blindagem, ou seja, que o espalhamento não é puramente coulombiano, conforme:

$$-\frac{Z_1 e^2}{r} \exp(-\alpha r) \approx -\frac{Z_1 e^2}{r} + Z_1 e^2 \alpha = -\frac{Z_1 e^2}{r} + V_1, \quad (2.20)$$

de maneira que, mesmo estando-se dentro do raio de blindagem, existe uma constante somada ao termo de Coulomb. A esse respeito, o potencial Yukawa corresponde à blindagem dinâmica pelo gás de elétrons, onde a constante é o potencial da nuvem eletrônica induzida, cuja extensão é aproximadamente a distância adiabática  $r_{ad}$  ( $= v_1/\omega$ ). Um cálculo do autor [19] mostrou que essa constante é  $V_1 = \pi Z_1 e^2 \omega / 2 v_1$ .

Supondo que o parâmetro de impacto  $b$  seja consideravelmente menor que a  $r_{ad}$ , a parte dominante da deflexão ocorrerá na vizinhança da distância mínima de aproximação. Mas, devido à blindagem, o elétron será espalhado como se sua energia cinética fosse modificada por  $V_1$ , enquanto que o momentum angular  $D$  permanece fixo para um potencial esfericamente simétrico. A velocidade inicial efetiva do elétron  $v_1^*$  será, dessa forma, determinada por:

$$\frac{1}{2} m_e v_1^{*2} = \frac{1}{2} m_e v_1^2 - \frac{1}{2} \pi \frac{Z_1 e^2 \omega}{v_1} = \frac{1}{2} m_e v_1^2 (1 - \pi \xi). \quad (2.21)$$

Voltando à fórmula de Rutherford (2.19), se  $v_1$  for substituído por  $v_1^*$  e  $D$  for mantido constante, o poder de freamento se torna proporcional a  $v_1^{*-2}$ , e, portanto, o efeito total é um fator de correção constante  $\pi \xi$  à fórmula de Bethe. Lindhard, então,

argumenta que mesmo que isso dê conta da maior parte do efeito, há ainda uma outra contribuição. Ele sugere que a nuvem eletrônica ao redor da partícula não deva ser simétrica, e, sendo assim, na distância mínima de aproximação um elétron espalhado sofre uma pequena variação de momentum angular, de forma que  $D^* = D(v_1^*/v_1)^{1/2}$ . Introduzindo esse  $D^*$  e a equação (2.21) na fórmula de Rutherford, um fator de correção adicional de  $\frac{1}{2}\pi\xi$  é obtido. Essa argumentação não é trivial, e sua derivação permanece como uma incógnita até a presente data. Mas, baseado nela, Lindhard introduziu o seu **fator Barkas**, que fornece a correção  $Z_1^3$  e é dado por:

$$B = \frac{Z_1 L_1}{L_0} = \frac{3\pi Z_1 e^2 \omega}{2m_e v_1^3} . \quad (2.22)$$

Esse resultado é quase o dobro do encontrado por Ashley. Vale notar que os resultados se tornam equivalentes quando se usa  $b_\omega = \hbar/C$  na formulação de Ashley, indicando uma equivalência entre os tratamentos com o oscilador harmônico e o gás de elétrons. Lindhard sugeriu que os resultados de Ashley e Jackson mostrados nas seções acima estariam incompletos porque desconsideravam a contribuição devida a colisões próximas, a qual deveria ser aproximadamente igual à contribuição calculada para colisões distantes. Ele contesta a justificativa de Ashley para a insignificância das colisões próximas, sugerindo que o potencial em questão nessas colisões não é puramente coulombiano, mas sim um potencial blindado tipo Yukawa. Além disso, na comparação dos resultados de Ashley e Jackson com os dados experimentais de Andersen, Lindhard ressaltou que, além da correção  $Z_1^3$  positiva ao poder de freamento, os dados também continham uma correção negativa devido ao efeito  $Z_1^4$ . Tomando-se a correção  $Z_1^4$  dada pela equação (2.11) somada à correção  $Z_1^3$  dada por Lindhard, e comparando-se com os resultados experimentais, um acordo melhor do que os anteriores, usando apenas as correções  $Z_1^3$  de Ashley e de Jackson, é obtido.

### 2.4.7 – Medidas de correções de alta ordem em direção canalizada

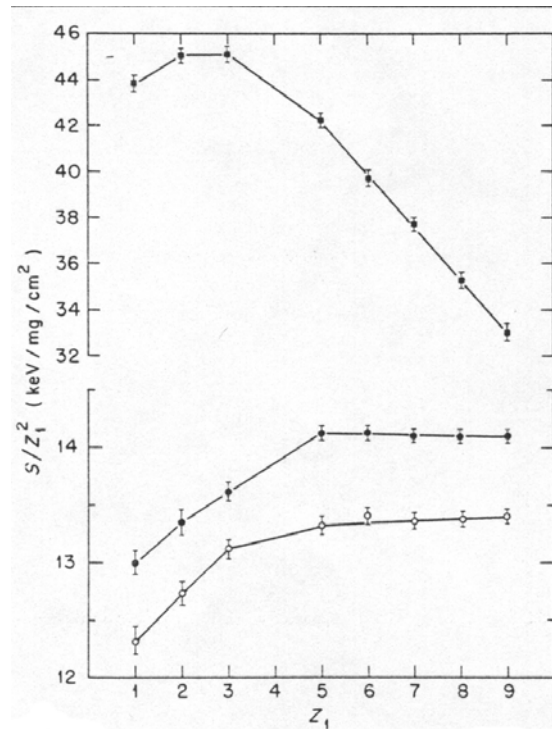
Datz e colaboradores mediram o poder de freamento canalizado ao longo do plano {111} de monocristais de Au, para íons nus de *H*, *He*, *Li* e *B* incidindo a 3,5 MeV/uma [87]. Também mediram o poder de freamento para íons de  $Z_1 = 1-9$  a 2 MeV/uma, carregando 0, 1 ou 2 elétrons ligados, no mesmo alvo. Nesse trabalho, assim como nos de Andersen [86, 116], se começou a empregar a equação (2.7) na análise dos dados experimentais, combinando os efeitos de correções de camadas, Bloch e Barkas.

Seus resultados para as medidas de íons incidentes sem elétrons ligados a 2 MeV/uma são apresentados na figura 2.7. Para os íons canalizados totalmente nus, um aumento de 3,5% na razão  $S/Z_1^2$  é visto entre H e He, 3,5% entre He e Li e 2% entre Li e B, não havendo alteração posteriormente até íons de F.

Frente a esses resultados, não conseguiram obter uma interpretação em função da fórmula (2.7) para os resultados experimentais, de forma que uma observação conclusiva do efeito Barkas foi frustrada.

Para a energia de 3,5 MeV/uma, os efeitos de alta ordem se mostraram ainda maiores, como mostrado na figura 2.8. Um aumento quase linear, da ordem de aproximadamente 20% por unidade de  $Z_1$ , é visto para  $Z_1 = 1-5$ . A linearidade está em acordo com uma correção  $Z_1^3$ , porém seu valor é seis vezes maior que aquele para o poder de freamento randômico. Mais uma vez, os autores concluíram que nenhuma das teorias existentes poderia explicar seus resultados e que seria necessário desenvolver uma teoria específica para o caso de íons canalizados.

Posteriormente, Ahlen [117] mostrou que a interpretação dos dados obtidos nessas medidas era duvidosa, ressaltando que era necessário levar em conta a assimetria na distribuição de energia. Para isso, usou a teoria de Vavilov, a qual relaciona a perda de energia média (dada pela fórmula de Bethe multiplicada pela espessura do alvo,  $\Delta E = (dE/dx)\Delta x$ ) e a perda de energia mais provável (obtida nas medidas de perda de energia pela técnica de transmissão). A discrepância nos valores dessas grandezas foi demonstrada, atribuindo-se a causa disso à sistemática de deconvolução utilizada por Datz.



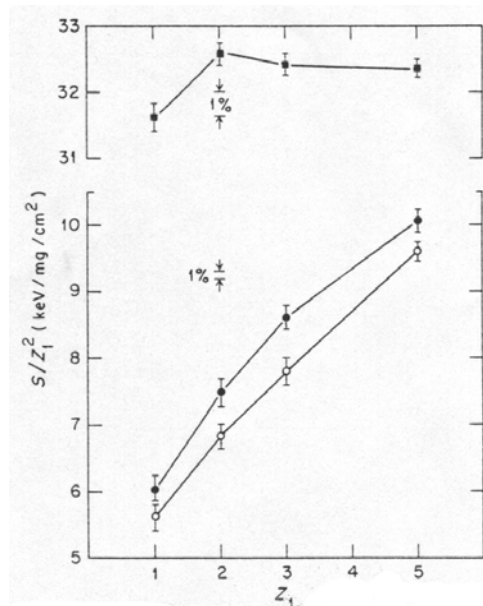
**Figura 2.7** – Desvios em relação aos resultados da fórmula de Bethe para íons de mesma velocidade ( $E = 2 \text{ MeV/uma}$ ) incidindo em alvos de Au {111}. Os quadrados (■) representam medidas aleatórias; os círculos cheios (●), medidas canalizadas com os dados experimentais sendo avaliados em função das bordas frontais dos espectros de transmissão; os círculos vazados (○), medidas canalizadas com os dados experimentais sendo avaliados em função dos valores a 1/10 da altura dos espectros de transmissão.

Dando seqüência à série de medidas canalizadas, Golovchenko e colaboradores mediram o poder de freamento de íons de  $Z_1 = 9-17$  com energia  $3 \text{ MeV/uma}$  incidindo ao longo da direção  $\langle 110 \rangle$  de alvos de Si cristalino [118]. Escolheram esse intervalo em  $Z_1$  (íons mais pesados) para evitar a influência do straggling que afetou os dados de Datz. Além disso, trocaram a canalização planar em Au pela canalização axial em Si. Seus dados para íons incidentes completamente despídos de elétrons ao longo do canal  $\langle 110 \rangle$  do Si são apresentados na figura 2.9. O resultado, de maneira oposta ao de Datz, mostra uma dependência linear em  $Z_1^2$  para a perda de energia. Os autores concluíram que isso poderia ocorrer por dois motivos: ou as correções de alta ordem eram

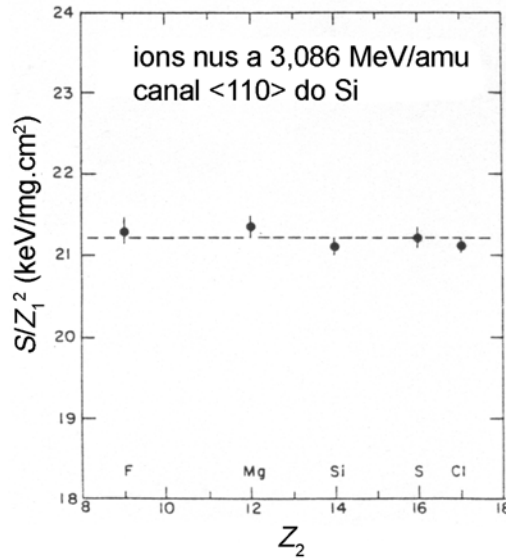
desprezíveis naquele regime de energia, ou elas tinham um valor considerável, porém eram de sinais opostos, e se cancelavam.

Considerando que as medidas foram feitas em condição canalizada, a contribuição associada ao termo  $L_0$  deveria diminuir, pois decresce o número de colisões próximas nessa condição. Quanto menor a densidade eletrônica no canal, maior a queda em  $L_0$ .

Tomando como correta a previsão de Lindhard, o termo  $L_1$  também deveria sofrer uma diminuição, uma vez que dependeria igualmente de colisões próximas e distantes.  $L_1$  e  $L_0$  deveriam diminuir proporcionalmente ao decréscimo das colisões próximas, numa taxa semelhante. Já o termo  $L_2$ , sendo um efeito local, deveria depender fortemente da densidade eletrônica no centro do canal, ao invés da densidade eletrônica total média,  $NZ_2$ .



**Figura 2.8** –  $S/Z_1^2$  para íons com  $E = 3,5$  MeV/uma incidendo em alvos de Au {111}. Os quadrados (■) representam medidas randômicas; os círculos cheios (●) e os vazados (○) representam medidas canalizadas, com os dados experimentais sendo avaliados em função dos edges frontais dos espectros de transmissão e em função dos valores a 1/10 da altura dos espectros de transmissão, respectivamente.



**Figura 2.9** –  $S/Z_1^2$  versus  $Z_1$  para íons nus de F, Mg, Si, S e Cl incidindo ao longo do canal  $\langle 110 \rangle$  do Si.

Para clarificar a questão, Golovchenko e colaboradores obtiveram valores precisos da densidade eletrônica para o canal  $\langle 110 \rangle$  do Si (que é o mais aberto, apresentando maior variação de densidade eletrônica), a fim de calcular as correções de alta ordem para a situação das medidas anteriores [88]. Os resultados, obtidos através de um modelo de cargas ligadas, indicaram que a densidade no centro do canal deveria ser  $\rho_{can} = 0,045e \text{ \AA}^3$ , bem abaixo do valor para o gás de elétrons de valência homogêneo,  $\rho_{val} = 0,2e$ , usado em muitas análises prévias sobre canalização em Si [66]. Esse valor seria mais adequado para análises ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$ , que por ser menos aberto que o  $\langle 110 \rangle$  apresenta menor variação da densidade eletrônica.

A seguir, fizeram uma análise da equação para o poder de freamento baseada no modelo de gás de elétrons livres para o alvo (no caso, representado apenas como o centro do canal). No resultado final, obtiveram resultados que indicaram ser bastante provável a hipótese de que tanto o efeito Bloch quanto o efeito Barkas estavam presentes nas medidas, porém mascarados devido ao fato de apresentarem magnitudes semelhantes e sinais inversos. Embora tenham indicado essa conclusão, os autores não

conseguiram realmente observar o efeito Barkas em suas medidas, de forma similar ao que aconteceu com Datz.

A primeira observação contundente do efeito Barkas em medidas canalizadas só veio a ocorrer muitos anos depois [119].

#### **2.4.8 – A polêmica da contribuição devida a colisões próximas ao efeito Barkas**

A análise de Lindhard [106], baseada no modelo de gás de elétrons para o alvo, citada anteriormente, despertou uma grande polêmica ao incluir uma contribuição devida a colisões próximas no efeito Barkas. A seguir, serão descritos os principais modelos e argumentos utilizados por vários autores para justificar seu ponto de vista em relação a essa questão. Vale lembrar que os resultados apresentados por alguns serão contestados por outros, e todos estão baseados em modelos, sendo, portanto, aproximados, não devendo ser tomados como absolutos.

Em sua tese de doutoramento, Esbensen<sup>(1)</sup> realizou cálculos formais para o problema, encontrando resultados que corroboraram a hipótese de Lindhard. Porém, autores que haviam trabalhado com o modelo de oscilador harmônico para os átomos do alvo insistiram na insignificância das colisões próximas para o efeito  $Z_1^3$ .

Logo em seguida, Ritchie e Brandt [120] (co-autores da teoria aqui chamada “de Ashley”) publicaram um artigo demonstrando que sua teoria podia ser utilizada para obter valores similares aos previstos por Lindhard, simplesmente através de uma reavaliação do parâmetro de impacto mínimo  $b_{min}$ , sem precisar considerar contribuições de colisões próximas. Um bom acordo com os dados experimentais de Andersen [86] foi mostrado, utilizando-se um parâmetro de impacto mínimo menor que o originalmente proposto [112, 113].

Também a fim de contrapor as conclusões obtidas do tratamento semiclássico para a interação de partículas com um gás de elétrons desenvolvido por Lindhard e Esbensen, Sung e Ritchie publicaram um artigo contendo um cálculo totalmente quântico da contribuição  $Z_1^3$  para o mesmo tipo de interação [121].

---

(1) ESBENSEN, H. *PhD Thesis*, University of Aarhus, 1977.



Da mesma forma que Lindhard, Sung e Ritchie partiram da seguinte equação para o poder de freamento:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4 n_0}{m_e v_1^2} (L_0 + Z_1 e L_1 + Z_1^2 e^2 L_2 + \dots), \quad (2.23)$$

onde  $n_0$  é a densidade eletrônica total e o termo  $L_0$  não leva em conta correções de camadas. Porém, após uma extensiva e intrincada análise, chegaram à conclusão de que a contribuição das colisões próximas, para o termo Barkas por eles obtido, era desprezível.

É interessante notar, entretanto, que em seu artigo prévio [122], publicado junto com Morgan, Sung havia chegado a uma conclusão um tanto diferente. No referido artigo, a contribuição  $Z_1^3$  foi calculada usando-se a aproximação de Born de segunda ordem, com o auxílio de algumas aproximações adicionais durante o procedimento. Isso pode ser entendido como uma versão quântica da teoria de Ashley. Os autores também introduziram uma transferência de momentum mínima, análoga ao parâmetro de impacto mínimo, para diferenciar colisões distantes e próximas. Se essa transferência de momentum mínima for escolhida de forma a ter um valor equivalente ao parâmetro de impacto mínimo de Jackson e McCarthy, os resultados obtidos para a contribuição  $Z_1^3$  são quase o dobro dos obtidos pela formulação clássica. Os autores, então, comentaram que isso havia sido previsto por Lindhard, e que o fato de uma melhor concordância com os resultados experimentais de Andersen [86] ser obtida com o uso de valores menores da transferência de momentum mínima era um indício de que colisões próximas deveriam também contribuir para o efeito Barkas.

Arista desenvolveu um outro procedimento para a obtenção da contribuição Barkas [123], baseado no cálculo da seção de choque de espalhamento para um potencial coulombiano blindado tipo Yukawa, dado por:

$$V(r) = \frac{Z_1 e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{\lambda}\right), \quad (2.24)$$

onde  $\lambda$  é a distância de blindagem, relacionada com a resposta dinâmica do meio. Esse cálculo fornece termos de segunda ordem proporcionais a  $Z_1^3$ , que causam a seguinte variação no poder de freamento:

$$\Delta S \cong \left( \frac{4\pi N Z_1^3 e^4}{m_e v_1^2} \right) \frac{2g e^2 \omega}{m_e v_1^3} \ln \left( \frac{m_e v_1^2}{2^{1/3} g \hbar \omega} \right), \quad (2.25)$$

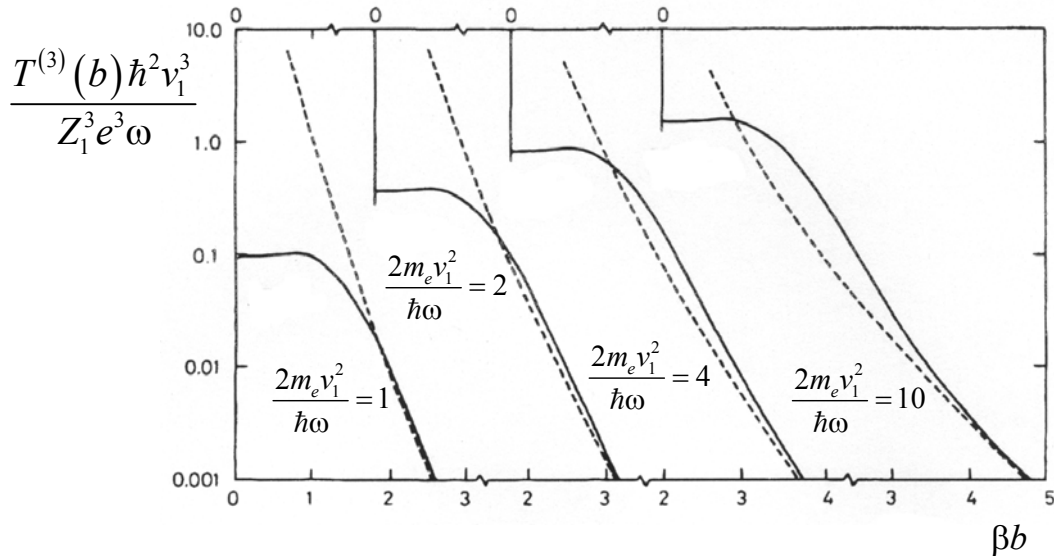
sendo  $\omega$  a frequência de oscilador e  $g$  um parâmetro de ordem unitária. Esse resultado fornece uma dependência de  $\Delta S/Z_1 S_0$  com  $v_1^{-3}$ , como prevê a teoria de Ashley, englobando, porém, tanto contribuições de colisões distantes como de colisões próximas. Para fazer uma estimativa, Arista dividiu seu resultado em duas contribuições, uma devida a colisões próximas e outra a colisões distantes, sendo as regiões separadas por uma grandeza equivalente ao parâmetro de impacto mínimo de Jackson e McCarthy (equação (2.20)). O resultado encontrado foi que a contribuição das colisões próximas podia chegar a mais de 50% do total da correção  $Z_1^3$ . Embora isso tenha corroborado a importância das colisões próximas, o resultado quantitativo não é confiável, pois, como o próprio autor ressaltou, o modelo não deve descrever muito bem as colisões distantes, uma vez que é introduzido um parâmetro de corte para as excitações distantes, dado por  $\lambda = \gamma v_1 / g \omega$ . Isso lembra os tratamentos anteriores para as colisões próximas, onde elas não eram levadas em conta, já que um parâmetro de impacto mínimo era empregado.

Shindo e Minowa [124] chegaram a uma conclusão similar à de Arista, usando, entretanto, uma abordagem diferente. Em seu trabalho, consideraram um modelo semiclássico do oscilador harmônico para a perda de energia, o qual indicou que as colisões próximas eram mais importantes para o efeito Barkas do que as colisões distantes.

Mais uma análise favorável à contribuição das colisões próximas para o efeito Barkas veio da abordagem de Haagerup, Mikkelsen e Sigmund [125, 126]. Eles desenvolveram uma avaliação quântica, até segunda ordem na série de Born, da correção Barkas e do poder de freamento, em função do parâmetro de impacto, para um oscilador harmônico esférico. Seu tratamento foi rigoroso, não lançando mão de condições limitadoras em relação à velocidade do projétil e nem utilizando um parâmetro ajustável para separar colisões próximas e distantes. Embora os autores critiquem o trabalho anterior de Shindo e Minowa [124], alegando que simplificações drásticas foram efetuadas para o cálculo da contribuição Barkas devido a colisões

próximas, consideram que as indicações qualitativas do modelo são válidas, ainda que os valores quantitativos sejam questionáveis.

Os resultados obtidos por Sigmund e Mikkelsen nesse cálculo quântico para a correção Barkas foram comparados com os resultados clássicos de Ashley [112, 113], conforme é mostrado na figura 2.10. A correção Barkas à perda de energia, representada por  $T^{(3)}$ , é dada em unidades de  $Z_1^3 e^3 \omega / \hbar^2 v_1^3$  e graficada, em função do parâmetro de impacto, para vários valores da velocidade do projétil, dada por  $2m_e v_1^2 / \hbar \omega$ . Pode-se observar que a solução clássica se aproxima do resultado quântico no limite de grandes parâmetros de impacto, mas essa aproximação é lenta.



**Figura 2.10** – Correção Barkas à perda de energia média versus parâmetro de impacto para diferentes velocidades. Linhas cheias: modelo quântico do oscilador harmônico esférico. Linhas tracejadas: limite clássico, de acordo com Ashley et al. [112, 113].  $\beta = (m_e \omega / \hbar)$ .

Por exemplo, para  $2m_e v_1^2 / \hbar \omega = 10$  há uma diferença maior que um fator dois, para um parâmetro de impacto igual ao dobro do raio do oscilador,  $\beta b = 2$ . Também pode-se notar que  $T^{(3)}$  se aproxima de um valor de saturação para pequenos parâmetros de

impacto, à medida que  $b$  se aproxima do raio do oscilador. Isso confirmaria que a correção Barkas também existe para colisões próximas.

Do ponto de vista experimental, um grande avanço aconteceu por volta de 1985, com o advento dos feixes de antiprótons de energias intermediárias e baixas. O anel de antiprótons de baixa energia (LEAR – Low-Energy Antiproton Ring) da Organização Européia para Pesquisa Nuclear (CERN – Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire) permitiu a produção de feixes de antiprótons de alta qualidade, em intervalos de energia onde o efeito Barkas contribui consideravelmente para a perda de energia. Isso permitiu realizar medidas diretas do efeito Barkas, através da comparação dos poderes de freamento de prótons e antiprótons com a mesma velocidade, nos mesmos alvos. Justamente o mesmo tipo de medidas realizadas por Barkas quando iniciou a “saga”  $Z_1^3$ , comparando poderes de freamento de  $\pi^+$  e  $\pi^-$ , porém com um grau de precisão maior e em um intervalo de energias mais baixo, onde o efeito Barkas deve ser mais pronunciado.

Em 1989, dois artigos utilizando tais medidas foram publicados, um pelo grupo da Universidade de Aarhus (Dinamarca) [89], e outro por G. Gabrielse e colaboradores [127].

Usando a técnica de medidas por tempo de voo (TOF – Time of Flight) e dois detectores de estado sólido de Si, um de 2,9  $\mu\text{m}$  e outro de 6,9  $\mu\text{m}$  de espessura, o grupo de Aarhus mediu os poderes de freamento de prótons e antiprótons no intervalo de energia de 0,538 a 3,01 MeV. O efeito Barkas foi claramente identificado, sendo a perda de energia medida para antiprótons 19% menor que a medida para prótons a 0,538 MeV, e 3% menor para a energia de 3,01 MeV. Os resultados experimentais são apresentados como poderes de freamento reduzidos  $X$ , definidos por:

$$X = \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{I}\right) - \frac{m_e v_1^2}{4\pi e^4 N Z_1^2 Z_2} \left(\frac{dE}{dx}\right) = \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{I}\right) - L, \quad (2.26)$$

sendo usado um valor de  $I = 165$  eV nos cálculos. A fim de comparação com os resultados teóricos, os autores também calculam os poderes de freamento teóricos reduzidos, dados por:

$$X_{Teor} = \frac{C}{Z_2} - Z_1 L_1 - Z_1^2 L_2, \quad (2.27)$$

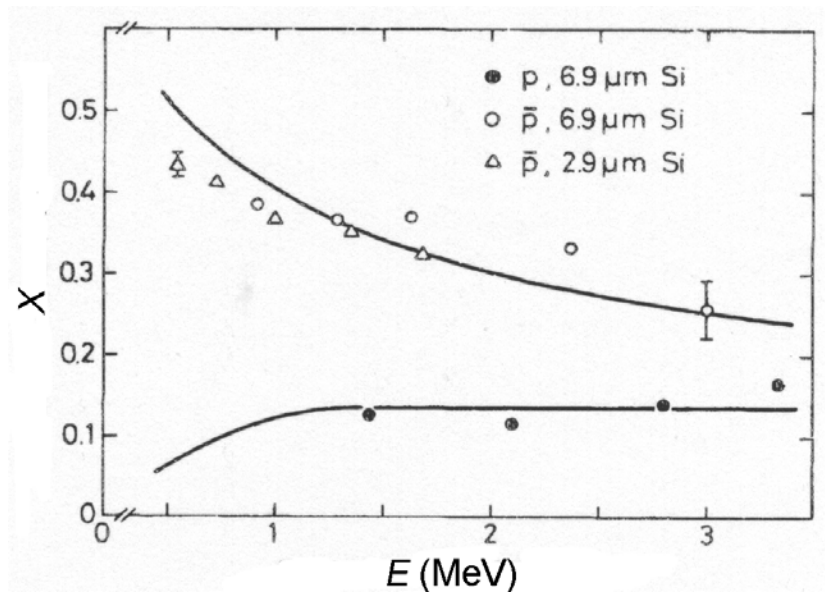
onde o valor do termo  $L_1$  usado foi o dobro do resultado de Jackson e McCarthy, conforme proposto por Lindhard [106], e as outras correções foram calculadas de acordo com o procedimento de Andersen e Ziegler [102]. Na figura 2.11, são apresentados os resultados obtidos para o poder de freamento reduzido de prótons e antiprótons, juntamente com os cálculos teóricos. Pode-se notar que o uso da estimativa de Lindhard ocasiona um bom acordo com os dados experimentais. Já os resultados para o efeito Barkas, obtidos experimentalmente pela relação:

$$L_1 = \frac{1}{2} (X_{\text{prótons}} - X_{\text{antiprótons}}), \quad (2.28)$$

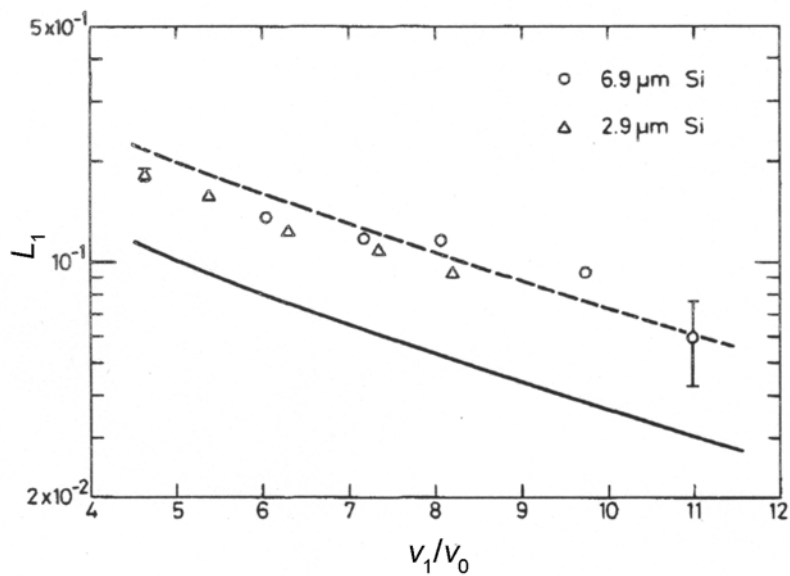
são mostrados na figura 2.12, juntamente com a previsão de Jackson e McCarthy [114] e o dobro dessa previsão, conforme sugeriu Lindhard. Mais uma vez, observa-se que a previsão de Lindhard [106] concorda bem com os dados experimentais. Embora isso não tenha provado cabalmente a existência da contribuição de colisões próximas para o poder de freamento, uma vez que um bom acordo também poderia ser obtido com a abordagem de Ritchie e Brandt [120] com um  $b_{min}$  modificado, pelo menos comprovou que o resultado obtido com o tratamento que vinha usualmente sendo utilizado para o cálculo do efeito Barkas empregando colisões distantes estava incompleto.

O resultado obtido pelo grupo de G. Gabrielse, cujas medidas se resumiram ao alcance de prótons e antiprótons de 5,9 MeV em Al, levou às mesmas conclusões a que chegou o grupo de Aarhus.

Em um artigo bastante denso, Esbensen e Sigmund analisaram a contribuição Barkas para a perda de energia em um gás de elétrons quântico, entre outros fenômenos [128]. A fim de evitar a complexidade nos cálculos numéricos causada pelo movimento de Fermi, os autores se concentraram no caso de um gás de elétrons estático, o qual deve ser válido para regiões de velocidade onde as correções de camadas podem ser desprezadas. Os autores reafirmaram a importância da contribuição das colisões próximas para o efeito Barkas, em acordo com as conclusões obtidas para o oscilador harmônico quântico por Haagerup, Mikkelsen e Sigmund [125, 126].



**Figura 2.11** – Poder de freamento reduzido para  $p$  e  $\bar{p}$  em Si. As curvas cheias representam o cálculo baseado na referência [102] (inferior) e esse mesmo cálculo somado à previsão de Lindhard [106] para o termo  $L_1$  (superior).



**Figura 2.12** – Contribuição  $Z_1^3$  (termo  $L_1$ ) ao poder de freamento. Os símbolos são os resultados experimentais, a linha cheia é o cálculo de Jackson e McCarthy [114] e a linha tracejada é o dobro desse resultado.

Um modelo também mais elaborado, baseado num gás de elétrons, foi o que Pitarke, Ritchie e Echenique desenvolveram [82, 129, 130]. Comparando seus resultados com outras abordagens, os autores verificaram que, no regime de energias mais altas, sua contribuição Barkas era o dobro da calculada pelo procedimento de Jackson e McCarthy. Esse resultado poderia ser interpretado como um indício de que as colisões próximas realmente contribuem para o efeito Barkas, pois isso é o que está implícito na multiplicação por um fator dois dos resultados de Jackson e McCarthy. Porém, um ajuste diferente do parâmetro de impacto mínimo para colisões distantes também pode levar a um resultado igual ao dobro do previsto por Jackson e McCarthy, como mostrado previamente por Ritchie e Brandt [120].

Um último esforço de iluminar mais as questões sobre o efeito Barkas experimentalmente foi realizado pelo grupo de Aarhus às vésperas do fechamento do LEAR no CERN, que ocorreu no final de 1996. Nesse trabalho, poderes de freamento de antiprótons em vários alvos (Al, Si, Ti, Cu, Ag, Ta, Pt e Au), na região de energias entre 50 e 700 keV, foram medidos pela mesma técnica de tempo de voo empregada anteriormente por esse grupo [131]. A fim de extrair a contribuição Barkas ao poder de freamento pela comparação com poderes de freamento de prótons de mesmas velocidades nos mesmos alvos, os autores utilizaram os valores para poderes de freamento de prótons dados no relatório n° 49, ISBN 0-913394-47-5, da ICRU (International Commission on Radiation Units and measurements), publicado em 1993. Os resultados obtidos para a contribuição Barkas e para o restante das contribuições ao poder de freamento (termo de Bethe mais termo de Bloch) são apresentados na figura 2.13, juntamente com alguns resultados baseados no modelo de oscilador harmônico quântico de Haagerup, Mikkelsen e Sigmund [125, 126]. Vale salientar que os dados experimentais para Si e Au são um pouco diferentes dos apresentados em artigos prévios [89, 132, 133], porque um erro relativo ao valor da espessura das amostras, cometido anteriormente, foi corrigido. Também os valores dos cálculos baseados no modelo do oscilador harmônico quântico são um pouco diferentes, porque um outro conjunto de forças de oscilador e energias de ligação, supostamente melhorado em relação ao anterior, foi empregado.

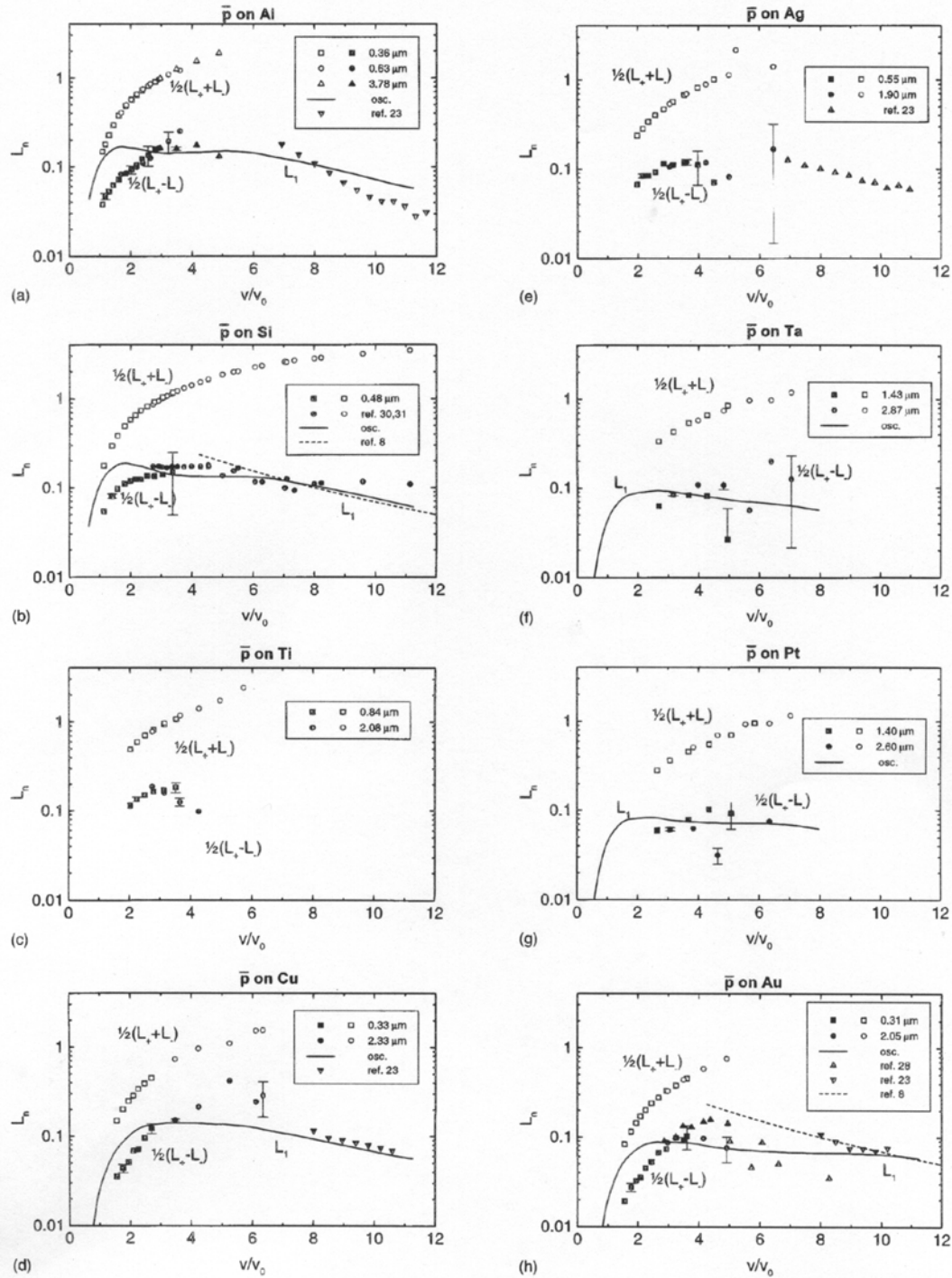


Figura 2.13 – Valores da contribuição  $L_1$  ( $\blacktriangle$ ,  $\bullet$ ,  $\blacksquare$ ), dada por  $\frac{1}{2}(L_+ - L_-)$ , e da soma das outras contribuições  $L_0 + L_2$  ( $\triangle$ ,  $\circ$ ,  $\square$ ), dada por  $\frac{1}{2}(L_+ + L_-)$ , para alvos de: (a)



*alumínio, (b) silício, (c) titânio, (d) cobre, (e) prata, (f) tântalo, (g) platina e (h) ouro, como funções da velocidade relativa à velocidade de Bohr. Os círculos ●, ○ em (b) e os triângulos cheios ▲ em (h) são reavaliações das medidas anteriores [89, 132, 133], com espessuras de amostras corrigidas. As linhas cheias são os cálculos do oscilador harmônico, enquanto que as linhas tracejadas são as estimativas de Lindhard [106]. Os triângulos cheios invertidos ▼ são os resultados da referência [86].*

Ainda aparecem na figura, para os alvos de Si e Au, estimativas da contribuição Barkas feitas por Lindhard [106]. Para altas velocidades, um bom acordo entre a estimativa de Lindhard, os resultados experimentais e os resultados do modelo do oscilador harmônico quântico é observado. Já para baixas velocidades, os cálculos desse último modelo reproduzem bem os resultados experimentais, porém a queda no termo  $L_1$  acontece em velocidades mais baixas para o modelo do que para os resultados do experimento. A interpretação desses resultados, mais uma vez, é favorável à inclusão de uma contribuição devida a colisões próximas no efeito Barkas, embora eles, por si mesmos, não provem a existência de tal contribuição.

Concluindo esse ponto, é preciso dizer que, em termos de provas cabais, a questão continua em aberto até hoje. Embora a contribuição das colisões próximas seja amplamente aceita, e muitos modelos a incorporem, não foi possível mostrá-la isoladamente. Nesta seção, a intenção não foi apresentar uma solução definitiva para a questão, mas sim aproveitar a polêmica gerada por ela para apresentar as várias abordagens teóricas e trabalhos experimentais visando a elucidar melhor as características do efeito Barkas que surgiram ao longo do período (até o ano 2000), uma vez que esse efeito é um tema central deste trabalho de tese.

Vale ressaltar que ora foram revisados apenas os trabalhos de maior impacto e que tentaram contribuir para um melhor entendimento dos mecanismos do efeito Barkas. Também existem os trabalhos de autores que tentaram reproduzir seu comportamento através de fórmulas de ajuste empíricas (como Bichsel [100, 134], Porter [100, 135] e Ziegler [136]), que não foram analisados. Já as teorias mais recentes (do ano 2000 até a presente data) para a perda de energia e o efeito Barkas serão apresentadas detalhadamente no capítulo 4.

## 2.5 – A Questão da Carga Efetiva

Toda a discussão apresentada na seção anterior foi baseada no fato de os projéteis que interagem com o meio serem nus, ou seja, não possuírem elétrons ligados. Entretanto, para íons com  $Z_1 \geq 3$ , apenas para energias mais altas (da ordem de dezenas a centenas de MeV/uma) essa suposição é válida. Em muitas situações, como neste trabalho de tese, é necessário levar-se em conta os efeitos de blindagem causados pelos elétrons que estão ligados ao projétil, além da possibilidade de perda e captura de elétrons por esse último. Dessa forma, não mais se pode considerar que a carga do projétil é dada por  $q = Z_1e$ , mas é necessário encontrar uma *carga efetiva* que descreva bem a interação entre o projétil blindado e os átomos do alvo.

O problema de determinar o estado de carga de íons penetrando na matéria foi extensivamente estudado, de maneira similar ao efeito Barkas, tanto do ponto de vista experimental quanto teórico. Um fato bem estabelecido é que, após penetrarem uma certa profundidade num material, os íons alcançam um estado de carga de equilíbrio, determinado pela competição entre os processos de perda e captura de elétrons [16, 137, 138]. Esse estado de equilíbrio é representado pela *carga de ionização média*  $\bar{q}$ ,

comumente tomada como  $\bar{q} = Z_1e \left( 1 - \exp \left( - \frac{v_1}{Z_1^{2/3} v_0} \right) \right)$  [138].

Uma vez que só é possível medir o estado de carga de um íon após ele emergir do alvo que atravessou, não se pode determinar diretamente os valores de  $\bar{q}$  no interior do alvo. Ao medir-se o estado de carga de íons emergindo de um alvo, o valor da *carga média do feixe emergente*  $\bar{q}_{saída}$  pode ser determinado; entretanto, a relação entre  $\bar{q}$  e  $\bar{q}_{saída}$  geralmente não é conhecida.

Os principais modelos desenvolvidos para descrever o estado de carga  $\bar{q}$  no interior do alvo são os modelos de Bohr–Lindhard (B–L) [139] e de Betz–Grodzins (B–G) [140], os quais fornecem visões bastante diferentes do problema.

O modelo de Betz–Grodzins prevê que o efeito de repetidas colisões no interior do alvo produz íons com vários elétrons excitados nas camadas mais externas, mas esses elétrons permanecem, em sua maioria, ligados ao íon até ele emergir do alvo. Após isso

acontecer, o íon decai para o estado fundamental, liberando sua energia excessiva por emissão de elétrons Auger. Dessa forma, o modelo prevê um número significativo de elétrons emitidos no caso de um íon pesado e veloz. Esses processos de emissão foram procurados durante muitos anos, mas o número de elétrons observados sempre foi muito menor que o previsto pela teoria [137, 141].

O modelo de Bohr–Lindhard, por outro lado, considera que a seqüência rápida de colisões experimentada por um íon dentro de um alvo produz um realce nas probabilidades de excitação e ionização, levando a uma carga de equilíbrio aumentada. Dessa forma, o modelo explicaria os valores mais altos da carga iônica medidos após a passagem pelo alvo. Porém, ele deixa em aberto a questão de como explicar a diferença entre  $\bar{q}_{saída}$  e os valores das cargas efetivas  $Z_1^*$  determinadas experimentalmente por medidas de perda de energia.

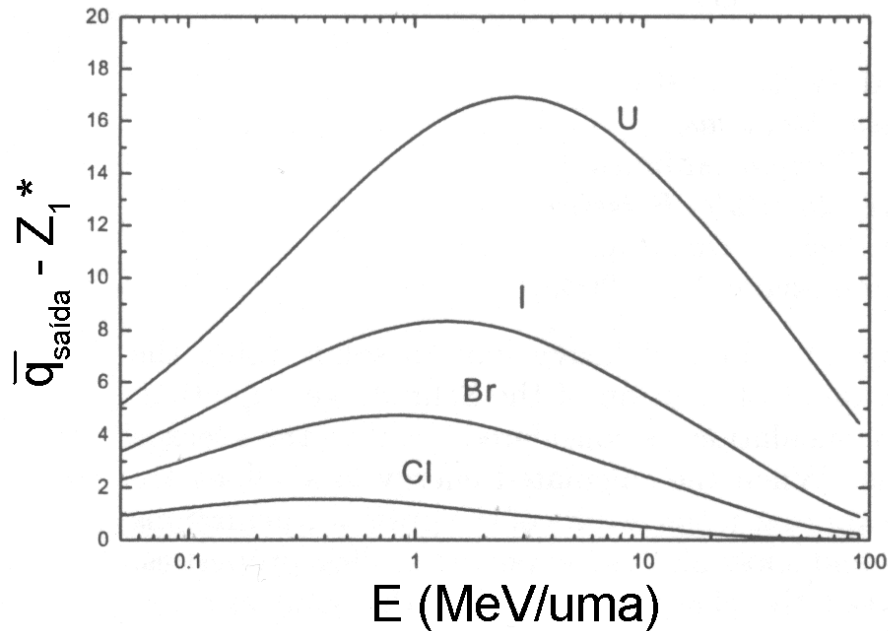
Esse conceito de *carga efetiva*,  $Z_1^*$  [42, 137, 138], o qual supostamente fornece informações sobre o estado de carga de equilíbrio dos íons, surgiu do método, mais indireto, de se inferir o estado de carga dos íons no interior de um sólido através da sua perda de energia. Essa questão foi abordada em parte no capítulo 1, seções 1.2 e 1.4.4, onde uma breve revisão histórica foi feita. De acordo com a teoria de perturbação (sem correções), como já foi citado, o poder de freamento de um íon nu com número atômico  $Z_1$  e velocidade  $v_1$  é proporcional a  $Z_1^2$ . Baseado nisso, a carga efetiva  $Z_1^*$  de um íon é operacionalmente definida através da razão entre poderes de freamento [41, 138]:

$$\frac{Z_1^*}{Z_1'^*} = \left[ \frac{S_{\text{exp}}(v_1, Z_1)}{S_{\text{exp}}(v_1, Z_1')} \right]^{1/2}, \quad (2.29)$$

onde  $S_{\text{exp}}(v_1, Z_1)$  é o poder de freamento determinado experimentalmente para o íon  $Z_1$  e  $S_{\text{exp}}(v_1, Z_1')$  é o poder de freamento correspondente de um dado íon de referência com número atômico  $Z_1'$  (geralmente íons de hidrogênio ou hélio) com velocidade igual a  $v_1$ .

O que se observou durante muitos anos é que os valores de  $\bar{q}_{saída}$ , para íons de  $Z_1 \geq 3$  velozes ( $v_1 > v_0$ ), excedem os valores de  $Z_1^*$ . Essa diferença é mostrada na figura 2.14, em função da energia por unidade de massa atômica dos íons. Além disso, a carga

efetiva medida experimentalmente apresenta dependências com os números atômicos do alvo e do projétil diferentes das apresentadas pelas cargas de equilíbrio.



**Figura 2.14** – Diferenças entre a carga média de íons emergindo de sólidos  $\bar{q}_{\text{saida}}$  (dada por um ajuste empírico desenvolvido por Schiwietz e Grande) e a carga efetiva  $Z_1^*$  (calculada por (2.29)), para íons de Cl, Br, I e U, em alvos de C, como função da energia por unidade de massa.

O conceito de carga efetiva provou ser um parâmetro bastante útil na condensação de um grande volume de dados experimentais [42], particularmente para os íons pesados e velozes em questão ( $Z_1 \geq 3$ ,  $v_1 > v_0$ ), fornecendo também um esquema prático e simples, de forma que seu uso se generalizou na literatura sobre perda de energia de íons carregando elétrons ligados. Entretanto, a relação (2.29) se baseia na propriedade, oriunda da teoria de perturbação, de que o poder de freamento de um íon nu é proporcional ao quadrado de seu número atômico (ou sua carga). Como foi apresentado neste capítulo, a validade da teoria de perturbação (e, conseqüentemente, da relação (2.29)) se restringe ao intervalo de velocidades onde  $Z_1 e^2 / \hbar v_1 \ll 1$ . Fora desse regime, várias correções são necessárias, como exemplificado nas seções anteriores. Dessa

forma, o conceito físico de carga efetiva obtido através da propriedade de escalonamento  $S \propto Z_1^2$  pode causar certa confusão, como observaram recentemente alguns autores [93, 142].

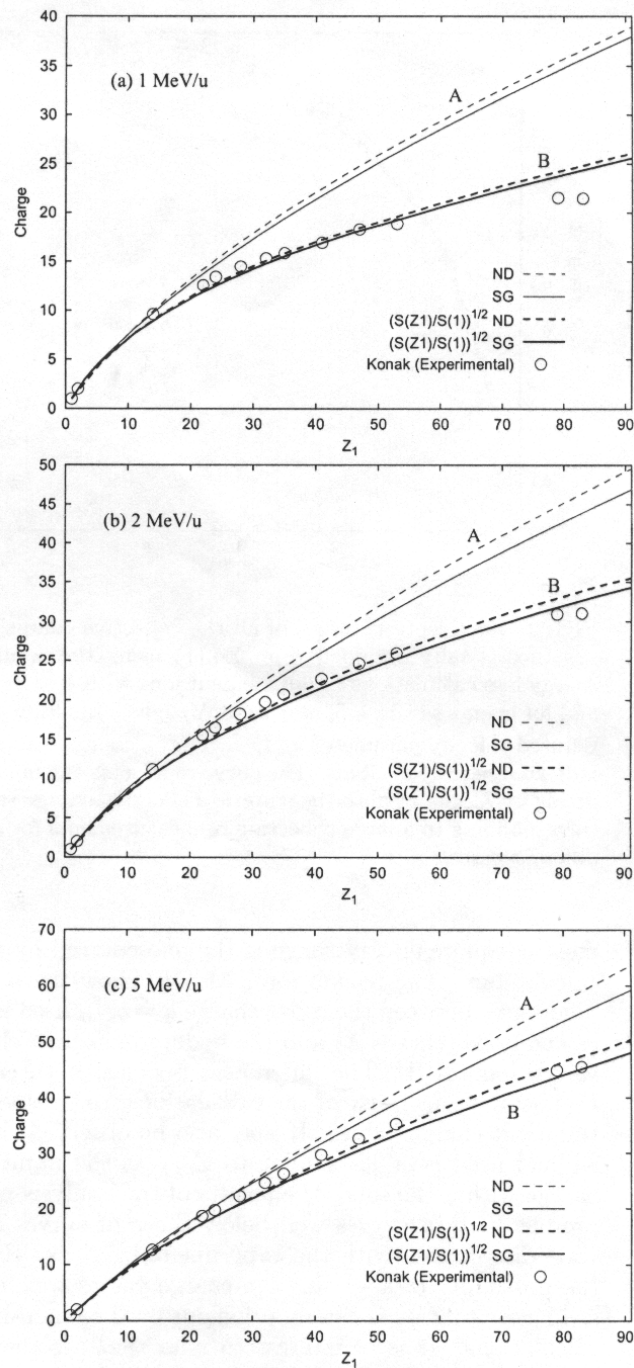
Além disso, várias abordagens foram desenvolvidas ao longo dos anos para calcular a perda de energia de íons velozes em sólidos, as quais usam diferentes suposições sobre o estado de carga dos íons. Alguns desses modelos usam valores de carga dos íons muito similares aos valores obtidos pelo ajuste de cargas efetivas, enquanto outros são baseados nas cargas de equilíbrio dos íons medidas após eles emergirem do alvo. Embora existam evidências significativas de que a carga efetiva não representa o estado de carga de íons se movendo no interior de sólidos [143], na prática pode-se observar que ainda existe alguma confusão sobre o assunto, e também que o emprego de ajustes de cargas efetivas, amplamente usados em programas de computador [42, 57], é algumas vezes tomado como se representasse os valores de carga do íon no interior do alvo.

Através de seu modelo não-linear (não-perturbativo), a ser descrito no capítulo 4, Lifschitz e Arista conseguiram obter uma relação entre a carga dos íons e seu poder de freamento que é independente do “ansatz” da carga efetiva (2.29), obtendo fortes evidências [142] de que a carga dos íons no interior do sólido é razoavelmente bem representada pela carga emergente dos íons,  $\bar{q} \cong \bar{q}_{saída}$ , ao contrário do predito pela teoria B–G.

Em seu trabalho, os autores avaliaram a relação entre os poderes de freamento e os estados de carga de íons com  $1 \leq Z_1 \leq 92$  e energias de 1, 2, 5 e 10 MeV/uma, incidindo sobre alvos de C amorfo. A carga dos íons no interior dos sólidos foi representada pelos valores de  $\bar{q}_{saída}$  dados pelos ajustes feitos sobre dados experimentais por Nikolaev e Dmitriev [144, 145] e por Schiwietz e Grande [146]. A partir desses resultados, os autores calcularam as razões entre os poderes de freamento dos íons e de prótons nas mesmas velocidades,  $S(Z_1, v_1)/S(1, v_1)$ . Essas razões foram então utilizadas para a obtenção de valores teóricos para a carga efetiva, de acordo com  $Z_1^* = [S(Z_1, v_1)/S(1, v_1)]^{1/2}$ . Os resultados desse procedimento estão nas figuras 2.15 e 2.16.

Na figura 2.15, são apresentados os cálculos para velocidades fixas correspondendo a 1, 2 e 5 MeV/uma. As duas curvas indicadas pela letra A são os valores de  $\bar{q}_{saída}$  dados pelos ajustes de Nikolaev e Dmitriev e de Schiwietz e Grande, enquanto que as duas curvas indicadas pela letra B são as “cargas efetivas” correspondentes, calculadas para cada caso. Os círculos representam os valores empíricos de cargas efetivas determinados a partir de medidas de perdas de energia [147, 148]. Um acordo muito bom é observado entre esses valores empíricos e as cargas efetivas calculadas pelo método proposto por Lifschitz e Arista, para quase todos os casos (exceto discrepâncias para os íons mais pesados no caso (a) da figura). Também, pode-se observar que as curvas A e B sempre começam a divergir para  $Z_1 > 20$ . Essa é a região de  $Z_1$  onde as diferenças entre  $\bar{q}_{saída}$  e  $Z_1^*$  são importantes. Além disso, como pode ser observado na figura 2.14, o intervalo de energias mais adequado para se observar essas diferenças é o delimitado pela presente análise. Os resultados para 1 MeV/uma mostram as maiores diferenças entre os valores de  $\bar{q}_{saída}$  usados como “input” e os valores obtidos de  $Z_1^*$  correspondentes. Isso mostra a sensibilidade dos cálculos em relação aos valores de carga usados como “input”.

Os autores ainda salientam que, se valores de  $\bar{q}_{saída}$  similares à definição (2.29) tivessem sido usados como “input” (o que se verifica em vários outros trabalhos), os resultados da análise forneceriam curvas bem inferiores às curvas B da figura, em total discrepância com os resultados experimentais. Assim, a possibilidade de se assumir que os valores da carga dos íons no interior de sólidos sejam aproximados por  $Z_1^*$  é excluída por esses cálculos não-lineares.



**Figura 2.15** – *Curvas A*: cargas médias dos íons, usadas como valores de input nos cálculos de [142], de acordo com os ajustes de Nikolaev e Dmitriev (ND) e de Schiwietz e Grande (SG) (mostradas com linhas finas tracejadas e contínuas, respectivamente). *Curvas B*: valores teóricos de “carga efetiva” deduzidos a partir dos cálculos não-lineares para os poderes de freamento e do uso dos valores de carga média dados por

*ND e SG (mostrados com linhas mais espessas tracejadas e contínuas, respectivamente). Os círculos representam valores empíricos de carga efetiva obtidos a partir de medidas de perda de energia. Os resultados para energias de 1, 2 e 5 MeV/uma são mostrados separadamente nos gráficos (a), (b) e (c), respectivamente.*

Na figura 2.16, é apresentado um conjunto de dados representando vários cálculos, para todos os valores de  $Z_1$ , e para a região de energias entre 1 e 10 MeV/uma, estando esses cálculos representados pelos diferentes símbolos. Nessa mesma figura, todos valores calculados do poder de freamento foram reunidos e estão representados na forma de cargas efetivas (conforme (2.29)). Além disso, todas as velocidades foram re-escaladas de acordo com a prescrição de Thomas–Fermi [149], na forma  $v_1/Z_1^{2/3}$ . A curva cheia, na figura 2.16, representa a fórmula de ajuste de dados amplamente usada na literatura:

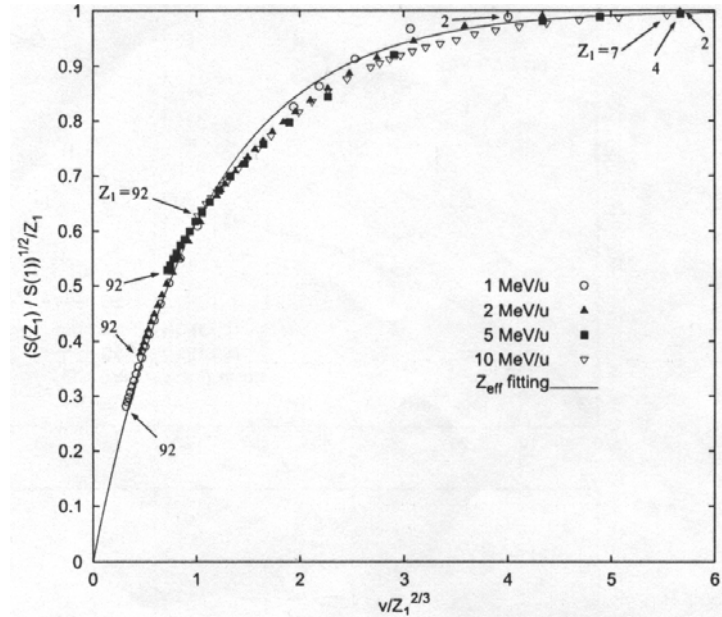
$$Z_{Betz}^* = Z_1 \left( 1 - \exp \left( \frac{-0,92v_1}{Z_1^{2/3}} \right) \right). \quad (2.30)$$

Em compilações de dados experimentais, feitas anteriormente [42], foi mostrado que essa fórmula representa um grande conjunto de dados, com um erro máximo de 10%, para  $v_1 > 3$  unidades atômicas. Portanto, a figura mostra de maneira conclusiva o escalonamento dos resultados teóricos de Lifschitz e Arista, assim como um acordo muito bom com o grande conjunto de resultados experimentais representados pela curva de ajuste (2.30).

É importante enfatizar que o trabalho de Lifschitz e Arista [142], considerando  $\bar{q} \cong \bar{q}_{saída}$ , mostrou que, na verdade, não há uma contradição entre os valores de  $\bar{q}_{saída}$  e  $Z_1^*$ , mas sim uma correlação entre ambos, a qual emerge do cálculo não-perturbativo do poder de freamento, não podendo ter sido observada anteriormente porque modelos perturbativos foram empregados. As discrepâncias anteriormente apontadas na literatura entre a carga média do feixe emergente e a carga efetiva, supostamente paradoxais, na verdade são resultado de uma conceituação incorreta. Elas são apenas uma consequência de a análise dos dados experimentais de poderes de freamento ter sido feita no âmbito da teoria de perturbação e da suposição que os valores de  $Z_1^*$  extraídos



dessa forma representavam bem o estado de carga dos íons, ou seja,  $\bar{q} \cong Z_1^*$ , ao invés de  $\bar{q} \cong \bar{q}_{saida}$ .

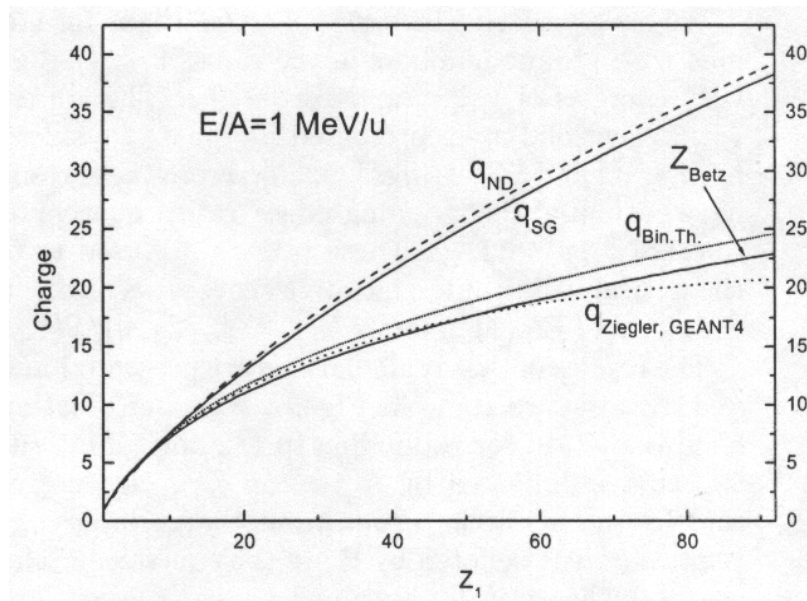


**Figura 2.16** – Representação conjunta de todos os valores de “carga efetiva” obtidos teoricamente em [142], para íons incidentes com  $1 \leq Z_1 \leq 92$  e com energias de 1, 2, 5 e 10 MeV/uma, como função do parâmetro  $v_1/Z_1^{2/3}$ . Os valores calculados são representados pelos vários símbolos (um para cada energia), enquanto a curva representa a função de ajuste universal de Ziegler et al. [42] para valores empíricos de cargas efetivas, correspondendo a um grande número de medidas para vários casos.

Para ilustrar os efeitos da confusão conceitual acerca do estado de carga dos íons, os diferentes modelos de carga do íon  $\bar{q}$  atualmente existentes na literatura são apresentados na figura 2.17. Os valores de  $q_{ND}$  e  $q_{SG}$  representam a ionização de equilíbrio de íons emergindo de sólidos [144-146];  $Z_{Betz}^*$  representa a fórmula (2.30);  $q_{Zie-GEA}$  representa os valores de carga assumidos em vários programas de computador, como o SRIM [57] e o GEANT [150], e  $q_{Bin}$  representa os valores assumidos na teoria binária da perda de energia [40].

Como se verifica na figura 2.17, há uma discrepância grande entre os valores de carga  $\bar{q}$  usados na abordagem não-linear de Arista e Lifschitz [142] e os valores

freqüentemente usados nos programas de computador disponíveis para o cálculo de poderes de freamento (SRIM [57], GEANT [150]), ou seja  $\bar{q}_{saída} > Z_1^*$ . Mesmo assim, os resultados para o escalonamento dos poderes de freamento nas duas abordagens estão em bom acordo, como mostrou a figura 2.16. Esse resultado, que a princípio pode parecer inconsistente, é explicado pelo fato de que a maneira como os poderes de freamento são tratados em cada análise é diferente. Na análise ZBL (subjacente ao programa SRIM), baseada numa teoria perturbativa, os poderes de freamento calculados são maiores que os obtidos pela análise não-perturbativa. Porém, como a carga média empregada é menor que a do caso não-perturbativo, ocorre uma compensação, de forma que os valores de carga efetiva final concordam entre si e com a fórmula (2.30).



**Figura 2.17** – Diferentes modelos para a carga de um íon atualmente usados na literatura:  $q_{SG}$  e  $q_{ND}$  representam o valor de carga de equilíbrio dos íons ao emergir de um sólido [144-146];  $Z_{Betz}^*$  representa a carga efetiva dada pela função de ajuste  $Z_{Betz}^* = Z_1 \left[ 1 - \exp(-0,92v_1/Z_1^{2/3}) \right]$ ;  $q_{Zie-GEA}$  representa os valores de carga assumidos nos programas SRIM [57] e GEANT [150] e  $q_{Bin}$  representa os valores utilizados nos cálculos da teoria binária da perda de energia [40].

## CAPÍTULO 3

# TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

### 3.1 Introdução

O conhecimento do processo de interação de íons energéticos com a matéria (descrito no capítulo 1) permitiu o desenvolvimento da tecnologia dedicada à modificação e análise de materiais por feixes de íons. Como foi mencionado, a energia transferida por partículas incidentes (implantadas ou irradiadas) pode alterar profundamente as propriedades elétricas, mecânicas e ópticas dos materiais. Já na análise de materiais, um feixe de íons é utilizado para a obtenção de perfis de concentração de elementos em função da sua profundidade na amostra, por exemplo.

Existem várias técnicas disponíveis relacionadas com a interação de íons com a matéria; serão abordadas apenas aquelas que estão diretamente relacionadas com este trabalho, a saber: **Implantação Iônica**, **Retroespalhamento Rutherford** e **Canalização**.

### 3.2 Implantação iônica

A técnica de Implantação Iônica permite introduzir, em princípio, qualquer elemento químico em uma amostra, de forma razoavelmente uniforme, alterando assim as propriedades mecânicas, elétricas e/ou magnéticas da matriz. Uma de suas principais vantagens é a reprodutibilidade controlada de parâmetros, como a concentração absoluta de átomos implantados e a uniformidade de distribuição dos mesmos através da amostra. Além disso, o processo ocorre de maneira limpa (sem a interferência ou exposição a outros materiais) e pura (através da seleção de isótopos) [151].

Como os íons são acelerados e lançados para dentro do material, as interações não ocorrem por um processo de equilíbrio termodinâmico. Uma consequência direta disso é que a solubilidade sólida da impureza implantada na matriz pode ser excedida. Assim, a implantação controlada fornece um meio de produção de ligas metaestáveis em regiões próximas à superfície, de concentração graduada, sem introduzir uma interface abrupta em relação à matriz, como acontece no caso de um filme depositado.

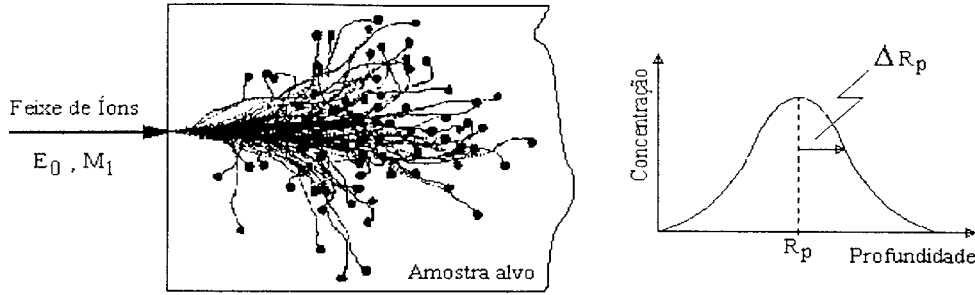
Através da implantação iônica, pode-se também modificar a composição e a estrutura da superfície de vários compostos metálicos à temperatura ambiente, sem afetar a maior parte do material, o que não se pode fazer através de outras técnicas.

Entretanto, existem algumas limitações práticas a essa técnica, como, por exemplo: a penetração dos íons implantados é, no máximo, da ordem de poucos micrometros; o custo do equipamento envolvido é relativamente alto comparado com outras técnicas metalúrgicas; não é recomendável aplicar-se em amostras que tenham superfícies irregulares, a fim de evitar a introdução de diferenças sistemáticas entre os comprimentos dos caminhos percorridos pelos íons incidentes em diferentes pontos de sua superfície.

No presente trabalho, a técnica de implantação iônica foi utilizada para amorfizar amostras de Si cristalino, através do bombardeamento das mesmas com feixes de íons de Ar . E também para produzir uma camada implantada estreita, de profundidade conhecida, pelo bombardeamento controlado das amostras amorfizadas com feixes de íons de Bi.

### 3.2.1 Distribuição espacial de íons implantados

O processo de implantação iônica geralmente envolve um grande número de partículas que, ao penetrarem no material, passam a sofrer uma série de colisões sucessivas com parâmetros de impacto variáveis. Devido à natureza estatística do processo, a distribuição final dos íons implantados em função de sua profundidade - chamada de **perfil de concentração** - tem a forma gaussiana ilustrada na figura 3.1.



**Figura 3.1** – Ilustração do processo de implantação iônica, mostrando os caminhos percorridos pelos íons no interior do alvo (esquerda) e a sua distribuição final (gaussiana) do número de íons em função da profundidade de penetração (direita).

Sendo  $x_i$  a profundidade, tomada a partir da normal à superfície do alvo, atingida pelo  $i$ -ésimo íon implantado, e supondo que  $Q$  íons sejam implantados, podemos caracterizar o perfil de implantação pelos seguintes parâmetros, ou momentos de distribuição :

$$\text{Alcance Projetado :} \quad R_p = \langle x_i \rangle = \sum_{i=1}^Q \frac{x_i}{Q}$$

$$\text{Desvio Padrão :} \quad \Delta R_p = \sqrt{\sum_{i=1}^Q (x_i - R_p)^2 / Q^2}$$

(3.1)

$$\text{Assimetria ou Skewness :} \quad \gamma = \frac{\sum_{i=1}^Q (x_i - R_p)^3}{(Q \cdot (\Delta R_p)^3)}$$

$$\text{Achatamento ou Kurtosis :} \quad \beta = \frac{\sum_{i=1}^Q (x_i - R_p)^4}{(Q \cdot (\Delta R_p)^4)}$$

A previsão teórica dos parâmetros que caracterizam um perfil de implantação pode ser efetuada a partir de cálculos analíticos, resolvendo-se a equação de transporte correspondente, por exemplo, através do programa SRIM [57]. Com esse programa

também se pode obter a previsão do perfil de implantação e seus parâmetros por intermédio de simulações via método de Monte-Carlo.

De acordo com a teoria clássica de Lindhard, Scharff e Schiot (LSS) [24], a distribuição dos íons implantados, em geral, assume uma forma gaussiana (figura 3.1). Para o caso de um perfil gaussiano,  $\gamma = 0$  e  $\beta = 3$ , de forma que os parâmetros básicos de implantação se restringem ao alcance  $R_p$  e ao desvio padrão  $\Delta R_p$ . Com isso, o perfil de concentração se caracteriza pela expressão :

$$c(x) = \frac{\Phi}{\sqrt{2\pi\rho\Delta R_p}} \exp\left[-\left(\frac{x - R_p}{\sqrt{2}\Delta R_p}\right)^2\right], \quad (3.2)$$

onde  $\Phi$  é a **fluência** ou **dose** implantada em unidades de íons/cm<sup>2</sup>,  $\rho$  a densidade atômica da matriz em g/cm<sup>3</sup> e  $x$  a distância medida ao longo do eixo incidente no alvo em Å, mesma unidade de  $\Delta R_p$ . A concentração é, então, dada em porcentagem atômica (at.%). Conhecido o perfil de implantação, é possível estimar uma concentração de pico  $c_p$ , centrada na profundidade  $R_p$  :

$$c_p(\text{at.}\%) = 4 \times 10^7 \frac{\Phi}{\rho\Delta R_p}. \quad (3.3)$$

### 3.3 Espectrometria de retroespalhamento Rutherford (RBS)

É razoável considerar que a história da técnica de retroespalhamento Rutherford começou por volta de 1911, quando o experimento de Geiger e Marsden (citado no capítulo 1) sobre retroespalhamento de partículas  $\alpha$  confirmou a validade do modelo do átomo proposto por seu chefe Ernest Rutherford. E é justamente por isso que se batizou a técnica com este nome.

Através dela, se pode identificar impurezas e caracterizar sua distribuição em profundidade dentro de amostras, determinar espessura de filmes, determinar perfis de difusão, medir a perda de energia de íons em determinado material, entre outras aplicações. Em todas elas, é necessário que os íons do feixe sejam mais leves (tenham menor número atômico) que os átomos componentes da amostra, para que haja o retroespalhamento preferencialmente à ejeção de átomos da amostra. Também é preciso

que os átomos de impurezas ou difundentes, presentes na amostra, sejam mais pesados (tenham maior número atômico) que os da matriz. Satisfeitas essas condições, essa técnica é altamente recomendada, uma vez que está definitivamente estabelecida como um dos métodos de análise por feixe de íons mais versáteis, direto e quantitativamente preciso.

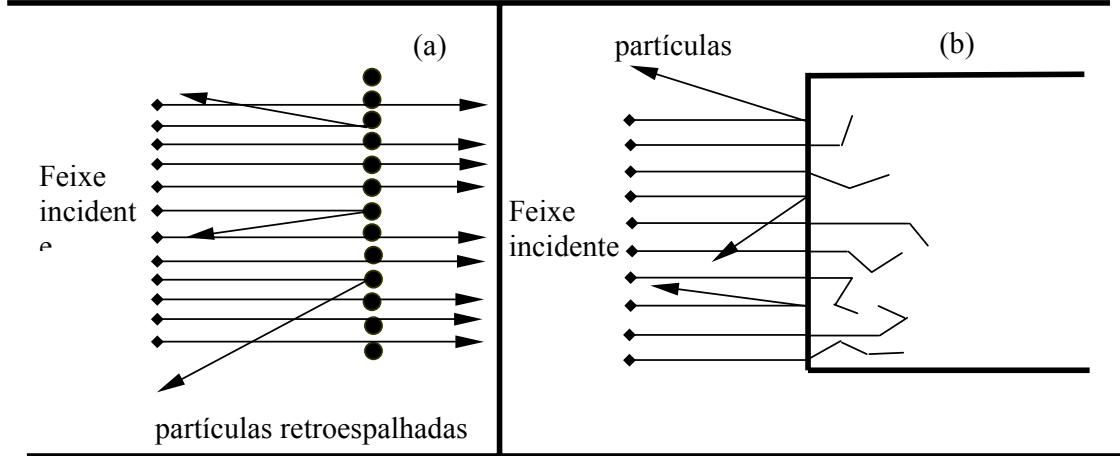
Neste trabalho, a técnica de RBS (Rutherford BackScattering) foi utilizada para medir a profundidade das distribuições de íons de Bi implantados em alvos de Si amorfo e para medir a perda de energia de íons de Be, B e O em alvos de Si amorfo.

### 3.3.1 Princípio da técnica

A idéia conceitual dessa técnica é simples. Supondo que um feixe de partículas monoenergético e colimado incida sobre uma amostra alvo, a probabilidade de que ocorra um evento de colisão frontal de partículas do feixe com os átomos da amostra é muito baixa, devido à reduzida dimensão dos núcleos atômicos. Por exemplo, no caso de um alvo suficientemente fino, quase todas as partículas incidentes o atravessariam com perda mínima de energia. Já para as poucas partículas que interagem com os átomos do alvo, observam-se grandes mudanças em sua direção e energia (figura 3.2a). Por outro lado, para um alvo espesso, as partículas que saem do material são somente aquelas retroespalhadas a ângulos maiores do que  $90^\circ$  em relação à direção de incidência, pois as demais ficam implantadas no material - figura 3.2b.

Para se ter uma estimativa, menos de 1 a cada 10000 partículas incidentes é retroespalhada; e ainda, dessas, somente uma pequena fração é coletada sob a área definida pelo ângulo sólido de um detetor e analisada em energia.

A seguir serão descritos alguns conceitos físicos fundamentais que regem a técnica de RBS.



**Figura 3.2** – Ilustração representando o processo de retroespalhamento dos íons de um feixe incidindo em: a) um alvo fino; b) um alvo espesso.

### 3.3.2 Conceitos físicos fundamentais

#### 3.3.2.1 Fator cinemático

Quando uma partícula de massa  $M_1$  e energia  $E_0$ , movendo-se a uma velocidade constante, colide com outra partícula, de massa  $M_2$ , em repouso, parte da energia da partícula em movimento é transferida à partícula em repouso. Dessa forma, o momentum e a energia do sistema se conservam após a colisão. Esse processo nos leva ao conceito de **fator cinemático**, e, conseqüentemente, à capacidade de diferenciação de massas.

A figura 3.3 ilustra esquematicamente o arranjo geométrico geralmente utilizado em RBS, onde  $\theta_1$  e  $\theta_2$  são os ângulos formados entre o feixe incidente e o retroespalhado, respectivamente, e a normal da amostra, sendo  $\theta = \pi - (\theta_1 + \theta_2)$  o ângulo entre o feixe incidente e o retroespalhado.

Para que a interação entre dois átomos seja corretamente descrita por uma colisão elástica de duas partículas isoladas, devemos fixar as seguintes condições :

- i. a energia inicial do projétil  $E_0$  deve ser muito maior que a energia de ligação dos átomos do material alvo;
- ii. não deve haver reações nucleares, ressonantes ou não. Isso impõe um limite superior para a energia do feixe.

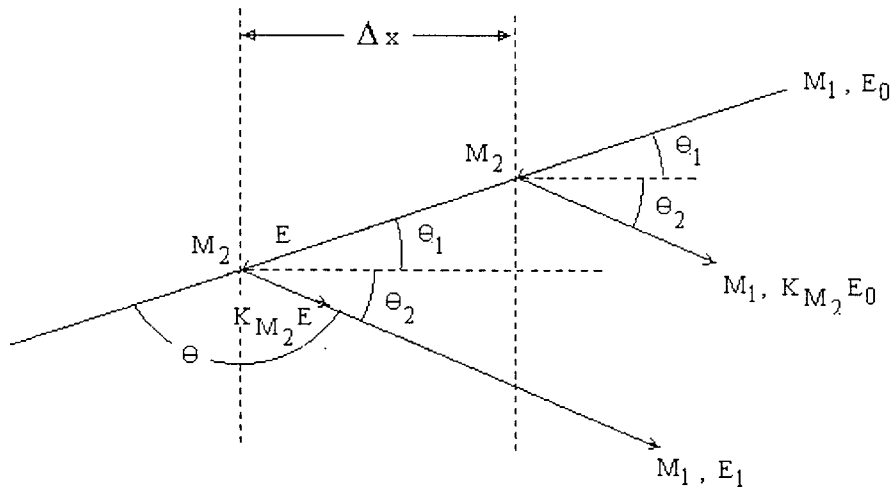


Define-se, então, o fator cinemático  $K$  como a razão entre a energia  $E_1$  do projétil após a colisão e a energia  $E_0$  do projétil antes da colisão :

$$K = \frac{E_1}{E_0}. \quad (3.4)$$

De acordo com os conceitos de conservação de momentum e energia [152], podemos mostrar que  $K$  no referencial do laboratório é dado por :

$$K(M_1, M_2, \theta) = \left[ \frac{M_1 \cos \theta + (M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2}}{M_1 + M_2} \right]^2. \quad (3.5)$$



**Figura 3.3** – Ilustração mostrando o processo de perda de energia durante a passagem do íon incidente de massa  $M_1$  e energia  $E_0$ , antes e após o retroespalhamento pelos átomos de massa  $M_2$ , localizados na superfície (direita) e a uma profundidade  $\Delta x$  no alvo (esquerda).

Na prática, é conveniente que se produza uma variação de energia  $\Delta E_1$  para um ângulo  $\theta$  fixo quando uma amostra contiver dois tipos de átomos distintos, diferindo por uma quantidade  $\Delta M$  entre suas massas. Em termos quantitativos,  $\Delta E_1$  e  $\Delta M$  estão relacionados da seguinte forma [153]:

$$\Delta E_1 = E_0 \frac{\partial K}{\partial M} \Delta M, \quad (3.6)$$

e para  $M_2 \gg M_1$  tem-se :

$$\Delta E_1 = E_0 \left\{ \left[ 4 - (\pi - \theta)^2 \right] \frac{M_1}{M_2^2} \right\} \Delta M. \quad (3.7)$$

Essa relação nos indica que, para se ter uma melhor resolução em massa, ou se aumenta a energia  $E_0$  do feixe, ou se usa um projétil de massa  $M_1$  maior, ou se mede a grandes ângulos  $\theta$  de espalhamento.

### 3.3.2.2 Seção de choque de espalhamento

A probabilidade de ocorrência de uma colisão nos leva ao conceito de **seção de choque de espalhamento** e à capacidade de análise quantitativa da composição atômica. Ela é calculada supondo um potencial coulombiano  $V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r}$ , onde  $Z_1$  e  $Z_2$  são as cargas do projétil e do alvo, respectivamente. Nessas condições, a seção de choque diferencial, no sistema de referência do centro de massa, é definida como [154]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left[ \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E_{cm} \sin^2(\theta/2)} \right]^2, \quad (3.8)$$

onde  $E_{cm}$  é a energia no sistema de referência do centro de massa, e  $d\Omega$  é o diferencial de ângulo sólido do detetor. Já no sistema de referência do laboratório, temos :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left[ \frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right]^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \sqrt{1 - (M_1/M_2 \sin \theta)^2} + \cos \theta \right\}^2}{\sqrt{1 - (M_1/M_2 \sin \theta)^2}}, \quad (3.9)$$

onde  $E$  é a energia no sistema de referência do laboratório, e  $M_1 \leq M_2$ .

A partir dessas definições, podemos determinar a altura  $H$ , proporcional ao número de contagens de um espectro de RBS (figura 3.4), e que depende do número de colisões na espessura  $\Delta x$  da amostra, sendo dada por :

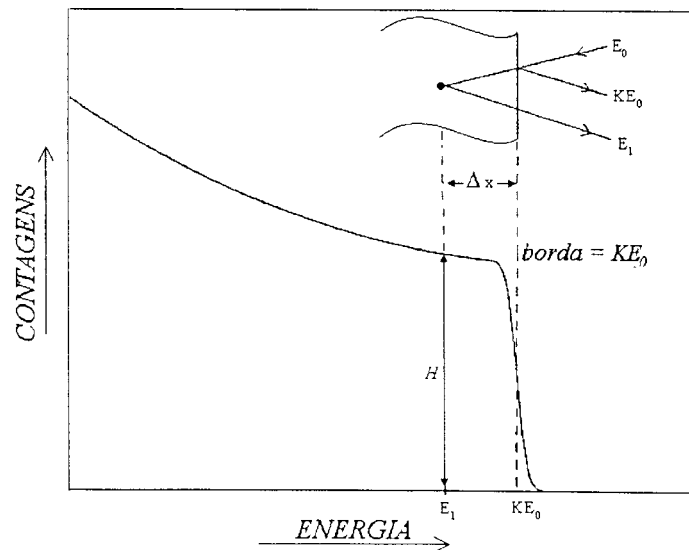
$$H_{M_2} = Q\Omega\sigma N_{M_2} \Delta x, \quad (3.10)$$

onde  $Q$  é o número de íons incidentes,  $\Omega$  é o ângulo sólido do detetor,  $N_{M_2}$  é a densidade volumétrica de átomos no alvo e  $\sigma$  a seção de choque diferencial de espalhamento no referencial do laboratório. Essa equação nos permite, quando  $\Omega$ ,  $\sigma$  e o

número de íons total  $Q$  forem conhecidos, determinar o número de átomos por unidade de área  $N_{M_2} \Delta x$ .

Vale a pena salientar que a seção de choque de espalhamento é:

- i. proporcional ao inverso da energia do projétil ao quadrado, ou seja, quanto mais alta a energia  $E$ , menor será a seção de choque, o que implica em uma menor eficiência no processo;
- ii. proporcional a  $Z_1^2$ , o que significa que a técnica é tanto mais sensível à detecção de um dado elemento no alvo quanto maior for o número atômico dos íons do feixe;
- iii. proporcional a  $Z_2^2$ , de forma que para um dado íon incidente, a sensibilidade de detecção será maior para elementos mais pesados.



**Figura 3.4** – Exemplo de um espectro de RBS típico de uma substância monoisotópica, ilustrando a altura  $H$  e a energia correspondente a íons retroespalhados por átomos da superfície  $KE_0$ .

### 3.3.2.3 Perda de energia e seção de choque de freamento

O conceito de perda de energia por unidade de comprimento já foi introduzido no capítulo 1, através da equação (1.2) para o poder de freamento. Com base nela, pode-se considerar que a profundidade  $x$  além da superfície que o íon alcança é dada como função de  $E$  por :

$$x = \int_E^{E_0} \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE. \quad (3.11)$$

Freqüentemente, é conveniente substituir a função real  $dE/dx$  por uma aproximação,

$$\frac{dE}{dx}(E) \leftrightarrow \frac{dE}{dx}(\tilde{E}), \quad (3.12)$$

onde  $\tilde{E}$  é um valor de energia entre a energia de uma partícula imediatamente antes de ser espalhada e a energia do feixe incidente  $E_0$ . A partir dessa aproximação, a integral relacionada em (3.11) pode ser resolvida como :

$$x = (E_0 - E) \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} \Big|_{\tilde{E}}. \quad (3.13)$$

Esse método fornece uma boa estimativa somente para regiões próximas à superfície da amostra, sendo chamado de **aproximação à energia da superfície**.

Em outro método, chamado de **aproximação à energia média**,  $\tilde{E}$  é usada como a média aritmética entre a energia das partículas incidentes e a energia imediatamente antes de a partícula sofrer um espalhamento :

$$\tilde{E} = \bar{E} = \frac{(E + E_0)}{2}. \quad (3.14)$$

A aproximação à energia média passa a ser uma boa estimativa a profundidades intermediárias de penetração (maiores que 500 nm).

A perda média de energia de um íon movendo-se em um meio denso nos leva ao conceito de seção de choque de freamento, conforme foi definido no capítulo 1 (equação 1.7) como:

$$\varepsilon(E) = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx}, \quad (3.15)$$

onde  $N$  é a densidade, em número de átomos por centímetro cúbico, do alvo. Observa-se que, ao se dividir  $dE/dx$  por  $N$ , obtém-se uma quantidade independente da densidade atômica do material, onde a unidade convencional para  $\varepsilon(E)$  é  $\left[ eV \cdot cm^2 / \text{átomo} \right]$ . Por exemplo, valores semi-empíricos de seções de choque de freamento, tabelados para o caso de íons de He de 0,4 a 4 MeV em todos os elementos, podem ser encontrados nas referências [30, 155].

### 3.3.2.4 Escala em profundidade

Imediatamente após o íon incidente entrar na matéria, sua energia  $E$ , de acordo com (1.2), é inferior a  $E_0$  e igual à perda de energia através do caminho de entrada. Ao colidir com os átomos do sólido, as partículas retroespalhadas voltam a perder energia no caminho de saída. Logo, a energia com que a partícula é detectada depende da profundidade na qual ocorre a colisão.

Considerando a situação da figura 3.3 anterior, vê-se que a projeção do deslocamento da partícula na sua trajetória de entrada será dada por :

$$\frac{x}{\cos \theta_1} = \int_E^{E_0} \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE, \quad (3.16)$$

e na trajetória de saída :

$$\frac{x}{\cos \theta_2} = \int_E^{KE} \left( \frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE. \quad (3.17)$$

Se  $dE/dx$  assume um valor constante em cada trajetória, as equações (3.16) e (3.17) se reduzem a :

$$E = E_0 - \frac{x}{\cos \theta_1} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{entrada}}, \quad (3.18)$$

$$E_1 = KE - \frac{x}{\cos \theta_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{saída}}. \quad (3.19)$$

Eliminando  $E$  de ambas as equações, temos :

$$KE - E_1 = \left[ \frac{K}{\cos \theta_1} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{entrada}} + \frac{1}{\cos \theta_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\text{saída}} \right] x. \quad (3.20)$$

Chamando de  $\Delta E$  a diferença de energia entre  $E_1$  e  $KE$ , escrevemos :

$$\Delta E = [S]x = N[\varepsilon]x, \quad (3.21)$$

onde

$$[S] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{entrada} + \frac{1}{\cos \theta_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{saida} \quad (3.22)$$

é chamado **fator de perda de energia** ou **fator S**, e

$$[\varepsilon] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \varepsilon_{entrada} + \frac{1}{\cos \theta_2} \varepsilon_{saida} \quad (3.23)$$

é chamado de **fator de seção de choque de freamento** ou **fator  $\varepsilon$** .

Para regiões próximas à superfície, a variação relativa da energia ao longo da trajetória de entrada, ou mesmo de saída, é pequena, portanto :

$$[S_0] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{E_0} + \frac{1}{\cos \theta_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{KE_0}, \quad (3.24)$$

ou:

$$[\varepsilon_0] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \varepsilon(E_0) + \frac{1}{\cos \theta_2} \varepsilon(KE_0). \quad (3.25)$$

Para grandes distâncias percorridas, a aproximação de superfície não é mais válida, e uma melhor aproximação pode ser obtida selecionando-se um valor constante de  $dE/dx$  ou  $\varepsilon$  a alguma energia intermediária  $\bar{E}$  :

$$[\bar{S}] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\bar{E}_{entrada}} + \frac{1}{\cos \theta_2} \left( \frac{dE}{dx} \right)_{\bar{E}_{saida}}, \quad (3.26)$$

ou:

$$[\bar{\varepsilon}] \equiv \frac{K}{\cos \theta_1} \varepsilon(\bar{E}_{entrada}) + \frac{1}{\cos \theta_2} \varepsilon(K\bar{E}_{saida}), \quad (3.27)$$

onde  $\bar{E}_{entrada} = \frac{E + E_0}{2}$  e  $\bar{E}_{saida} = \frac{E_1 + K.E}{2}$ .

O valor de  $E$ , em ambas as equações, é desconhecido, mas pode ser estimado de várias formas. Para estimativas rápidas, pode-se pensar que a perda  $\Delta E$  está subdividida simetricamente entre o caminho de entrada e o de saída. Assim,  $E$  é aproximadamente igual a  $E_0 - \Delta E/2$ . Nesse caso, o método é chamado de **aproximação à energia média simétrica**.

### 3.3.2.5 – “Straggling” em energia

Os íons que penetram em um alvo perdem energia através de várias colisões que sofrem com os núcleos e os elétrons dos átomos do alvo. Esse processo é sujeito a flutuações estatísticas, de forma que os íons perdem quantidades diferentes de energia em colisões distintas, com determinados parâmetros característicos. Em função disso, os íons de um feixe que incidem sobre um alvo homogêneo exatamente com a mesma energia (feixe monoenergético), após atravessarem uma certa espessura  $x$  no alvo, já não terão mais todos a mesma energia, pois não sofrerão exatamente as mesmas colisões nem perderão a mesma energia. Essa flutuação estatística da perda de energia é chamada de “**straggling**” em energia, e seu efeito está ilustrado na figura 3.5 para o caso de um feixe de íons monoenergético incidindo sobre um alvo fino. O “straggling” influencia as medidas de RBS, limitando a precisão com a qual a perda de energia e o alcance de íons em um alvo podem ser determinados. Além disso, a capacidade de distinção de massas da técnica também é afetada, exceto para átomos localizados na superfície do alvo. A razão para isso é o fato da energia  $E$  dos íons antes da colisão com um átomo de massa  $M_2$  no interior do alvo não ser mais monoenergética (mesmo que a energia inicial fosse), de forma que a razão  $E_1/E_0$  e, conseqüentemente, a identificação de  $M_2$ , também se tornam incertas.

O primeiro cálculo para o “straggling” em colisões dos íons com os elétrons do meio (ou seja, na perda de energia eletrônica) foi realizado por Bohr [5], em sua formulação clássica, já apresentada no capítulo 1. Ele considera que cada transferência de energia individual ocorre entre um elétron livre estacionário do alvo e um projétil totalmente ionizado (sem elétrons ligados) de carga  $Z_1e$ , obtendo dessa forma o seguinte resultado, conhecido como “**straggling**” de Bohr:

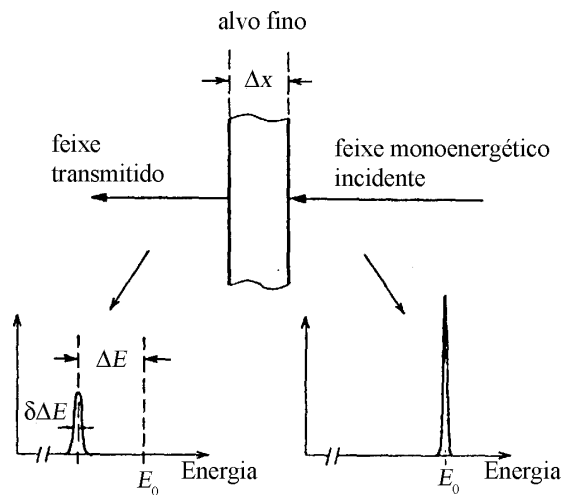
$$\Omega_{Bohr}^2 = 4\pi(Z_1e^2)^2 NZ_2t, \quad (3.28)$$

onde  $t$  é a espessura do alvo.

A teoria de Bohr também prevê que o “straggling” ocasiona uma distribuição gaussiana para a energia dos íons que atravessam um alvo. Mas, em muitos casos, os espectros de RBS apresentam a integral da distribuição gaussiana, chamada de **função erro**:

$$\operatorname{erf}(x) = (2\pi\Omega^2)^{-1/2} \int \exp\left[-(x^2/2\Omega^2)\right] dx. \quad (3.29)$$

A relação entre as duas distribuições está ilustrada na figura 3.6, para um caso onde  $\Omega^2 = 1/2$ . Como pode ser visto, a largura total à meia altura (FWHM – Full Width Half Maximum) de uma gaussiana corresponde a região de 12 a 88% da distribuição dada pela função erro, e os pontos  $\pm \Omega$  da gaussiana correspondem aos pontos 16 e 84% da função erro. A FWHM é maior que  $\Omega$  por um fator 2,355.



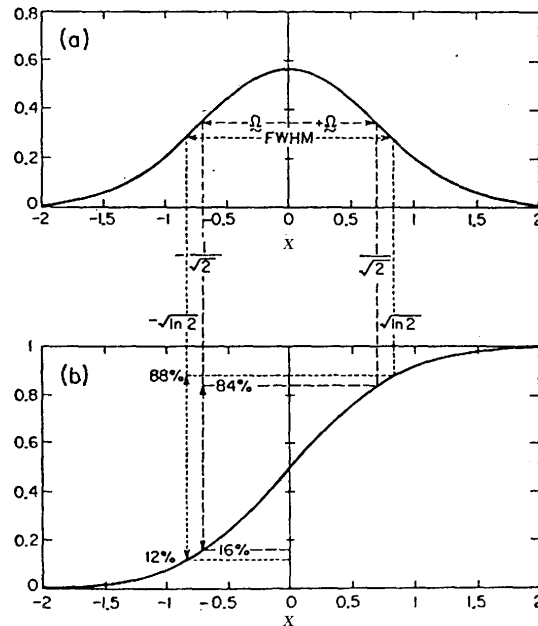
**Figura 3.5** – Representação do efeito do “straggling” em energia ( $\delta\Delta E$ ) para um feixe monoenergético, de energia inicial  $E_0$ , atravessando um filme fino de espessura  $\Delta x$  e perdendo uma energia  $\Delta E$ .

### 3.3.3 Instrumentação

No processo de análise por RBS, tipicamente são usados detetores de estado sólido de silício, que produzem um sinal de tensão analógico proporcional à energia da partícula detectada - ver figura 3.7. Nessa figura, **D** é o dispositivo que detecta os íons retroespalhados, **AT** é a fonte de alta tensão, **PA** é o pré-amplificador, **GP** é um gerador de pulsos para a verificação da estabilidade do sistema eletrônico, **A** é o amplificador e **MCA** o analisador multicanal. O MCA tem a função de processar e armazenar a

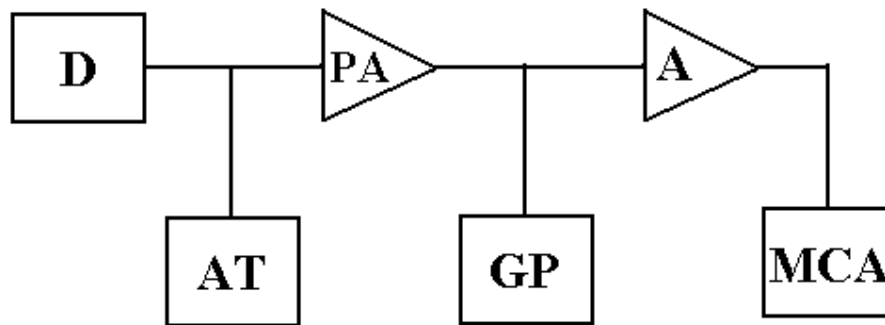


informação gerada pelo detetor, através da discretização das medidas em intervalos denominados **canais**, proporcionais à energia detectada.



**Figura 3.6** – Relação entre uma distribuição gaussiana (letra a) e sua respectiva função erro (letra b), ambas com  $\Omega^2 = 1/2$  [152].

O que se obtém é um espectro de contagens em função de canais, os quais estão linear e diretamente relacionados à energia das partículas retroespalhadas. Portanto, conhecendo-se a massa do íon e a energia do feixe incidente, bem como a geometria de espalhamento, é possível determinar não só quais elementos constituem o alvo, mas também suas correspondentes concentrações em função da profundidade na matriz.



**Figura 3.7** – Diagrama em blocos do sistema analisador de um experimento de RBS, onde **D** é o detector de partículas retroespalhadas, **AT** é a fonte de alta tensão, **PA** é o pré-amplificador, **GP** é um gerador de pulsos para a verificação da estabilidade do sistema eletrônico, **A** é o amplificador e **MCA** o analisador multicanal que armazena contagens nos seus respectivos canais, seguindo uma relação linear com a energia da partícula coletada.

### 3.4 Canalização

Uma análise teórica sobre o fenômeno de canalização de feixes de íons através de alvos cristalinos foi feita no capítulo 1. Agora será discutida a técnica de efetuar medidas aproveitando-se desse fenômeno, chamada de **espectrometria de retroespalhamento Rutherford (RBS) canalizada** ou **canalização**. Entre as várias aplicações dessa técnica [73, 74, 152, 156] estão a determinação da distribuição de defeitos em um cristal, o estudo de camadas epitaxiais, de camadas superficiais e interfaces, localização de defeitos e impurezas, medição de danos produzidos por irradiação e medidas de poder de freamento de íons em cristais. Essa última representa a aplicação empregada neste trabalho de tese.

A característica mais marcante de um espectro de RBS canalizado é a forte diminuição do número de contagens de partículas retroespalhadas em relação a um espectro de RBS tomado em uma direção “aleatória” (não alinhada com quaisquer eixos do cristal, como se a amostra fosse amorfa). Isso está ilustrado na figura 3.8, para íons

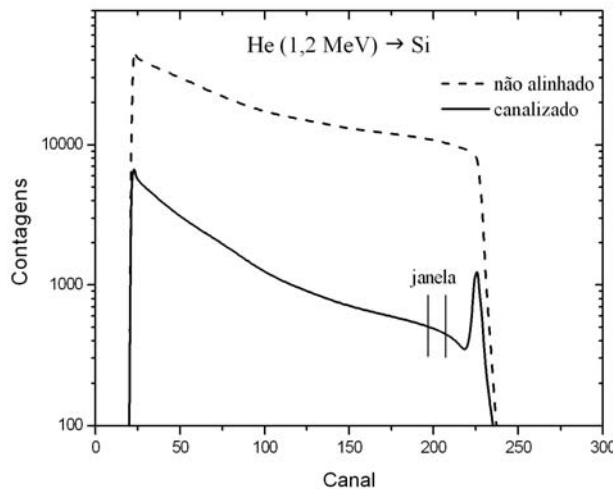
de He incidindo sobre uma amostra de Si em duas geometrias, uma canalizada (linha cheia) e outra aleatória (linha tracejada).

Outra particularidade do espectro canalizado é a presença de um pico de superfície, que caracteriza a canalização axial. A presença desse pico é devida ao retroespalhamento do feixe pelas primeiras camadas atômicas (de 5 a 10), onde o fluxo de partículas do feixe ainda é uniforme.

A diminuição do número de contagens no espectro canalizado ocorre devido ao efeito de focalização do feixe dentro do canal (“flux peaking”), o qual faz com que a probabilidade de uma colisão de retroespalhamento seja fortemente reduzida. A razão

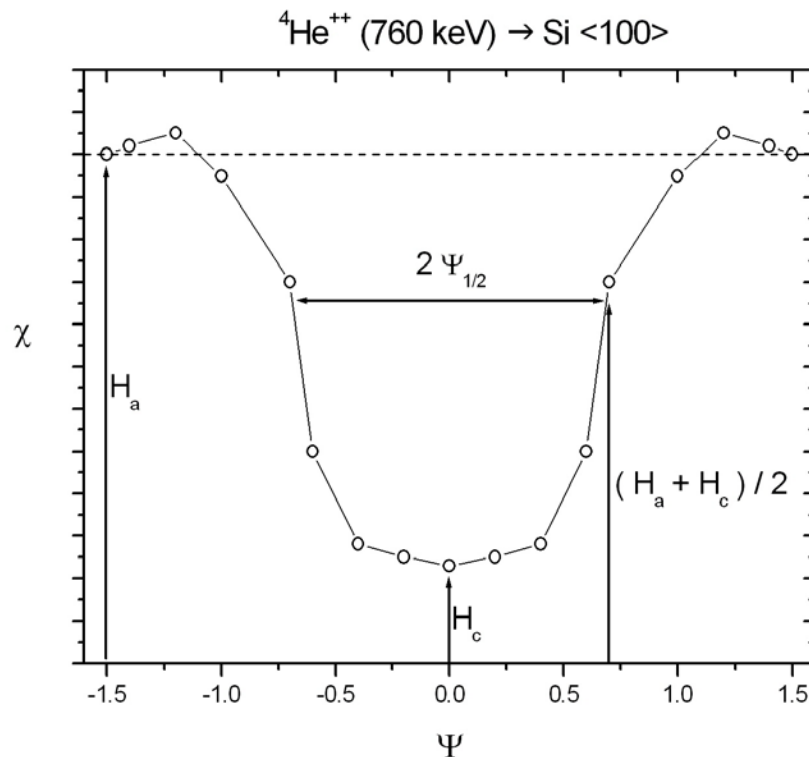
$\chi = \frac{H_c}{H_a}$  entre as alturas do espectro canalizado e do espectro aleatório na região

próxima à superfície é chamada de **razão mínima de contagens** ou  $\chi_{\min}$ . Para íons de He canalizados ao longo dos eixos de um cristal de Si, por exemplo, os valores de  $\chi_{\min}$  vão de 2 a 4 x 10<sup>-2</sup>. Além da superfície,  $\chi_{\min}$  cresce com o aumento da profundidade de retroespalhamento, uma vez que, à medida que o feixe penetra no cristal, partículas canalizadas vão sendo progressivamente desviadas do interior do canal (decanalização).



**Figura 3.8** – Comparação dos espectros de RBS obtidos em direção aleatória (não alinhada) e direção canalizada, ilustrando a diminuição do número de contagens para o segundo caso (linha inferior). Uma janela de energia é mostrada logo após o pico de superfície [46].

Além da razão mínima de contagens, a canalização também pode ser caracterizada pelo **semi-ângulo**  $\Psi_{1/2}$ , que corresponde à meia largura a meia altura (HWHM - Half Width Half Maximum) do valor da razão  $\chi$  como função do ângulo de inclinação do feixe  $\Psi$  com relação à direção de canalização. Um exemplo da determinação de  $\Psi_{1/2}$  é mostrado, na figura 3.9, para íons de He canalizados ao longo da direção axial  $\langle 100 \rangle$  do Si.  $\Psi_{1/2}$  está relacionado ao ângulo crítico de canalização introduzido no capítulo 1, sendo, portanto, inversamente proporcional à raiz quadrada da energia do feixe. Além disso,  $\Psi_{1/2}$  depende do canal em questão, uma vez que o ângulo crítico varia com  $\sim d^{-1/2}$ , sendo  $d$  o espaçamento interatômico ao longo da direção de canalização. Para íons de He com energias da ordem de MeVs canalizados em Si,  $\Psi_{1/2}$  é da ordem de  $1^\circ$ .

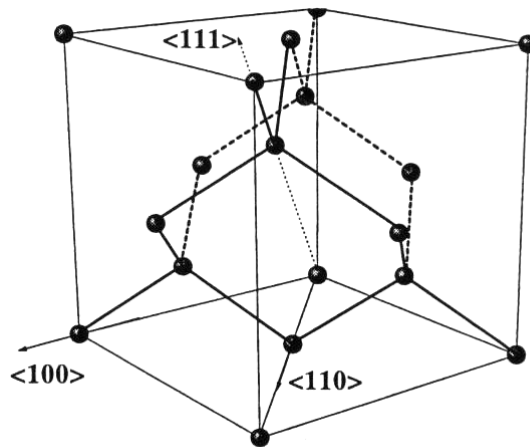


**Figura 3.9** – Razão  $\chi$  como função do ângulo de inclinação  $\Psi$  do feixe em relação ao eixo de canalização e determinação do semi-ângulo  $\Psi_{1/2}$ .

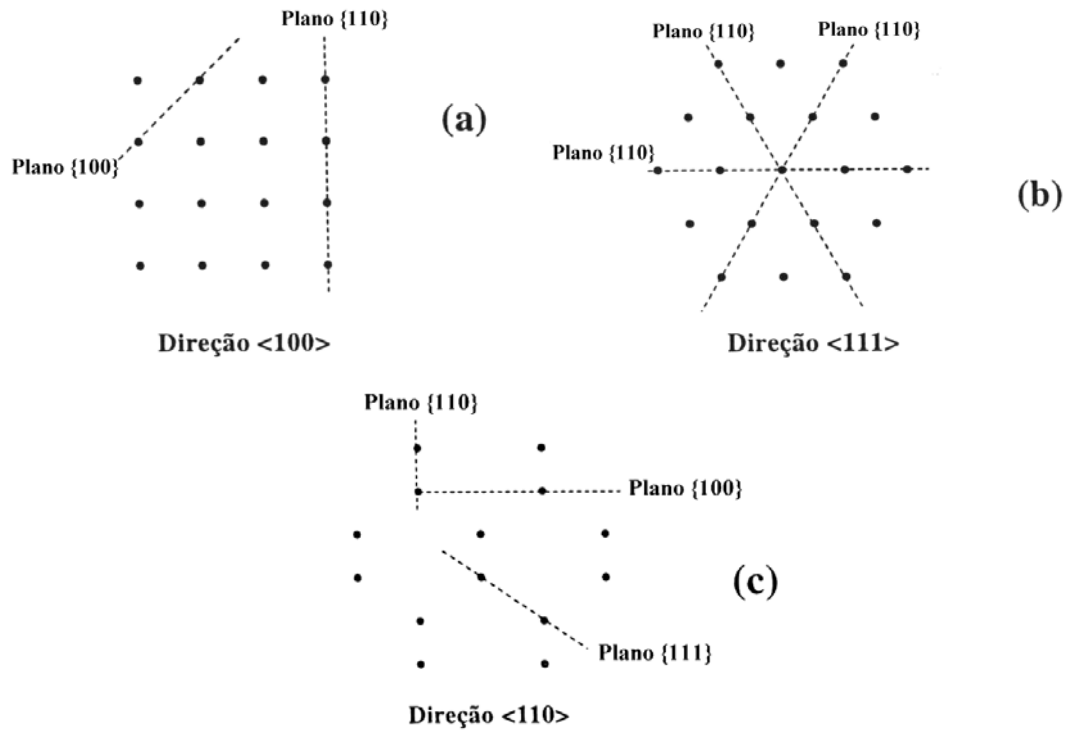
### 3.4.1 Arranjo experimental

O arranjo experimental em uma medida de canalização é muito semelhante ao arranjo utilizado num experimento comum de RBS. A diferença é que a amostra precisa ser colocada sobre um goniômetro para que se possa alinhar os eixos cristalográficos da mesma com a direção de incidência do feixe de íons.

Um bom conhecimento da estrutura cristalina da amostra é essencial para que se proceda o alinhamento de seus eixos com a direção de incidência do feixe corretamente. O cristal de Si, que configura o tipo de amostra usada neste trabalho, é uma rede FCC com parâmetro de rede  $d = 5,43 \text{ \AA}$  e com uma base formada por dois átomos de Si com deslocamentos  $\vec{d}_1 = \frac{d}{4}(0,0,0)$  e  $\vec{d}_2 = \frac{d}{4}(1,1,1)$  em relação aos pontos da rede. Na figura 3.10, a seguir, é apresentada uma célula cúbica da rede do Si. Já na figura 3.11, estão representadas as disposições dos planos atômicos observados quando se vê o modelo da figura 3.10 ao longo das três direções axiais principais do Si. O conhecimento desses planos é de grande utilidade no procedimento de canalização.



**Figura 3.10** – Representação de uma célula cúbica do Si. Cada aresta do cubo tem  $5,43 \text{ \AA}$  de comprimento.



**Figura 3.11** – Esquema da orientação dos planos atômicos em torno dos três eixos principais do Si: (a) eixo <100>, (b) eixo <111>, (c) eixo <110> .

O procedimento de canalização empregado durante este trabalho de tese será descrito em detalhes no capítulo 5.

## **CAPÍTULO 4**

# **TEORIAS MAIS RECENTES PARA A PERDA DE ENERGIA ELETRÔNICA**

### **4.1 – Introdução**

Como foi apresentado nos capítulos 1 e 2, as teorias de Bohr, Bethe e Bloch [4, 6, 9] foram a base fundamental sobre a qual um grande corpo de trabalhos teóricos e experimentais cresceu, desde os primórdios do estudo da perda de energia até os dias de hoje. Os modelos oriundos dessa base fundamental atingiram um grau de desenvolvimento bastante significativo, sendo empregados em simulações computacionais para representar os processos de interação entre íons e matéria, por exemplo.

Entretanto, muitos desses trabalhos estão sujeitos a limitações de aplicação (intervalo de velocidades, de parâmetros de impacto,...) e lançam mão de aproximações e correções (como as apresentadas no capítulo 2) cuja validade e/ou os detalhes específicos ainda não são bem definidos. Isso continua motivando a busca por novas abordagens, sejam elas também baseadas nas obras de Bohr, Bethe e Bloch ou não. A teoria binária da perda de energia eletrônica desenvolvida por Peter Sigmund e Andreas Schinner, por exemplo, pode ser considerada uma extensão da abordagem clássica de Bohr ao problema da perda de energia, sendo supostamente aplicável além dos limites da teoria de Bohr. Já a aproximação de convolução unitária (UCA – Unitary Convolution Approximation), desenvolvida por Gregor Schiwietz e Pedro L. Grande, é uma realização da fórmula de Bloch em termos do parâmetro de impacto. E a abordagem não-linear de Néstor Arista e Agustín Lifschitz lança mão do modelo de gás de elétrons para o alvo, porém não recorre à amplamente utilizada teoria de perturbação.

Essas três teorias que surgiram nos últimos anos trouxeram novas interpretações para o problema da perda de energia de íons na matéria e permitiram uma reanálise do grande conjunto de resultados experimentais existente sobre o assunto. Neste capítulo, as principais características de cada teoria serão apresentadas, bem como exemplos de comparação com resultados experimentais e de outras teorias.

## 4.2 – Teoria binária para a perda de energia eletrônica

A teoria binária para a perda de energia eletrônica foi publicada por Peter Sigmund e Andreas Schinner, no ano 2000, em três artigos principais [38, 157, 158], sendo revisada em 2002 [40]. Ela se baseia na teoria de Bohr, empregando conceitos clássicos e evitando uma abordagem quântica e o emprego da teoria de perturbação. Os autores a apresentam como uma extensão da teoria de Bohr, onde são incorporados os efeitos de blindagem, correções de camadas, as chamadas correções de alta ordem em  $Z_1$ , correções quânticas e relativísticas para altas velocidades e a excitação e ionização do projétil.

O modelo se caracteriza essencialmente por:

- combinar a blindagem estática do projétil pelos elétrons ligados a ele com a blindagem dinâmica caracterizada pelo raio adiabático de Bohr;
- incluir não-perturbativamente o efeito Barkas;
- representar as características do alvo primariamente por espectros de forças de oscilador, obtidos de propriedades ópticas e fatores de espalhamento de raios-x, de acordo com o conceito original de Bohr [4] e com a teoria de Bethe [6].

E a essas características ainda se adicionaram:

- correções de camadas, dando conta do movimento intrínseco dos elétrons [158, 159];
- correção de Bloch “inversa” [160], estendendo a região de validade até o regime quântico [158, 161];
- correção relativística quando  $v_1^2/c^2$  se torna apreciável;



- excitação e ionização do projétil a baixas velocidades [158].

Os autores ainda ressaltam que a teoria não recorre a médias sobre um gás de elétrons inhomogêneo, aproximação geralmente chamada “de densidade local” ou “de plasma local” [22], e que o emprego do postulado da carga efetiva [138] é evitado.

#### 4.2.1 – Modelo físico

O modelo físico empregado pela teoria é muito semelhante ao de Bohr, como foi mencionado anteriormente. Porém, no modelo da teoria binária os elétrons são considerados como estando livres, e não ligados harmonicamente aos átomos, como considerou Bohr. Entretanto, os potenciais de interação entre o íon e os elétrons considerados nas duas teorias são diferentes. Enquanto Bohr considerou o potencial como sendo puramente coulombiano, Sigmund adicionou um termo exponencial ao potencial de Bohr, o qual emula o efeito de ligação dos elétrons aos átomos do alvo, chamando o potencial tipo Yukawa resultante de **potencial efetivo**. Dessa forma, a teoria binária consegue reproduzir exatamente os resultados da teoria de Bohr, permitindo (ao contrário do que ocorre na teoria de Bohr) levar em conta a blindagem estática do projétil e o movimento intrínseco (orbital) dos elétrons do alvo. Além disso, uma distinção formal entre colisões próximas e distantes não é empregada, e o uso de teoria de perturbação é evitado. O número de elétrons por átomo do alvo e suas respectivas frequências de ligação precisam ser especificados como “input” numérico.

O potencial efetivo considerado na teoria binária é dado por:

$$V_{eff}(r) = -\frac{Z_1 e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{a_{ad}}\right), \quad (4.1)$$

onde  $a_{ad}$  é o raio adiabático de Bohr:

$$a_{ad} = \frac{v_1}{\omega}, \quad (4.2)$$

sendo  $v_1$  a velocidade do projétil e  $\omega$  a frequência de ressonância de um elétron ligado harmonicamente.

Para avaliar colisões distantes, a teoria de Bohr usa a aproximação de momentum da teoria clássica de espalhamento, chegando a (empregando a aproximação de pequenos ângulos):

$$P_{\perp}(b, v_1) = \frac{2Z_1 e^2 \omega}{v_1^2} K_1 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right), \quad (4.3)$$

para o momentum transferido ao elétron na direção normal ao feixe, e a:

$$P_{\parallel}(b, v_1) = \frac{2Z_1 e^2 \omega}{v_1^2} K_0 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right), \quad (4.4)$$

para o momentum transferido na direção paralela ao feixe.

Na figura 4.1, é mostrado um esboço da trajetória de um elétron que sofre uma colisão distante no modelo de Bohr. Em vista das diferentes funções de Bessel entrando em  $P_{\perp}(b, v_1)$  e  $P_{\parallel}(b, v_1)$ , a órbita assintótica é elíptica. Os raios dessa órbita são dados por:

$$r_{\perp} = \frac{2Z_1 e^2}{m_e v_1^2} K_1 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right) \quad \text{e} \quad r_{\parallel} = \frac{2Z_1 e^2}{m_e v_1^2} K_0 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right), \quad (4.5)$$

respectivamente. Mas, uma vez que o potencial é harmônico e a órbita é elíptica, pode-se alternativamente expressar o termo  $T_{\parallel}(b, v_1)$ , que é a energia transferida na direção paralela ao feixe, como uma energia potencial, dada por:

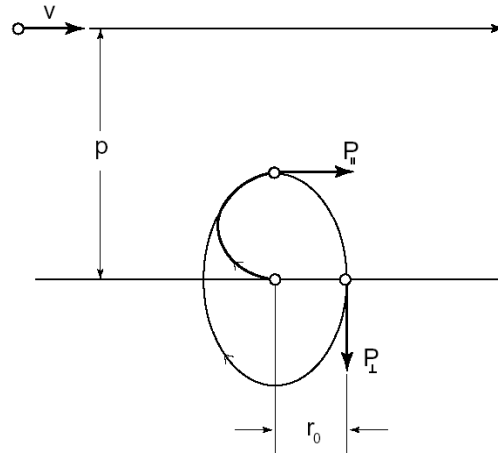
$$T_{pot} = \frac{1}{2} m_e \omega^2 [r_0(b, v_1)]^2, \quad (4.6)$$

a uma distância:

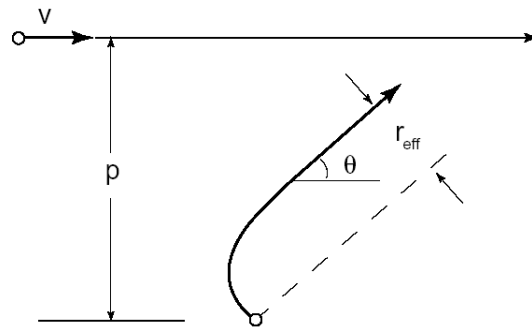
$$r_0(b, v_1) = \frac{2Z_1 e^2}{m_e v_1^2} K_0 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right) \quad (4.7)$$

da origem. Dessa forma, pode-se dizer que o elétron recebeu um momentum angular dado por:

$$L(b, v_1) = r_0(b, v_1) P_{\perp}(b, v_1) = -\frac{4Z_1^2 e^4 \omega}{m_e v_1^4} K_0 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right) K_1 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right). \quad (4.8)$$



**Figura 4.1** – Órbita elíptica de um elétron do alvo excitado segundo o modelo de Bohr.



**Figura 4.2** – Órbita de um elétron do alvo excitado segundo a teoria binária.

Já para o caso de uma colisão distante segundo a teoria binária, a situação é mostrada na figura 4.2. Nesse caso, o momentum angular transferido ao elétron é dado por:

$$L(b, v_1) = 2m_e r_{eff}(b, v_1) v_1 \text{sen} \frac{\theta(b, v_1)}{2}, \quad (4.9)$$

onde o parâmetro assintótico  $r_{eff}(b, v_1)$  precisa ser encontrado através da localização da trajetória do elétron no sistema de referência do laboratório. Sigmund mostra [38] que, no limite de pequenos ângulos, o valor do parâmetro assintótico é:

$$r_{eff}(b, v_1) = \frac{2Z_1 e^2}{m_e v_1^2} K_0 \left( \frac{\omega b}{v_1} \right), \quad (4.10)$$

o qual coincide com o valor de  $r_0$  em (4.7). Segundo ele, isso mostra que o espalhamento clássico, em pequenos ângulos, pelo potencial coulombiano blindado da teoria binária, reproduz os resultados da teoria de Bohr. No entanto, ainda há uma diferença entre os momenta angulares transferidos nas duas teorias, sendo que falta um termo que contenha a função de Bessel  $K_1$  no resultado binário.

A fim de compensar essa diferença, Sigmund toma a energia total transferida ao elétron no modelo de Bohr como sendo:

$$T(b, v_1) = \frac{P_{\perp}^2}{2m_e} + \frac{m_e \omega^2 r_0^2}{2}, \quad (4.11)$$

ou seja, a soma de um termo cinético mais um termo potencial.

Dessa forma, ele argumenta que um termo potencial deve ser adicionado ao termo cinético na teoria binária, para chegar-se à energia total transferida ao elétron. Esse termo, introduzido *ad hoc* com a finalidade de ser análogo ao de Bohr, é dado por:

$$W_0(b, v_1) = \frac{1}{2} m_e \omega^2 r_{eff}^2. \quad (4.12)$$

Entretanto, a teoria binária não faz distinção entre colisões próximas e distantes. Portanto, o termo potencial em (4.12) deve ser modificado, uma vez que ele representa apenas colisões distantes. Para colisões próximas, a aproximação de momentum empregada por Bohr (equivalente à aproximação de dipolo) se torna imprecisa. Ao mesmo tempo, os efeitos de força de oscilador no modelo de Bohr e do raio de blindagem na teoria binária se tornam menos pronunciados, fundindo-se na lei de Rutherford para pequenos parâmetros de impacto. Enquanto transferência de energia potencial desaparece para  $b = 0$ , uma vez que  $r_{eff}(0, v_1) = 0$ , esse mesmo parâmetro assintótico pode se tornar grande para parâmetros de impacto intermediários, de forma que a transferência de energia potencial  $W_0$  acaba excedendo a energia de ionização. Para evitar esse comportamento não-físico, Sigmund restringiu a região de validade do termo potencial através do “ansatz”:

$$\frac{1}{W(b, v_1)} = \frac{1}{W_0(b, v_1)} + \frac{1}{U}, \quad (4.13)$$

onde  $U$  representa a energia de ionização. Assim, a energia total transferida a um elétron de acordo com a teoria binária é dada por:

$$\begin{aligned}
 T(b, v_1) &= 2mv_1^2 \sin^2 \frac{\theta(b, v_1)}{2} + W(b, v_1) & \text{para } W < U \\
 T(b, v_1) &= 2mv_1^2 \sin^2 \frac{\theta(b, v_1)}{2} + U & \text{para } W > U
 \end{aligned}
 \tag{4.14}$$

fornecendo uma função de perda de energia suave para todos parâmetros de impacto e velocidades, reproduzindo os resultados de Bohr para colisões distantes e se aproximando do espalhamento coulombiano livre de uma forma fisicamente razoável.

Em termos de cálculo, na teoria binária se avalia numericamente integrais clássicas de espalhamento para o potencial da equação (4.1) (modificado para conter o efeito de blindagem, como será apresentado adiante) em parâmetros de impacto arbitrários. Isso preserva o limite perturbacional, e, fora desse limite, transferências de energia cinética e potencial são determinadas com base no ângulo de espalhamento no referencial do centro de massa e em  $r_{eff}$  determinado não-perturbativamente.

Na teoria de Bohr, a cada elétron do alvo é associada uma frequência de ressonância  $\omega_j$ . Já na teoria binária, emprega-se um espectro de frequências arbitrário, caracterizado por  $Z_2 f_j$  elétrons com frequências de ressonância  $\omega_j$ . Na prática, os índices  $j$  denotam as camadas ou subcamadas principais do átomo alvo, porém  $Z_2 f_j$  geralmente não é um número inteiro. Pode-se então determinar a seção de choque de freamento  $S_j$  por elétron do alvo, na  $j$ -ésima camada ou subcamada, pela integração:

$$S_j = \int_0^\infty T_j(b) 2\pi b db, \tag{4.15}$$

e a seção de choque de freamento  $S$  por átomo do alvo é então encontrada por:

$$S = Z_2 \sum_j f_j S_j, \tag{4.16}$$

onde as variáveis  $f_j$  são as forças de oscilador de dipolo, normalizadas de acordo com  $\sum_j f_j = 1$ .

### 4.2.2 – Blindagem do projétil

A blindagem estática do projétil é caracterizada na teoria binária pela modificação do potencial da equação (4.1), de forma que o potencial de interação passe a ser [93]:

$$V(r) = -\frac{q_1 e^2}{r} - \frac{(Z_1 - q_1) e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{a_{sc}}\right), \quad (4.17)$$

onde  $q_1$  é a carga do projétil,  $(Z_1 - q_1)$  é o número de elétrons que ele carrega ligados a si e  $a_{sc}$  é o raio de blindagem. Tal função foi proposta originariamente na referência [51], para descrever o freamento de íons parcialmente blindados na aproximação de Born.

O raio de blindagem, dependente da carga do íon, é tomado como:

$$a_{sc} = a_{TF} \left(1 - \frac{q_1}{Z_1}\right)^x, \quad (4.18)$$

onde  $a_{TF} = 0,8853a_0/Z_1^{1/3}$  é o raio de blindagem de Thomas-Fermi para um átomo do projétil neutro e  $x$  é um coeficiente numérico na maioria das vezes tomado como igual a 1. Esse raio de blindagem se baseia no modelo de Thomas-Fermi-Amaldi para íons positivos, sendo diferente do adotado na referência [51].

O efeito combinado da ligação harmônica com a blindagem estática é emulado na teoria binária pelo potencial efetivo:

$$V_{eff}(r) = -\frac{q_1 e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{a_{ad}}\right) - \frac{(Z_1 - q_1) e^2}{r} \exp\left(-\frac{r}{a}\right), \quad (4.19)$$

onde:

$$\frac{1}{a^2} = \frac{1}{a_{ad}^2} + \frac{1}{a_{sc}^2}. \quad (4.20)$$

Argumentos intuitivos a favor desse “ansatz” foram apresentados em [162], e em [38] foi demonstrado que a teoria de espalhamento binário aplicada à equação (4.19) reproduz rigorosamente o comportamento para colisões distantes previsto pela teoria de Bohr, permitindo uma blindagem do projétil dada pela equação (4.17).

### 4.2.3 – Correções de camadas

As correções de camadas, como apresentado no capítulo 2, podem ser entendidas como correções que dão conta do movimento intrínseco dos elétrons no alvo. Uma avaliação das correções de camadas dentro do modelo de Bohr foi apresentada por Sigmund na referência [159]. Lá foi demonstrado que essa correção é fortemente

dominada por contribuições de colisões próximas. Na teoria binária, para elétrons do alvo estacionários, o problema do freamento eletrônico foi reduzido ao espalhamento binário, o qual pode ser visto a partir de um sistema de referência se movendo com o elétron do alvo. Portanto, incorporar o movimento intrínseco dos elétrons do alvo pode ser considerado equivalente a incorporar um alargamento Doppler, e meramente envolver uma transformação de coordenadas apropriada. Tal transformação, válida para todas as velocidades não-relativísticas, foi calculada em [163], sendo dada por:

$$S_j(v_1) = \left\langle \frac{\vec{v}_1 \cdot (\vec{v}_1 - \vec{v}_e)}{v_1 |\vec{v}_1 - \vec{v}_e|} S_{0j}(|\vec{v}_1 - \vec{v}_e|) \right\rangle_j, \quad (4.21)$$

onde  $S_{0j}$  é a seção de choque de freamento para um elétron do alvo estacionário,  $\langle \dots \rangle_j$  indica uma média sobre as velocidades  $v_e$  dos elétrons na  $j$ -ésima camada ou subcamada e  $\vec{v}_1$  e  $\vec{v}_e$  são os vetores velocidade do projétil e do elétron, respectivamente.

#### 4.2.4 – Correção quântica

Uma transição não-abrupta para o regime quântico é fornecida pela fórmula de Bloch, previamente apresentada na equação (2.2) do capítulo 2. Ela pode ser rearranjada, assumindo a forma:

$$S_j = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v_1^2} \left[ \ln \frac{C m_e v_1^3}{Z_1 e^2 \omega_j} + \ln \frac{2Z_1 e^2}{\hbar v_1} - \Re \psi \left( 1 + i \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_1} \right) \right], \quad (4.22)$$

onde o primeiro termo entre colchetes representa o logaritmo de Bohr com  $C = 1,1229$  (constante de Euler) e os dois últimos termos representam a correção de Bloch “inversa” [160, 161], a qual, quando combinada às predições da teoria binária, estende a validade dessa última até o regime de Bethe para o poder de freamento.

A correção de Bloch “inversa” foi empregada com sucesso para calcular poderes de freamento fora do regime clássico [161, 164], mas problemas aparecem para velocidades do projétil mais baixas, onde essa correção deveria ser insignificante. Ainda que a seção de choque de freamento proveniente da teoria binária seja positiva, e a correção de Bloch “inversa” seja finita, se aproximando de zero quando  $v_1 \rightarrow 0$ , a soma de ambas se torna negativa para um certo valor de velocidade não-nulo. Esse problema

está relacionado ao fato de o logaritmo de Bethe se tornar negativo para baixas velocidades do projétil.

A fim de contornar o problema, uma correção “inversa” alternativa foi desenvolvida, com base na aproximação de Lindhard e Sørensen para a fórmula de Bloch [165]. Essa correção é dada por:

$$S_j = \frac{4\pi Z_1^2 Z_2 e^4}{m_e v_1^2} \ln \left( 1 + \frac{2m_e v_1^2 / \hbar \omega_j}{B \sqrt{1 + (e^\gamma Z_1 v_0 / v_1)^2}} \right), \quad (4.23)$$

onde  $\gamma = 0,5771$  e  $B = 0,88$ .

É importante notar que essa última equação não é adequada para o cálculo de seções de choque de freamento, sendo sua única função calcular a correção de Bloch “inversa” no regime de baixas velocidades, que é pequena.

#### 4.2.5 – Excitação e ionização do projétil

Em termos gerais, a excitação e ionização do projétil podem ser tratadas invertendo-se os papéis do alvo e do projétil [93], mas isso gera algumas questões e problemas. Primeiro, os átomos projéteis carregam uma carga, e não necessariamente estão em seus estados fundamentais. Ambas as características afetam o espectro de excitação. Duas tentativas de estimar a incerteza associada a esse efeito foram feitas:

- em uma, o número de elétrons em cada camada é reduzido por um fator comum  $q_1/Z_1$ ;
- na outra, os estados do projétil são preenchidos a partir dos níveis mais baixos.

Em ambos os casos, desvios nas frequências de excitação foram ignorados. Isso tende a superestimar o poder de freamento obtido. A segunda alternativa levou a poderes de freamento menores que os obtidos a partir da primeira, devido a um peso maior das frequências de oscilação mais altas. Em geral, a primeira abordagem é usada nos cálculos da teoria binária, de forma que se pode considerar que seus resultados para a contribuição devida à excitação e ionização do projétil sejam como limites superiores para um dado estado de carga.



A excitação do projétil é calculada através da “fórmula mágica” de Lindhard [24] para o espalhamento clássico por um potencial coulombiano blindado, aplicada ao potencial efetivo (4.19) para  $q_1 = 0$ . Como na obtenção dessa fórmula não é feita nenhuma distinção entre interações repulsivas e atrativas, o efeito Barkas não entra no tratamento da excitação do projétil da teoria binária. Sigmund justifica, entretanto, que:

- a excitação do projétil é uma contribuição de pequena importância na maior parte da região de interesse;
- o efeito Barkas é bem menos pronunciado na teoria não-perturbativa [38] do que na teoria perturbativa [162];
- os erros cometidos ao ignorar a influência do efeito Barkas e adotar a primeira alternativa para estimar o estado de carga do projétil vão em direções opostas, de forma que devem se compensar até certo grau.

#### 4.2.6 – Efeito Barkas

De acordo com Sigmund, uma estimativa do efeito Barkas é inerente à teoria binária. Essa estimativa é considerada como tendo boa precisão, com base em comparações com as previsões de Bohr [38] para colisões distantes e com dados experimentais para poderes de freamento de antiprótons [161].

Para uma carga puntual penetrando em um alvo, o efeito Barkas pode ser visto tanto como um desvio em  $Z_1$  da teoria de perturbação de primeira ordem [112] ou como um desvio do espalhamento coulombiano livre governado pela frequência de ligação  $\omega$  [106]. Enquanto a primeira abordagem se restringe a previsões baseadas na contribuição de colisões distantes, tal restrição não aparece na segunda abordagem, como apresentado no capítulo 2. O emprego da teoria binária concorda com a segunda abordagem, porém não é possível isolar essa contribuição no cálculo. Entretanto, ela pode ser obtida através da diferença entre o cálculo para os poderes de freamento de um íon positivo e seu respectivo anti-íon, considerando-se apenas a região onde não há elétrons ligados ao projétil positivo.

A teoria binária ainda apresenta uma correção relativística, a qual não será comentada por estar fora da região de interesse deste trabalho de tese.

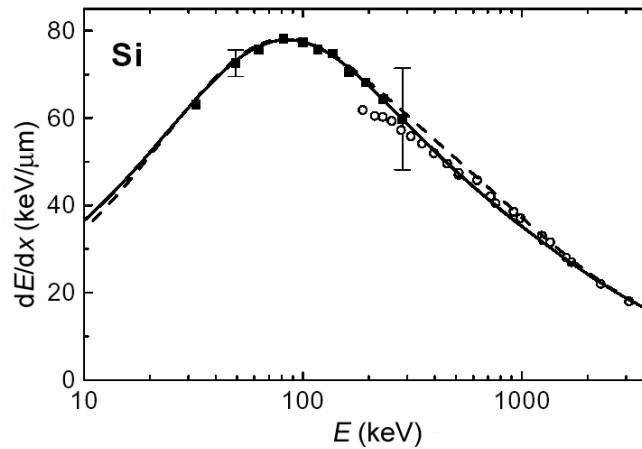
### 4.2.7 – Exemplos de resultados obtidos com a teoria binária

Sigmund alega que a teoria binária tem sido empregada com considerável sucesso para quantificar o poder de freamento de íons com  $1 \leq Z_1 \leq 18$ , e também antiprótons ( $Z_1 = -1$ ), com energias variando em até seis ordens de grandeza, de 1 keV/uma a 1 GeV/uma, para alvos de diversos materiais [39, 40, 161].

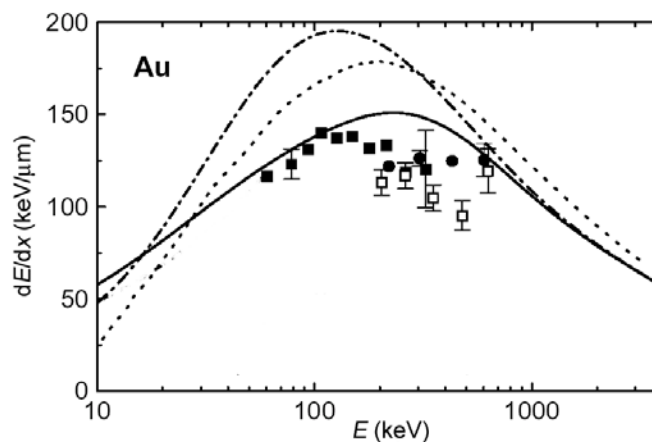
Nas figuras 4.3 e 4.4, são mostrados resultados experimentais [133] e os cálculos da teoria binária [161] para o poder de freamento de antiprótons em Si e Au, respectivamente. Enquanto um ótimo acordo é observado para o caso do Si, onde a escolha do número de subcamadas eletrônicas nas quais o alvo será dividido (para ser representado por conjuntos de forças de oscilador e frequências de oscilação correspondentes) não afeta muito os resultados, para o caso do Au o acordo com os dados experimentais não é bom para a maioria das energias medidas e a escolha do número de subcamadas eletrônicas modifica substancialmente os resultados.

Já para o caso de íons positivos, as figuras 4.5 e 4.6 ilustram os resultados da teoria binária frente aos resultados obtidos experimentalmente. Na figura 4.5, são mostrados os resultados para o poder de freamento de íons de O ( $Z_1 = 8$ ) penetrando num alvo de Si amorfo, enquanto que na figura 4.6 são mostrados os resultados para o poder de freamento de íons de B ( $Z_1 = 5$ ) penetrando num alvo de Si amorfo. O acordo com os dados experimentais em geral parece bom, exceto por diferenças nas regiões de energia um pouco abaixo e um pouco acima do máximo do poder de freamento.

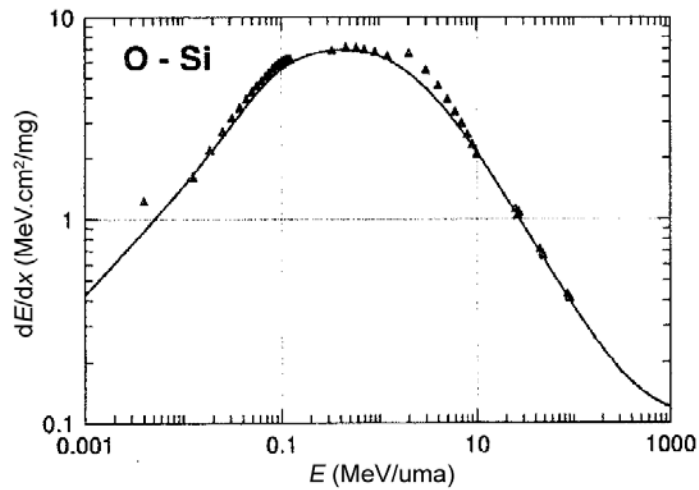
Por fim, é interessante mostrar os resultados calculados por Sigmund, com base na teoria binária, para o efeito Barkas [166]. Como foi mencionado, para se isolar essa contribuição no esquema da teoria binária é necessário comparar o poder de freamento de um íon e seu respectivo “anti-íon” no mesmo intervalo de velocidades. Isso foi feito para vários íons e alvos, sendo mostrados na figura 4.7 os resultados para íons de H, Li e Ar, totalmente desprovidos de elétrons ligados, e seus respectivos “anti-íons”, incidindo em um alvo de Si.



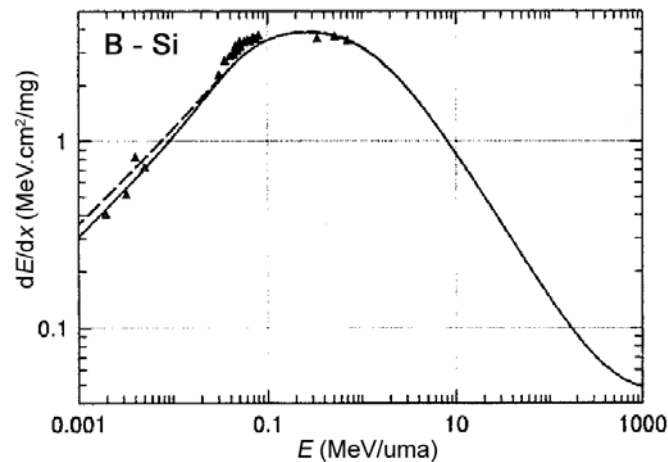
**Figura 4.3** – Poder de freamento de antiprótons em Si. Os símbolos são os resultados experimentais apresentados na referência [131] e as curvas cheia e tracejada são os cálculos da teoria binária, onde o alvo foi representado por cinco e três subcamadas (cinco e três conjuntos de forças de oscilador e frequências de oscilação), respectivamente [161].



**Figura 4.4** – Poder de freamento de antiprótons em Au. Os símbolos são os resultados experimentais apresentados na referência [131]; as curvas cheia e traço-ponto são os cálculos da teoria binária, onde o alvo foi representado por sete e seis subcamadas (sete e seis conjuntos de forças de oscilador e frequências de oscilação), respectivamente [161]. A curva pontilhada representa os cálculos do modelo de oscilador harmônico quântico, conforme detalhado na referência [131].



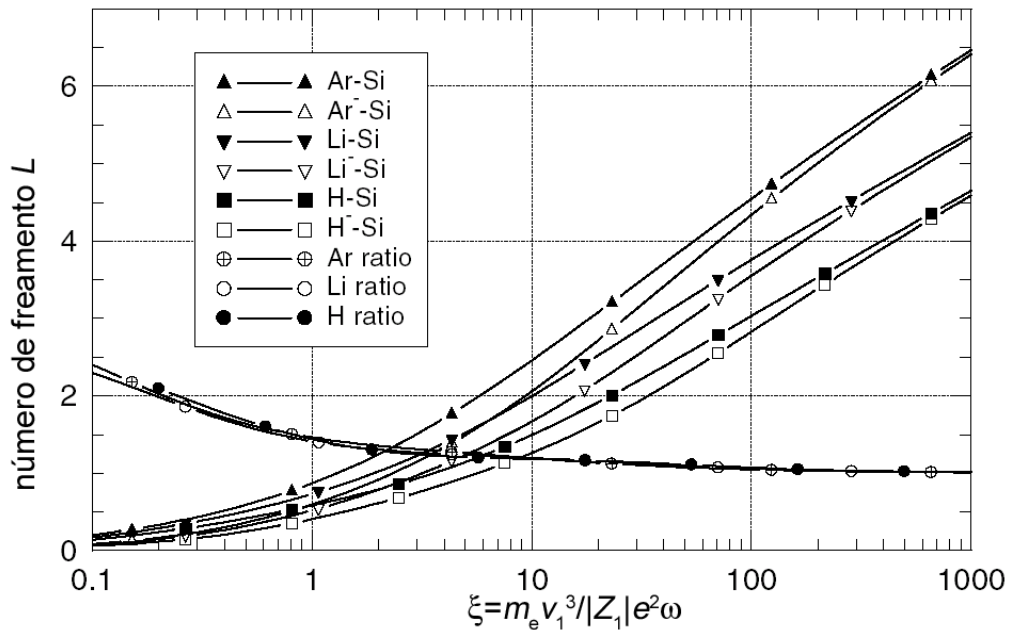
**Figura 4.5** – Poder de freamento de íons de O em alvos de Si amorfo. Os símbolos representam várias medidas experimentais reunidas em uma versão antiga do banco de dados da referência [167], e a curva cheia representa os cálculos da teoria binária [40].



**Figura 4.6** – Poder de freamento de íons de B em alvos de Si amorfo. Os símbolos representam várias medidas experimentais reunidas em uma versão antiga do banco de dados da referência [167], e as curvas tracejada e cheia representam os cálculos da teoria binária, onde o alvo foi representado por cinco e três subcamadas (cinco e três conjuntos de forças de oscilador e frequências de oscilação), respectivamente [40].

Na figura 4.7, os resultados para o número de freamento  $L$  são representados em função do parâmetro adimensional de Bohr,  $\xi = \frac{m_e v_1^3}{|Z_1| e^2 \omega}$ . As curvas denominadas “ratio” representam a chamada “razão Barkas”  $L_+/L_-$  entre o número de freamento para o íon  $L_+$  e o número de freamento para o respectivo “anti-íon”,  $L_-$ , dando uma idéia da magnitude e do comportamento do efeito Barkas.

Dentre as conclusões tiradas do trabalho, Sigmund alega que as suas “razões Barkas” são uma função unicamente da variável de Bohr  $\xi$ , sendo insensitivas à variação de  $Z_1$ , como pode ser observado na figura 4.7. Ele ainda argumenta que, para casos em que os projéteis positivos carreguem elétrons, o efeito Barkas deverá diminuir, uma vez que  $L_+$  diminuirá.



**Figura 4.7** – Números de freamento  $L_+$  e  $L_-$  e razões  $L_+/L_-$  para íons e “anti-íons” de H, Li e Ar incidindo em um alvo de Si. Na legenda, Ar, Li e H denotam os íons  $Ar^{18+}$ ,  $Li^{3+}$  e  $H^+$ , enquanto  $Ar^-$ ,  $Li^-$ , e  $H^-$  representam  $Ar^{18-}$ ,  $Li^{3-}$  e  $H^-$  [166].

### 4.3 – Abordagem não-linear “TCS-EFSR” para a perda de energia em um gás de elétrons

De 1998 a 2002, Agustín Lifschitz e Néstor Arista trabalharam no desenvolvimento de uma abordagem não-linear e autoconsistente para o cálculo da perda de energia de íons sobre uma ampla faixa de velocidades [36, 37, 168, 169]. O seu modelo é baseado na abordagem da seção de choque de transporte (TCS – Transport Cross Section) e numa extensão da regra da soma de Friedel para o caso de íons com velocidades finitas (EFSR – Extended Friedel Sum Rule). A seção de choque de transporte é calculada por integrações numéricas da equação radial de Schrödinger, sendo o potencial do íon representado por uma extensão do potencial de Molière para o caso de íons não-estáticos. O meio é representado como um gás de elétrons uniforme com densidade  $n$ , velocidade de Fermi  $v_F$  e raio de Wigner-Seitz  $r_s$ , sendo  $r_s = 1,919/v_F = 0,621n^{-1/3}$  (em unidades atômicas). Portanto, a teoria é aplicável ao cálculo da perda de energia de íons em metais ou à contribuição dos elétrons de valência para a perda de energia em outros tipos de materiais (situações onde a representação do gás de elétrons é válida), não dando conta da contribuição dos elétrons internos. Mas essa contribuição pode ser calculada por outros modelos e somada ao resultado da presente teoria, fornecendo resultados satisfatórios, como será mostrado adiante.

Uma diferença essencial entre essa teoria e as teorias de Bohr, Bethe e Bloch é o tratamento dado à questão de blindagem-espalhamento, a qual, no cálculo não-linear, é tratada de forma autoconsistente através da introdução de um potencial de espalhamento paramétrico que é autoconsistentemente ajustado por uma condição geral de blindagem fornecida pela regra da soma de Friedel estendida.

A teoria foi inicialmente desenvolvida para dar conta da perda de energia na região de baixas velocidades ( $v_1 < v_0$ ), onde as teorias de Bohr, Bethe e Bloch não conseguem dar conta de efeitos como a oscilação em  $Z_1$  da perda de energia [170] e outros efeitos não-lineares. Porém, o desenvolvimento da regra da soma de Friedel estendida [36] permitiu aplicar o modelo para vários íons numa ampla faixa de velocidades.

### 4.3.1 – A abordagem da seção de choque de transporte

O estudo do espalhamento de elétrons do alvo no campo de um íon incidente pode ser feito através da *seção de choque de transporte* (TCS), definida como:

$$\sigma_{tr} \equiv \int (1 - \cos \theta) d\sigma. \quad (4.24)$$

Essa quantidade pode ser calculada tanto por métodos clássicos como quânticos. Na abordagem clássica, é necessário resolver a relação de espalhamento  $\theta = \theta(b)$ , onde  $\theta$  é o ângulo de espalhamento e  $b$  o parâmetro de impacto, de forma que a equação (4.24), com  $d\sigma = 2\pi b db$ , possa ser integrada se  $\theta(b)$  for conhecido.

Já na formulação quântica, a seção de choque de transporte para o espalhamento de elétrons com velocidades relativas  $v_r$  e vetores de onda  $k = mv_r/\hbar$  (em relação ao centro espalhador) é dada por:

$$\sigma_{tr}(k) = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=0}^{\infty} (l+1) \sin^2 [\delta_l(k) - \delta_{l+1}(k)], \quad (4.25)$$

onde  $\delta_l(k)$  denota o deslocamento de fase correspondente ao espalhamento de componentes de onda com momentum angular  $l = 0, 1, \dots$ . Esse cálculo é o empregado na presente teoria.

### 4.3.2 – A regra da soma de Friedel estendida

A generalização da regra da soma de Friedel para velocidades finitas (diferentes de zero) foi desenvolvida na referência [36]. Ela se baseia na propriedade geral de que a blindagem de uma impureza num gás de elétrons livres é completa, e no fato de isso ser aplicável para um íon em movimento assim como para um íon estático. A escala de distâncias necessária para blindar o campo externo, entretanto, varia com a velocidade, sendo diferente para íons estáticos e íons com diferentes velocidades.

No caso de uma impureza (um íon estático), a regra da soma de Friedel geral tem a forma:

$$\frac{2}{\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) [\delta_l(v_F) - \delta_l(0)] = Z_1 - N_e, \quad (4.26)$$

onde  $N_e$  é o número de elétrons ligados ao íon e  $q = Z_1 - N_e$  é a sua carga, que deve ser compensada pela nuvem de blindagem. A carga de blindagem é um resultado da distorção nas funções de onda dos elétrons espalhados, de forma que cada termo nessa soma representa a contribuição da componente de onda  $l$  dos elétrons espalhados para o acúmulo da carga de blindagem ao redor da impureza.

A regra da soma de Friedel estendida pode ser escrita de forma similar:

$$\frac{2}{\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) G_l(v_1, v_F) = Z_1 - N_e, \quad (4.27)$$

onde as funções  $G_l(v_1, v_F)$  levam em conta a contribuição de cada componente de onda  $l$  à carga da blindagem, e podem ser expressas como integrais sobre uma esfera de Fermi deslocada (DFS – Displaced Fermi Sphere) da contribuição ao deslocamento de fase correspondente, como abaixo:

$$G_l(v_1, v_F) = \frac{1}{4\pi} \int_{DFS} \left[ \frac{d\delta_l(k)}{dk} \right] d\Omega dk = \int_{k_{\min}}^{k_{\max}} \left[ \frac{d\delta_l(k)}{dk} \right] g(k, v_1) dk, \quad (4.28)$$

onde  $k_{\min} = \max\{0, v_1 - v_F\}$  e  $k_{\max} = v_1 + v_F$ . A função  $g(k, v_1)$  leva em conta a parte angular da integração sobre a DFS, sendo que sua forma para os casos  $v_1 < v_F$  e  $v_1 > v_F$  pode ser encontrada na referência [36]. O deslocamento de fase assintótico da função de onda do elétron devido ao processo de espalhamento,  $\delta_l(k)$ , é uma função do vetor de onda  $k$ , correspondendo ao movimento relativo do elétron ( $k = m_e v_r / \hbar$ , onde  $\vec{v}_r = \vec{v}_e - \vec{v}_1$ ). O derivativo  $[d\delta_l(k)/dk]$  dá a contribuição de cada componente de onda  $l$  para o acúmulo de carga de blindagem ao redor do íon intruso. Foi mostrado que, a partir dessas expressões, é possível recuperar a regra da soma de Friedel geral no limite de baixas velocidades ( $v_1 < v_F$ ) e uma forma perturbativa da regra para altas velocidades [36]. Isso reforça a validade dessa abordagem. Como no modelo são usadas unidades atômicas, as variáveis  $k$  e  $v_r$  podem ser usadas indistintamente.

A fim de se obter a autoconsistência, o potencial de blindagem é modelado por uma expressão analítica contendo poucos parâmetros. No desenvolvimento da teoria, foram testadas duas formas alternativas de potenciais de blindagem: um potencial tipo Yukawa (com apenas um parâmetro de blindagem  $\alpha$ ) e um potencial Hidrogenóide (com dois parâmetros,  $\alpha$  e  $\beta$ ). Para cada um, a condição de autoconsistência, dada pela equação



(4.27), foi alcançada pela variação dos parâmetros de blindagem. Esse processo tem que ser repetido para cada velocidade de interesse do íon, de forma que os parâmetros de blindagem (e o potencial de espalhamento) se tornem uma função da velocidade  $v_1$  do íon.

Finalmente, os valores dos deslocamentos de fase são utilizados para calcular a seção de choque de transporte  $\sigma_{tr}$ , da equação (4.25), que agora toma a forma:

$$\sigma_{tr}(k, v_1) = \frac{4\pi}{k^2} \sum_{l=0}^{\infty} (l+1) \text{sen}^2 [\delta_l(k, v_1) - \delta_{l+1}(k, v_1)], \quad (4.29)$$

dependendo tanto da velocidade do íon  $v_1$  quanto da velocidade relativa entre o íon e o elétron, com  $k = \left| \vec{v}_r \right|$ .

### 4.3.3 – Cálculo do poder de freamento

Após a seção de choque de transporte ter sido calculada para uma ampla região de velocidades relativas  $v_r$ , é possível calcular o poder de freamento  $S(v_1)$  através da integração da mesma sobre a distribuição de velocidades do elétron em uma esfera de Fermi ( $0 \leq v_e \leq v_F$ ) e sobre toda região de velocidades relativas ( $|v_1 - v_e| \leq v_r \leq v_1 + v_e$ ). Essa integração pode ser realizada numa forma fechada, usando-se a expressão (em unidades atômicas) [36, 163]:

$$S(v_1) = \frac{1}{4\pi^2 v_1^2} \int_0^{v_F} v_e dv_e \int_{|v_1 - v_e|}^{|v_1 + v_e|} v_r^4 \sigma_{tr}(v_r, v_1) \left[ 1 + \frac{v_1^2 - v_e^2}{v_r^2} \right] dv_r. \quad (4.30)$$

### 4.3.4 – O potencial de espalhamento

Uma vez que a teoria foi desenvolvida para regiões de energia onde os íons estão apenas parcialmente despídos de elétrons ligados, o potencial de espalhamento foi concebido como sendo composto de duas partes: um potencial devido ao cerne iônico  $V_{ion}(r)$ , que inclui a blindagem atômica devida aos elétrons ligados carregados pelo íon, e um potencial de blindagem externa  $V_s(r)$ , que é produzido pelos elétrons de valência do alvo, a fim de neutralizar a carga líquida do íon. A suposição de simetria esférica do

potencial composto por essas duas contribuições é uma das características principais desse modelo, e pode ser considerada como representando a média esférica do potencial real. As funções de blindagem  $\phi_{ion}(r)$  e  $\phi_s(r)$ , correspondendo a cada um dos potenciais componentes, são introduzidas, de forma que o potencial de espalhamento total para a interação íon-elétron pode ser escrito como:

$$V_{total}(r) = V_{ion}(r) + V_s(r) = -\frac{N_e e^2}{r} \phi_{ion}(r) - \frac{q e^2}{r} \phi_s(r). \quad (4.31)$$

Uma diferença básica entre  $V_{ion}(r)$  e  $V_s(r)$  é que, enquanto o primeiro permanece essencialmente “congelado” à proporção que  $v_1$  aumenta (apesar das possíveis mudanças devido à perda de elétrons), o segundo varia com a velocidade, uma vez que os elétrons se reajustam dinamicamente ao campo do íon penetrante. Essa propriedade está incluída na atual abordagem, uma vez que o potencial  $V_s(r)$  é ajustado para cada velocidade a fim de satisfazer a regra da soma de Friedel estendida.

#### 4.3.4.1 – Modelo do íon

Durante o desenvolvimento da teoria, vários modelos para representar o potencial do íon foram testados, e um novo modelo foi proposto, o qual foi batizado de “potencial do íon de Molière” [169]. Devido à sua simplicidade e bons resultados em comparação com outros modelos (incluindo o modelo de Dedkov para íons [171] e os modelos de Molière e Thomas-Fermi para átomos neutros [172]), esse novo modelo foi tomado como o padrão para a maioria dos casos. Nele, a componente iônica  $V_{ion}(r)$  é determinada pela “função do íon de Molière”  $\phi_{Mi}(r)$ , ou seja,  $\phi_{ion}(r) = \phi_{Mi}(r)$ , a qual, seguindo a forma original da função de Molière, é expressa como:

$$\phi_{Mi}(r) = C \sum_{j=1}^3 A_j \exp\left(-\frac{\alpha_j r}{a_{TF}}\right), \quad (4.32)$$

com  $a_{TF} = 0,8853/Z_1^{1/3}$  e  $C = (A_1 + A_2 + A_3)^{-1} = Z_1/N_e$ .

Outros potenciais também podem ser usados, como aconteceu durante os cálculos realizados neste trabalho de doutoramento. Ao invés do potencial do íon de Molière apresentado acima, foi empregado um potencial geral dado por uma soma de exponenciais, o qual será definido a seguir, na seção 4.4.3, equação (4.58).

#### 4.3.4.2 – Potencial de blindagem

No desenvolvimento da presente abordagem, o seguinte potencial de blindagem foi adotado:

$$V_s(r) = -\left(\frac{qe^2}{r}\right)\phi_s(r), \quad (4.33)$$

e duas formas alternativas da função de blindagem  $\phi_s(r)$  foram consideradas:

- (a) um potencial de Yukawa simples,  $\phi_s(r) = \exp(-\alpha r)$ , usando apenas um parâmetro  $\alpha$ , e
- (b) um potencial hidrogenóide,  $\phi_s(r) = (1 + \beta r)\exp(-\alpha r)$ , contendo dois parâmetros,  $\alpha$  e  $\beta$ .

Na abordagem da regra da soma de Friedel estendida, o(s) valor(es) do(s) parâmetro(s) de blindagem é(são) ajustado(s) de forma autoconsistente para cada velocidade  $v_1$  do íon através da equação (4.27).

Como os resultados obtidos com as funções de blindagem baseadas nos potenciais tipo Yukawa e tipo Hidrogenóide foram muito semelhantes, o potencial tipo Yukawa, possuindo apenas um parâmetro de blindagem, foi adotado como o potencial padrão a ser usado nos cálculos.

#### 4.3.5 – Exemplos de resultados obtidos com a abordagem TCS-EFSR

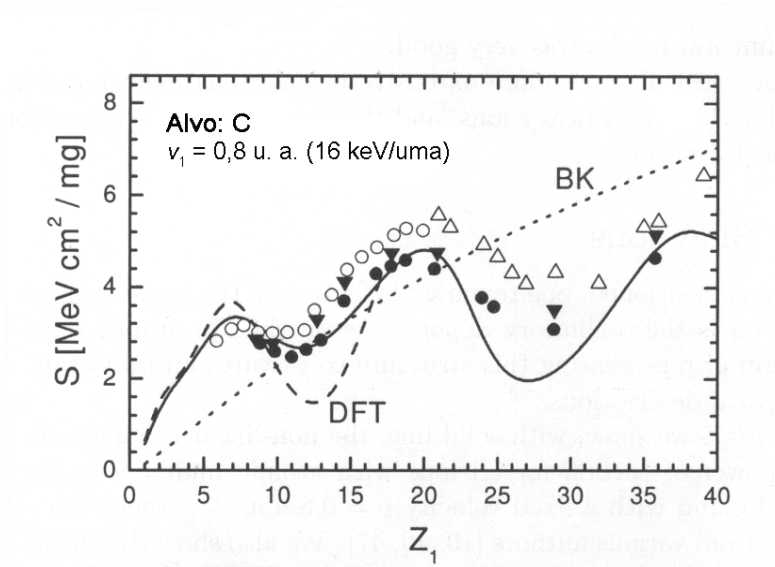
Arista alega que a sua abordagem não-linear “TCS-EFSR” (seção de choque de transporte – regra da soma de Friedel estendida) fornece bons resultados para o cálculo de poderes de freamento de íons tanto a baixas energias, onde a oscilação em  $Z_1$  é bem reproduzida, como a velocidades intermediárias e altas, onde um bom acordo com os modelos de Bohr, Bethe e Bloch é encontrado.

### 4.3.5.1 – Resultados para íons lentos

Na figura 4.8, são mostrados os resultados para o poder de freamento, em alvos de C, de íons com números atômicos na faixa  $1 \leq Z_1 \leq 40$  e velocidade fixa  $v_1 = 0,8$  unidades atômicas (u. a.). A linha cheia mostra os resultados dos cálculos não-lineares; os símbolos representam os resultados experimentais obtidos por vários autores [170, 173-176]; a linha tracejada ilustra os cálculos da teoria (linear) do funcional de densidade (DFT – Density Functional Theory) [48] para a perda de energia em um gás de elétrons, consistindo dos elétrons de valência do C [177]; a linha pontilhada mostra os resultados de acordo com a teoria de Brandt-Kitagawa [51]. Essa última é baseada em teoria linear e inclui um modelo estatístico para a estrutura do íon, assim como para a carga média de equilíbrio, de forma que ela fornece uma representação média do poder de freamento, a qual não pode representar o comportamento oscilatório por ser baseada em suposições estatísticas. A DFT representa bem apenas a primeira parte das oscilações, mostrando ainda algum desvio em relação aos dados experimentais. O modelo TCS-EFSR dá uma boa descrição do comportamento para toda a região de  $Z_1$ , mas ainda mostra alguns desvios para valores de  $Z_1$  entre 25 e 32.

As oscilações em  $Z_1$  são uma clara evidência de efeitos quânticos, produzidos por fortes perturbações das ondas (elétrons) espalhadas. A física desse efeito oscilatório foi discutida em trabalhos anteriores a partir de dois pontos de vista relacionados entre si: a relação com as bem conhecidas ressonâncias Ramsauer-Townsend no espalhamento de elétrons a baixas velocidades [178] e a ocorrência de ressonâncias próximo à superfície de Fermi ( $v_{res} \approx v_F$ ) para certas impurezas (íons) em interior de metais [179].

Arista argumenta que a razão para a grande amplitude das oscilações com  $Z_1$  a baixas energias está no fato de a seção de choque de transporte ser determinada por somente alguns poucos deslocamentos de fase ( $l = 0, 1, \dots, 4$ ). Se a energia (velocidade) é aumentada, mais e mais deslocamentos de fase são necessários, e então a amplitude das oscilações gradualmente desaparece [169].



**Figura 4.8** – Poder de freamento de alvos de C (com  $r_s = 1,6$ ) para íons lentos com velocidade de  $0,8$  u. a. ( $E = 16$  keV/uma). A linha cheia é o resultado dos cálculos TCS-EFSR para  $1 \leq Z_1 \leq 40$  [169]; a linha tracejada mostra o resultado da DFT para  $1 \leq Z_1 \leq 40$  (com  $r_s = 1,5$ ) [177]; a linha pontilhada mostra o resultado do modelo de Brandt-Kitagawa [51]; os símbolos mostram os resultados experimentais obtidos por vários autores [170, 173-176].

#### 4.3.5.2 – Resultados para íons velozes

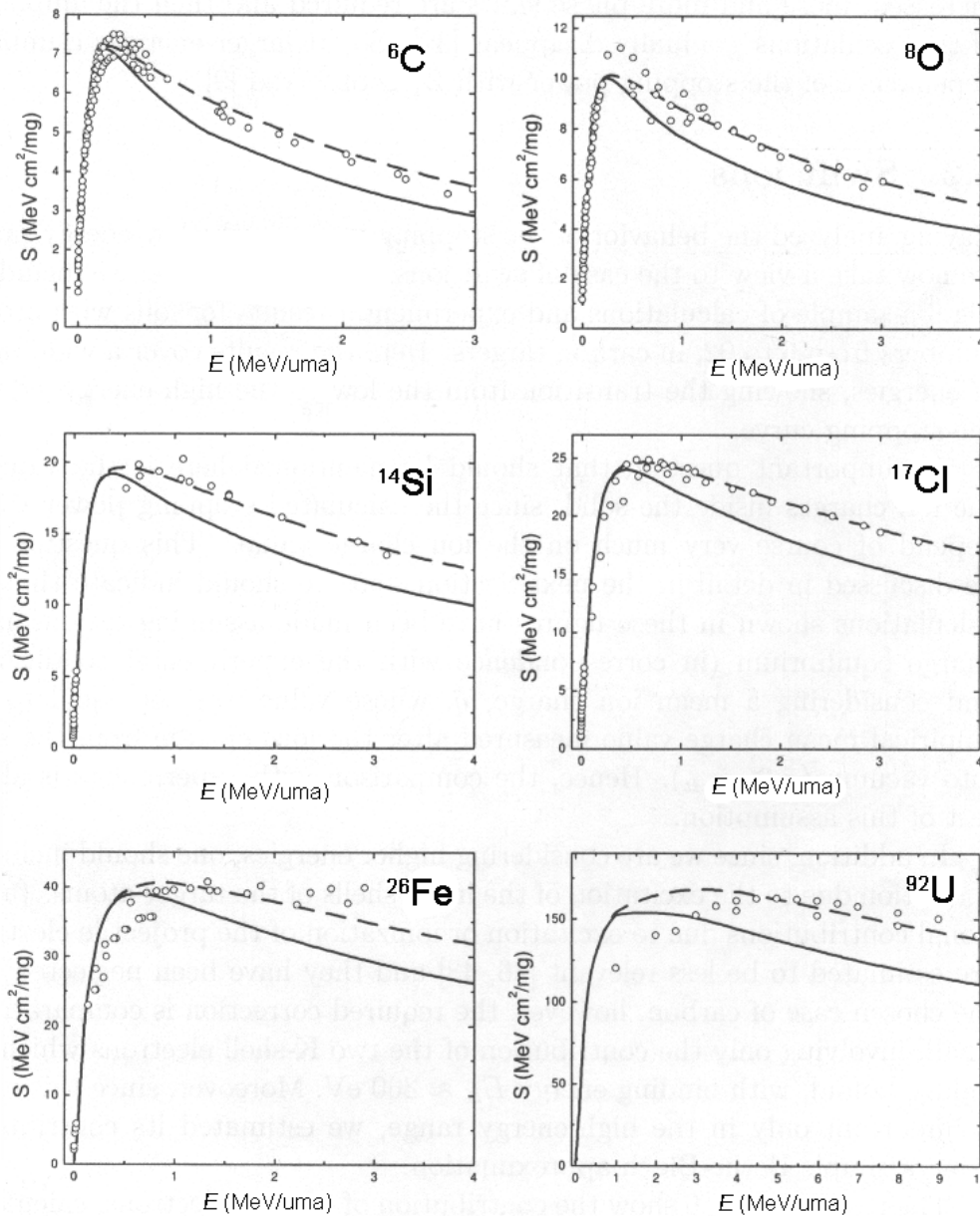
A fim de ilustrar os resultados para íons velozes, a figura 4.9 apresenta os cálculos para o poder de freamento e os resultados experimentais de vários íons em alvos de C.

Arista ressalta que a questão do valor do estado de carga do íon no interior do alvo deve ser levada em conta com muito cuidado, uma vez que os valores do poder de freamento calculados dependem fortemente da carga do íon. Ele indica que seus resultados foram determinados assumindo-se condições de equilíbrio de carga (correspondentes às condições experimentais), e considerando-se uma carga média do íon  $\bar{q}$ , cujo valor foi tomado como sendo igual ao valor de carga média empírico, medido após os íons emergirem do alvo ( $\bar{q} \approx \bar{q}_{exit}$ ). As razões e vantagens dessa abordagem foram apresentadas na seção 2.5, do capítulo 2.

Como os resultados da figura 4.9 incluem energias mais altas, onde a contribuição dos elétrons das camadas mais internas dos átomos do alvo para o poder de freamento aumenta, foi necessário incluir uma correção devida à excitação desses elétrons. Contribuições adicionais devidas à excitação ou ionização dos elétrons do projétil são consideradas menos relevantes [38, 40], tendo sido desconsideradas na presente análise. No caso do carbono, entretanto, a correção devida a elétrons internos é comparativamente pequena, envolvendo somente a contribuição dos elétrons da camada K, com energia de ligação  $E_K \approx 300$  eV. Além do mais, como esse efeito só é importante para energias mais altas, sua estimativa foi feita usando-se uma aproximação de Bethe-Bloch simplificada. A curva cheia representa os cálculos para a contribuição dos elétrons de valência, feitos de acordo com o modelo TCS-EFSR não-linear. Já a curva tracejada representa a contribuição total, onde está somada a correção devida à contribuição dos elétrons da camada K ao resultado da linha cheia. Os símbolos representam dados experimentais obtidos por vários autores, que estão compilados na referência [167]. Pode-se ver que a teoria e os dados experimentais apresentam um acordo bastante bom, em geral, exceto por algumas discrepâncias, particularmente na região em torno do máximo da perda de energia para os íons mais pesados.

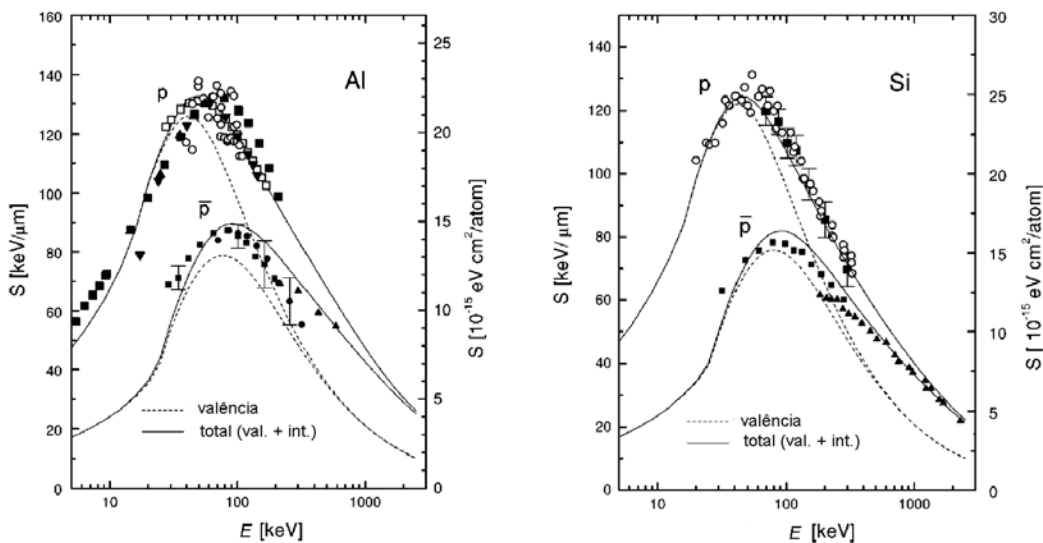
#### 4.3.5.3 – Resultados para prótons e antiprótons e o efeito Barkas

A figura 4.10 mostra os resultados para o poder de freamento de p e  $\bar{p}$  em alvos de Al e Si. Os símbolos representam resultados experimentais obtidos em vários trabalhos para o caso de p em Al e Si [167] e  $\bar{p}$  em Al e Si [131]. As linhas tracejadas mostram os resultados do cálculo TCS-EFSR [168], que dá conta da contribuição dos elétrons de valência para o poder de freamento. As linhas cheias representam esse último resultado somado à contribuição dos elétrons internos, calculada com base no modelo do oscilador harmônico quântico [125, 126, 181]. Como esperado, pode-se ver que os elétrons de valência desempenham um papel dominante no processo de freamento para energias em torno do máximo. Além disso, a posição e a magnitude da região do máximo do poder de freamento previstas pela teoria estão em bom acordo com os resultados experimentais.



**Figura 4.9** – Cálculos e resultados experimentais para o poder de freamento de íons com número atômico entre 6 e 92 em alvos de C. As linhas cheias mostram a contribuição dos elétrons de valência (com  $r_s = 1,6$ ) calculada pelo método TCS-EFSR não-linear. As linhas tracejadas mostram o poder de freamento total, incluindo a contribuição dos elétrons da camada K. Os dados experimentais podem ser encontrados na referência [167].

No artigo [168], os autores não calculam explicitamente o efeito Barkas, porém ressaltam que o bom acordo da teoria com os poderes de freamento de  $p$  e  $\bar{p}$  medidos experimentalmente reflete uma boa capacidade da teoria para descrever e quantificar o efeito Barkas como a diferença entre os poderes de freamento de uma partícula e sua antipartícula. Cálculos explícitos da contribuição Barkas com a abordagem não-linear TCS-EFSR de Arista serão apresentados no capítulo seguinte.



**Figura 4.10** – Poderes de freamento para  $p$  e  $\bar{p}$  em alvos de Al e Si. Os símbolos representam resultados experimentais [131, 167]. As linhas tracejadas mostram os resultados dos cálculos do modelo TCS-EFSR não-linear, que leva em conta apenas a contribuição dos elétrons de valência. As linhas cheias correspondem a essa última contribuição somada com a contribuição devida aos elétrons internos, dada pelo modelo do oscilador harmônico quântico [168].

#### 4.4 – A Aproximação de Convolução Unitária

A Aproximação de Convolução Unitária (UCA – Unitary Convolution Approximation) para o cálculo da perda de energia eletrônica foi desenvolvida por Grande e Schiwietz no final dos anos noventa [34, 35] e revisada recentemente [182].



Ela surgiu como um método para se obter a perda de energia eletrônica em função do parâmetro de impacto para íons com velocidades altas e intermediárias, tendo sido estendida para o caso de as velocidades do íon serem menores que as velocidades dos elétrons dos átomos do alvo recentemente.

A Aproximação de Convolução Unitária é uma extensão da Aproximação de Convolução Perturbativa (PCA – Perturbative Convolution Approximation), desenvolvida por Grande e Schiwietz alguns anos antes [33], válida apenas para partículas rápidas com cargas baixas. A PCA parte da teoria de perturbação de primeira ordem e chega até uma fórmula simples para calcular a dependência com o parâmetro de impacto da perda de energia eletrônica.

Essa forma de abordagem se tornou necessária para dar conta da perda de energia em condição canalizada, por exemplo, e até o surgimento desse modelo não havia uma teoria que desse conta de toda a região de parâmetros de impacto.

No decorrer desta seção, unidades atômicas serão utilizadas em todas as equações.

#### 4.4.1 – A Aproximação de Convolução Perturbativa – PCA

Na elaboração da PCA, Grande e Schiwietz partiram do método dos parâmetros de impacto [183, 184] para calcular a perda de energia eletrônica para projéteis de alta energia. De acordo com esse método, é possível obter a perda de energia usando trajetórias retilíneas para representar o deslocamento dos íons incidentes.

Para calcular a energia perdida devido à ionização e excitação do alvo, é necessário considerar as amplitudes para cada transição eletrônica desde o estado fundamental  $|0\rangle$  com energia  $\varepsilon_0$  até um estado final  $|f\rangle$ , dadas, em primeira ordem, por:

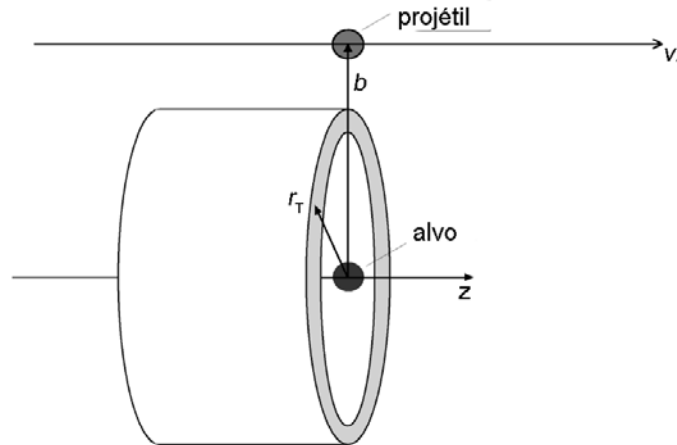
$$a_f(\vec{b}) = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp[i(\varepsilon_f - \varepsilon_0)t] \langle f | V(\vec{r} - \vec{R}(t)) | 0 \rangle, \quad (4.34)$$

onde  $V$  é o potencial coulombiano de interação entre o projétil (sem elétrons ligados) e um elétron do alvo.

Exceto para parâmetros de impacto muito pequenos, as trajetórias dos projéteis são bem descritas por linhas retas do tipo:

$$\vec{R}(t) = \vec{v}_1 t + \vec{b}. \quad (4.35)$$

Como ilustrado na figura 4.11,  $v_1$  é a velocidade do projétil e  $b$  é o parâmetro de impacto da colisão. Cada estado final (ligado ou no continuum)  $f$  pode ser definido por números quânticos de momentum angular  $l_f$  e  $m_f$  e por uma energia  $\epsilon_f$ .



**Figura 4.11** – Representação esquemática da geometria de colisão na Aproximação de Convolução Perturbativa, mostrando os núcleos do alvo e do projétil, o parâmetro de impacto  $b$  e a velocidade do projétil  $v_1$ . O cilindro representa a densidade eletrônica integrada ao longo da direção de penetração do projétil [33].

A perda de energia eletrônica é então calculada a partir da seguinte expressão:

$$Q(b) = \sum_f |a_f(\vec{b})|^2 (\epsilon_f - \epsilon_0), \quad (4.36)$$

a qual envolve uma soma sobre todos estados finais do alvo e o cálculo correspondente de todas as amplitudes de transição. Geralmente, isso demanda um esforço computacional grande demais para viabilizar um programa de simulação baseado nas equações acima. Uma das principais motivações para o desenvolvimento da PCA foi justamente essa inviabilidade. A fim de superá-la, Grande e Schiwietz buscaram uma solução aproximada das equações (4.34) e (4.36) que não necessitasse de um cálculo em tão larga escala.

Partindo de diferentes estudos prévios [9, 21-23], onde haviam sido desenvolvidas aproximações para diferentes regiões limitadas de parâmetros de impacto, os autores obtiveram êxito em sua busca.

Para o caso de grandes parâmetros de impacto, a chamada aproximação de dipolo vinha sendo previamente empregada. Nela, o potencial é escrito como:

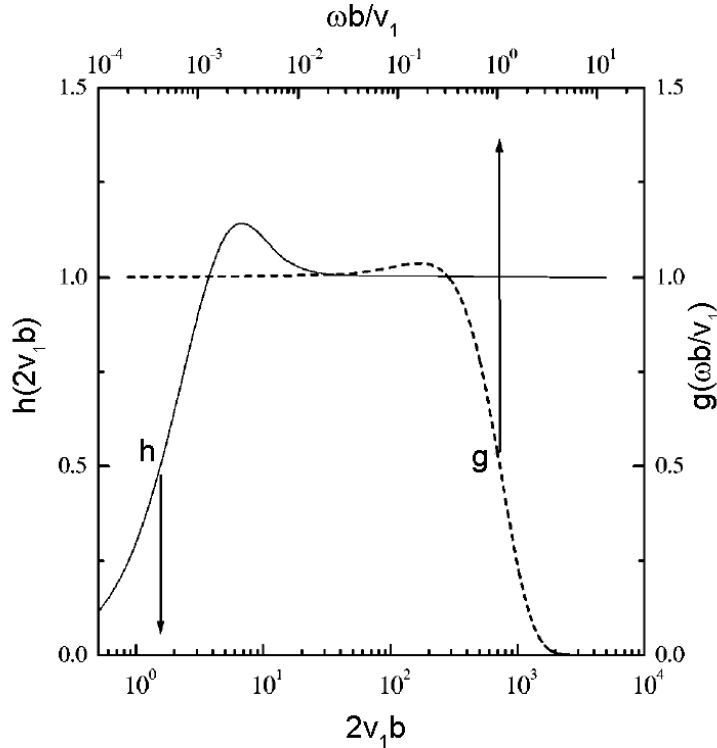
$$V(\vec{r} - \vec{R}(t)) = -\frac{Z_1}{|\vec{r} - \vec{R}(t)|} \approx -\frac{Z_1}{R(t)} - \vec{r} \cdot \frac{\vec{R}(t)Z_1}{R^3(t)}, \quad (4.37)$$

de forma que uma expressão analítica para  $Q(b)$  pôde ser obtida [21, 27]:

$$Q(b) = \frac{2Z_1^2}{v_1^2 b^2} \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right) = T(b) \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right), \quad (4.38)$$

com:

$$g\left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right) = \left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right)^2 \left( K_0^2 \left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right) + K_1^2 \left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right) \right). \quad (4.39)$$



**Figura 4.12** – As funções  $g(x)$  e  $h(x)$  das equações (4.39) e (4.43) que descrevem os termos de dipolo e as colisões quasi-livres, respectivamente. Para altas velocidades do projétil, as partes planas das duas funções apresentam uma superposição considerável [33].

Na equação (4.39),  $K_0$  e  $K_1$  são as funções de Bessel modificadas,  $\omega_i$  são as energias de transição  $(\omega_i \equiv \varepsilon_i - \varepsilon_0)$  e  $f_i$  as forças de oscilador de dipolo  $\left[ f_i = 2 \left| \langle i | z | 0 \rangle \right|^2 (\varepsilon_i - \varepsilon_0) \right]$ , as quais satisfazem a regra da soma  $\sum_i f_i = 1$ . A forma da função  $g(\omega b/v_1)$  é mostrada na figura 4.12.

Entretanto, a solução dada pela equação (4.38) só é válida para valores de  $b$  assintoticamente altos, sendo completamente inadequada para descrever o caso de pequenos parâmetros de impacto, onde outros termos de multipolo ganham importância.

Já para o caso de parâmetros de impacto intermediários (um pouco maiores que o raio da camada  $r_{shell}$ ) e velocidades altas, o fator exponencial na equação (4.34) pode ser negligenciado, quando o tempo de colisão  $\tau = r_{shell} / v_1$  é pequeno comparado a  $1/\omega_i$ . Dessa forma, é possível desenvolver a soma sobre todos os estados finais analiticamente [9], através da relação de clausura, para obter:

$$Q(b) = \int d^2 r_T T(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (4.40)$$

com  $T(b) = 2Z_1^2 / v_1^2 b^2$  correspondendo à transferência de energia clássica a um elétron em repouso na aproximação de impulso [27]. Como ilustrado na figura 4.11, o vetor  $\vec{r}_T$  é perpendicular à direção  $z$  de penetração do projétil, e  $\int dz \rho(\vec{r}_T, z)$  é a densidade eletrônica integrada ao longo do caminho do íon (o cilindro da figura). Embora esse resultado descreva bem as colisões com parâmetros de impacto intermediários, ele falha no caso de pequenos parâmetros de impacto, onde transferências de energia tão altas quanto  $\omega_i = 2v_1^2$  ganham importância, e um tratamento de cinemática de colisão de dois corpos se torna necessário.

Nesse caso de pequenos parâmetros de impacto, a influência do potencial do alvo pode ser negligenciada para altas velocidades do projétil [9]. Sendo assim, uma fórmula analítica para  $Q(b)$  também pode ser obtida pela substituição dos estados finais do alvo no continuum por ondas planas. Tanto a distribuição em momentum dos elétrons ligados quanto uma cinemática adequada são consideradas nessa situação, de forma que o resultado deveria ser semelhante ao da aproximação de encontro binário clássica

(BEA – Binary Encounter Approximation) [185]. Seguindo esse procedimento, a perda de energia eletrônica pode ser escrita como:

$$Q(b) = \int d^2r_T T(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (4.41)$$

com:

$$T(b) = \frac{2Z_1^2}{v_1^2 b^2} \times h(2v_1 b) = T(b) \times h(2v_1 b), \quad (4.42)$$

e:

$$h(2v_1 b) = \frac{(2v_1 b)^2}{2} \int_0^1 y dy K_0(2v_1 b y^2) J_0(2v_1 b y \sqrt{1-y^2}). \quad (4.43)$$

Conhecendo essas três abordagens e suas limitações, Grande e Schiwietz desenvolveram uma fórmula geral capaz de interpolá-las completamente, com boa precisão, e que é aplicável a todos os parâmetros de impacto. Ela é dada por:

$$Q(b) = \int d^2r_T \mathcal{K}(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (4.44)$$

com:

$$\mathcal{K}(b) = \frac{2Z_1^2}{v_1^2 b^2} \times h(2v_1 b) \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right). \quad (4.45)$$

Essa função une de uma forma suave as três regiões de parâmetros de impacto descritas anteriormente, como está mostrado na referência [33]. Os dois primeiros termos da equação (4.45) descrevem colisões binárias violentas, enquanto o último termo dá conta das transições de dipolo de longo alcance. A primeira integral na equação (4.44) descreve uma convolução com a densidade eletrônica inicial também fora do caminho do projétil e fornece contribuições não-locais para a perda de energia.

É importante ressaltar que todas as fórmulas para  $Q(b)$  dadas acima são estritamente válidas para sistemas de um elétron. No âmbito do modelo de partículas independentes, entretanto, ainda é possível aplicar-se os resultados da equação (4.44), sendo necessário, nesse caso, considerar a densidade eletrônica e as forças de oscilador para cada elétron de todas as camadas ocupadas do alvo.

A fim de comprovar a validade do modelo, os resultados para a dependência com o parâmetro de impacto da perda de energia de íons nus colidindo com alvos de H calculados com a PCA foram comparados com cálculos completos de primeira ordem

da SCA (SemiClassical Approximation) [28, 54]. Dois estados iniciais foram considerados para o H, como ilustrado por H(1s) e H(2s) na figura 4.13. As energias correspondentes a cada curva estão indicadas aos seus lados. Em todos os seis casos é observado um acordo muito bom entre os resultados da PCA e os cálculos da SCA, os quais fornecem resultados confiáveis para prótons acima de 150 keV [28, 54]. Para íons mais pesados, a velocidade deve ser alta o suficiente ( $Z_1/v_1 < 0,8$  para o estado fundamental do H) para preencher a condição de uma pequena perturbação.

Vale lembrar que a PCA é válida para altas energias do projétil em todas as regiões de parâmetros de impacto. Devido à sua simplicidade, sua implementação em um código de computador para o cálculo da perda de energia em função do parâmetro de impacto foi simples, como será mencionado no capítulo seguinte, na seção sobre o programa CASP (Convolution Approximation for Swift Particles) [33-35].

A seguir, será mostrado o desenvolvimento da Aproximação de Convolução Unitária (UCA) a partir da PCA, em que foram empregados tanto um escalonamento simples de parâmetros de impacto quanto o tratamento não-perturbativo de Bloch para a perda de energia [9].

#### 4.4.2 – A Aproximação de Convolução Unitária – UCA

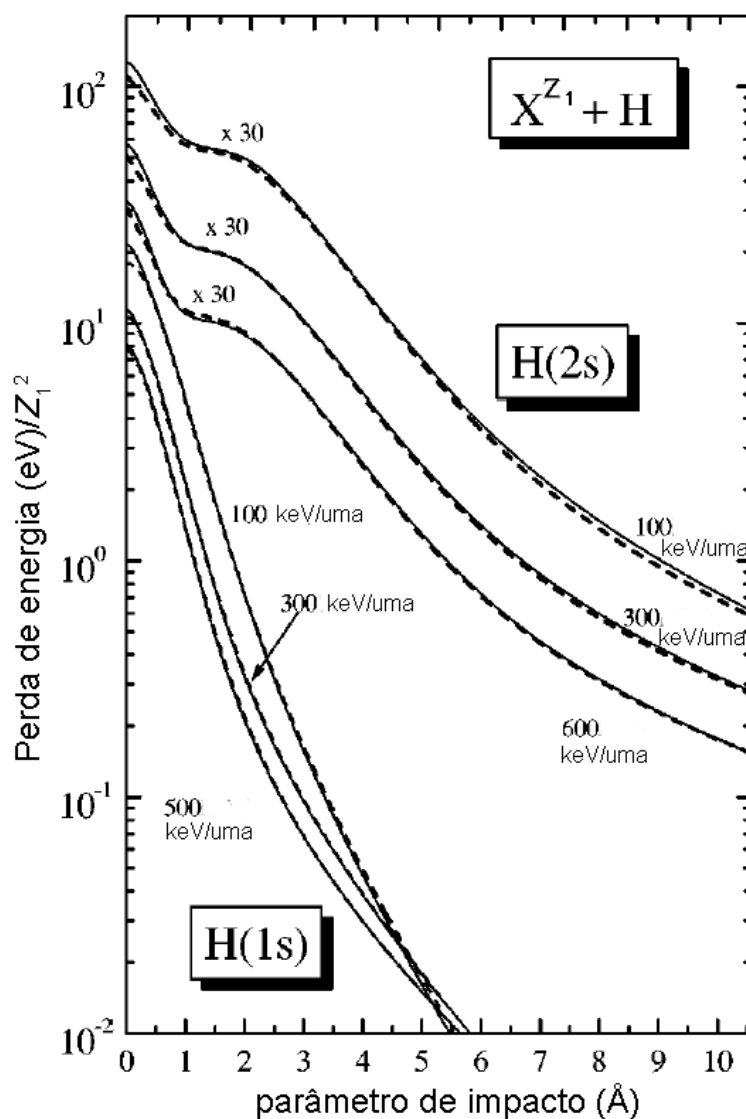
A base principal para a extensão do modelo PCA para o UCA foi o trabalho de Bloch [9], já apresentado no capítulo 2, seção 2.2. A fórmula de Bloch pode ser escrita como:

$$S_{elctr.}^{Bloch} = \frac{4\pi Z_1^2}{v_1^2} N \sum_n f_n \left\{ \ln \left( \frac{2v_1^2}{\omega_n} \right) - \ln(\eta) \right\}, \quad (4.46)$$

com:

$$\eta = \exp \left[ \operatorname{Re} \psi(1+i\gamma) - \psi(1) \right] = \exp \left[ \gamma^2 \sum_{l=1}^{\infty} \frac{1}{l(l^2 + \gamma^2)} \right], \quad (4.47)$$

sendo  $\gamma = Z_1/v_1$  (ou  $\gamma = Z_1 e^2 / (4\pi \epsilon_0 \hbar v_1)$ ) em unidades do S.I.).



**Figura 4.13** – A perda de energia eletrônica é mostrada como função do parâmetro de impacto para íons  $X$  nus (com carga nuclear  $Z_1$ ) colidindo com átomos de  $H$ . Os resultados são apresentados para velocidades dos íons escalonadas de 100, 300, 500 e 600 keV/uma e para o estado fundamental  $1s$ , assim como para o estado inicial  $2s$  (essas curvas estão multiplicadas por um fator 30). As linhas cheias representam os cálculos completos de primeira ordem [28, 54] e as linhas tracejadas correspondem aos resultados da Aproximação de Convolução Perturbativa [33].

A fórmula de Bloch se reduz ao resultado de Bethe, para pequenos valores de  $Z_1$ , e à fórmula de Bohr, para grandes valores de  $Z_1$  [4, 5], como mencionado no capítulo 2. Mas, na teoria de perturbação de primeira ordem, as probabilidades de ionização para um certo parâmetro de impacto podem exceder 100%, uma vez que elas são estritamente proporcionais a  $Z_1^2$ . Já na teoria de Bloch, cada componente de momentum do estado inicial leva a uma distribuição de momenta para o estado final, no referencial do projétil, cuja soma é sempre igual à unidade. Assim, não há criação artificial de elétrons (uma probabilidade de 100% para encontrar o elétron no estado inicial mais uma probabilidade adicional para excitação e ionização) como acontece na teoria de perturbação.

Grande e Schiwietz se basearam nessa abordagem de Bloch, com a conservação da unitariedade mencionada no parágrafo anterior, para melhorar o modelo PCA. Eles modificaram seu tratamento para a contribuição devida a colisões próximas, introduzindo um escalonamento dos parâmetros de impacto na função  $h$  da equação (4.45), de acordo com [34]:

$$T(b) = \frac{2Z_1^2}{v_1^2 b^2} \times h\left(\frac{2v_1 b}{\eta}\right) \times \sum_i f_i g\left(\frac{\omega_i b}{v_1}\right). \quad (4.48)$$

A variável  $\eta$ , tomada da equação (4.47), escalona a distribuição de parâmetros de impacto para colisões próximas. Esse escalonamento é definido pelo ajuste da perda de energia integrada sobre os parâmetros de impacto para que ela seja igual ao valor de Bloch ( $\int Q(b) 2\pi b db = S_{elet.}^{Bloch}$ ), sendo assumidas regiões bem separadas de colisões próximas e distantes, ou seja, funções  $g$  e  $h$  bem separadas. Dessa forma, a equação (4.48) é consistente com a fórmula de Bloch a altas velocidades, além de incluir um tratamento melhorado das colisões próximas, se comparada com a equação (4.44) do modelo PCA.

Resultados numéricos de cálculos de canais acoplados de alta precisão [28, 186], que apresentam um acordo em geral muito bom com resultados experimentais, foram empregados para verificar a validade da abordagem UCA [34]. Um exemplo dessa comparação é mostrado na figura 4.14, onde as perdas de energia calculadas,

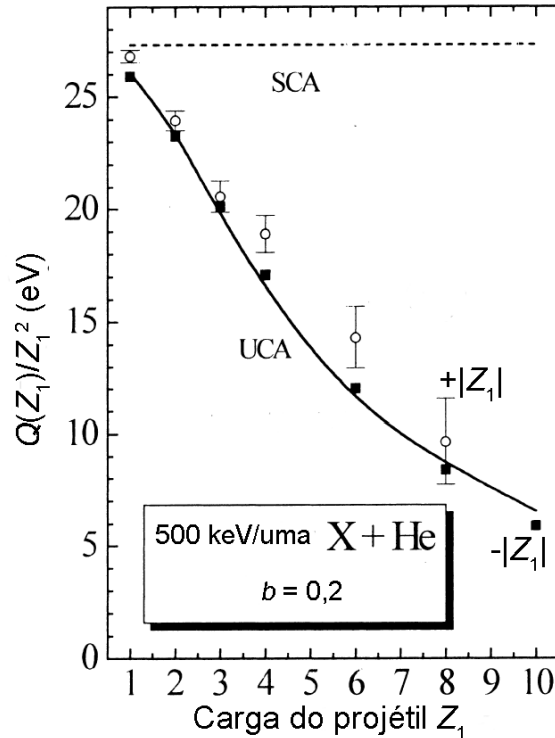


escalonadas com  $Z_1^2$ , são mostradas em função da carga do projétil  $Z_1$  para um parâmetro de impacto pequeno ( $b = 0,2$  u. a.) em comparação ao raio da camada 1s do átomo de He ( $r_0 = 0,6$  u. a.). A linha cheia representa os cálculos do modelo UCA. Os resultados do cálculo com a SCA também são mostrados, aparecendo como uma linha reta tracejada (uma vez que são estritamente proporcionais a  $Z_1^2$ ). Os círculos e os quadrados representam os cálculos de canais acoplados para íons carregados positiva e negativamente, respectivamente. Pela diferença entre esses dois resultados, pode-se ver que efeitos de alta ordem relacionados à carga do íon (efeito Barkas) são bastante pequenos em comparação com efeitos de alta ordem relacionados à potências pares de  $Z_1$ , que correspondem à diferença entre os cálculos de canais acoplados e os cálculos SCA. Esses efeitos estão incluídos no modelo UCA, o qual (como se pode ver pela concordância com os resultados de canais acoplados) os descreve muito bem. Como os cálculos de canais acoplados para íons positivos incluem contribuições devido à captura de elétrons, é de se esperar que resultem numa perda de energia um pouco maior que a calculada pela UCA, que não reproduz esse efeito.

Dessa forma, assim como no caso perturbativo, também a Aproximação de Convolução Unitária fornece uma fórmula precisa, simples, e que requer pequeno tempo de computação para o cálculo da perda de energia de íons velozes.

#### 4.4.3 – A incorporação do efeito de blindagem

Toda a análise dos modelos PCA e UCA, feita até aqui, considerou apenas íons penetrando no alvo sem elétrons ligados. A fim de estender a validade dos modelos para casos onde os íons carregam elétrons ligados, Schiwietz, Grande e Azevedo desenvolveram uma maneira de levar em conta a blindagem causada por esses elétrons na perda de energia dos íons [35]. Nessa abordagem, os elétrons são tratados como se fossem uma densidade de carga “congelada”, de forma que só blindam a interação coulombiana do projétil com os elétrons do alvo.



**Figura 4.14** – Resultados não-perturbativos para a perda de energia a pequenos parâmetros de impacto em colisões de íons  $X$  de carga  $Z_1$  a 500 keV/uma com átomos de He, comparados aos valores obtidos por teoria de perturbação de primeira ordem (SCA, linha tracejada). Os cálculos de canais acoplados para íons com carga positiva e com carga negativa são representados por círculos e quadrados, respectivamente. Os resultados obtidos com o modelo UCA são representados pela linha cheia [34].

A contribuição dos elétrons ligados ao projétil para a perda de energia foi analisada em função de três tipos de potenciais de interação coulombianos blindados para a interação entre o projétil e os elétrons do alvo. Esses potenciais contêm, além da parte coulombiana devida à carga do núcleo do projétil, um potencial estático produzido pelos elétrons ligados ao projétil, os quais blindam a carga do núcleo do mesmo. Esse tipo de potencial pode ser calculado a partir de:

$$V(\vec{R}-\vec{r}) = -\frac{Z_1}{|\vec{R}-\vec{r}(t)|} + \sum_n^{n_p} \int d^3r' \frac{|\Phi_n(\vec{r}')|^2}{|\vec{R}-\vec{r}-\vec{r}'|}, \quad (4.49)$$

onde  $\Phi_n$  são as funções de onda projétil-elétron e  $n_p$  é o número de elétrons ligados ao projétil. As funções de onda  $\Phi_n$  para cada elétron  $n$  do projétil podem ser obtidas de acordo com o procedimento Hartree-Fock-Slater (HFS) [35]. Na aplicação dessas funções aos modelos PCA e UCA, foram desconsiderados efeitos de blindagem dinâmica (uma dependência temporal de  $\Phi_n$  devido à polarização, excitação ou ionização do projétil), de correlação de Pauli (anti-simetrização das funções de onda centradas no projétil e no alvo) e efeitos de correlação dinâmica devido à interação elétron-elétron residual. Como mencionado, os elétrons do projétil somente blindam o núcleo deste, ou seja, permanecem no estado fundamental quando o alvo é excitado. Dessa forma, também é desconsiderado o assim chamado efeito de “anti-blindagem”, onde a interação elétron-elétron entre os elétrons ligados ao projétil e os elétrons do alvo resulta num aumento das seções de choque de ionização e excitação a energias intermediárias e altas [187, 188].

Os três potenciais de blindagem considerados foram [35]:

1. O potencial tipo Bohr-Yukawa,

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = -Z_1 \frac{e^{-\alpha|\vec{r} - \vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|}, \quad (4.50)$$

que é o potencial eletrostático produzido por uma carga  $Z_1$  puntiforme colocada num gás de elétrons homogêneo. Ele descreve aproximadamente a polarização dos elétrons de valência em um sólido devido à presença do projétil. Para íons lentos, o parâmetro de blindagem  $\alpha$  pode ser determinado a partir do comprimento de blindagem de Debye [50];

2. O potencial “single-zeta”,

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = - \left( \frac{(Z_1 - n_p)}{|\vec{r} - \vec{R}|} + n_p \frac{e^{-\alpha|\vec{r} - \vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|} \left( 1 + \frac{\alpha}{2} |\vec{r} - \vec{R}| \right) \right), \quad (4.51)$$

que descreve a interação do elétron do alvo ativo com projéteis carregando um ou dois elétrons ( $n_p = 1, 2$ ) em orbitais 1s hidrogenóides.

Nesse caso, o parâmetro  $\alpha$  é obtido a partir de uma carga efetiva do projétil, sendo  $\alpha = 2Z_1^{ef}$  ;

3. O potencial geral,

$$V(\vec{r} - \vec{R}) = - \left( \frac{(Z_1 - n_p)}{|\vec{r} - \vec{R}|} + n_p \sum_i^{n_{max}} \frac{e^{-c_i |\vec{r} - \vec{R}|}}{|\vec{r} - \vec{R}|} (a_i + b_i |\vec{r} - \vec{R}|) \right), \quad (4.52)$$

que é uma soma de potenciais tipo “single-zeta” generalizados e é apropriado para projéteis carregando muitos elétrons ligados. Os coeficientes  $a_i$ ,  $b_i$  e  $c_i$  são obtidos por um ajuste em relação ao potencial da equação (4.49) determinado numericamente. Em geral, o número de potenciais tipo “single-zeta”,  $n_{max}$ , corresponde ao número de camadas atômicas do projétil.

Partindo de tais potenciais de blindagem e seguindo um procedimento semelhante ao descrito anteriormente na seção 4.4.1 (desenvolvimento da PCA para íons nus), onde cada região de parâmetros de impacto foi analisada isoladamente, os autores encontraram uma fórmula que satisfaz as três regiões e leva em conta a blindagem estática dos elétrons ligados ao projétil. Essa fórmula é dada por [35]:

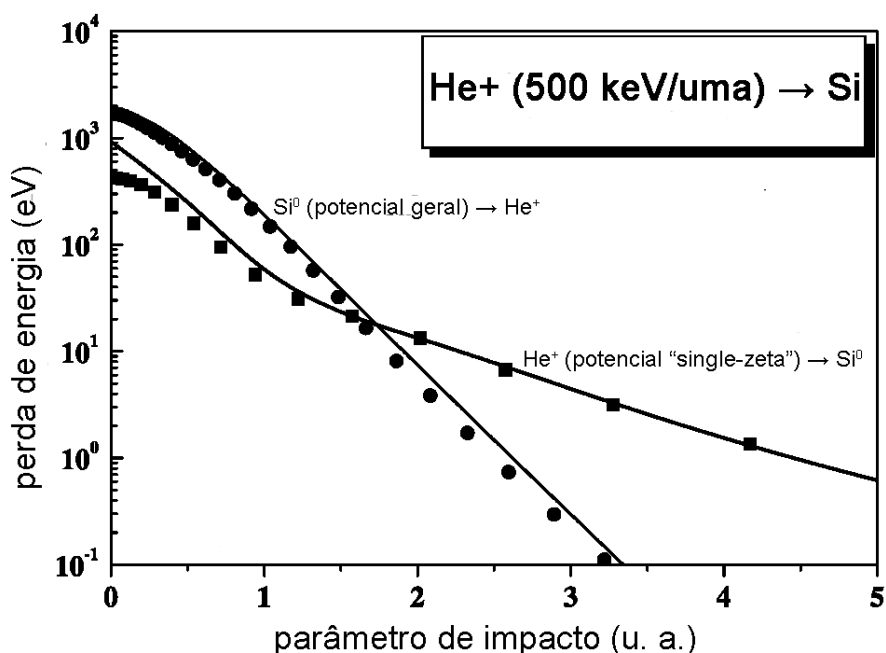
$$Q(b) = \int d^2 r_T \mathcal{K}(\vec{b} - \vec{r}_T) \int dz \rho(\vec{r}_T, z), \quad (4.53)$$

com:

$$\mathcal{K}(b) = \frac{2Z_1^2}{v_1^2 b^2} h(2v_1 b) \sum_i f_i g_{blind} \left( \frac{\omega_i b}{v_1} \right), \quad (4.54)$$

para o caso perturbativo (PCA). Para o caso unitário (UCA), é necessário considerar também o escalonamento dos parâmetros de impacto ( $\eta \neq 1$ ), como em (4.48). Como no caso de colisões próximas os elétrons do alvo interagem principalmente com o núcleo do projétil, é no caso de colisões distantes que a blindagem se manifesta, representada aqui pela função  $g_{blind}$ , que reduz fortemente as transições de dipolo de longo alcance. As formas dessa função para os três tipos de potenciais citados anteriormente podem ser encontradas na referência [35].

Alguns resultados do modelo PCA, incluindo o efeito de blindagem, são mostrados na figura 4.15. Nela estão os cálculos para a perda de energia devido à excitação e ionização de átomos de Si por íons de  $\text{He}^+$ . O potencial mais adequado para descrever esse caso é o tipo “single-zeta” (com  $Z_1^{\text{ef}} = 2$ ). Além dos resultados da PCA blindada (linha cheia), também cálculos SCA foram realizados para esse caso (círculos cheios), e a concordância observada é muito boa. Além desses resultados, na figura ainda aparecem os resultados relativos à excitação de íons de He a 500 keV/uma por átomos de Si, correspondendo aos processos de perda de elétrons e excitação do projétil. Para esse caso, o potencial mais adequado é o geral. Os resultados da PCA blindada (linha cheia) são novamente comparados com os resultados de cálculos SCA (quadrados cheios) feitos para o mesmo potencial, e o acordo observado é também muito bom.



**Figura 4.15** – Comparação dos resultados obtidos por cálculos PCA (curvas) e SCA (símbolos) para um íon de  $\text{He}^+$  colidindo com um átomo de Si. A curva mais inclinada e os círculos representam a perda de energia devida à ionização e excitação do projétil durante o processo de colisão. Já a outra curva e os quadrados representam a perda de energia devida à excitação e ionização do alvo [35].

A fim de comparar os resultados calculados pelas aproximações de convolução com dados experimentais, é necessário integrar-se a perda de energia calculada  $Q(b)$  sobre todos os parâmetros de impacto, de acordo com a distribuição de fluxo dos íons. No caso de materiais não-cristalinos ou direções não alinhadas em cristais, esse fluxo é uniforme. Porém, ao longo de um eixo ou plano de um material cristalino, é necessário calculá-lo resolvendo-se as equações de Newton para um arranjo de íons. Além dessa questão, ainda a questão do estado de carga dos íons tem que ser levada em conta. Dependendo das condições experimentais, a perda de energia pode ser determinada num estágio de pré-equilíbrio, para estados de carga constantes (“congelados”) do projétil ou sem qualquer processo de troca de carga.

Entretanto, a maioria dos dados sobre perda de energia foi medida numa condição de equilíbrio do estado de carga. Isso significa que a perda de energia medida corresponde a um valor médio sobre todos estados de carga do projétil, de acordo com as frações de carga  $f_q$ . Além disso, a perda de energia devida aos processos de excitação/ionização do projétil (como ilustrado na figura 4.15) tem que ser incluída nesse caso. Em geral, o poder de freamento médio de equilíbrio é dado por:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{equil} = \sum_q f_q \left( \left(\frac{dE}{dx}\right)_{alvo}(q) + \left(\frac{dE}{dx}\right)_{proj}(q) \right), \quad (4.56)$$

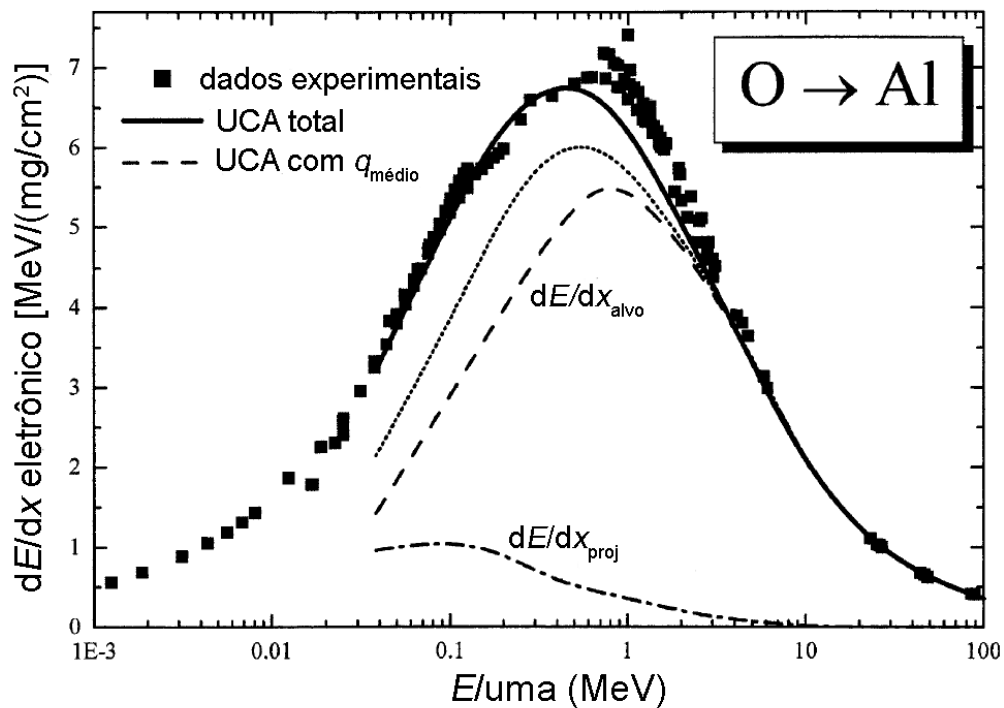
onde o primeiro termo da soma corresponde ao poder de freamento para ionização/excitação do alvo e captura devido a um projétil com um estado de carga inicial  $q$  bem definido. O segundo termo representa o poder de freamento devido à excitação/ionização do projétil.

A figura 4.16 mostra dados experimentais de diferentes grupos [167] para o poder de freamento de equilíbrio relativo ao caso de íons de O incidindo em alvos de Al (fora de condições canalizadas), comparados com cálculos UCA (incluindo a blindagem) realizados segundo o procedimento descrito acima. A linha cheia corresponde aos cálculos de acordo com a equação (4.56), com as frações de carga estimadas a partir da referência [146], considerando-se uma distribuição gaussiana ao redor do estado de carga médio  $q_{médio}$  com desvio padrão obtido por uma fórmula de ajuste dada em [146]. As forças de oscilador para o Al foram calculadas usando-se o procedimento citado em

[33], de forma a obter o valor de  $I$  sugerido pela ICRU (International Commission on Radiation Units and Measurements). Para o caso da excitação/ionização do projétil, os poderes de freamento foram calculados trocando-se os papéis do projétil e do alvo, e também pelo uso do procedimento HFS para determinar a densidade eletrônica, energias de ligação e forças de oscilador para todos os estados de carga do projétil. Exceto para energias intermediárias, o acordo entre os cálculos UCA e os resultados experimentais é muito bom. As diferenças entre ambos na região de 1 MeV/uma chegam a 10% e são atribuídas à soma de todos os efeitos que não são levados em conta no cálculo UCA, tais como o efeito Barkas, as correções de camadas e a captura de elétrons em estados ligados do projétil. Para energias bem mais baixas, em torno de 0,1 MeV/uma, a concordância pode ser acidental, devida à compensação de alguns dos efeitos recém-citados. A figura também mostra quão importante é o papel da distribuição de estados de carga na determinação do poder de freamento total. Um modelo (linha tracejada) que emprega somente um estado de carga médio fixo do projétil para o cálculo de  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{alvo}$

(sem fazer a média sobre a distribuição de estados de carga) e considera  $\left(\frac{dE}{dx}\right)_{proj} = 0$

só prediz valores confiáveis para energias acima de 2 MeV/uma, sendo que para energias mais baixas grandes desvios em relação aos dados experimentais aparecem. Incertezas de aproximadamente 20% (entre as curvas tracejada e pontilhada) resultam da substituição da distribuição dos estados de carga por um estado de carga médio para a ionização/excitação do alvo. Finalmente, a figura mostra que a contribuição ao poder de freamento devida à excitação/ionização do projétil chega a 30% em energias próximas de 0,04 MeV/uma.



**Figura 4.16** – Poder de freamento médio de equilíbrio para O em Al. *Símbolos*: dados experimentais compilados em [167]. *Curvas*: cálculos UCA para o poder de freamento total (cheia), para o poder de freamento devido apenas aos elétrons do alvo usando as frações de carga (pontilhada), para o poder de freamento devido à excitação/ionização do projétil (traço-ponto) e cálculos do modelo com a aproximação de estado de carga médio (tracejada) [182].

Mais comparações dos resultados UCA com dados experimentais e detalhes sobre o programa CASP serão apresentados no capítulo 5, relativos aos resultados deste trabalho de tese.



## CAPÍTULO 5

### PROCEDIMENTOS E RESULTADOS

#### 5.1 – Introdução

Nesse capítulo, serão apresentados os procedimentos experimentais e de cálculos desenvolvidos ao longo deste trabalho de tese, distribuídos em função do tipo de análise realizada, a saber:

- Medidas do poder de freamento em alvos de Si amorfo: esse tipo de medidas, realizadas para íons de Be, B e O incidentes a várias energias, teve dois propósitos. Um foi obter valores inéditos do poder de freamento de íons de Be em alvos de Si amorfo, assim como estender a faixa de energia para os casos já investigados de íons de B e O. Além de servirem como dados de referência para várias aplicações, esses resultados também podem ser usados para testar a validade dos modelos existentes para a perda de energia eletrônica em alvos amorfos. O outro motivo foi obter dados autoconsistentes, necessários para proceder com a análise das medidas em direção canalizada dos íons estudados;
- Medidas do “stragglings” (flutuação estatística da perda de energia) em alvos de Si amorfo: as medidas de “stragglings” foram realizadas para íons de Be e O incidentes em várias energias. Esses resultados também são inéditos na literatura.
- Medidas do poder de freamento em alvos de Si cristalino: esse tipo de análise foi realizado para o caso de íons de Be, B e O incidindo ao longo dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  de uma camada de Si cristalino em alvos tipo SIMOX (Separated by IMplanted OXigen), para um amplo intervalo de energias dos íons incidentes. Os resultados para o Be são os primeiros

desse tipo a serem publicados, enquanto os resultados para o O abrangem uma faixa de energias bem maior que a dos dados previamente existentes. Já os dados obtidos para o caso do B mostram um desvio em relação aos previamente existentes. Os resultados de medidas de poder de freamento em direção canalizada são importantes tanto para uso em análises com feixes de íons como para buscar um melhor entendimento dos processos de interação íon-sólido. Em especial, neste trabalho de tese, o que se buscou foi um melhor entendimento da contribuição do efeito Barkas para a perda de energia.

- Cálculos para o poder de freamento em direção canalizada e o efeito Barkas: com a ajuda dos modelos UCA e TCS-EFSR, descritos no capítulo 4, e do programa Barret de simulação tipo Monte-Carlo para obter a distribuição de fluxo dos íons ao longo dos canais, foram calculados tanto o poder de freamento em direção canalizada como a contribuição Barkas para a perda de energia. Os resultados foram então comparados com os dados experimentais.

## 5.2 – Medidas de poder de freamento em alvos de Si amorfo

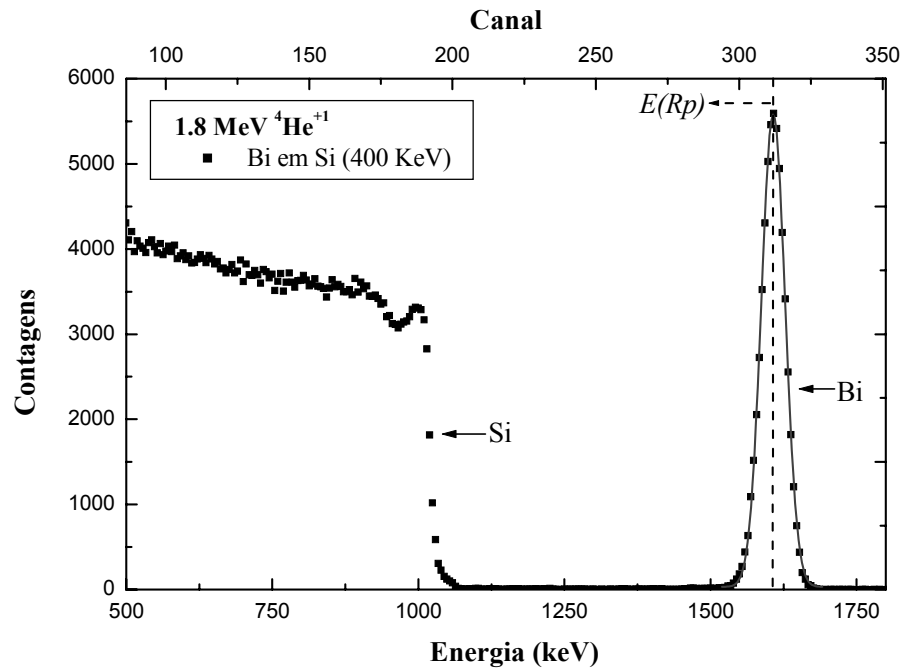
Para esse tipo de medidas, foram utilizadas amostras de Si cristalino, previamente amorfizadas pela irradiação de feixes de Ar, e posteriormente implantadas com íons de Bi (que serviram como marcadores, pois ficaram distribuídos em torno de uma profundidade bem definida), em conjunto com a técnica de análise por retroespalhamento Rutherford (RBS). As implantações foram realizadas no Implantador de Íons de 500 kV, enquanto as análises foram desenvolvidas nele e no acelerador Tandem de 3 MV, ambos pertencentes ao Laboratório de Implantação Iônica do Instituto de Física da UFRGS. Os íons retroespalhados foram coletados em detectores de Si de barreira de superfície, colocados a  $170^\circ$  em relação à direção de incidência do feixe. O tamanho das amostras utilizadas foi tipicamente de 2 cm de largura, 2 cm de comprimento e 1,5 mm de espessura.

Primeiramente, as amostras de Si monocristalino <100> foram submetidas a um processo de limpeza. Esse processo é constituído pelos seguintes passos:

- Fervura em uma solução contendo 80% (40 ml) de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  e 20% (10 ml) de  $\text{H}_2\text{O}_2$ , a  $60^\circ\text{C}$ , durante 15 minutos, a fim de remover gorduras e partículas orgânicas depositadas na superfície;
- Lavagem em água destilada corrente durante alguns minutos, para remover resíduos ácidos;
- Imersão em uma solução 1:1 de HF (25 ml) e álcool isopropílico (25 ml), por 10 minutos, a fim de remover a camada de  $\text{SiO}_2$  nativo ( $\sim 30 \text{ \AA}$ ) existente na superfície da amostra;
- Nova lavagem com água destilada corrente;
- Secagem com um jato de  $\text{N}_2$ .

As amostras foram então amorfizadas pela implantação de íons de  $\text{Ar}^+$  em fluências de  $5 \times 10^{14}$  íons/ $\text{cm}^2$ , com energias de 200 ou 400 keV. A seguir, cada amostra amorfizada foi implantada com íons de Bi de uma certa energia e fluência. Foram empregados feixes de  $\text{Bi}^+$  de 30, 50, 100, 200 e 400 keV e fluência  $2 \times 10^{16}$  íons/ $\text{cm}^2$ , além de feixes de  $\text{Bi}^{++}$  de 900 keV e fluência  $1 \times 10^{16}$  íons/ $\text{cm}^2$ , a fim de se obter amostras com marcadores de Bi implantados a diferentes profundidades.

Feixes de  $\text{He}^+$  de 1,2; 1,8 e 3 MeV, cujo poder de freamento em Si é bem conhecido [147, 189, 190], foram então empregados para determinar o alcance projetado  $R_p$  das distribuições de Bi (definido no capítulo 3), ou seja, a profundidade na qual elas estão centradas. Um espectro típico de RBS para o caso de uma amostra de Si amorfizada e implantada com  $\text{Bi}^+$  a 400 keV é mostrado na figura 5.1. O espectro inicial foi obtido como número de contagens em função do número do canal. Realizando-se a calibração em energia do sistema, pôde-se passar a uma representação de número de contagens em função da energia dos íons. Um ajuste gaussiano foi então realizado, para se obter o valor central (do pico) da distribuição. Como o fator de perda de energia (equação 3.22) para o He é conhecido, pôde-se, através da relação (3.21), converter o valor em energia do pico  $E(R_p)$  para o valor em profundidade  $R_p$  correspondente. Nessa análise, a aproximação à energia de superfície (capítulo 3.3.2.3) foi empregada.



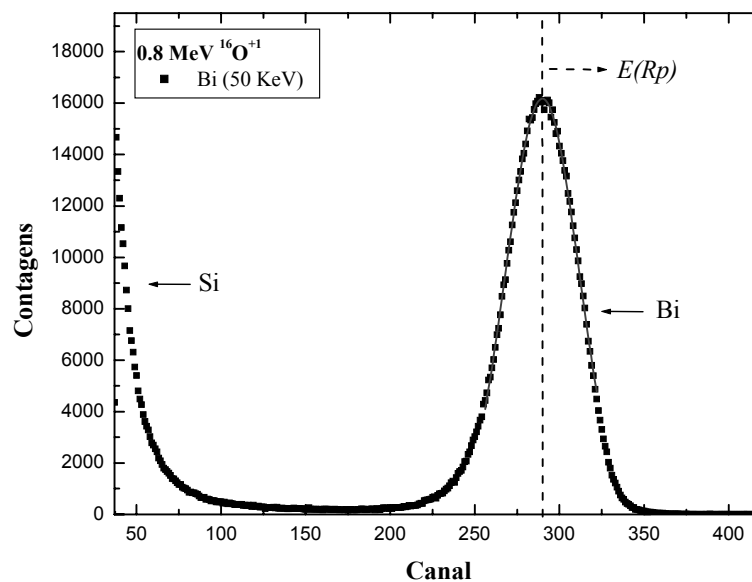
**Figura 5.1** – Espectro de RBS tomado para um feixe de  $He^+$  de 1,8 MeV incidindo sobre uma amostra de Si implantada com Bi a uma energia de 400 keV e fluência  $2 \times 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>. A linha tracejada indica a posição correspondente ao centro da distribuição  $E(R_p)$ , determinado pelo ajuste gaussiano (linha cheia), localizado na profundidade  $R_p$ , correspondente a uma energia de 1,61 MeV.

Os alcances projetados, medidos com feixes de He, para as diferentes energias de implantação de Bi, estão resumidas na tabela 5.1. Vale ressaltar que a resolução do sistema eletrônico é melhor que 13 keV.

**Tabela 5.1** – Energias de implantação dos marcadores de Bi em amostras de Si amorfo e os respectivos alcances calculados a partir de medidas com feixes de He.

Energia de implantação (keV)	Alcance projetado $R_p$ (Å)
30	$195 \pm 30$
50	$270 \pm 30$
100	$440 \pm 50$
200	$760 \pm 60$
400	$1490 \pm 80$
900	$2970 \pm 100$

A seguir, as amostras foram irradiadas com feixes de Be, B ou O a diferentes energias. Um exemplo do tipo de espectro de RBS obtido é mostrado na figura 5.2, para o caso de íons de O com energia de 800 keV incidindo em uma amostra implantada com Bi a 50 keV. A partir da energia dos íons retroespalhados pelos marcadores de Bi (indicada por  $E(Rp)$  na figura 5.2), foi possível determinar o fator de perda de energia para os íons incidentes (Be, B ou O), pelo uso das equações (3.21) e (3.22), uma vez que a profundidade do marcador e a energia dos íons são agora conhecidas nessa situação.



**Figura 5.2** – Espectro de RBS para um feixe de O de 0,8 MeV incidindo sobre uma amostra de Si implantada com Bi a 50 keV.

Entretanto, para se obter a perda de energia, foi necessário realizar medidas a várias geometrias diferentes, uma vez que, na equação (3.22), tanto a perda de energia na energia de entrada como a perda de energia na energia de saída dos íons são as incógnitas a se determinar. Em princípio, apenas duas geometrias diferentes seriam necessárias para se determinar essas grandezas, mas, a fim de obter uma média mais completa, cinco geometrias diferentes foram usadas para cada caso. Cada geometria é definida em função dos ângulos  $\theta_1$  e  $\theta_2$ , sendo o primeiro o ângulo entre a direção do feixe e a direção normal à superfície da amostra, e o último o ângulo entre a direção do detector e a direção normal à superfície da amostra. Vale notar que  $\theta_1$  e  $\theta_2$  são escolhidos

de maneira que o ângulo de espalhamento,  $\theta = \pi - (\theta_1 + \theta_2)$ , seja sempre o mesmo, para evitar a variação do fator cinemático  $K$  de uma medida para outra. Os valores usados para esses ângulos são apresentados na tabela 5.2. Para realizar esse tipo de medidas com variação de geometrias, foi utilizado um goniômetro de três eixos, com precisão de  $0.01^\circ$ , enquanto o detector de Si de barreira de superfície para íons pesados foi montado sobre um eixo móvel, e posicionado num ângulo de espalhamento de  $120^\circ$ , de acordo com o indicado na tabela 5.2.

É possível reescrever a equação (3.22) na forma:

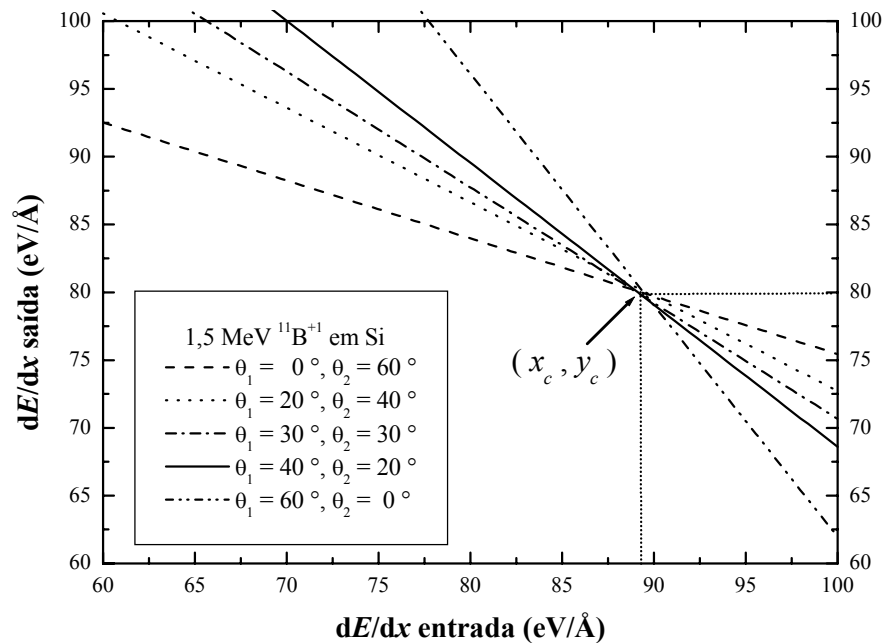
$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{saída}} = [S] \cos \theta_2 - \frac{K \cos \theta_2}{\cos \theta_1} \left(\frac{dE}{dx}\right)_{\text{entrada}}, \quad (5.1)$$

que é semelhante à equação genérica de uma reta,  $y = a + bx$ . Uma vez que  $[S]$ ,  $K$ ,  $\theta_1$  e  $\theta_2$  são conhecidos para cada geometria, pode-se obter uma reta para cada uma delas. Como todas as medidas são feitas na mesma energia, o ponto  $(x,y)$  onde as retas se cruzam (equivalente à solução do sistema de cinco equações lineares) fornece os valores da perda de energia na energia de entrada e na energia de saída, respectivamente. Na figura 5.3, estão as retas obtidas para o caso de um feixe de O incidindo sobre uma amostra implantada com Bi a 100 keV.

**Tabela 5.2** – Geometrias para a determinação da perda de energia em Si amorfo.

$\theta_1$ ( $^\circ$ )	$\theta_2$ ( $^\circ$ )	$\theta = \pi - (\theta_1 + \theta_2)$ ( $^\circ$ )
0	60	120
20	40	120
30	30	120
40	20	120
60	0	120

Para melhor especificar as condições de cada caso, os resultados para a perda de energia eletrônica de Be, B e O em alvos de Si amorfo serão agora apresentados em subseções separadas.

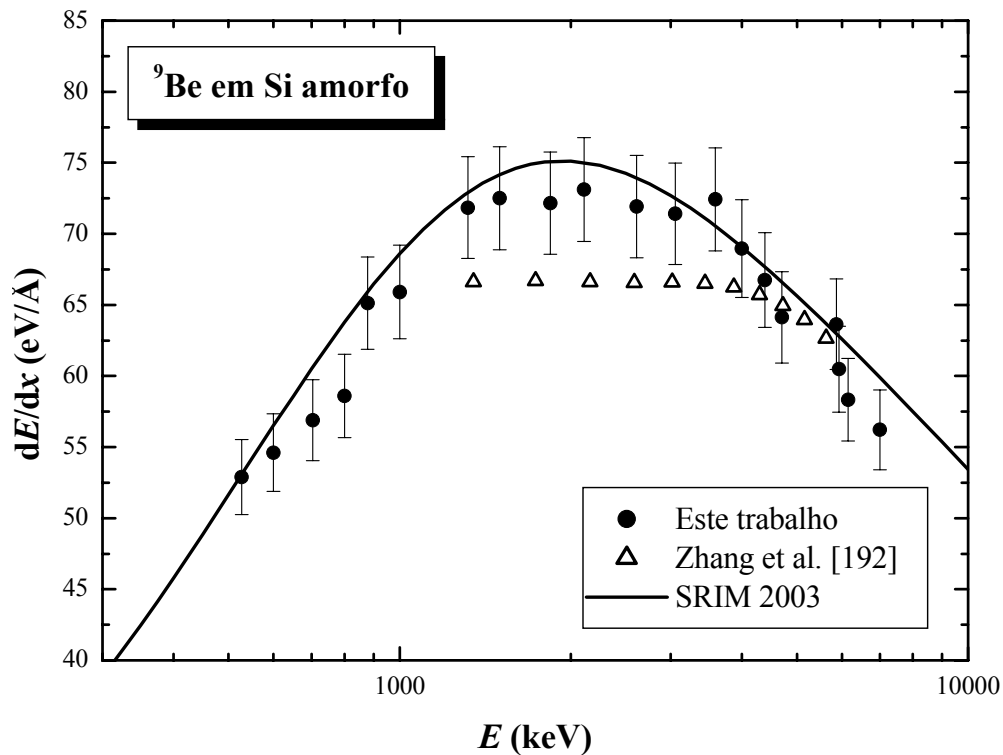


**Figura 5.3** – Resultado do método das retas para a determinação da perda de energia de íons de B incidindo com  $E_0 = 1,5$  MeV sobre uma amostra de Si implantada com Bi a 100 keV. O ponto médio de cruzamento das retas  $(x_c, y_c)$  fornece os valores da perda de energia na energia de entrada (igual a  $E_0$ , na aproximação de energia de superfície) e na energia de saída (igual a  $KE_0$ , na aproximação de energia de superfície), respectivamente. As linhas pontilhadas partindo do ponto  $(x_c, y_c)$  até os eixos servem apenas para ilustrar os valores de  $x_c$  e  $y_c$ .

### 5.2.1 – Be em Si amorfo

As medidas com feixes de Be foram realizadas no intervalo de energias entre 0,5 e 7 MeV no acelerador Tandetron de 3 MV. Quando da sua realização, não havia nenhum estudo similar publicado. Porém, em 2002, Zhang *et al.* publicaram um estudo sobre a perda de energia de vários íons em Si amorfo [191], inclusive Be. Esses dados foram rerepresentados, com algumas correções, recentemente [192]. Eles abrangem uma região de energia menor que a estudada neste trabalho de tese, como pode ser visto na figura 5.4. Nela, pode-se observar que há uma concordância entre os dois trabalhos experimentais apenas para energias mais altas, enquanto para energias mais baixas os dados de Zhang e colaboradores [192] fornecem valores de perda de energia sempre

menores que os deste trabalho de tese. Também são apresentados os valores de perda de energia eletrônica obtidos com os cálculos do programa SRIM 2003 [57], versão .26, os quais estão em bom acordo com os resultados deste trabalho. A resolução do sistema eletrônico para as medidas com feixes de Be foi melhor que 20 keV.



**Figura 5.4** – Resultados para a perda de energia de íons de Be em alvos de Si amorfo obtidos durante este trabalho de tese, comparados com outros resultados, indicados na legenda.

### 5.2.2 – B em Si amorfo

No caso do poder de freamento para íons de B em Si, já existiam dois trabalhos publicados quando da realização destas medidas, um pelo próprio Grupo de Implantação Iônica do IF-UFRGS [193] e outro por Jiang *et al.* [194]. Porém, esses trabalhos cobriam regiões de energia diferentes, não muito amplas e com tendências divergentes. A fim de obter dados consistentes em uma região de energia bem mais ampla, durante

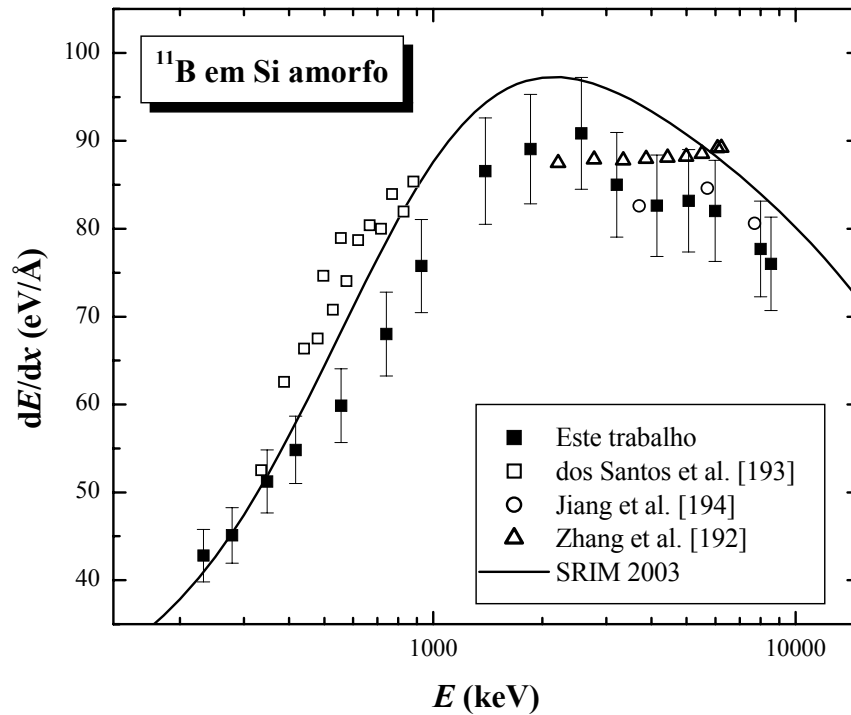


este trabalho de tese foram realizadas medidas do poder de freamento de B em Si amorfo na região de energias entre 0,23 e 9 MeV. Recentemente, o mesmo grupo que havia realizado medidas para a perda de energia de Be em Si também publicou dados da perda de energia de B em Si [192].

Os resultados experimentais são mostrados na figura 5.5, juntamente com o resultado teórico obtido pelo uso do programa SRIM 2003 [57]. Como pode ser observado, os resultados para baixas energias de dos Santos *et al.* [193] diferem dos deste trabalho em até 13%, ao passo que para energias mais altas a diferença em relação aos dados do grupo de Zhang [192] chega a 9%. Os dados de Jiang *et al.* [194] estão em bom acordo com os resultados deste trabalho, enquanto as previsões do programa SRIM 2003 [57] concordam bem com os mesmos a muito baixas energias, divergindo, porém, na região do máximo de perda de energia (1,5 a 3 MeV), onde a diferença chega a aproximadamente 8%.

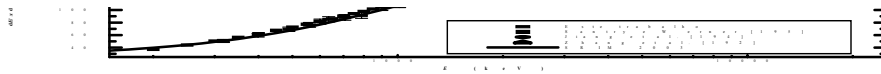
### 5.2.3 –O em Si amorfo

Previamente a este trabalho, já existiam dois outros relacionados com a perda de energia de íons de O em Si amorfo, ambos abrangendo regiões de energia diferentes, tendo um sido publicado por Santry e Werner [195] e o outro por Jiang *et al.* [194]. Com a finalidade de obter dados coerentes em uma ampla faixa de energia, foram realizadas, durante este trabalho de doutoramento, medidas entre 0,35 e 13,5 MeV para a perda de energia de O em Si amorfo. De forma semelhante ao caso do B, após os resultados deste trabalho de tese terem sido publicados, Zhang *et al.* [192] apresentaram resultados para a perda de energia de O em Si amorfo. Todos esses resultados experimentais estão na figura 5.6, juntamente com os cálculos do programa SRIM 2003 [57].



**Figura 5.5** – Resultados para a perda de energia de íons de B em alvos de Si amorfo obtidos durante este trabalho de tese, comparados com outros resultados, indicados na legenda.

Através da figura 5.6 abaixo, pode-se inferir que os dados deste trabalho estão em muito bom acordo com os de Santry e Werner [195], porém divergem dos resultados de Zhang *et al.* [192] na região do máximo de perda de energia, estando  $\sim 10\%$  abaixo de tais valores. O acordo com os dados de Jiang *et al.* [194] é um pouco melhor, sendo a diferença da ordem de 7%. O acordo com os cálculos do programa SRIM 2003, em geral, é bom, exceto pela discrepância de  $\sim 7\%$  na região do máximo de perda de energia.



**Figura 5.6** – Resultados para a perda de energia de íons de B em alvos de Si amorfo obtidos durante este trabalho de tese, comparados com outros resultados, indicados na legenda.

### 5.3 – Medidas de “straggling” em alvos de Si amorfo

Para determinar o efeito do “straggling” em energia para íons de Be e O em alvos de Si amorfo, foram usados os mesmos espectros de RBS (como os ilustrados nas figuras 5.1 e 5.2) empregados na determinação do poder de freamento, além dos espectros de filmes de Au usados para a calibração em energia do sistema.

Primeiramente, foi encontrada a contribuição da resolução em energia do sistema de análise (detetor + eletrônica) para o “straggling”,  $\Omega_{rHe}$ , quando o feixe incidente era composto de íons de He. Isso foi feito através da determinação da largura da borda frontal do sinal do Au (pelo ajuste de uma função erro) no espectro de RBS usado para a calibração do sistema. Como a amostra consistia de um filme de 2000 Å de Au depositado sobre um “waffer” de Si, a única contribuição de “straggling” presente no sinal frontal do Au (superfície da amostra) era  $\Omega_{rHe}$ , conforme ilustrado na figura 5.7a.

A seguir, foi determinado o “stragglings” total relacionado com o sinal dos íons de He retroespalhados pelas camadas marcadoras de Bi implantadas nas amostras de Si,  $\Omega_{tHe}$ , pelo ajuste de uma função gaussiana ao perfil do marcador, como ilustrado na figura 5.7b. Esse “stragglings” da medida experimental engloba três outras contribuições, na forma de uma soma quadrática, que é dada por:

$$\Omega_{tHe}^2 = \Omega_{rHe}^2 + \Omega_{He-Si}^2 + \Omega_{\Delta R_p}^2, \quad (5.2)$$

onde, além da contribuição ao “stragglings” devida à resolução do sistema de detecção, também aparecem a contribuição  $\Omega_{He-Si}$ , devida à perda de energia dos íons de He para o meio (Si), e a contribuição  $\Omega_{\Delta R_p}$ , devida ao fato do marcador ser uma distribuição em profundidade de íons de Bi. Na verdade, ainda há mais duas contribuições ao “stragglings” que podem influenciar as medidas de RBS, como é mencionado em [196]. Uma é chamada de *contribuição geométrica*, sendo devida ao tamanho finito do feixe e ao ângulo de aceitação do detetor, enquanto a outra é chamada de *contribuição devida ao espalhamento múltiplo*, sendo devida a sucessivas colisões com pequenos ângulos de espalhamento que acabam por causar um “alargamento” do feixe. Ambas contribuições foram calculadas para as medidas deste trabalho de tese, de acordo com o procedimento descrito em [196], mas os resultados indicaram que elas são muito pequenas em comparação às contribuições da equação (5.2), podendo ser desprezadas.

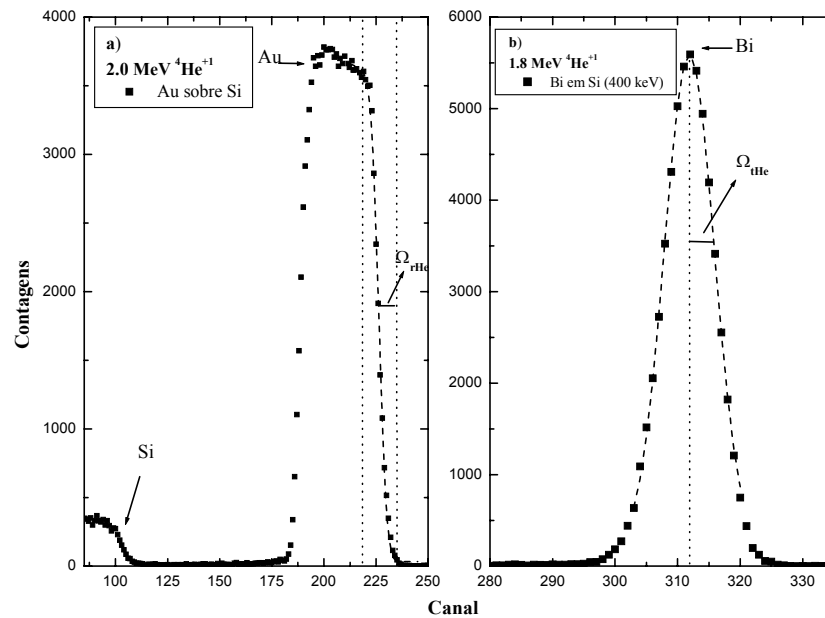
A contribuição  $\Omega_{He-Si}$  é conhecida, tendo sido medida por Niemann *et al.* [189, 190]. Dessa forma, a única contribuição desconhecida é justamente a que se queria calcular,  $\Omega_{\Delta R_p}$ , que foi determinada para todas as amostras implantadas com Bi a diferentes energias. Agora, de posse dos valores de  $\Omega_{\Delta R_p}$ , e invertendo a relação (5.2) para o caso dos íons incidentes serem de O, por exemplo, fica-se com:

$$\Omega_{O-Si}^2 = \Omega_{tO}^2 - \Omega_{rO}^2 - \Omega_{\Delta R_p}^2, \quad (5.3)$$

onde  $\Omega_{\Delta R_p}$  já é conhecido para todas as amostras, e  $\Omega_{tO}$  e  $\Omega_{rO}$  são determinados a partir dos resultados experimentais com feixes de O, de maneira idêntica ao que se fez para  $\Omega_{tHe}$  e  $\Omega_{rHe}$  com feixes de He.

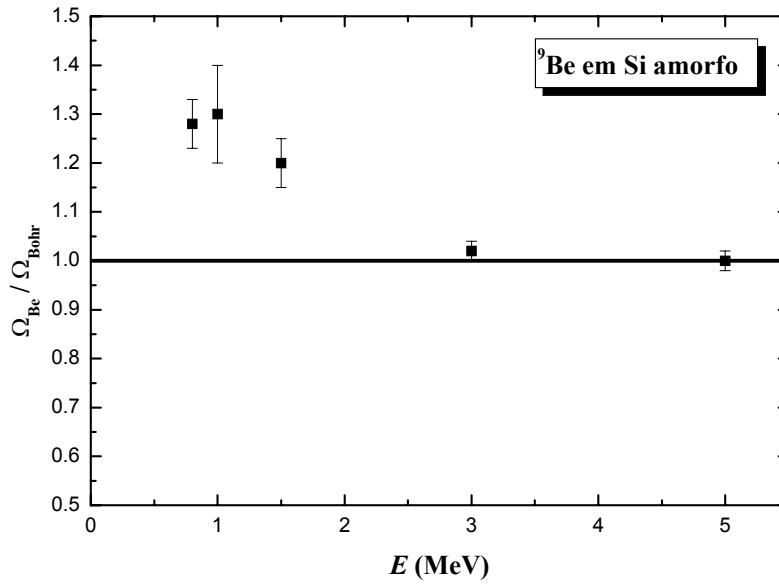
Seguindo esse procedimento, foram obtidos os valores para o “stragglings” relacionado à perda de energia de íons de Be e O incidindo sobre alvos de Si amorfo,

que são apresentados nas figuras 5.8 e 5.9, respectivamente. Em ambos os casos, os resultados estão normalizados ao valor do “stragglings” previsto pela teoria de Bohr para cada caso, apresentado no capítulo 3, equação (3.28). No presente estudo, a espessura  $t$  da amostra foi tomada como sendo  $R_p/\cos\theta_1$ .

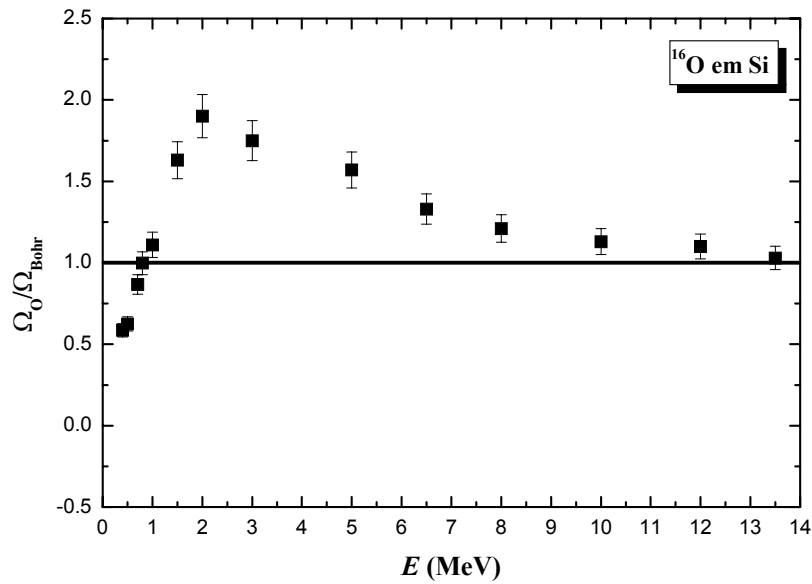


**Figura 5.7** – Determinação das contribuições ao “stragglings” para análises com feixes de He; a) contribuição devida à resolução do sistema, medida a partir do ajuste de uma função erro ao sinal do Au depositado sobre Si; b) contribuição total em uma amostra de Si implantada com Bi a 400 keV, pelo ajuste de uma função gaussiana ao sinal correspondente à distribuição em profundidade dos íons de Bi. As curvas tracejadas representam os ajustes, enquanto que as pontilhadas servem apenas como guias.

Como pode ser visto na figura 5.8, os resultados experimentais para o “stragglings” de Be a baixas energias são consideravelmente maiores que a previsão de Bohr, se aproximando dela a medida que a energia aumenta. Já para o caso do O, ilustrado na figura 5.9, a baixas energias os resultados experimentais são menores que a previsão teórica, ultrapassando-a, porém, na região entre 1,5 e 5 MeV (região do máximo da perda de energia), e finalmente tendendo ao seu valor para energias mais altas, como no caso do Be.



**Figura 5.8** – Resultados para o “straggling” relativo à perda de energia de íons de Be incidindo em alvos de Si amorfo, normalizados ao straggling de Bohr (linha cheia).

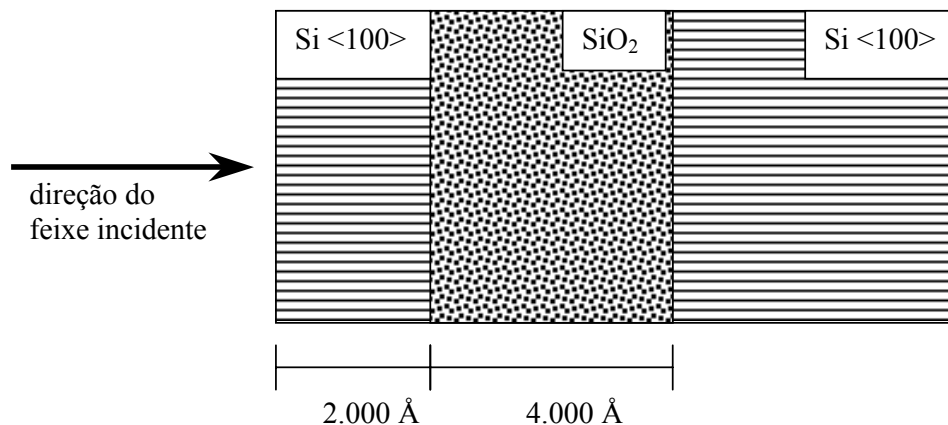


**Figura 5.9** – Resultados para o “straggling” relativo à perda de energia de íons de O incidindo em alvos de Si amorfo, normalizados ao straggling de Bohr (linha cheia).

#### 5.4 – Medidas do poder de freamento em alvos de Si cristalino

As medidas de poder de freamento de íons de Be, B e O ao longo dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  de alvos de Si cristalino foram realizadas empregando-se amostras tipo SIMOX (Separated by IMplanted OXigen)<sup>1</sup> e a técnica de canalização.

As amostras de SIMOX consistem em uma camada superficial de 2000 Å de Si cristalino  $\langle 100 \rangle$ , que fica sobre uma camada enterrada de SiO<sub>2</sub> de aproximadamente 4000 Å, a qual, por sua vez, está sobre um substrato de Si cristalino, como exemplifica a figura 5.10.



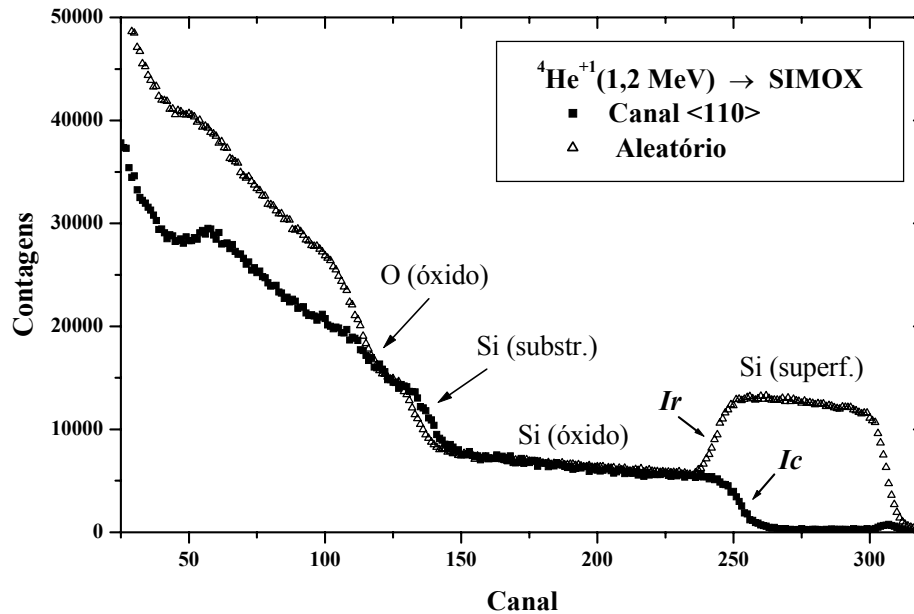
**Figura 5.10** – Esquema de uma amostra tipo SIMOX, com uma camada superficial de Si cristalino  $\langle 100 \rangle$ , sobre uma camada amorfa de SiO<sub>2</sub>, sobre um substrato de Si  $\langle 100 \rangle$ .

Esse tipo de amostra é ideal para o estudo da perda de energia em condição canalizada, porque a interface entre o Si  $\langle 100 \rangle$  cristalino da superfície e a camada de óxido é bastante uniforme (rugosidade menor que 2 nm), servindo como um excelente marcador, com profundidade bem determinada. Isso está ilustrado na figura 5.11, onde são apresentados dois espectros de RBS para um feixe de He incidindo em uma amostra de SIMOX, sendo um tomado em direção canalizada, ao longo do canal  $\langle 110 \rangle$ , e o outro tomado em direção não alinhada, usualmente chamada de direção aleatória.

Inicialmente, as amostras de SIMOX eram limpas pelo mesmo processo descrito no início da seção 5.2. A seguir, eram presas ao goniômetro, de forma a ser possível

<sup>1</sup> IZUMI, K.; DOKEN, M.; ARIYOSHI, H. CMOS devices fabricated on buried SiO<sub>2</sub> layers formed by oxygen implantation into silicon. *IEE – Electronics Letters*, v. 14, n. 18, p. 593-594, 1978.

realizar varreduras em ângulo em três direções diferentes, chamadas de  $x$ ,  $y$  e  $z$ , para determinar com precisão a posição dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  da camada superficial de Si.



**Figura 5.11** – Espectros de RBS tomados para um feixe de íons de He de 1,2 MeV incidindo sobre uma amostra de SIMOX. Os triângulos correspondem a uma medida feita num alinhamento aleatório (não-canalizado), enquanto os quadrados correspondem a uma medida feita com o feixe alinhado ao canal  $\langle 110 \rangle$  do Si. Partindo da direita (superfície da amostra) para a esquerda no espectro, pode-se ver o sinal do Si da camada superficial, que aparece como uma borda no caso aleatório e como um pequeno pico no caso canalizado, e a seguir a interface entre a camada superficial e a camada de óxido, indicada por **Ir** para o espectro aleatório e por **Ic** para o espectro canalizado. O fato dos íons perderem menos energia ao longo da direção canalizada faz com que **Ic** apareça mais à direita no espectro do que **Ir**. Também aparecem na figura o sinal do Si presente no  $\text{SiO}_2$ , do Si do substrato e do O do  $\text{SiO}_2$  [46].

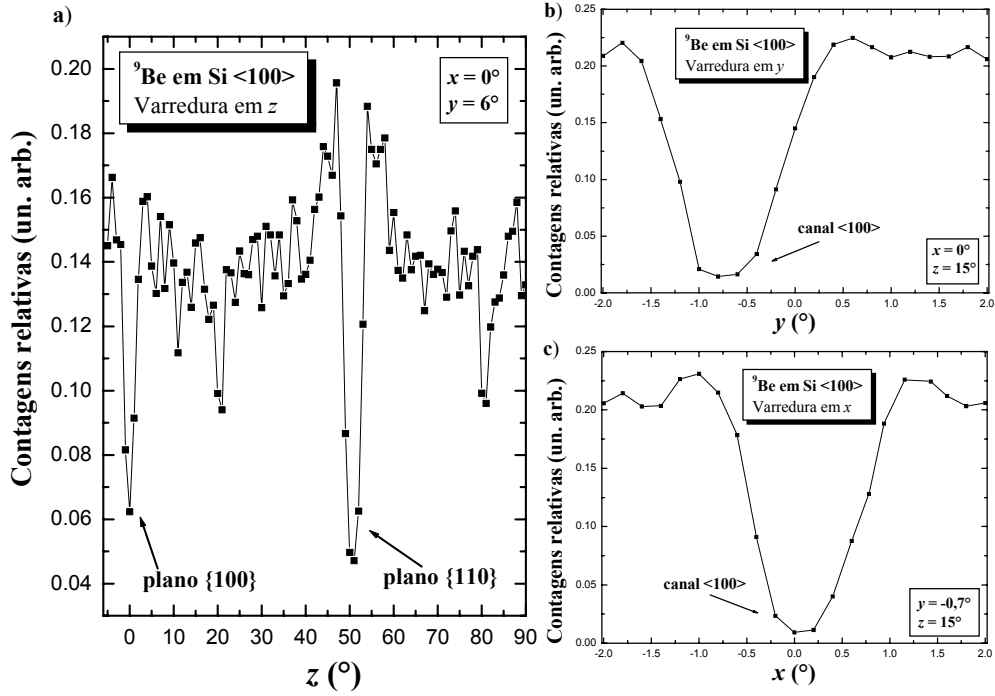


Sendo perpendicular à superfície da amostra, o canal  $\langle 100 \rangle$  era sempre o primeiro a ser determinado. Para isso, a primeira varredura em ângulo era feita no eixo  $z$ , com  $y$  posicionado em  $6^\circ$  e  $x$  em  $0^\circ$ , a fim de se determinar a posição do plano  $\{100\}$  do cristal (figura 5.12a).

A seguir, a amostra era rotada para  $15^\circ$  além da posição desse plano em  $z$ , e uma varredura para  $y$  era então realizada de  $-2^\circ$  a  $2^\circ$ , cujo resultado é tipicamente igual ao da figura 5.12b. Depois, o valor de  $y$  era ajustado para o valor central da depressão ( $0^\circ$  na figura) e uma varredura em  $x$  era feita, também de  $-2^\circ$  a  $2^\circ$ , como ilustrado na figura 5.12c. O valor de  $x$  era então posicionado no centro da depressão ( $0^\circ$  na figura) e uma nova varredura em  $y$  era feita para confirmar o seu valor. Dessa forma, a posição do canal  $\langle 100 \rangle$  era bem determinada. De acordo com o procedimento sugerido por [197], o valor de  $x$  era então deslocado em  $6^\circ$  e o de  $z$  em  $15^\circ$ , a fim de se encontrar a melhor direção para a obtenção de um espectro aleatório. Para cada energia de análise e para cada espectro canalizado, foi tomado um espectro aleatório, procedimento esse seguido para a posterior análise dos dados.

Já para alinhar o feixe com o canal  $\langle 110 \rangle$  da amostra, foi necessário repetir o processo de alinhamento com o canal  $\langle 100 \rangle$ , descrito acima, e então rotar o goniômetro em  $45^\circ$  na direção  $x$  e, logo a seguir, de  $90^\circ$  na direção  $z$ . A fim de confirmar a posição do centro do canal, mais uma varredura rápida em  $x$  e outra em  $y$  eram feitas. E, de forma semelhante ao que era feito para o canal  $\langle 100 \rangle$ , o valor de  $x$  era então deslocado em  $6^\circ$  para se obter os espectros não-canalizados.

Um exemplo dos espectros obtidos após esses procedimentos é mostrado na figura 5.13, para íons de O incidindo em direções canalizada e aleatória em uma amostra de SIMOX.



**Figura 5.12** – Gráficos do número relativo de contagens em função do ângulo para varreduras ao redor dos eixos  $x$ ,  $y$  e  $z$ ; a) varredura de  $-5^\circ$  a  $90^\circ$  em  $z$ , para determinar a posição do plano  $\{100\}$ ; b) varredura de  $-2^\circ$  a  $2^\circ$  em  $y$  para determinar a coordenada desse eixo relativa ao centro do canal  $\langle 100 \rangle$ ; c) idem a b), só que para o eixo  $x$ .

A perda de energia em direção canalizada foi calculada com base nas posições (representadas por  $E_c$  e  $E_r$  na figura 5.13) da interface Si/SiO<sub>2</sub> obtidas dos espectros canalizados e aleatórios e nos valores do poder de freamento aleatório medidos anteriormente. Esse cálculo da perda de energia canalizada foi feito considerando-se válida a aproximação à energia média e usando-se a relação [198]:

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}_{in}}^{can} = \left[ \frac{K_{Si} \cdot E_0 - E_c}{K_{Si} \cdot E_0 - E_r} \left( \beta_1 + \frac{\cos \theta_1}{\cos \theta'_1} \right) - \beta_2 \right] \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}'_{in}}^{ran}, \quad (5.4)$$

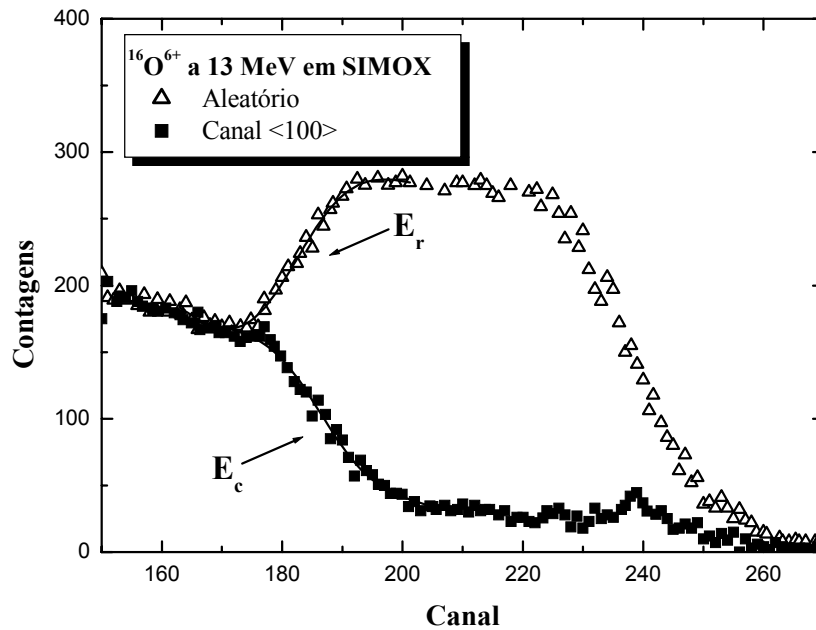
sendo:

$$\beta_1 \equiv \frac{\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}'_{out}}^{ran}}{K_{Si} \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}'_{in}}^{ran}} \cdot \frac{\cos \theta_1}{\cos \theta'_2}, \quad (5.5)$$

e:

$$\beta_2 \equiv \frac{\left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}_{out}}^{ran}}{K_{Si} \cdot \left. \frac{dE}{dx} \right|_{\bar{E}_{in}}^{ran}} \cdot \frac{\cos \theta_1}{\cos \theta_2}, \quad (5.6)$$

onde as grandezas com índice linha referem-se à geometria das medidas aleatórias e as grandezas sem índice linha referem-se às medidas canalizadas.



**Figura 5.13** – Espectros de RBS para íons de  $O^{6+}$  incidindo sobre uma amostra de SIMOX com energia de 13 MeV em uma geometria aleatória (triângulos) e em uma geometria onde o feixe está alinhado ao canal  $\langle 100 \rangle$  do Si (quadrados). Nessa figura,  $E_c$  e  $E_r$  indicam as energias das partículas retroespalhadas na interface Si/SiO<sub>2</sub> para o caso canalizado e o caso aleatório, respectivamente. As linhas cheias representam os resultados do procedimento de ajuste usado para determinar esses valores, o qual está detalhado na referência [198].

A fim de evitar efeitos de não-equilíbrio de carga no poder de freamento, as cargas dos feixes de íons utilizados para cada energia de análise foram sempre escolhidas de maneira a serem o mais próximas possível das cargas de equilíbrio na energia em questão. Na tabela 5.3 são listados os valores da carga dos feixes utilizadas para as energias respectivas.

**Tabela 5.3** – *Estados de carga correspondentes a cada energia de análise para feixes incidentes de Be, B e O.*

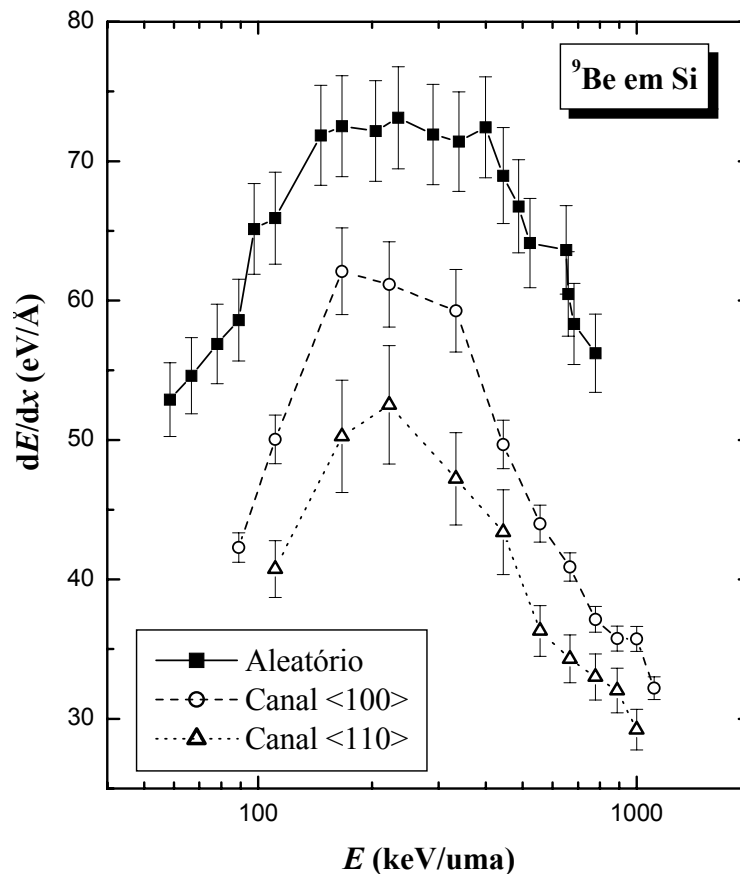
Energia (MeV)	Carga Be	Carga B	Carga O
0,8	2+	---	---
1,0	2+	2+	---
2,0	3+	3+	---
3,0	3+	3+	---
4,0	3+	3+	4+
5,0	3+	4+	---
6,0	3+	4+	5+
7,0	3+	4+	---
8,0	4+	4+	5+
9,0	4+	4+	---
10,0	4+	---	6+
11,5	---	---	6+
13,0	---	---	6+
15,0	---	---	6+

Os resultados para a perda de energia canalizada de íons de Be e B ao longo dos canais <100> e <110> do Si, e de íons de O ao longo do canal <100> do Si, serão apresentados a seguir. Na seção 5.5, eles serão comparados aos cálculos teóricos de perda de energia, a fim de determinar a contribuição do efeito Barkas para essa grandeza.

#### 5.4.1 – Poder de freamento de Be em Si <100> e <110>

As medidas de perda de energia canalizada para íons de Be foram realizadas no intervalo de energias entre 0,8 e 10 MeV, para o canal <100>, e no intervalo entre 1 e 9 MeV, para o canal <110>. Elas são as primeiras medidas dessa quantidade, não havendo outros resultados experimentais publicados na literatura. Na figura 5.14, os resultados canalizados são apresentados, juntamente com os resultados em direção não-canalizada,

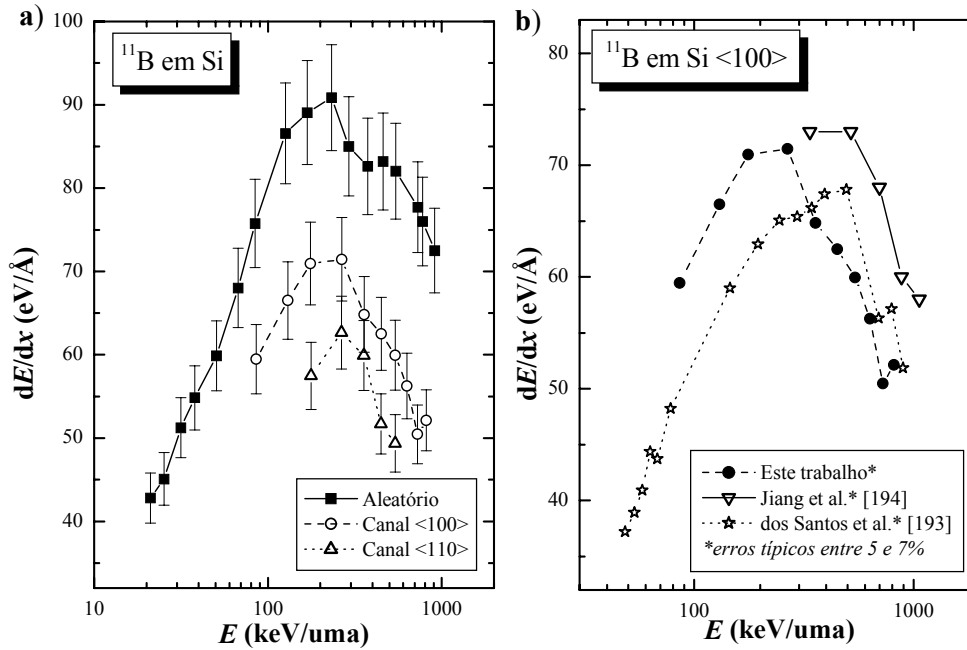
já mencionados na seção 5.2.1. Também, pode-se verificar que, no canal  $\langle 100 \rangle$ , a perda de energia é 18% menor que a perda de energia aleatória, na energia de 90 keV/uma, sendo que a diferença diminui com o aumento da energia, até chegar a 15% na energia de 180 keV/uma, e depois volta a aumentar, chegando a 34% na energia de 780 keV/uma. De maneira semelhante, no canal  $\langle 110 \rangle$ , onde os íons perdem ainda menos energia em comparação com a direção aleatória, a diferença é de 38% na energia de 110 keV/uma, diminuindo até 28% na energia de 220 keV/uma e voltando a aumentar até chegar a 42% na energia de 790 keV/uma.



**Figura 5.14** – Resultados para a perda de energia de íons de B incidindo ao longo dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si, comparados com os resultados para o caso não-canalizado. As linhas servem apenas para guiar os olhos.

### 5.4.2 – Poder de freamento de B em Si <100> e <110>

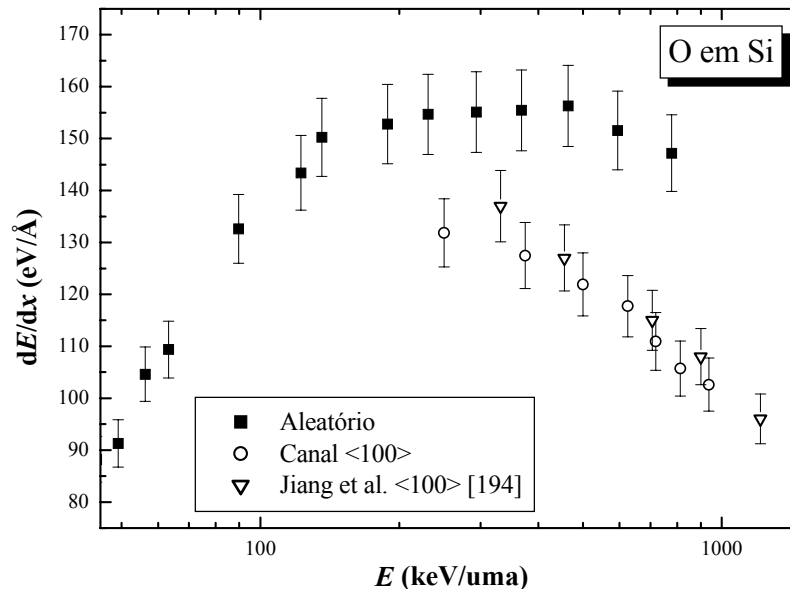
As medidas com B foram realizadas entre 1 e 9 MeV, para o canal <100>, e entre 2 e 6 MeV, para o canal <110>. Enquanto que para esse último não há resultados publicados na literatura, para o canal <100> já existiam dois resultados, que apresentam certa discordância, um tendo sido medido por Jiang *et al.* [194] e o outro por dos Santos *et al.* [193]. Na parte a) da figura 5.15, são apresentados os resultados deste trabalho para a perda de energia ao longo das direções <100> e <110>, juntamente com os dados aleatórios. Como se pode observar, os valores encontrados para o canal <100>, neste trabalho, são 21% menores que os encontrados para as medidas aleatórias, na energia de 85 keV/uma. Essa diferença diminui para 18% na energia de 260 keV/uma, voltando a aumentar a seguir, chegando a 32% para a energia de 810 keV/uma. Já a perda de energia ao longo do canal <110> é bem menor que a perda de energia em direção aleatória, sendo 36% menor que essa última para a energia de 175 keV/uma. A diferença então diminui, chegando a 27% na energia de 290 keV/uma, mas volta a aumentar, chegando a 40% na energia de 530 keV/uma. Na parte b) da figura 5.15, são apresentados os resultados deste trabalho e dos dois outros estudos experimentais já existentes para a perda de energia ao longo da direção <100>. Pode-se ver que os resultados deste trabalho de tese são aproximadamente 20% maiores que os resultados de dos Santos *et al.* [193] na energia mais baixa medida. Com o aumento da energia, a concordância entre as duas medidas melhora, sendo que a altas energias ambos os resultados estão em bom acordo. Nestas energias, porém, os resultados deste trabalho de tese são inferiores aos de Jiang *et al.* [194] por aproximadamente 20%.



**Figura 5.15** – Resultados para a perda de energia de íons de B incidindo em Si numa direção aleatória e ao longo dos canais <100> e <110> obtidos neste trabalho (parte a). Comparação entre os resultados existentes para o canal <100> (parte b). As linhas servem apenas para guiar os olhos.

### 5.4.3 – Poder de freamento de O em Si <100>

Para o caso do O, foram feitas medidas apenas para a direção cristalina <100> do Si. O intervalo de energias no qual as mesmas foram desenvolvidas varia de 4 a 15 MeV, como é apresentado na figura 5.16. Além dos dados deste trabalho para a perda de energia em Si amorfo, ainda estão presentes na figura os resultados de Jiang *et al.* [194]. Como se pode observar, esses últimos estão em bom acordo com os resultados determinados neste trabalho de tese. Em relação à perda de energia aleatória, os resultados para o canal <100> se mostraram 15% menores na energia de 250  $keV/uma$ , sendo que essa diferença aumenta até chegar a 27% em 780  $keV/uma$ .



**Figura 5.16** – Resultados para a perda de energia de íons de O incidindo ao longo do canal <100> do Si, comparados com os resultados para o caso aleatório.

### 5.5 – Cálculos teóricos para o poder de freamento em direção canalizada e determinação da contribuição Barkas

Neste trabalho de tese, o poder de freamento eletrônico em condição canalizada para íons de Be, B e O incidindo em alvos de Si também foi calculado teoricamente, utilizando-se três abordagens diferentes, que foram aquelas apresentadas no capítulo 4: a teoria binária, a Aproximação de Convolução Unitária (UCA) e o método da seção de choque de transporte e regra da soma de Friedel estendida (TCS-EFSR). Além disso, cálculos de canais acoplados (apresentados no capítulo 1) foram empregados, em conjunto com a abordagem UCA, para separar as contribuições devidas aos elétrons internos e aos de valência.

Para realizar os cálculos com base no método UCA, foi empregado o programa CASP (Convolution Approximation for Swift Particles) [199], o qual incorpora o procedimento descrito na seção 4.4, do capítulo 4. Mais ainda, a versão 2.2 do programa também incorpora um cálculo de correções de camadas, num procedimento similar ao sugerido na teoria binária de Sigmund (equação 4.21). Já para desenvolver os cálculos do modelo (TCS-EFSR), foi usado o programa HIStop (Heavy Ion Stopping) [200], que incorpora o procedimento descrito na seção 4.3, do capítulo 4. Além disso, o modelo



binário da perda de energia, detalhado na seção 4.1, foi implementado em uma rotina do programa MathCad, a partir da qual se calculou o poder de freamento de acordo com o desenvolvimento de Sigmund, considerando, porém, apenas os elétrons de valência do Si.

Para o cálculo da contribuição Barkas, também três abordagens foram empregadas. Uma consistiu na combinação dos cálculos realizados com o programa CASP e dos resultados obtidos experimentalmente para íons de Be, B e O. Outra foi realizada a partir de cálculos com o programa HlStop, feitos para íons de Be, B e O e para seus “íons-imagem”, ou seja, íons com a mesma estrutura interna, porém com carga oposta, como se fossem antiprótons carregando pósitrons. Já a terceira, foi baseada nos cálculos da teoria binária para íons de Be, B e O e seus respectivos antiíons. A diferença entre as duas últimas abordagens, além das peculiaridades de cada modelo, é que a teoria binária só permite comparar íons totalmente nus aos seus respectivos antiíons, enquanto que o programa HlStop permite comparar íons com elétrons ligados aos seus “íons-imagem”, como se esses últimos tivessem pósitrons ligados a eles.

### 5.5.1 – Cálculos realizados com o programa CASP

O programa CASP permite realizar cálculos numéricos para a perda de energia eletrônica com bastante rapidez e precisão. O programa calcula inicialmente, para cada parâmetro de impacto  $b$  desejado, a energia média transferida pelo íon em questão a um elétron,  $Q_e(b)$ , para elétrons de todas as camadas do alvo. A seção de choque de perda de energia eletrônica total,  $S_e$ , é calculada pela integração dos valores obtidos para  $Q_e(b)$ , conforme  $S_e = \int 2\pi b db Q_e(b)$ . Vale notar que, para cada energia de interesse, é necessário rodar o programa para todos os estados de carga que o íon pode assumir naquela energia, multiplicando depois o resultado obtido pela correspondente fração de carga. Por exemplo, para íons de O incidindo a 400 keV/uma, o cálculo deve ser feito para  $O^{3+}$ ,  $O^{4+}$ ,  $O^{5+}$ ,  $O^{6+}$  e  $O^{7+}$  a essa energia, e a seguir os resultados devem ser multiplicados pelas respectivas frações de carga (nesse caso, 0,016; 0,151; 0,476; 0,328 e 0,029, respectivamente).

Sempre que possível, as frações de carga consideradas neste estudo foram as determinadas experimentalmente por Jiang *et al.* [194]. Para as energias onde não havia dados experimentais de distribuição de cargas, foram usados os valores fornecidos pelo próprio programa CASP, baseados no trabalho da referência [146]. Para o caso do Be, em especial, não há frações de carga experimentais disponíveis. Em vista disso, foi realizado um procedimento de interpolação, tomando por base os dados de frações de carga existentes para Li, B, C, N e O, a fim de se obter uma distribuição de frações de carga para o Be. Esse procedimento está descrito no apêndice A. Os cálculos foram feitos, então, usando-se essa distribuição interpolada, e, também, as frações de carga dadas pelo programa CASP, oriundas de [146]. O resultado final representa uma média desses dois valores.

Para que o programa realize os cálculos, é necessário o usuário especificar as seguintes variáveis, as quais serão exemplificadas em função do que foi feito durante este estudo de tese:

- a)  $Z_p$  – número atômico do projétil: neste estudo foram realizados cálculos com íons de Be ( $Z_p=4$ ), de B ( $Z_p=5$ ), e de O ( $Z_p=8$ );
- b)  $Z_t$  – número atômico do alvo: o alvo sempre foi o Si ( $Z_t=14$ );
- c)  $E/u$  – energia por núcleon [keV/uma]: os cálculos foram sempre realizados para o intervalo de energias entre 100 e 2.000 keV/uma;
- d) File – nome do arquivo: cada vez que o programa é executado, é necessário especificar o nome do arquivo onde os resultados serão gravados;
- e) Convolution Approximation: o programa pode realizar tanto cálculos baseados na PCA quanto cálculos baseados na UCA, sendo que esta última foi sempre a opção usada;
- f) Screening: nesse campo, é necessário selecionar a função de blindagem que será considerada no cálculo. Para cada estado de carga, deve-se escolher a função de blindagem mais adequada. Por exemplo, para íons nus (como  $\text{Be}^{4+}$  e  $\text{B}^{5+}$ ), a opção *none* deve ser usada (sem blindagem), enquanto que para íons carregando três ou mais elétrons (como  $\text{O}^{4+}$ ) a opção *general* deve ser escolhida, especificando-se o número de elétrons que o projétil carrega (no caso,  $n_p=4$ );

- g) *Accuracy*: essa opção controla a precisão numérica da maioria das integrações que o programa faz. Quanto mais baixo seu valor, mais preciso será o cálculo, porém ele também levará mais tempo para ser feito. Valores maiores que  $10^{-2}$  podem levar a muitas incertezas no cálculo, enquanto que valores menores que  $10^{-5}$  não levam a maiores melhorias na precisão. Durante este estudo, foi usado o valor  $10^{-3}$ ;
- h) *b select*: nesse campo, é preciso entrar com os valores do parâmetro de impacto mínimo e do máximo, entre os quais se quer que a perda de energia seja calculada, bem como o número de pontos tomados durante o cálculo. Neste estudo, foram sempre tomados 50 pontos entre  $b_{min} = 10^{-4}$  e  $b_{max} = 10$ . Também é possível deixar que o próprio programa ajuste esses valores.

Além de executar o programa dessa forma para calcular a perda de energia do íon para os elétrons do alvo, também é necessário executá-lo para calcular a contribuição da perda de energia devida à interação dos elétrons do íon com os átomos do alvo. Com esta finalidade, deve-se inverter os valores de  $Z_p$  e  $Z_t$ , mantendo-se a mesma energia, selecionar a função de blindagem *general* para um átomo neutro (no caso do Si,  $n_p = 14$ ) e informar as forças de oscilador e densidades eletrônicas do íon (que nesse caso passa a ser alvo) para cada um dos seus estados de carga, através da opção *further target data*. Esses dados não são inerentes ao programa, devendo ser informados a ele.

Para cada energia e estado de carga, as duas contribuições para a perda de energia (íon-elétrons do alvo e átomos do alvo-elétrons do íon) são então somadas. A soma das contribuições para cada estado de carga, normalizadas em função de sua fração, dá a perda de energia total para a energia em questão.

A fim de chegar agora à perda de energia média dos íons em condição canalizada, é necessário fazer uma convolução das perdas de energia calculadas pelo programa CASP com os fluxos dos íons dentro do canal, de acordo com:

$$\overline{\Delta E} = \frac{\int_A d^2b \int_0^t dz \frac{dE}{dz}(\vec{b}) \Phi(\vec{b}, z)}{\int_A d^2b \int_0^t dz \Phi(\vec{b}, z)}, \quad (5.7)$$

onde  $A$  é a área transversal do canal do Si em questão,  $b$  é o parâmetro de impacto e  $\Phi$  é a distribuição de fluxo dos íons ao longo da direção de canalização  $z$ .

As distribuições de fluxo dos íons ao longo dos canais  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si foram calculadas com o programa de simulação tipo Monte-Carlo chamado *Barret* [70]. A partir delas e dos cálculos UCA, chegou-se aos resultados para o poder de freamento canalizado de Be, B e O.

Após o cálculo dos poderes de freamento, o efeito Barkas foi obtido pela seguinte argumentação: o resultado de uma medida experimental reflete a contribuição de todos os efeitos presentes no processo de perda de energia. Já o cálculo com o programa CASP não inclui as contribuições devidas à perda e captura de elétrons e devidas à polarização dos átomos do alvo pela passagem dos íons (efeito Barkas). Então, essas contribuições deveriam ser as responsáveis pela diferença entre os resultados experimentais e os cálculos teóricos. Porém, em condição canalizada, a probabilidade de que haja captura ou perda de elétrons é fortemente reduzida, de forma que pode ser considerada desprezível frente a outras contribuições. Dessa maneira, a única contribuição relevante em condição canalizada que não é considerada pelo cálculo UCA (com correções de camadas) é justamente o efeito Barkas. Portanto, para encontrarmos essa contribuição basta subtrair o cálculo feito com o programa CASP dos respectivos dados experimentais para a perda de energia canalizada dos íons de Be, B e O em alvos de Si. Tanto os cálculos para o poder de freamento quanto a contribuição Barkas também estão indicados nas figuras 5.18, 5.19 e 5.20.

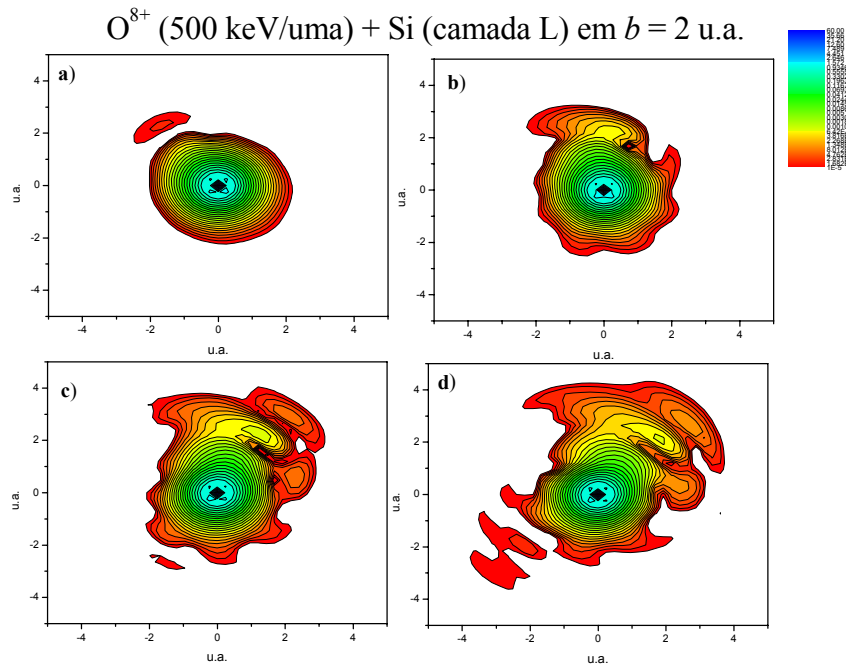
Obviamente, para que essa determinação do efeito Barkas seja efetiva, é necessário que o cálculo UCA seja confiável, e dê conta satisfatoriamente de todos os efeitos que se propõe a considerar. Como foi mencionado no capítulo 4, essa confiabilidade foi confirmada através da comparação dos resultados UCA com resultados de canais acoplados e dos resultados PCA com resultados SCA [33-35, 182].

Com o objetivo de separar a contribuição Barkas devida aos elétrons de valência do Si da contribuição devida aos elétrons internos, foram realizados cálculos de canais acoplados para essa última contribuição<sup>1</sup>. Então, o resultado desses cálculos (que incluem efeitos de polarização) foi subtraído do resultado UCA, fornecendo o efeito Barkas devido apenas aos elétrons de valência, que é representado na figura 5.24 pelos quadrados cheios.

---

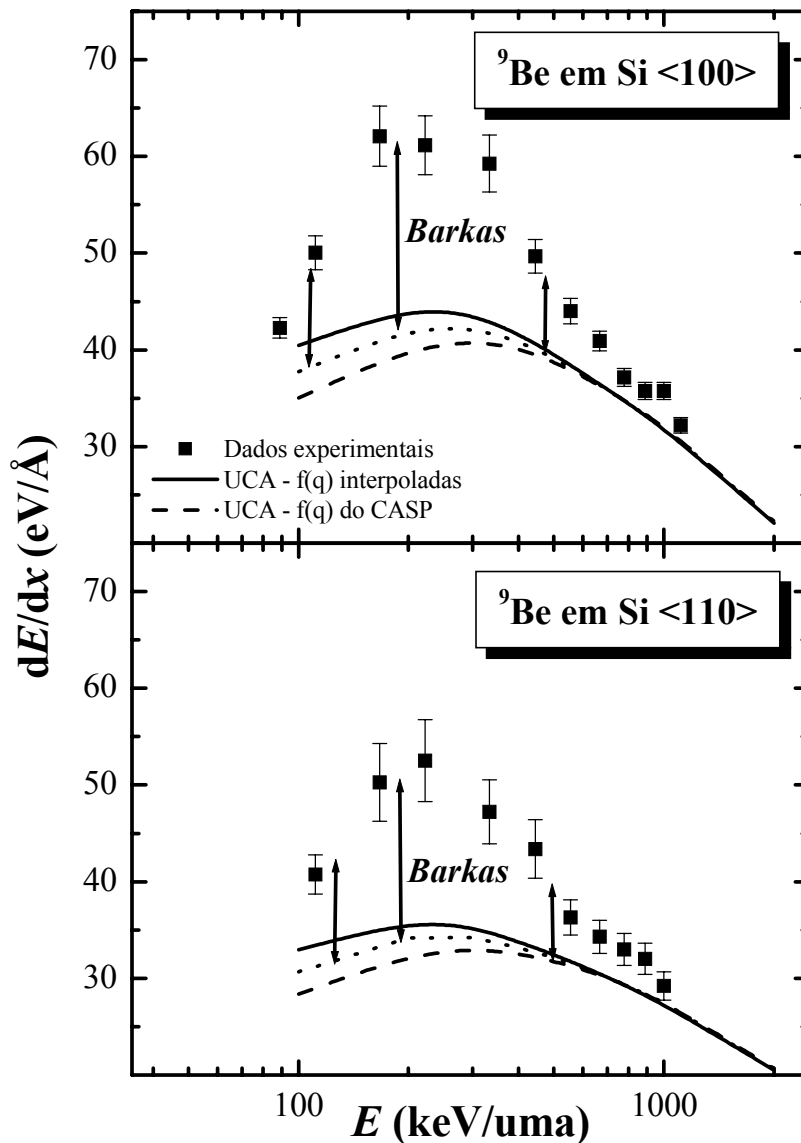
<sup>1</sup> GRANDE, P. L. *Private Communication*, 2004.

Na verdade, os cálculos de canais acoplados forneceram valores para a perda de energia dos elétrons da camada L bem maiores que os obtidos com o programa CASP, não somente devido à presença do efeito de polarização, mas também ao fato de ocorrer a captura desses elétrons pelos íons. Esse efeito de captura está ilustrado na figura 5.17, que representa a captura por um íon de  $O^{8+}$  incidindo a 8 MeV.



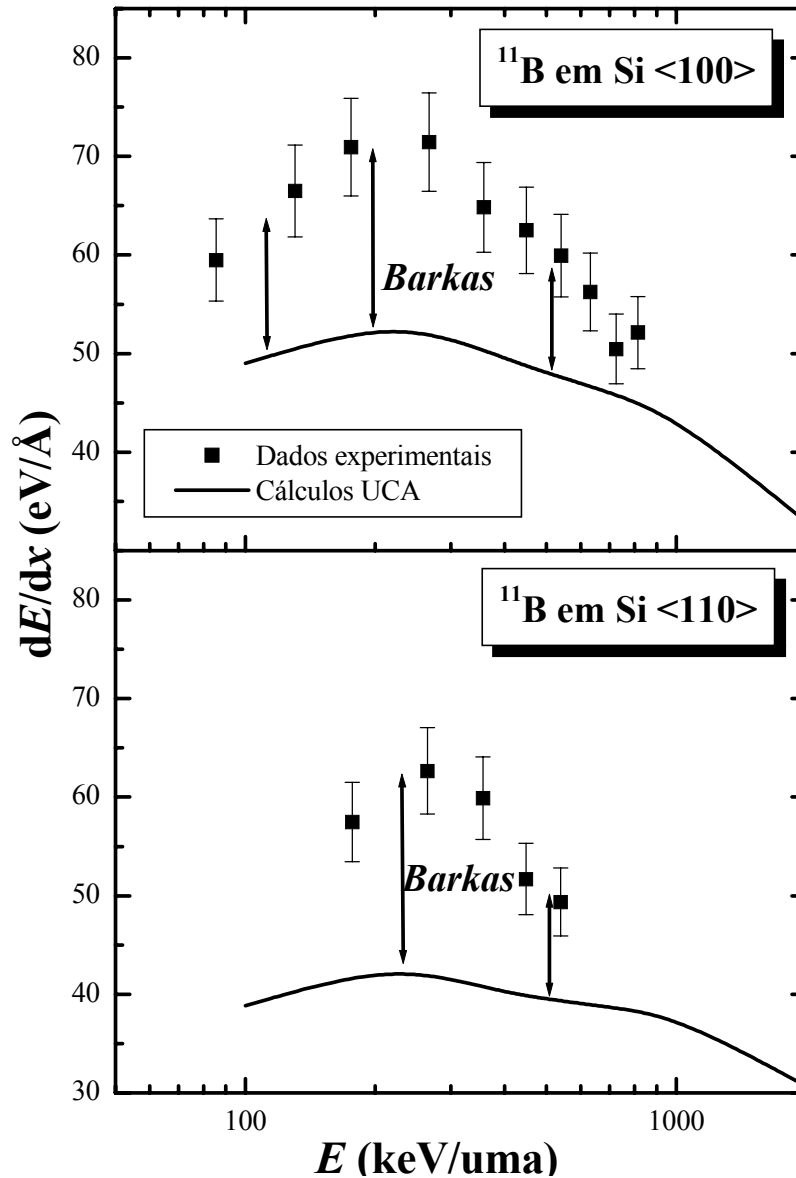
**Figura 5.17** – Ilustração da captura de um elétron da camada L do Si por um íon de O e da conseqüente polarização do átomo de Si com a passagem do íon. As curvas de nível na figura representam a densidade eletrônica, calculada a partir do método de canais acoplados.

Como pode ser visto na figura 5.18, a contribuição Barkas para o poder de freamento canalizado de Be em Si é bastante grande na região entre 150 e 400 keV/uma, chegando, no canal  $\langle 100 \rangle$ , a um máximo de 21 eV/Å a 166 keV/uma, o que representa 45% do valor das outras contribuições para a perda de energia. Esse resultado é similar, e ainda maior, que a contribuição “gigante” do efeito Barkas observada para o poder de freamento de íons de Li canalizados em Si, em um estudo feito anteriormente pelo próprio grupo do Laboratório de Implantação Iônica da UFRGS [119].

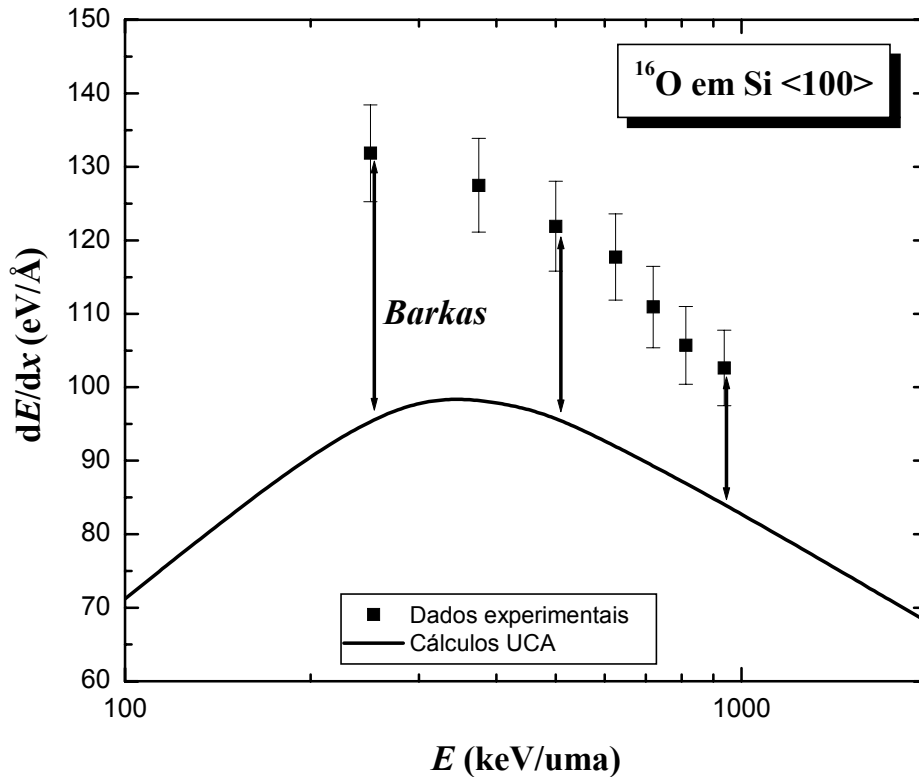


**Figura 5.18** – Resultados para o poder de freamento de Be em Si, em direção canalizada, calculados com o programa CASP (v. 2.2), comparados com os resultados experimentais. A linha cheia representa os cálculos considerando as frações de carga calculadas pelo procedimento de interpolação, enquanto que a curva tracejada representa os cálculos usando as frações de carga do próprio programa CASP. A curva pontilhada é a média desses dois procedimentos, tendo sido o resultado levado em conta durante este estudo. O efeito Barkas é dado pela diferença entre os cálculos e os resultados experimentais, como indicado pelas setas verticais.

Para o caso do B, apresentado na figura 5.19, pode-se ver que a contribuição Barkas também é grande em ambos os canais, chegando a 40% do valor de todas as outras contribuições, a 266 keV/uma, no canal <100>.



**Figura 5.19** – Resultados para o poder de freamento de B em Si, em direção canalizada, calculados com o programa CASP (v. 2.2), comparados com os resultados experimentais. O efeito Barkas é dado pela diferença entre os cálculos e os resultados experimentais, como indicado pelas setas verticais.



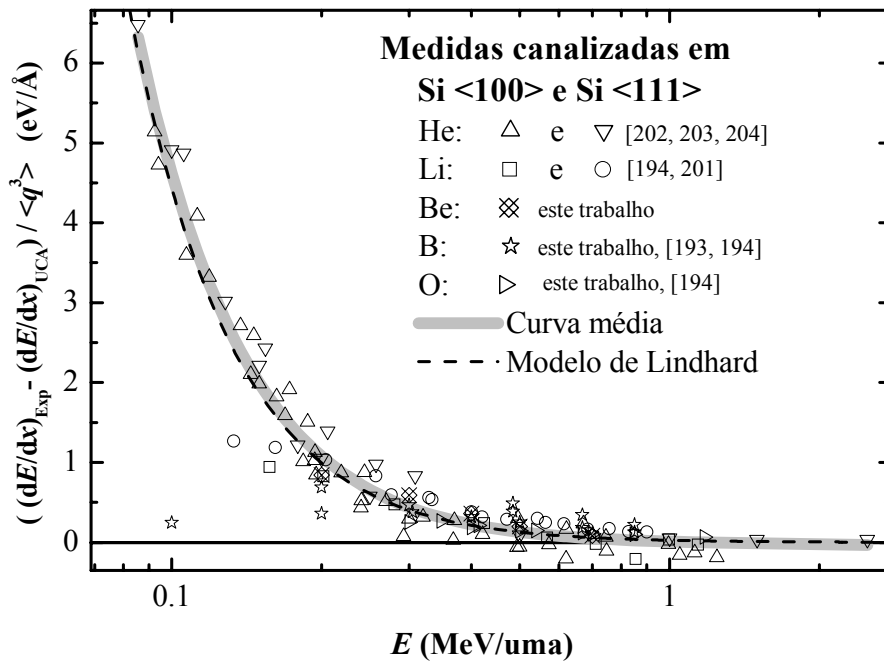
**Figura 5.20** – Resultados para o poder de freamento de O em Si, em direção canalizada, calculados com o programa CASP (v. 2.2), comparados com os resultados experimentais. O efeito Barkas é dado pela diferença entre os cálculos e os resultados experimentais, como indicado pelas setas verticais.

Para o caso do O (figura 5.20), a contribuição do efeito Barkas também é bastante significativa. Embora seu valor total, em eV/Å, seja maior que o valor observado para o Be e B nas mesmas energias, a contribuição relativa à da perda de energia não é maior, sendo de 38% a 250 keV/uma e diminuindo para altas energias.

A fim de legitimar essa abordagem da obtenção do efeito Barkas pela combinação dados experimentais/cálculos UCA, o procedimento de subtração apresentado aqui para Be, B e O foi também feito para vários resultados de medidas canalizadas com íons de He e Li [194, 201, 202, 203], além das medidas de outros autores para B e O citadas anteriormente [193, 194]. A contribuição Barkas determinada pela subtração experimental-UCA para todos os casos foi então dividida pela carga média dos projéteis ao cubo, e os resultados foram reunidos em um gráfico, representados em função da energia dos íons. Isso está mostrado na figura 5.21, onde também foi incluída a



contribuição Barkas dada pela análise de Lindhard (calculada a partir da equação (2.28) do capítulo 2), que apresenta boa concordância com medidas prévias do efeito Barkas para altas energias. Conforme pode-se observar, os dados experimentais colapsam em torno de uma região estreita (independentemente da espécie do projétil), cuja média, representada pela curva cinza da figura, está em muito bom acordo com a previsão de Lindhard, dada pela curva tracejada. Porém, há ainda alguns desvios em relação à curva média na região entre 0,15 e 0,3 MeV/uma, os quais começam a acontecer a partir de uma certa energia, para cada projétil. Esses valores de energia onde começam os desvios são tanto maiores quanto maior é a carga dos projéteis, indicando uma quebra do escalonamento com  $q^3$  e a provável presença de termos de polarização de ordem mais alta.



**Figura 5.21** – Compilação de dados experimentais para o poder de freamento de íons de He, Li, Be, B e O incidindo nas direções canalizadas  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si, subtraídos dos respectivos cálculos UCA e divididos pelas respectivas cargas médias ao cubo. A região cinza representa a curva média sobre a qual os dados colapsam, enquanto a curva tracejada representa a estimativa para o efeito Barkas dada pelo modelo de Lindhard.

Valores específicos da contribuição Barkas para várias energias e uma análise de seu comportamento serão relatados a seguir, na seção 5.5.5, e comentados no capítulo 6, onde são apresentadas as conclusões deste trabalho de tese.

### 5.5.2 - Cálculos realizados com o programa HlStop

O programa HlStop calcula a perda de energia de uma maneira não-perturbativa, através da abordagem TCS-EFSR, descrita no capítulo 4. O meio é considerado como um gás de elétrons uniforme, com densidade  $n$ , velocidade de Fermi  $v_F$  e raio de Wigner-Seitz  $r_s = 1,919/v_F$ . Em função disso, os resultados do programa não descrevem bem a perda de energia num alvo de Si amorfo, pois não é coerente a aproximação de considerá-lo como sendo um gás de elétrons com essas características. Para o canal  $\langle 100 \rangle$  do Si, entretanto, a configuração eletrônica que os íons canalizados sondam é muito semelhante a um gás de elétrons com densidade constante, sendo bastante razoável, nessa situação, comparar os cálculos do HlStop com os resultados experimentais. Já para o canal  $\langle 110 \rangle$  do Si, que é mais largo que o  $\langle 100 \rangle$ , as variações de densidade eletrônica não encorajam uma aproximação pela abordagem do gás de elétrons considerada nos cálculos do programa HlStop.

Assim como o CASP, também o HlStop executa cálculos precisos (dentro da aproximação que se propõe a descrever) e rápidos para a perda de energia eletrônica. As variáveis que devem ser informadas ao programa são:

- a)  $Z_1$  – número atômico do íon;
- b)  $Z_2$  – número atômico do alvo;
- c)  $E$  – energia, em keV/uma;
- d)  $q$  – estado de carga do íon;
- e)  $r_s$  – parâmetro do gás de elétrons, o qual foi tomado como 2 para os elétrons de valência do Si.

Ao contrário do que acontece com o programa CASP, no programa HlStop é possível realizar os cálculos para valores de  $Z_1$  negativos, correspondendo a “antiíons” com mesma estrutura e carga inversa em relação aos correspondentes íons ( $Z_1$  positivo).

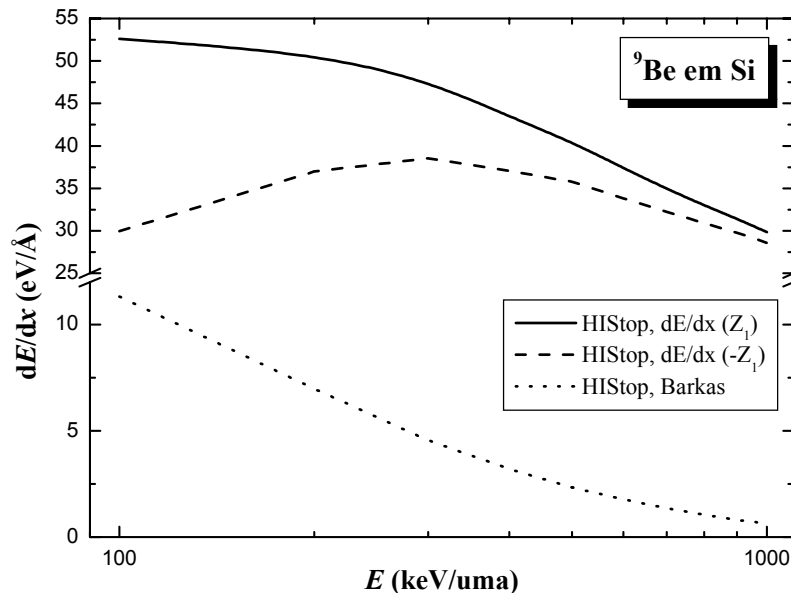
Dessa forma, é possível extrair uma contribuição Barkas para a perda de energia pela relação:

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{Barkas} = \frac{1}{2} \left( \frac{dE}{dx}(Z_1) - \frac{dE}{dx}(-Z_1) \right), \quad (5.8)$$

pois todas as contribuições em potências pares de  $Z_1$  se cancelarão, restando apenas a contribuição devida a potências ímpares.

Um exemplo dos resultados gerados pelo programa HIStop para íons de Be incidindo sobre Si é mostrado na figura 5.22.

Os resultados para o efeito Barkas obtidos com essa abordagem serão apresentados na seção 5.5.5, para várias energias e para vários estados de carga do projétil.



**Figura 5.22** – Resultados calculados com o programa HIStop para a perda de energia de íons de Be ( $Z_1 = 4$ , linha cheia), para a perda de energia de “antiBe” ( $Z_1 = -4$ , linha tracejada) e para a contribuição Barkas (linha pontilhada), calculada pela relação (5.8).

### 5.5.3 – Cálculos baseados na teoria binária

Os cálculos baseados na teoria binária da perda de energia foram realizados com uma rotina do programa MathCad, onde foram incorporados o potencial efetivo da

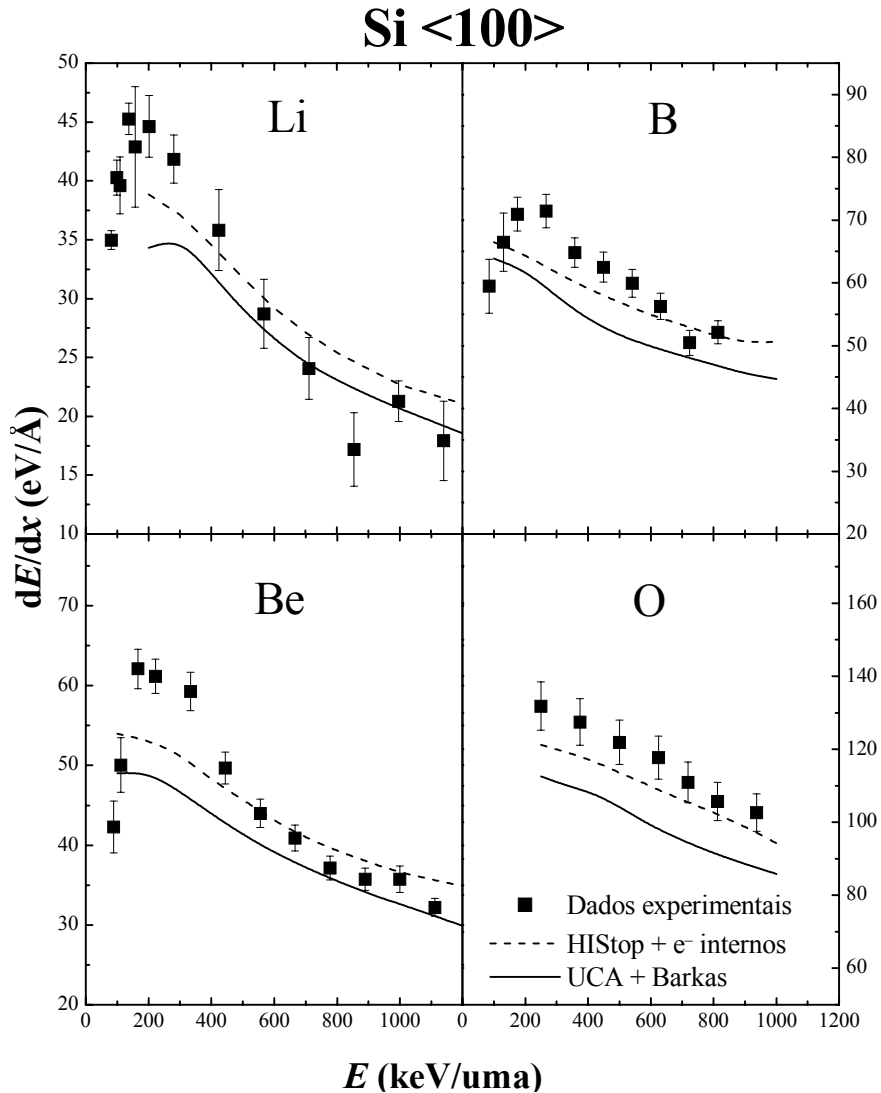
equação (4.2) e o raio efetivo, determinado a partir da trajetória do elétron calculada pelo programa. A energia e a carga (sempre íons sem elétrons ligados) dos íons, as frequências de oscilador e as energias de ligação para os elétrons de valência do Si, bem como o parâmetro de impacto para cada colisão, foram informados como “input” no programa. Os resultados para a energia transferida ao elétron foram então integrados sobre a região de parâmetros de impacto (que foi tomada de 0,05 a 3,00 Å), de acordo com a equação (1.9), fornecendo o poder de freamento. Essa cálculo foi feito para cada íon e seu respectivo anti-íon, de forma que o efeito Barkas pôde ser determinado de forma semelhante ao caso dos cálculos com o programa HIStop, segundo a equação (5.8).

Os resultados para o efeito Barkas obtidos com essa abordagem também serão apresentados na seção 5.5.5, para várias energias e para vários estados de carga do projétil.

#### **5.5.4 – Cálculos para o poder de freamento canalizado combinando os resultados dos programas CASP e HIStop**

Como foi mencionado nas seções anteriores, o programa CASP não é capaz de fornecer uma contribuição Barkas, enquanto o programa HIStop não é capaz de calcular a contribuição dos elétrons mais internos do alvo ao processo de perda de energia. Porém, é possível calcular-se a contribuição dos elétrons internos com o programa CASP e a contribuição Barkas com o programa HIStop. Sendo assim, foi possível usar ambos os programas para complementarem os resultados um do outro, e, dessa forma, fornecerem um valor que pode ser comparado com o poder de freamento obtido experimentalmente. Os resultados dessa combinação para os poderes de freamento ao longo do canal <100> do Si são apresentados na figura 5.23, onde são comparados com os resultados obtidos nas medidas experimentais. Enquanto as linhas cheias representam a combinação do cálculo CASP completo com a contribuição Barkas do HIStop, as linhas tracejadas representam a soma do cálculo HIStop completo com a contribuição dos elétrons internos dada pelo CASP.

Além dos casos onde os íons incidentes são Be, B e O, estudados nesta tese, também os resultados para íons de Li (da referência [119]) são mostrados, a fim de se expandir o estudo do efeito Barkas para uma região maior de cargas do projétil.



**Figura 5.23** – Resultados para o poder de freamento total no canal <100> do Si, para íons de Li, Be, B e O incidentes. As linhas cheias representam o poder de freamento calculado pela soma da contribuição Barkas obtida com o programa HISStop e do cálculo UCA completo. Já as linhas tracejadas representam o poder de freamento dado pela soma da contribuição dos elétrons internos fornecida pelo programa UCA com o cálculo HISStop completo para um íon ( $Z_1$  positivo).

Como se pode ver na figura, as duas abordagens fornecem resultados um pouco diferentes. Isso é esperado, uma vez que em cada caso a contribuição dos elétrons de valência é calculada de uma forma distinta.

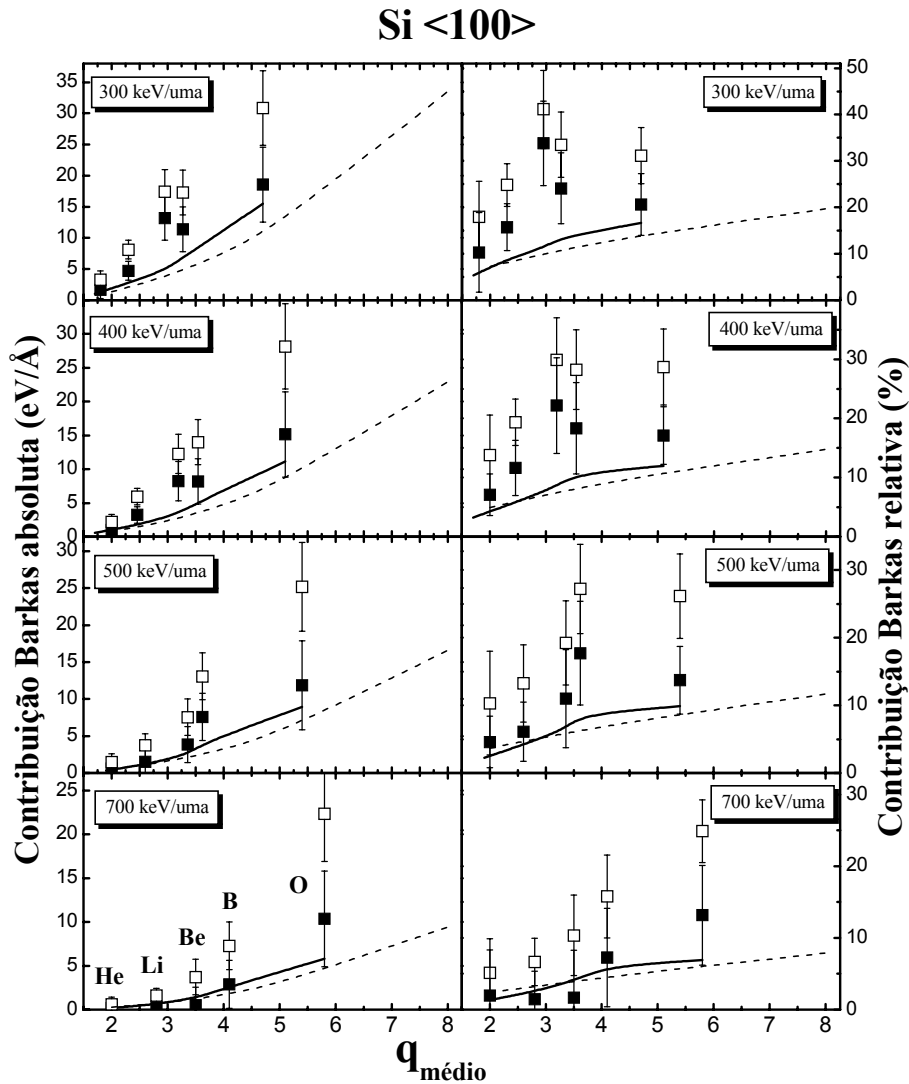
O acordo das duas abordagens com os dados experimentais é bom, exceto nas energias mais baixas, sendo que a soma dos cálculos HIStop com a contribuição dos elétrons internos dada pelo CASP parece estar sempre em melhor acordo com os resultados medidos do que a soma dos resultados do CASP com a contribuição Barkas do HIStop. Nas energias mais baixas, fica evidente que a contribuição Barkas calculada pelos procedimentos teóricos não é suficiente para dar conta de todo o efeito observado nas medidas experimentais.

### **5.5.5 – Resultados para a contribuição Barkas ao poder de freamento na direção <100> do Si, para íons de He, Li, Be, B e O**

Nesta seção, os valores obtidos para a contribuição Barkas através das medidas experimentais e dos procedimentos de cálculo (seções 5.5.2 a 5.5.4) são apresentados de forma condensada, para quatro energias diferentes (300, 400, 500 e 700 keV/uma), e como função do estado de carga médio dos íons nas energias em questão. Além dos dados experimentais para o poder de freamento canalizado de íons de Be, B e O, medidos neste trabalho de tese, também os dados para íons de He [204] e Li [46], medidos anteriormente pelo Grupo de Implantação Iônica da UFRGS, foram usados para a caracterização do efeito Barkas. Todos esses resultados estão reunidos na figura 5.24, onde, na coluna da esquerda, a contribuição absoluta (o valor total em eV/Å) devido ao efeito Barkas é apresentada, enquanto na coluna da direita estão os resultados da contribuição relativa (contribuição Barkas/todas outras contribuições, em %). Os quadrados vazados correspondem aos dados experimentais subtraídos dos cálculos UCA, e representam a contribuição Barkas devida tanto aos elétrons internos como aos de valência.

A fim de comparação com os resultados calculados pelos modelos binário e TCS-EFSR, representados na figura pelas linhas tracejada e cheia, respectivamente, é necessário subtrair a contribuição dos elétrons internos contida nos quadrados vazados.

Isso foi feito, como foi mencionado antes, com o auxílio de cálculos de canais acoplados. Os resultados estão representados pelos quadrados cheios da figura, que são, então, relativos apenas à contribuição dos elétrons de valência. Como pode ser visto na parte esquerda da figura, tanto a contribuição Barkas absoluta experimental quanto as calculadas tendem a crescer com o aumento da carga média do projétil, e os cálculos representam muito bem os resultados experimentais (para os elétrons de valência) nas energias mais altas. Nas energias mais baixas, porém, eles não conseguem reproduzir todo o efeito observado experimentalmente. Já para a contribuição Barkas relativa, o que se observa das medidas experimentais é uma saturação dessa contribuição a baixas energias, de forma que ela não cresce com o aumento da carga média do projétil. Nas energias de 300 e 400 keV/uma, a contribuição parece ter um máximo para a região dos íons de Be, diminuindo um pouco e ficando saturada logo a seguir. A tendência de saturação é também apresentada pelos cálculos TCS-EFSR, embora eles forneçam valores inferiores aos experimentais e não indiquem a existência de um valor de pico. Já para energias mais altas, tanto a saturação como o pico desaparecem, e o acordo entre os dados experimentais e os cálculos se torna bem melhor.



**Figura 5.24** – Contribuições Barkas absoluta (coluna da esquerda) e relativa (coluna da direita), para a perda de energia de íons de He, Li, Be, B e O ao longo do canal <100> do Si, para as energias de 300, 400, 500 e 700 keV/uma, apresentadas em função da carga média dos projéteis. Os quadrados vazados representam a contribuição Barkas calculada pela subtração dados experimentais – cálculos UCA, que incluem os elétrons de valência e os internos. Já os quadrados cheios representam o valor anterior subtraído da contribuição devida aos elétrons internos, representando só o efeito devido aos elétrons de valência. As linhas cheia e tracejada representam os cálculos TCS-EFSR e binário, também relacionados apenas à contribuição dos elétrons de valência.



## CAPÍTULO 6

# DISCUSSÃO E CONCLUSÕES

### 6.1 – Introdução

Neste último capítulo, será feita uma breve discussão sobre os resultados apresentados no capítulo anterior, acompanhada das conclusões a que se chegou neste trabalho de tese. Cada tipo de análise será comentado em uma seção separada, a exemplo do que foi feito no capítulo 5.

### 6.2 – Medidas do poder de freamento em direção aleatória

As medidas para o poder de freamento em direção aleatória de íons de Be, B e O em alvos de Si forneceram resultados consistentes para amplas faixas de energia, conforme se objetivava. Além de servirem como uma base confiável para a análise dos poderes de freamento em direção canalizada desenvolvida neste trabalho, esses resultados também podem ser empregados para testar modelos de excitação eletrônica, para servir de “input” em programas tipo Monte-Carlo que calculem distribuições em profundidade e perfis de dano e para fornecer valores de referência em análises baseadas no uso de feixes de íons.

As medidas do poder de freamento para íons de Be foram as primeiras desse tipo a serem feitas. Conforme foi mostrado na figura 5.4, há um acordo muito bom entre os resultados experimentais e a previsão teórica do programa SRIM [57]. Já com relação aos dados experimentais de Zhang *et al.* [192], os resultados obtidos neste trabalho de tese apresentam uma diferença de 12%, em média, para a maior parte da região de energias onde coexistem as medidas dos dois trabalhos. Essa diferença pode ser atribuída ao método experimental aplicado para obter cada conjunto de medidas. Enquanto neste trabalho foi usada a técnica de RBS, que está bem estabelecida como um método confiável e simples para se medir o poder de freamento, no trabalho da

referência [192] foi usado um método novo e mais complicado, o qual combina as técnicas de análise por detecção de recuo elástico (ERDA – Elastic Recoil Detection Analysis) e de medida por tempo de voo (TOF – Time Of Flight). Além disso, os resultados de [192] apresentam um “plateau” de perda de energia para vários íons, ao invés do máximo de perda de energia comumente observado.

Os resultados deste trabalho para o caso do B já não concordam tão bem com as previsões do programa SRIM como aconteceu no caso do Be, conforme ilustrado na figura 5.5, onde pode-se ver que os resultados experimentais chegam a ser 8% menores que a previsão teórica na região do máximo de perda de energia. Os dados experimentais de Jiang *et al.* [194] também fornecem valores para o poder de freamento menores que os do SRIM, estando em bom acordo com os presentes dados. Em relação aos dados de Zhang, vale o mesmo comentário feito no caso do Be. A diferença entre os dados deste trabalho e os de dos Santos *et al.* [193] parece ser sistemática, podendo estar relacionada ao procedimento de análise ou às condições em que cada medida foi realizada.

Os resultados para íons de O, por sua vez, apresentam a mesma tendência em relação aos cálculos do programa SRIM verificada para o caso dos íons de B, como foi mostrado na figura 5.6. E também divergem dos resultados de Zhang *et al.*, como nos casos do Be e B. As razões indicadas para essas duas diferenças são as mesmas citadas anteriormente. Já os dados de Santry e Werner [195] estão em acordo muito bom com os resultados deste trabalho, tendo sido medidos também com a técnica de RBS. A discordância entre os dados de Jiang *et al.* e os deste trabalho pode ser proveniente da diferença entre as técnicas empregadas em cada caso. O grupo de Jiang realizou medidas por transmissão, o que requer alvos que sejam auto-sustentáveis. Por isso, suas amostras tinham aproximadamente 10.000 Å de espessura, de forma que efeitos maiores de “straggling”, devido ao maior caminho percorrido, podem ter levado a valores maiores da perda de energia.

### 6.3 – Medidas do “stragglings” no poder de freamento aleatório

Os dados para o “stragglings” de Be e O obtidos neste trabalho (figuras 5.8 e 5.9) mostram tendências semelhantes, quando comparados ao “stragglings” de Bohr. A boa concordância, a altas energias, entre os valores experimentais e a teoria de Bohr corrobora a validade dos dados experimentais, uma vez que o valor estimado por Bohr foi obtido com base numa análise para íons totalmente sem elétrons ligados, tendo velocidades bem maiores que as velocidades dos elétrons no alvo. Dessa forma, o fato de os valores experimentais estarem acima dos valores da teoria de Bohr em energias intermediárias não é incoerente. De fato, nessa região, que é justamente a do máximo do poder de freamento, os íons têm velocidades mais baixas e possuem elétrons ligados, cujo número pode variar em função dos processos de perda e captura. Para energias mais baixas, que só foram analisadas no caso do O, o “stragglings” experimental fica abaixo dos valores preditos por Bohr, de maneira similar às observações experimentais feitas para íons de He [190] e de Li [205]. Esse comportamento do “stragglings” reflete bem os erros associados às medidas experimentais do poder de freamento, que são menores para energias mais baixas e são maiores na região do máximo da perda de energia.

### 6.4 – Medidas do poder de freamento em direção canalizada

As medidas do poder de freamento canalizado para íons de Be, B e O ao longo das direções  $\langle 100 \rangle$  e  $\langle 110 \rangle$  do Si compõem os primeiros conjuntos consistentes dessas grandezas obtidos para amplas faixas de energia. Elas podem servir como dados de referência para análises baseadas em feixes de íons e para um melhor entendimento dos processos de interação íons-matéria, como se buscou fazer neste trabalho de tese, onde, aliadas ao modelo UCA, permitiram isolar a contribuição Barkas para o poder de freamento e observar seu comportamento em função da carga e da energia dos íons incidentes.

Os resultados deste trabalho mostram de maneira clara a diminuição da perda de energia em direção canalizada em comparação com a perda de energia em direção

aleatória, que é da ordem de 15 a 18% na região do máximo de perda de energia, para os íons penetrando ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$ . Essa diferença tende a crescer com o aumento da energia dos íons, o que reflete o papel dos elétrons internos e dos elétrons de valência na perda de energia. Para energias mais altas, a contribuição dos elétrons internos para a perda de energia em direção aleatória aumenta, mas o mesmo não ocorre no caso canalizado, uma vez que a interação dos íons canalizados com os elétrons internos é fortemente suprimida. Para os íons penetrando ao longo do canal  $\langle 110 \rangle$ , o comportamento é idêntico, só que a diferença em relação à perda de energia em direção aleatória é ainda maior, uma vez que o canal é mais aberto.

Os resultados deste trabalho para íons de O incidindo ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$  do Si estão em bom acordo com os de Jiang *et al.*, mas o mesmo não se verifica para o caso dos íons de B. É provável que efeitos de espalhamento múltiplo e decanalização, os quais são mais pronunciados para íons mais leves, sejam os responsáveis por esse comportamento, uma vez que as amostras usadas nas medidas de transmissão de Jiang *et al.* tinham cerca de 10.000 Å de espessura. Já, com relação aos dados de dos Santos *et al.*, a diferença a energias intermediárias observada para as medidas de B ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$  pode ser um reflexo das diferenças entre os poderes de freamento aleatórios usados para a obtenção dos poderes de freamento canalizados.

#### 6.4.1 – Análise do poder de freamento canalizado e do efeito Barkas

As três abordagens mais recentes para o cálculo da perda de energia eletrônica, apresentadas no capítulo 4, foram empregadas neste trabalho de tese para calcular tanto o poder de freamento quanto a contribuição do efeito Barkas para o caso de íons de Be, B e O incidindo ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$  do Si. Nessa situação, a perda de energia é devida principalmente à interação com os elétrons de valência, sendo que o modelo de gás de elétrons dá uma boa descrição do alvo.

A combinação dos resultados experimentais com os cálculos UCA e os cálculos de canais acoplados não só permitiu isolar a contribuição devida ao efeito Barkas para a perda de energia, como também identificar quanto dessa contribuição é devida aos elétrons de valência e quanto é devida aos elétrons internos. Embora a contribuição dos

elétrons internos do Si ao efeito Barkas seja grande (devido à sua forte energia de ligação), ela só é importante para colisões próximas, assumindo, portanto, um papel de menor importância no caso canalizado. No presente estudo, a sua contribuição foi sempre menor que 10%, sendo de 8% para íons de B a 400 keV/uma, por exemplo.

Em um trabalho prévio, realizado pelo Grupo de Implantação Iônica [46, 119], observou-se que a contribuição Barkas para a perda de energia de íons de Li canalizados em Si era bastante grande, chegando a 50% do valor das outras contribuições ao longo do canal  $\langle 110 \rangle$  e 31% ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$ . Tal trabalho motivou a presente tese de doutorado, cuja motivação inicial foi verificar se o Li é o único íon que apresenta um efeito Barkas “gigante” ou se outros íons próximos apresentavam o mesmo comportamento. O que se observou foi que o efeito Barkas também é “gigante” para íons de Be e B ao longo do canal  $\langle 100 \rangle$ , sendo ainda maior que o observado para íons de Li nesse canal. Vale destacar que o método de obtenção do efeito Barkas tem a sua validade confirmada pela curva “universal” apresentada na figura 5.22, que não só confirma que o procedimento seguido é adequado, como também dá suporte à teoria de Lindhard para o efeito Barkas.

Os cálculos com o modelo binário provaram ser capazes de determinar uma contribuição Barkas para regiões onde os íons incidentes estão completamente despidos de elétrons, enquanto os cálculos baseados na teoria não-linear TCS-EFSR provaram ser efetivos na determinação da contribuição Barkas, mesmo em regiões onde os íons carregam elétrons ligados consigo. Dessa forma, o cálculo TCS-EFSR pôde ser realizado nas mesmas energias e com os mesmos estados de carga utilizados na análise que combinou os resultados experimentais e os cálculos UCA.

A combinação dos cálculos UCA com os cálculos TCS-EFSR para determinar o poder de freamento total em direção canalizada provou ser bastante eficiente. A soma levando em conta o cálculo total UCA e a contribuição Barkas extraída do cálculo TCS-EFSR concorda bem, a altas energias, com os dados experimentais de Li e Be, mas o acordo não é tão bom para os casos do B e do O. Já a soma dos cálculos TCS-EFSR completos com a contribuição dos elétrons internos dada pelo UCA, apresenta um acordo melhor para a maioria dos casos, em especial para o O, mas superestima os dados experimentais de Li e Be para altas energias. Ambas as combinações dão

resultados inferiores aos experimentais nas regiões de energias intermediárias, indicando que nem toda contribuição Barkas é reproduzida pelos cálculos. Como foi mencionado anteriormente, a diferença entre os dois métodos é devida aos diferentes tratamentos dados aos elétrons de valência. Enquanto a primeira combinação citada acima trata a dependência espacial da perda de energia de uma forma bem mais completa (através da dependência com o parâmetro de impacto e com o fluxo de íons no canal) ela recorre ao uso de “íons-imagem” para dar conta da contribuição Barkas. Já a segunda combinação dispensa o uso de “íons-imagem”, mas depende de a representação do meio por um gás de elétrons ser válida.

#### **6.4.2 – Dependência do efeito Barkas com a carga e a energia dos íons**

Neste trabalho, foi possível observar o comportamento das contribuições absoluta e relativa do efeito Barkas ao poder de freamento, para íons de Be, B e O, no intervalo de energias entre 300 e 700 keV/uma. Além disso, dados para íons de He e Li medidos previamente foram incorporados ao trabalho, a fim de ampliar a região de caracterização do efeito Barkas. O que se pôde observar com relação à contribuição Barkas absoluta é que ela diminui com o aumento da velocidade do projétil na região estudada, ainda que a carga deles aumente nessa condição. Isso pode ser explicado pelo fato de a velocidade dos íons ir se tornando bem maior que a velocidade com que os elétrons do meio reagem à sua presença. Também, pôde-se conferir que, para cada energia, a contribuição Barkas absoluta cresce com o aumento da carga do projétil, como é de se esperar.

Com relação à contribuição Barkas absoluta, observou-se que os cálculos baseados nos modelos binário e TCS-EFSR descrevem bem o comportamento dos resultados experimentais a altas energias. Com o decréscimo da energia, entretanto, os cálculos começam a subestimar os resultados experimentais, não sendo capazes de reproduzir todo o efeito Barkas observado. Essa diferença é mais acentuada para os cálculos com o modelo binário, que utiliza uma função de blindagem não tão sofisticada como a do modelo TCS-EFSR.

Em relação à contribuição Barkas relativa, o que se observou para as energias mais altas foi um crescimento com o aumento da carga do projétil. Nessa região de energia, onde a teoria de perturbação descreve bem os resultados experimentais, pode-se interpretar esse resultado com base no fato de o poder de freamento e a contribuição Barkas aumentarem com potências diferentes da carga,  $q^2$  e  $q^3$ , respectivamente. O acordo dos cálculos não-lineares com os resultados experimentais é muito bom nesse regime. Entretanto, à medida que a energia diminui, o modelo perturbativo deixa de ser adequado. Nesse regime, os modelos não-lineares indicam que o poder de freamento e a contribuição Barkas aumentam com taxas diferentes em função do estado de carga, de forma que a contribuição Barkas relativa apresenta uma saturação em função da carga média do projétil. Os resultados experimentais deste trabalho apresentam o mesmo comportamento de saturação observado pelos cálculos binário e TCS-EFSR. Porém, a contribuição Barkas relativa obtida por meio de tais cálculos não consegue representar todo o efeito observado a partir das medidas experimentais, especialmente para o caso do Be.

A realização de cálculos com potenciais não-esféricos, do ponto de vista teórico, e de medidas com íons mais pesados que o O, do ponto de vista experimental, aparecem como perspectivas futuras interessantes. Há indícios de que o uso de potenciais não-esféricos pode levar a contribuições Barkas até 30% maiores que as calculadas com um potencial do tipo Yukawa. Já com relação a medidas experimentais com íons mais pesados, a técnica de RBS apresenta limitações, uma vez que íons mais pesados que os da matriz (Si, no presente caso) não poderão ser utilizados. Essa restrição poderia ser superada usando-se a técnica de transmissão aliada a amostras de Si cristalino auto-suportadas de espessura não muito grande. O recente desenvolvimento de membranas de Si, produzidas a partir de Si poroso, torna essa última alternativa mais atraente e factível.

## APÊNDICE A

# MÉTODO DE INTERPOLAÇÃO PARA A OBTENÇÃO DAS FRAÇÕES DE CARGA E DA CARGA MÉDIA DE ÍONS DE Be

### A.1 – Introdução

Conforme mencionado nos capítulos 2 e 5, as frações de carga e o estado de carga médio dos íons são grandezas essenciais para se obter um resultado preciso no cálculo do poder de freamento desses íons. Na maioria dos casos considerados no presente trabalho, foi possível obter esses valores a partir de medidas experimentais [194]. Porém, para o caso de íons de Be incidindo em Si, tais resultados não existem na literatura. Assim, um procedimento de interpolação, baseado nos dados existentes para íons de Li, B, C, N e O, teve que ser desenvolvido, a fim de obter valores para serem empregados no cálculo do poder de freamento. Esse procedimento de interpolação será descrito no presente apêndice.

### A.2 – Procedimento para obtenção carga média

O primeiro passo no procedimento de obtenção da carga média foi calculá-la para o caso de íons de Li, B, C, N e O incidindo em alvos de Si, a partir dos resultados experimentais para as frações de carga publicados em [194], através da relação:

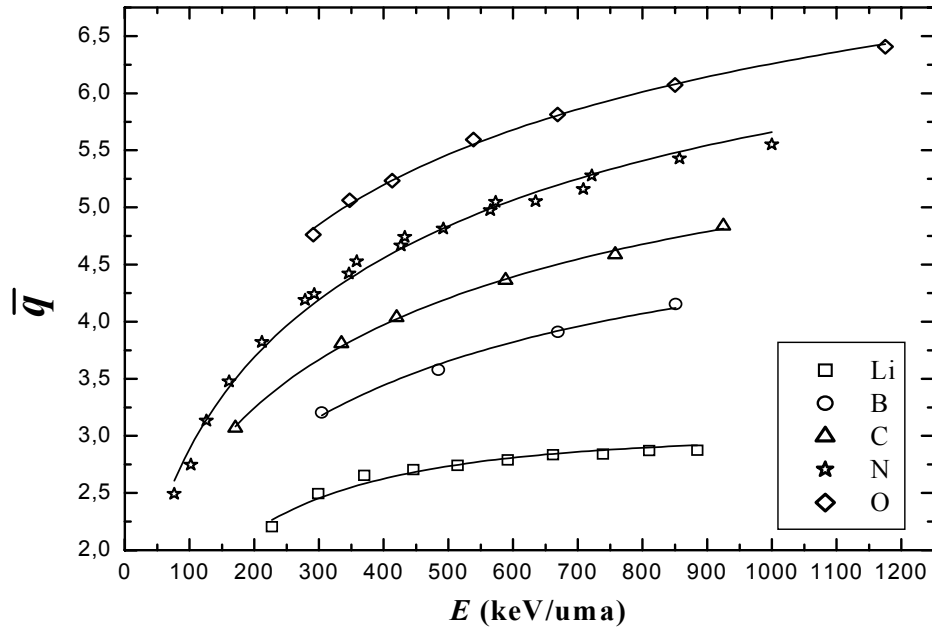
$$\bar{q} = \sum_n f_n q_n, \quad (\text{A.1})$$

onde  $n$  representa os estados de carga do íon existentes, e  $f$  a fração de carga correspondente. A seguir, os resultados obtidos para a carga média foram reunidos em um gráfico e ajustados por uma função do tipo:



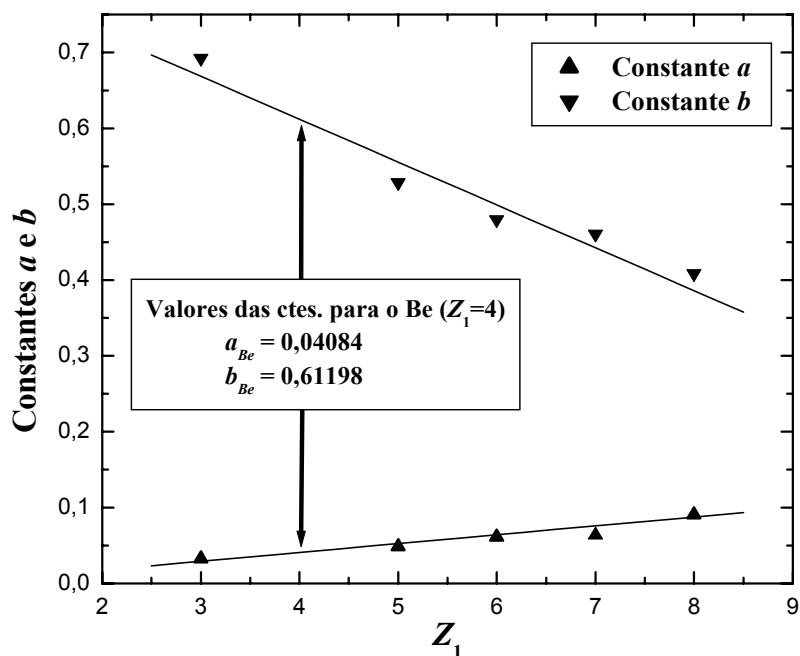
$$\bar{q} = Z_1 \cdot [1 - \exp(-a \cdot v_1^b)], \quad (\text{A.2})$$

onde  $v_1$  representa a velocidade dos íons e  $a$  e  $b$  são duas constantes de ajuste, as quais se quis determinar. Isso está ilustrado na figura A.1.

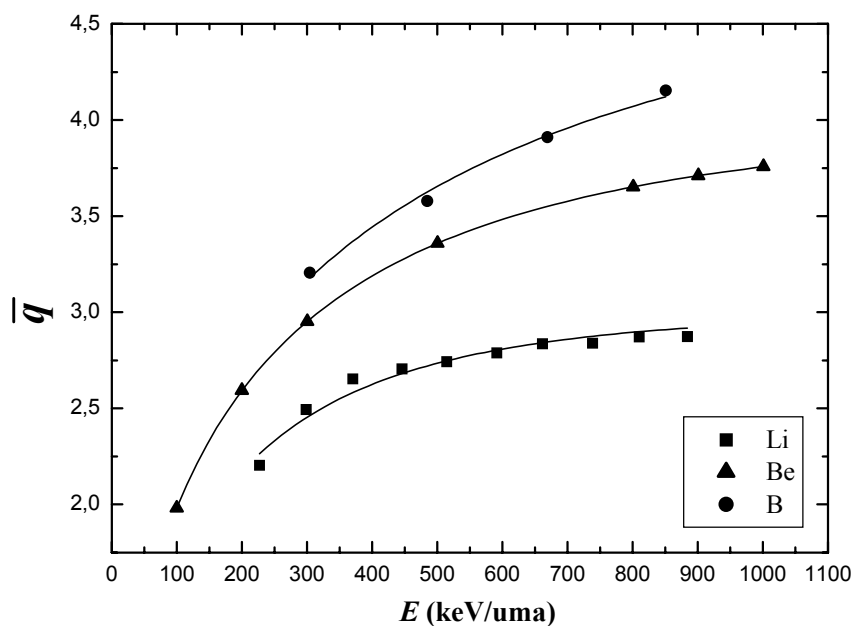


**Figura A.1** – Valores da carga média calculados a partir das frações de carga obtidas por Jiang et al. [194]. Os símbolos representam os dados experimentais, enquanto as retas representam as funções ajustadas (equação (A.2)).

Então, os valores obtidos para  $a$  e  $b$  nos ajustes foram reunidos em um novo gráfico, em função do número atômico dos íons. O que se observou foi um comportamento aproximadamente linear para os valores de  $a$  e  $b$ . Dessa forma, foi realizado um ajuste linear para ambos e, a partir das retas de ajuste, foram determinados os valores de  $a$  e  $b$  para íons de Be ( $Z_1 = 4$ ). Isso pode ser visto na figura A.2, onde os valores  $a_{Be} = 0,04084$  e  $b_{Be} = 0,61198$  são indicados pelas setas. De posse dos valores de  $a_{Be}$  e  $b_{Be}$ , foi possível aplicá-los na equação (A.2) para obter a carga média dos íons de Be em função de sua energia (ou velocidade). O resultado obtido é mostrado na figura A.3, juntamente com os dados de outros íons que foram empregados na sua determinação.



**Figura A.2** – Determinação das constantes  $a$  e  $b$  para íons de Be (indicadas pelas setas) a partir de um ajuste linear (linhas cheias) feito sobre os valores obtidos para as constantes dos íons de Li, B, C, N e O (indicados pelos símbolos).



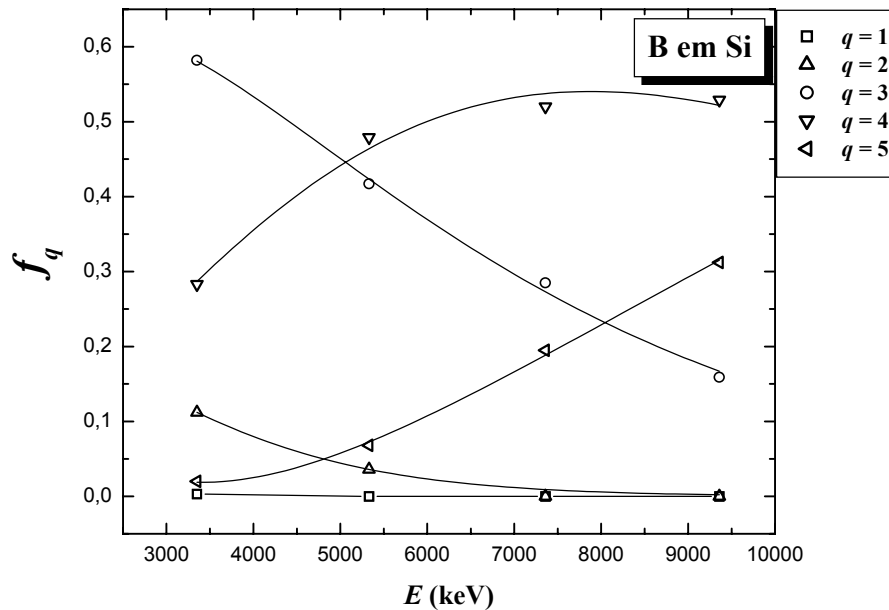
**Figura A.3** – Resultado obtido para a carga média em função da energia de íons de Be (triângulos), comparados com os dados para íons de Li (quadrados) e B (círculos). As linhas representam as funções de ajuste.

### A.3 – Procedimento para a obtenção das frações de carga

De maneira semelhante ao que foi feito para a carga média, o primeiro passo para a obtenção das frações de carga de Be também consistiu num ajuste de funções aos dados experimentais de Jiang *et al.* [194]. As funções usadas para esse ajuste foram do tipo:

$$f_q = [S1 \cdot (v_1)^{S2}] \cdot [\exp(-S3 \cdot v_1)], \quad (\text{A.3})$$

onde  $S1$ ,  $S2$  e  $S3$  são as constantes de ajuste a serem determinadas para os dados de Li, B, C, e N. Um exemplo desse procedimento, para o caso do B, pode ser visto na figura A.4 a seguir.



**Figura A.4** – Frações de carga obtidas experimentalmente (símbolos) e os respectivos ajustes com a equação (A.3) para íons de B.

A seguir, os valores das constantes  $S$  obtidos para todos os estados de carga dos diversos íons foram usados para gerar curvas de frações de carga, numa ampla faixa de energias, através da relação (A.3), a fim de verificar sua consistência. Tais curvas obedeceram sempre as duas condições de contorno obrigatórias: a) a soma das frações de carga em qualquer energia deve ser sempre igual a um e b) a soma dos produtos

fração de carga vezes carga para qualquer energia deve ser igual à carga média, a qual foi determinada pelos ajustes mostrados na seção anterior. Isso pode ser escrito como:

$$\left\{ \begin{array}{l} \sum_n f_{q_n} = 1 \\ \sum_n f_{q_n} q_n = \bar{q} \end{array} \right. \quad (\text{A.4})$$

Os valores das constantes  $S$  encontrados neste estudo para os íons de Li, B, C e N estão listados na tabela A.1. Nela, só são apresentados os resultados para os estados de carga entre 1 e 4, pois esses são os estados que um íon de Be pode assumir. Os demais estados (como  $B^{5+}$ ,  $N^{6+}$ ) também foram estudados, mas não serão apresentados.

**Tabela A.1** – Valores das constantes  $S$  obtidos para os estados de carga entre 1 e 4 de íons de Li, B, C e N.

Íon <sup>carga</sup> \ Constante	S1	S2	S3
Li <sup>1+</sup>	0,01094	1,10728	0,01581
Li <sup>2+</sup>	0,12670	0,39567	0,00338
Li <sup>3+</sup>	0,00377	0,89799	0,00068
B <sup>1+</sup>	-	-	-
B <sup>2+</sup>	0,00089	1,36566	0,00966
B <sup>3+</sup>	0,02429	0,74934	0,00363
B <sup>4+</sup>	1,7852 x 10 <sup>-6</sup>	2,25682	0,00309
C <sup>1+</sup>	-	-	-
C <sup>2+</sup>	0,03695	0,89597	0,01696
C <sup>3+</sup>	0,22082	0,36169	0,00582
C <sup>4+</sup>	9,9876 x 10 <sup>-6</sup>	2,16157	0,00483
N <sup>1+</sup>	3,8476 x 10 <sup>-13</sup>	8,17482	0,11953
N <sup>2+</sup>	0,00914	1,38244	0,02922
N <sup>3+</sup>	0,00021	2,09796	0,01867
N <sup>4+</sup>	1,6102 x 10 <sup>-6</sup>	2,75429	0,01027

Os valores apresentados na tabela A.1 também foram reunidos em gráficos, onde o valor de cada constante foi representado em função do número de elétrons ligados ao íon (diferença entre o número atômico e a carga do íon,  $Z_1 - q$ ). A partir do

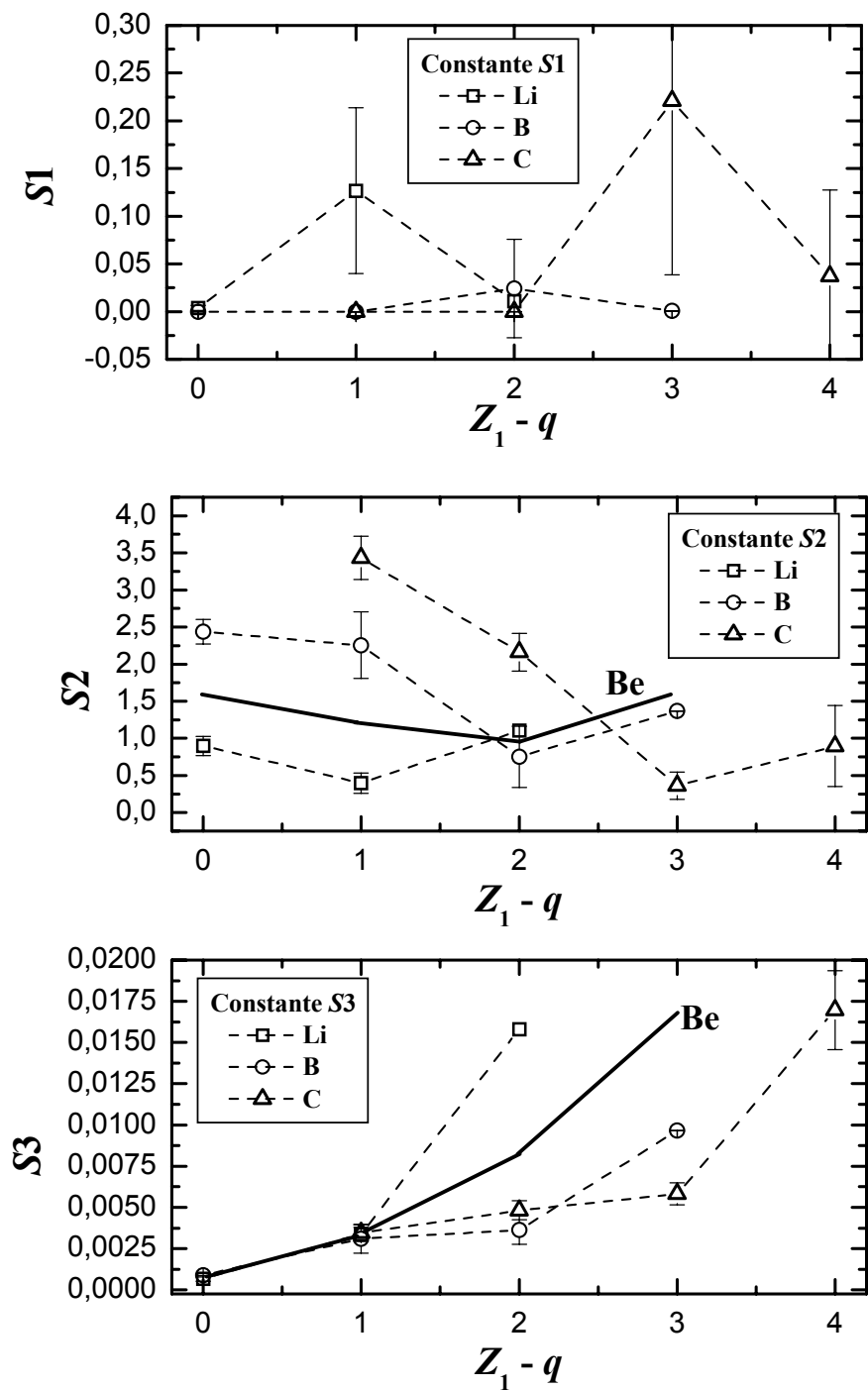
## Apêndice A – Método de interpolação para a obtenção das frações de carga de Be 208

comportamento observado nesses gráficos, foi realizada uma interpolação para a determinação dos valores das constantes  $S$  para o Be. Essa interpolação gráfica consistiu em supor que as constantes  $S$  do Be deveriam ter comportamento similar ao observado para os íons vizinhos (Li e B), e seu valor, para cada estado de carga, deveria ser um valor médio entre os valores observado para o Li e para o B. Tal abordagem está ilustrada na figura A.5, onde os gráficos para as constantes  $S1$ ,  $S2$  e  $S3$  são apresentados. Os valores obtidos pelos ajustes aos dados experimentais são representados por símbolos ligados por linhas tracejadas, enquanto que os valores obtidos pela interpolação para o caso do Be são representados pelas linhas cheias. Como se pode ver, os resultados dos ajustes para  $S2$  e  $S3$  apresentam um comportamento semelhante para Li, B e C, permitindo a aplicação da interpolação gráfica. Já para o caso dos ajustes relativos a  $S1$ , o mesmo não acontece, e os erros relacionados ao ajuste são muito grandes, de forma que essa constante, para o caso do Be, teve que ser determinada de outra maneira.

Para determinar a constante  $S1$ , foi necessário combinar os valores obtidos para  $S2$  e  $S3$  com as condições dadas por (A.4). Dessa maneira, foi possível montar um sistema de equações dado por:

$$\begin{aligned} \left[ x(v_0)^{1,57} e^{(-0,019v_0)} \right] + 2 \left[ y(v_0)^{0,91873} e^{(-0,0096v_0)} \right] + 3 \left[ z(v_0)^{1,24} e^{(-0,0323v_0)} \right] + 4 \left[ w(v_0)^{1,65} e^{(-0,00075v_0)} \right] &= \bar{q}_0 \\ \left[ x(v_1)^{1,57} e^{(-0,019v_1)} \right] + 2 \left[ y(v_1)^{0,91873} e^{(-0,0096v_1)} \right] + 3 \left[ z(v_1)^{1,24} e^{(-0,0323v_1)} \right] + 4 \left[ w(v_1)^{1,65} e^{(-0,00075v_1)} \right] &= \bar{q}_1, \\ \left[ x(v_2)^{1,57} e^{(-0,019v_2)} \right] + 2 \left[ y(v_2)^{0,91873} e^{(-0,0096v_2)} \right] + 3 \left[ z(v_2)^{1,24} e^{(-0,0323v_2)} \right] + 4 \left[ w(v_2)^{1,65} e^{(-0,00075v_2)} \right] &= \bar{q}_2 \\ \left[ x(v_3)^{1,57} e^{(-0,019v_3)} \right] + 2 \left[ y(v_3)^{0,91873} e^{(-0,0096v_3)} \right] + 3 \left[ z(v_3)^{1,24} e^{(-0,0323v_3)} \right] + 4 \left[ w(v_3)^{1,65} e^{(-0,00075v_3)} \right] &= \bar{q}_3 \end{aligned}$$

onde os sub-índices 0, 1, 2 e 3 indicam que é necessário escolher quatro velocidades diferentes do íon e calcular previamente a carga média para essas velocidades, através da relação (A.2) e dos valores  $a_{Be}$  e  $b_{Be}$ , apresentados na seção A.1 deste apêndice. De posse desses valores, é possível resolver o sistema e encontrar os valores das incógnitas  $x$ ,  $y$ ,  $z$  e  $w$ , as quais representam os valores de  $S1$  para os quatro estados de carga possíveis do Be. Para a resolução do sistema, foi desenvolvida uma rotina no programa MathCad.



**Figura A.5** – Constantes  $S1$ ,  $S2$  e  $S3$  apresentadas em função do número de elétrons ligados ao íon. Símbolos com linhas tracejadas: resultados obtidos pelo ajuste da função (A.3) aos dados experimentais de frações de carga de Li, B e C, medidos em [194]. Linhas cheias: resultados interpolados para o caso de íons de Be, tomados como o valor médio entre os resultados para Li e B.

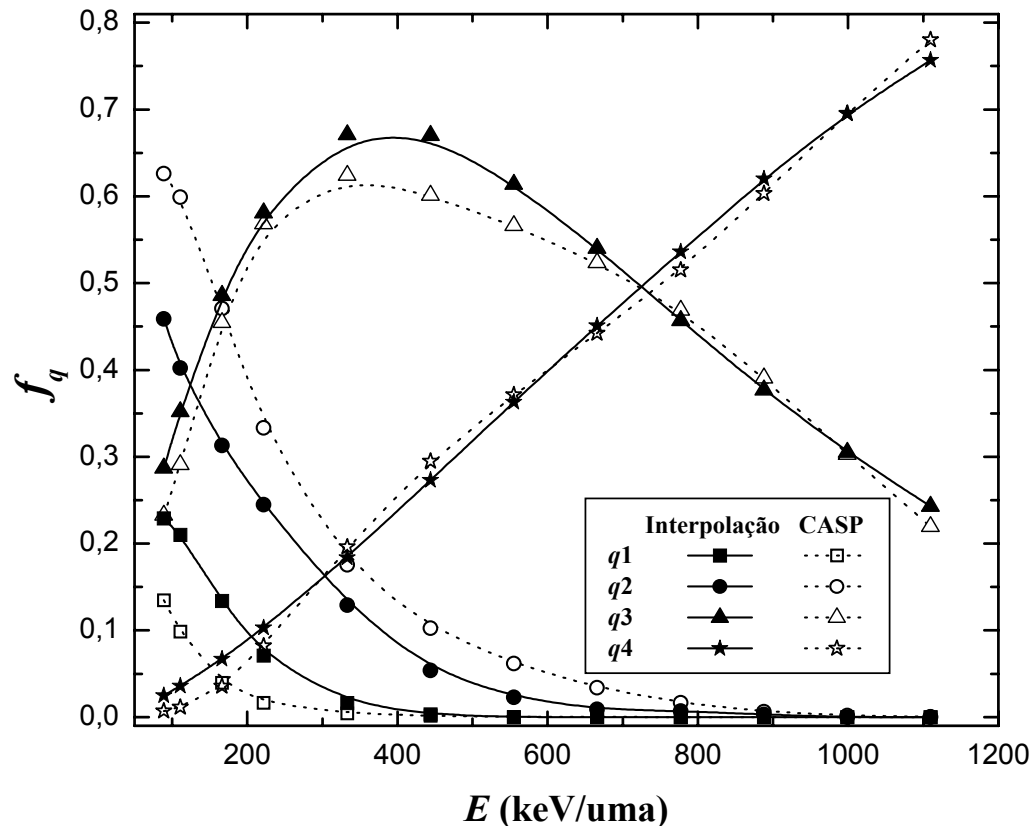
## Apêndice A – Método de interpolação para a obtenção das frações de carga de Be 210

Os valores calculados para a constante  $S1$ , juntamente com os valores obtidos pela interpolação para as constantes  $S2$  e  $S3$ , permitiram obter fórmulas analíticas para determinar as frações de carga de íons de Be em função de sua velocidade, as quais são dadas por:

$$\begin{aligned}fq_{1_i} &= 1,123 \times 10^{-3} (v_{1_i})^{1,57} \cdot \exp(-0,0195v_{1_i}) \\fq_{2_i} &= 0,014 (v_{1_i})^{0,92} \cdot \exp(-0,0096v_{1_i}) \\fq_{3_i} &= 1,465 (v_{1_i})^{1,24} \cdot \exp(-0,00323v_{1_i}) \\fq_{4_i} &= 1,63 (v_{1_i})^{1,65} \cdot \exp(-0,00075v_{1_i})\end{aligned}\tag{A.5}$$

Os resultados obtidos pela aplicação dessas equações no intervalo de energias entre 100 e 1100 keV/uma são apresentados na figura A.6, onde são comparados com os resultados fornecidos pelo programa CASP [199], os quais são baseados numa análise que emprega teoria de perturbação de primeira ordem [146]. Enquanto a altas energias um acordo muito bom é verificado para todas as cargas, os resultados para as cargas mais baixas, a baixas energias, são discordantes. Uma vez que os resultados do CASP são oriundos de uma teoria desenvolvida para altas energias, o comportamento observado na figura A.6 reforça a validade do método de interpolação para a obtenção das frações de carga do Be.

Como mencionado no capítulo 5, tanto a distribuição de frações de carga obtida pela interpolação quanto a fornecida pelo CASP foram usadas para o cálculo do poder de freamento canalizado de Be em Si, resultando nos valores apresentados na figura 5.18. Já para a determinação do efeito Barkas, foi tomado como valor de referência a média dos dois resultados.



**Figura A.6** – Distribuições de frações de carga para íons de Be incidindo em Si com energias entre 100 e 1100 keV/uma. Os símbolos cheios são os resultados obtidos pelo procedimento de interpolação, enquanto que os símbolos vazados são os resultados fornecidos pelo programa CASP.



## APÊNDICE B

### PUBLICAÇÕES RELACIONADAS A ESTE TRABALHO

Os resultados obtidos durante este trabalho de tese foram publicados em quatro artigos, a saber:

- ARAUJO, L. L.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; dos SANTOS, J. H. R. Random stopping power and energy straggling of  $^{16}\text{O}$  ions into amorphous Si target. *Nuclear Instruments & Methods In Physics Research B*, Amsterdam, v. 190, p. 79-83, May 2002.
- ARAUJO, L. L.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; DIAS, J. F.; dos SANTOS, J. H. R.; SCHIWETZ, G. Channeling energy loss of O ions in Si: the Barkas effect. *Nuclear Instruments & Methods In Physics Research B*, Amsterdam, v. 193, p. 172-177, June 2002.
- ARAUJO, L. L.; BEHAR, M.; GRANDE, P. L.; DIAS, J. F. Random energy loss and straggling study of  $^9\text{Be}$  ions in silicon. *Nuclear Instruments & Methods In Physics Research B*, Amsterdam, v. 219/220, p. 246-250, June 2004.
- ARAUJO, L. L.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M.; DIAS, J. F.; LIFSCHITZ, A. F.; ARISTA, N. R.; SCHIWETZ, G. Electronic energy loss of channeled ions – the giant Barkas effect. *Physical Review A*, New York, aceito para publicação em junho de 2004.

A primeira página de cada publicação será apresentada a seguir.



Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 190 (2002) 79–83



www.elsevier.com/locate/nimb

## Random stopping power and energy straggling of $^{16}\text{O}$ ions into amorphous Si target

L.L. Araujo \*, P.L. Grande, M. Behar, J.H.R. dos Santos

*Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, Brazil*

### Abstract

In the present contribution, we report results on random stopping power and range straggling of  $^{16}\text{O}$  ions into amorphous Si target. The measurements were performed in a 300 keV–13.5 MeV energy interval by using the Rutherford backscattering technique together with a marker system. The present stopping results were compared with the TRIM predictions based on the Ziegler, Biersack and Littmark calculations, the theoretical values being always higher than the experimental ones. On the other hand, the calculated straggling data are compared with the Bohr predictions. For low energies, the calculated values over-estimate the experimental ones. For energies larger than 2 MeV, the experimental results became larger than the Bohr predictions. However, with increasing energies, the experimental results approach the Bohr values, and above 12 MeV a quite good theoretical experimental agreement was found. © 2002 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

*PACS:* 61.18.Bn; 61.85.+p

*Keywords:* Stopping power; Energy loss; RBS; Energy straggling; Oxygen; Silicon

### 1. Introduction

The slowing down of energetic ions penetrating into the matter has been intensively studied for many years. As a consequence, a large number of range measurements on a variety of projectile–target combinations have been performed in order to test current theories [1]. On the other hand, in the same period of time much less stopping power measurements have been reported.

An accurate knowledge of stopping powers is important from two points of view. First, the data can test inter-atomic potentials and/or electronic excitation models used in range and atomic dis-

placement calculations. Second, from the practical point of view, the data can be used as input of analytical or Monte-Carlo type of programs that calculate depth distributions and damage produced by ions implanted into a given target.

Usually the energy loss of ions has been performed by measuring the final energy of ions transmitted through thin foils. However, the use of this method strongly depends on the preparation of homogeneous self-supporting films. In particular, in order to measure the energy loss of ions heavier than protons or He at low or intermediate energies, extremely thin films must be employed.

The random stopping power data for O in Si are scarce and incomplete. First measurements were performed by Santry and Werner [2] in a 200–2000 keV energy range. More recently, Jiang et al. [3]

\* Corresponding author.



ELSEVIER

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 193 (2002) 172–177



www.elsevier.com/locate/nimb

## Channeling energy loss of O ions in Si: The Barkas effect

L.L. Araujo<sup>a</sup>, P.L. Grande<sup>a,\*</sup>, M. Behar<sup>a</sup>, J.F. Dias<sup>a</sup>, J.H.R. dos Santos<sup>a</sup>,  
G. Schiwietz<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Instituto de Física – Universidade Federal do Rio Grande do Sul Caixa Postal 15051, Av. Bento Gonçalves 9500, CEP 91501 – 970, Porto Alegre (RS), Brazil

<sup>b</sup> Hahn-Meitner-Institut, Bereich Festkörperphysik, Glienicke Strasse 100, 14109 Berlin, Germany

### Abstract

In this work we report on measurements of channeling stopping powers of  $^{16}\text{O}$  ions along Si(100) axial direction for the energy range between 250 keV/u and 1 MeV/u by using the Rutherford backscattering technique with separated by implanted oxygen targets. In connection with the recent developed unitary convolution approximation, we are able to extract the Barkas contribution to the energy loss with high precision. This effect is clearly separated from other processes and amounts to about 15%. The observed Barkas contribution from the valence-electron gas is in agreement with the Lindhard model for higher energies. However, in contrast to recent investigations for Li ions, the Barkas effect at the lowest energies seems to saturate, indicating other non-perturbative terms in the polarization field induced by the O ions in Si. © 2002 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

The stopping force of light and heavy projectiles under channeling conditions has been investigated during the last years in order to improve the fundamental understanding of ion–solid interactions. Important issues related to the energy loss in the polarization field are still unclear [1,2]. Only recently [1], the so-called Barkas effect, an energy-loss enhancement proportional to the third power of the projectile charge at high energies, has been clearly separated from other processes, and reaches huge relative values for Li ions channeling along the Si(110) direction.

There is a general lack of information concerning the slowing down from medium to heavy ions in crystals. These data are also important for ion beam analysis and modification of materials. A large amount of data related to H impinging along the Si major directions is available. Conversely, despite the fact that He beams are often used in Rutherford backscattering (RBS)/channeling analysis of Si samples, only recently the stopping data have been reported for the Si(100) channel [3–5]. Concerning heavier ions, channeling stopping data are scarce and generally restricted to narrow energy ranges [6–11].

Here, we report on measurements of the electronic stopping power as a function of the incidence energy for oxygen channeling along Si(100) direction. For these measurements, we have used the RBS channeling technique in combination with a separated by implanted oxygen (SIMOX) target.

\* Corresponding author.

E-mail address: grande@if.ufrgs.br (P.L. Grande).

Available online at [www.sciencedirect.com](http://www.sciencedirect.com)

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 219–220 (2004) 246–250

**NIM B**  
Beam Interactions  
with Materials & Atoms[www.elsevier.com/locate/nimb](http://www.elsevier.com/locate/nimb)

## Random energy loss and straggling study of $^9\text{Be}$ ions in silicon

L.L. Araujo, M. Behar, P.L. Grande, J.F. Dias \*

*Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Caixa Postal 15051, CEP 91501-970, Porto Alegre, RS, Brazil*

### Abstract

In the present work we have measured the random electronic stopping power and energy straggling of  $^9\text{Be}$  in Si. In order to achieve this goal, we have employed the Rutherford backscattering technique together with a series of Bi markers implanted into Si. The stopping power measurements were performed in the 500–7000 keV energy range, while the energy straggling ones were done in the 800–5000 keV energy range. The results have been compared with the SRIM predictions and a quite good agreement is observed. Concerning the energy straggling, the experimental results are in general larger than predictions based on Bohr's formalism, and only at higher energies ( $E \geq 3000$  keV) the present results approach the Bohr values.

© 2004 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

The energy loss of light ions in materials is an important issue. This is not only because of its direct application in ion beam analysis but also in order to improve the understanding of fundamental ion–solid interactions. Furthermore, for accurate ion beam analysis of elemental depth distributions in near surface layers, the stopping power of the respective ion–target combination must be known sufficiently well. The random stopping power is indeed well known for almost any H or He–target combination [1]. In particular, precise values for the stopping power of H, He, B and other light ions in amorphous Si have been

already published [2–5]. These data are needed in order to test current theoretical calculation for the electronic energy loss and for analytic techniques such as elastic recoil detection analysis (ERDA) and heavy ion Rutherford backscattering (HIRBS) in order to perform precise energy to depth conversion.

In the present work, we have measured random electronic stopping powers and energy straggling of  $^9\text{Be}$  ions in Si. We have used the Rutherford backscattering technique (RBS) together with a series of Bi markers implanted into Si wafers. The advantage of this experimental arrangement is that it does not make use of thin selfsupported films as is the case for transmission measurements. Furthermore, this technique allows for stopping power and energy straggling measurements at quite low energies. Consequently, we were able to measure stopping powers over a wide energy range, between 500 keV and 7 MeV, while we observed energy straggling over the 800 keV–5 MeV interval. The present results have been compared with

\*Corresponding author. Address: Laboratório de Implantação Iônica, Instituto de Física – UFRGS, Av. Bento Gonçalves, 9500, CP 15051, Porto Alegre 91501-970, Brazil. Tel.: +55-51-3316-7248/7004; fax: +55-51-3316-7286.

E-mail address: [jfdias@if.ufrgs.br](mailto:jfdias@if.ufrgs.br) (J.F. Dias).

PROOF COPY [AR9000] 101409PRA

PHYSICAL REVIEW A 70, 1 (2004)

**Electronic energy loss of channeled ions: The giant Barkas effect**

L. L. Araujo, P. L. Grande, M. Behar, and J. F. Dias

*Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Caixa Postal 15051, CEP 91501-970, Porto Alegre (RS), Brazil*

A. F. Lifschitz and N. R. Arista

*División Colisiones Atómicas, Centro Atómico Bariloche, Instituto Balseiro, RA-8400, San Carlos de Bariloche, Rio Negro, Argentina*

G. Schiwietz

*Hahn-Meitner-Institut, Bereich Festkörperphysik Glienicker Strasse 100, 14109 Berlin, Germany*

(Received 20 April 2004)

In this work we have measured the electronic energy loss of  $^9\text{Be}$  and  $^{11}\text{B}$  ions for the  $\langle 100 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions in Si as a function of the incident ion energy. The channeling measurements cover a wide energy range between 100 keV/amu and 1 MeV/amu. The Rutherford backscattering technique has been employed in the present experiments. An overall compilation of channeling energy loss values for several ions, including those for He, Li, and O measured previously, provides a clear picture of the Barkas contribution to the stopping power due to valence electrons in the present energy regime. A maximum of the relative contribution occurs for Be ions around 250 keV/amu while a saturation effect is observed for heavier ions. These results are interpreted in terms of a self-consistent nonlinear calculation based on the transport cross-section approach together with the unitary convolution approximation model, which describe the present data reasonably well at high projectile energies.

DOI: XXXX

PACS number(s): 34.50.Bw, 61.85.+p, 34.50.Fa, 79.20.Rf

**I. INTRODUCTION**

The measurement of the energy loss of light projectiles under axial channeling conditions is of primary interest in order to improve the understanding of fundamental ion-solid interactions. Channeled ions attain a very particular distribution along the channel, being pushed towards its center, giving rise to what is known as flux peaking [1]. As a consequence, the incoming ion interacts mostly with valence electrons of the crystal under study, providing a relatively simple scenario where, for instance, an electron gas model is realized and auxiliary effects such as shell corrections and electron capture play a minor role in the interaction of the ions with the crystal. Therefore, the study of polarization effects in ionizing collisions becomes attractive, since the theoretical approach is simplified in this case.

The Barkas effect, in particular, accounts for the difference in the stopping powers of particles and their respective antiparticles and was first observed by Barkas when studying hyperon masses [2]. Barkas himself suggested that this difference might stem from higher-order terms relative to the Bethe theory [3] (namely, from the interference between the first- and second-order terms). At lower energies and for projectiles carrying bound electrons, the definition of the Barkas effect is somewhat controversial [4] due to the interplay of other effects. In this work, it is assumed that the Barkas effect stands for the different way the electron cloud is polarized when identical ions (with the same internal structure) but with opposite charges pass by. Other polarization effects also appear in multiple ionizing collisions due to highly charged projectiles and have been recently investigated for gas targets [5,6].

Initially, the observation of the Barkas effect relied upon indirect measurements only, where the ranges of positively

charged particles in emulsions were observed to be smaller than those of negatively charged ones [2]. Later on, with the advent of antiproton beams, a direct measurement of the Barkas effect was possible using both proton and antiproton beams [7,8]. Although some attempts were made for direct measurements using ion beams, it was found that the Barkas contribution to the stopping power in such cases was extremely small and difficult to quantify [9].

Recently, after some attempts [10,11], the channeling technique was proven to be a powerful tool to extract the Barkas contribution to the valence stopping power from experimental data. Indeed, it has been shown [12] that for He and Li ions traveling in axial channels in Si, the Barkas effect is responsible for a sizable fraction of the total stopping power. For Li ions in Si along the  $\langle 110 \rangle$  direction, this contribution amounts to 50%, characterizing what has been termed as the giant Barkas effect [12]. Later a similar study was carried out for O ions channeling in the Si  $\langle 100 \rangle$  direction [13]. In this case, the relative contribution of the Barkas effect to the stopping power was found to be smaller than those observed for He and Li ions in the same channel in Si at low velocities.

At this point, it became clear that the gap between Li and O projectile should be filled, in order to provide a clear picture of the behavior of the absolute and relative contributions of the Barkas effect to the stopping power. In particular, the question whether there is a smooth behavior of these contributions should be clarified by new measurements. Therefore, we have embarked on measurements of the channeling stopping power of  $^{11}\text{B}$  and  $^9\text{Be}$  in Si  $\langle 100 \rangle$  and  $\langle 110 \rangle$  directions as a function of the ion energy. While  $^{11}\text{B}$  has been measured along the Si  $\langle 100 \rangle$  previously [14,15], this is the first measurement of  $^9\text{Be}$  under channeling conditions in Si. The the-

1050-2947/2004/70(3)/1(0)/\$22.50

70 1-1

©2004 The American Physical Society

PROOF COPY [AR9000] 101409PRA

## REFERÊNCIAS:

- [1] SKLODOWSKA-CURIE, Mme. Sur la penetration des rayons de Becquerel non deviables par le champ magnetique. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences*, Paris, v. 130, p. 76-79, Jan. 1900.
- [2] THOMSON, J. J. *Conduction of electricity through gases*. Cambridge: Cambridge University Press, 1903.
- [3] RUTHERFORD, E. The scattering of alpha and beta particles by matter and the structure of the atom. *Philosophical Magazine*, London, v. 21, p. 669-688, 1911.
- [4] BOHR, N. On the constitution of atoms and molecules, part I. *Philosophical Magazine*, London, série 6, v. 26, n. 151, p. 1-25, Jul. 1913.
- [5] BOHR, N. The decrease of velocity of swiftly moving electrified particles in passing through matter. *Philosophical Magazine*, London, v. 30, n. 177, p. 581-612, Sept. 1915.
- [6] BETHE, H. A. Theory of the passage of fast corpuscular rays through matter. *Annalen der Physik*, Leipzig, v. 5, p. 325-400, 1930.
- [7] BETHE, H. A. Stopping power for electrons of relativity velocities. *Zeitschrift fur Physik*, Berlin, v. 76, p. 293-299, 1932.
- [8] BETHE, H. A.; HEITLER, W. On the stopping of fast particles and on the creation of positive electrons. *Proceedings of the Royal Society of London A*, London, v. 146, p. 83-112, 1934.
- [9] BLOCH, F. Zur bremsung rasch bewegter teilchen beim durchgang durch materie. *Annalen der Physik*, Leipzig, v. 16, n. 3, p. 285-320, 1933.
- [10] BLOCH, F. Bremsvermogen von atomen mit mehreren elektronen. *Zeitschrift fur Physik*, Berlin, v. 81, n. 5-6, p. 363-376, 1933.
- [11] BOHR, N. Scattering and stopping of fission fragments. *Physical Review*, New York, v. 58, n. 7, p. 654-655, Oct. 1940.
- [12] BOHR, N. Velocity-range relation for fission fragments. *Physical Review*, New York, v. 59, n. 3, p. 270-275, Feb. 1941.
- [13] THOMAS, L. H. The calculation of atomic fields. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, Cambridge, v. 23, p. 542-548, 1927.

- [14] FERMI, E. Eine statistische begründung zur bestimmung einiger eigenschaften des atoms und ihre anwendungen auf die theorie des periodischen systems der elemente. *Zeitschrift für Physik*, Berlin, v. 48, p. 73-79, 1928.
- [15] FERMI, E.; TELLER, E. The capture of negative mesotrons in matter. *Physical Review*, New York, v. 72, n. 5, p. 399-408, Sept. 1947.
- [16] BOHR, N. The penetration of atomic particles through matter. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 18, n. 8, p. 1-143, 1948.
- [17] BOHR, N. Atomic interaction in penetration phenomena. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 24, n. 19, p. 1-52, 1948.
- [18] NEUFELD, J.; RITCHIE, R. H. Passage of charged particles through plasma. *Physical Review*, New York, v. 98, n. 6, p. 1632-1642, June 1955.
- [19] LINDHARD, J. On the properties of a gas of charged particles. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 28, n. 8, p. 1-57, 1954.
- [20] FANO, U. Atomic theory of electromagnetic interactions in dense materials. *Physical Review*, New York, v. 103, n. 5, p. 1202-1218, Sept. 1956.
- [21] LINDHARD, J.; SCHARFF, M.; SCHIOTT, H. E. Range concepts and heavy ion ranges. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 33, n. 14, p. 1-42, 1963.
- [22] LINDHARD, J.; SCHARFF, M. Energy loss in matter by fast particles of low charge. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 27, n. 15, p. 1-31, 1953.
- [23] LINDHARD, J.; WINTHER, A. Stopping power of electron gas and equipartition rule. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 34, n. 4, p. 1-22, 1964.
- [24] LINDHARD, J.; NIELSEN, V.; SCHARFF, M. Approximation method in classical scattering by screened coulomb fields. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 36, n. 10, p. 1-32, 1968.
- [25] LINDHARD, J. et al. Integral equations governing radiation effects. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 33, n. 10, p. 1-42, 1963.

- [26] FANO, U. Penetration of protons, alpha particles and mesons. *Annual Review of Nuclear Science*, Palo Alto, v. 13, p. 1-66, Dec. 1963.
- [27] JACKSON, J. D. *Classical electrodynamics*. New York: John Wiley, 1975. cap. 13.
- [28] GRANDE, P. L.; SCHIWETZ, 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.
- [29] SIGMUND, P. *Radiation damage processes in materials*. Leyden: Wolters-Noordhof, 1975. cap. 1.
- [30] ZIEGLER, J. F. *Helium stopping power and ranges in all elements*. New York: Pergamon Press, 1978.
- [31] ROUSSEAU, C. C.; CHU, W. K.; POWERS, D. Calculations of stopping cross sections for 0.8- to 2.0- MeV alpha particles. *Physical Review A*, New York, v. 4, n. 3, p. 1066-1070, Sept. 1971.
- [32] WILSON, W. D.; HAGGMARK, L. G.; BIERSACK, J. P. Calculations of nuclear stopping, ranges, and straggling in the low-energy region. *Physical Review B*, New York, v. 15, n. 5, p. 2458-2468, Mar. 1977.
- [33] GRANDE, P. L.; SCHIWETZ, G. Impact-parameter dependence of the electronic energy loss of fast ions. *Physical Review A*, Woodbury, v. 58, n. 5, p. 3796-3801, Nov. 1998.
- [34] SCHIWETZ, 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.
- [35] AZEVEDO, G. M.; GRANDE, P. L.; SCHIWETZ, 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.
- [36] LIFSCHITZ, A. F.; ARISTA, N. R. Velocity-dependent screening in metals. *Physical Review A*, Woodbury, v. 57, n. 1, p. 200-207, Jan. 1998.
- [37] LIFSCHITZ, A. F.; ARISTA, N. R. Electronic energy loss of helium ions in aluminum using the extended-sum-rule method. *Physical Review A*, Woodbury, v. 58, n. 3, p. 2168-2173, Sept. 1998.
- [38] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Binary stopping theory for swift heavy ions. *European Physical Journal D*, Berlin, v. 12, n. 3, p. 425-434, Nov. 2000.



- [39] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Binary theory of light-ion stopping. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 193, n. 1/4, p. 49-55, June 2002.
- [40] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Binary theory of electronic stopping. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 195, n. 1/2, p. 64-90, Oct. 2002.
- [41] ZIEGLER, J. F. *Ion implantation science and technology*. New York: Academic Press, 1984.
- [42] ZIEGLER, J. F.; BIRSACK, J. P.; LITTMARK, U. *The stopping and range of ions in matter*. New York: Pergamon Press, 1985.
- [43] CRUZ, S. A. On the energy loss of heavy ions in amorphous material. *Radiation Effects*, Glasgow, v. 88, n. 3/4, p. 159-215, 1986.
- [44] SIGMUND, P. Light-ion stopping near the maximum. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 85, n. 1/4, p. 541-550, Mar. 1994.
- [45] SIGMUND, P. Statistics of charged-particle penetration. In: GRASS-MARTI, H. M.; et al. (Eds.) *Interaction of charged particles with solids and surfaces*. New York: Plenum, 1991. cap. 4. (NATO Advanced Study Institute, B series: Physics, v. 271).
- [46] AZEVEDO, G. de M. *Estudo do poder de freamento de He, Li, Eu e Bi canalizados em alvos de Si cristalino*. 2000. 173 f. Tese (Doutorado em Ciências) – Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2000.
- [47] SAKURAI, J. J. *Modern quantum mechanics*. rev. ed. Reading: Addison-Wesley, 1994.
- [48] ECHENIQUE, P. M.; URANGA, E. Density functional theory of stopping power. In: GRASS-MARTI, H. M. et al. (Eds.) *Interaction of charged particles with solids and surfaces*. New York: Plenum, 1991. cap. 3. (NATO Advanced Study Institute, B series: Physics, v. 271).
- [49] RITCHIE, R. H. Interaction of charged particles with a degenerate Fermi-Dirac electron gas. *Physical Review*, New York, v. 114, n. 3, p. 644-654, May 1959.
- [50] CALKIN, M. G.; NICHOLSON, P. J. Electrodynamics of a semiclassical free-electron gas. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 39, p. 361-372, Apr. 1967.

- [51] BRANDT, W.; KITAGAWA, M. Effective stopping-power charges of swift ions in condensed matter. *Physical Review B*, New York, v. 25, n. 9, p. 5631-5637, May 1982.
- [52] MANN, A.; BRANDT, W. Material dependence of low-velocity stopping powers. *Physical Review B*, v. 24, n. 9, p. 4999-5003, Nov. 1981.
- [53] LINDHARD, J.; SCHARFF, M. Energy dissipation by ions in the keV region. *Physical Review*, New York, v. 124, n. 1, p. 128-130, Oct. 1961.
- [54] SCHIWETZ, 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.
- [55] BAUR, G.; TRAUTMANN, D. Neutron transfer to unbound states in heavy-ion reactions. *Nuclear Physics A*, Amsterdam, v. 211, n. 2, p. 333-348, Sept. 1973.
- [56] TAULBJERG, K. Semiclassical approximation in inelastic ion-atom collisions. *Journal of Physics B*, Bristol, v. 10, n. 9, p. L341-L346, June 1977.
- [57] ZIEGLER, J. F.; BIERSACK, J. P. *SRIM2003*: the stopping and range of ions in matter. Versão 2003.26. Disponível em: <<http://www.srim.org>>. Acesso em: 27 set. 2003.
- [58] ROBINSON, M. T.; OEN O. S. Computer studies of the slowing down of energetic atoms in crystals. *Physical Review*, New York, v. 132, n. 6, p. 2385-2398, Dec. 1963.
- [59] ROBINSON, M. T.; OEN O. S. The channeling of energetic atoms in crystal lattices. *Applied Physics Letters*, Woodbury, v. 2, n. 2, p. 30-32, June 1963.
- [60] OEN O. S.; ROBINSON, M. T. The effect of channeling on displacement cascade theory. *Applied Physics Letters*, Woodbury, v. 2, n. 4, p. 83-85, July 1963.
- [61] PIERCY, G. R. et al. Experimental evidence for the increase of heavy ion ranges by channeling in crystalline structure. *Physical Review Letters*, New York, v. 10, n. 9, p. 399-400, Dec. 1963.
- [62] NELSON, R. S.; THOMPSON, M. W. Penetration of energetic ions through open channels in a crystal lattice. *Philosophical Magazine*, London, v. 8, n. 94, p. 1677-1690, Aug. 1963.
- [63] BØGH, E.; DAVIES, J. A.; NIELSEN, K. O. Experimental evidence for the extinction of (p,  $\gamma$ ) yields in single crystals. *Physics Letters*, Amsterdam, v. 12, n. 2, p. 129-130, Sept. 1964.

- [64] BØGH, E.; UGGERHØJ, E. Orientation dependence of Rutherford scattering yields in single crystals. *Physics Letters*, Amsterdam, v. 17, n. 2, p. 116-118, July 1965.
- [65] ANDERSEN, J. U. et al. An experimental study of the orientation dependence of (p, $\gamma$ ) yields in monocrystalline aluminum. *Nuclear Instruments and Methods*, Amsterdam, v. 38, p. 210-215, 1965.
- [66] APPLETON, B. R.; ERGINSOY, C.; GIBSON, W. M. Channeling effects in the energy loss of 3-11-MeV protons in silicon and germanium single crystals. *Physical Review*, New York, v. 161, n. 2, p. 330-349, Dec. 1967.
- [67] DELLA MEA, G. et al. Energy loss of H, D, and  $^4\text{He}$  ions channeled through thin single crystals of silicon. *Physical Review Letters*, New York, v. 27, n. 18, p. 1194-1196, Nov. 1971.
- [68] LINDHARD, J. Influence of crystal lattice on motion of energetic charged particles. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 34, n. 14, p. 1-64, 1965.
- [69] MORGAN, D. V.; van VLIET, D. Critical approach distances and critical angles for channelling. *Radiation Effects*, Glasgow, v. 8, n. 1/2, p. 51-61, Mar. 1971.
- [70] BARRET, J. H. Monte Carlo channeling calculations. *Physical Review B*, New York, v. 3, n. 5, p. 1527-1547, Mar. 1971.
- [71] BARRET, J. H. Breakdown of the statistical-equilibrium hypothesis in channeling. *Physical Review Letters*, New York, v. 31, n. 26, p. 1542-1545, Dec. 1973.
- [72] 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.
- [73] MORGAN, D. V. *Channeling: theory, observation and applications*. London: John Wiley, 1973.
- [74] FELDMAN, L. C.; MEYER, J. W.; PICRAUX, S. T. *Materials analysis by ion channeling: submicron crystallography*. New York: Academic Press, 1982.
- [75] BETHE, H. A. Nuclear physics B: nuclear dynamics, theoretical. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 9, n. 2, p. 69-244, Apr. 1937.

- [76] BROWN, L. M. Asymptotic expression for the stopping power of  $K$ -electrons. *Physical Review*, New York, v. 79, n. 2 p. 297-303, July 1950.
- [77] BETHE, H. A.; BROWN, L. M.; WALSKE, M. C. Stopping power of  $K$ -electrons. *Physical Review*, New York, v. 79, n. 2, p. 413, July 1950.
- [78] WALSKE, M. C. The stopping power of  $K$ -electrons. *Physical Review*, New York, v. 88, n. 6, p. 1283-1289, Dec. 1952.
- [79] WALSKE, M. C. Stopping power of  $L$ -electrons. *Physical Review*, New York, v. 101, n. 3, p. 940-944, Feb. 1956.
- [80] BASBAS, G. Inner-shell ionization and the  $Z_1^3$  and Barkas effects in stopping power. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 4, n. 2, p. 227-238, July 1984.
- [81] PORTER, L. E.; LIN, H. Methods of calculating the Barkas-effect correction to Bethe-Bloch stopping power. *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 67, n. 11, p. 6613-6620, June 1990.
- [82] PITARKE, J. M. et al. The  $Z_1^3$  correction to the Bethe-Bloch energy-loss formula. *Europhysics Letters*, Les Ulis Cedex, v. 24, n. 7, p. 613-619, Dec. 1993.
- [83] BICHSEL, H. Shell corrections in stopping powers. *Physical Review A*, Melville, v. 65, n. 052709, 11 p., Apr. 2002.
- [84] LIVINGSTON, M. S.; BETHE, H. A. Nuclear physics C: nuclear dynamics, experimental. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 9, n. 3, p. 245-390, July 1937.
- [85] ANDERSEN, H. H.; SIMONSEN, H.; SØRENSEN, H. An experimental investigation of charge-dependent deviations from Bethe stopping power formula. *Nuclear Physics A*, Amsterdam, v. 125, n. 1, p. 171-175, Feb. 1969.
- [86] ANDERSEN, H. H. et al. Stopping power of Al, Cu, Ag, and Au for MeV hydrogen, helium, and lithium ions.  $Z_1^3$  and  $Z_1^4$  proportional deviations from the Bethe formula. *Physical Review A*, New York, v. 16, n. 5, p. 1929-1940, Nov. 1977.
- [87] DATZ, S. et al. Higher-order  $Z_1$  effects and effects of screening by bound  $K$ -electrons on the electronic stopping of channeled ions. *Physical Review Letters*, New York, v. 38, n. 20, p. 1145-1148, May 1977.
- [88] GOLOVCHENKO, J. A.; COX, D. E.; GOLAND, A. N. Critical analysis of the charge-state dependence of the energy loss of channeled ions. *Physical Review B*, New York, v. 26, n. 5, p. 2335-2340, Sept. 1982.

- [89] ANDERSEN, L. H. et al. Measurements of the  $Z^3_1$  contribution to the stopping power using MeV protons and antiprotons: the Barkas effect. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 62, n. 15, p.1731-1734, Apr. 1989.
- [90] BARKAS, W. H. The range-energy relation in emulsion. II The theoretical range. *Il Nuovo Cimento*, Bologna, v. 8, n. 2, p. 201-214, apr. 1958.
- [91] AHLEN, S. P. Theoretical and experimental aspects of the energy loss of relativistic heavily ionizing particles. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 52, n. 1, p. 121-173, Jan. 1980.
- [92] ABRAMOWITZ, M.; STEGUN, I. A. *Handbook of mathematic functions*. New York: Dover, 1964.
- [93] SIGMUND, P. Charged-dependent electronic stopping of swift nonrelativistic heavy ions. *Physical Review A*, Woodbury, v. 56, n. 5, p. 3781-3793, Nov. 1997.
- [94] AHLEN, S. P. Calculation of the relativistic Bloch correction to stopping power. *Physical Review A*, New York, v. 25, n. 4, p. 1856-1867, Apr. 1982.
- [95] HIRSCHFELDER, J. O.; MAGEE, J. L. Range-energy relations for protons in substances containing C, H, O, Ar, and Xe. *Physical Review*, New York, v. 73, n. 3, p. 207-215, Feb. 1948.
- [96] WALSKE, M. C.; BETHE, H. A. Asymptotic formula for stopping power of K-electrons. *Physical Review*, New York, v. 83, n. 2, p. 457-458, July 1951.
- [97] KHANDELWAL, G. S.; MERZBACHER, E. Stopping power of M electrons. *Physical Review*, New York, v. 144, n. 1, p. 349-352, Apr. 1966.
- [98] BICHSEL, H.; UEHLING, E. A. Multiple scattering correction for proton ranges and the evaluation of the L-shell correction and I value for aluminum. *Physical Review*, New York, v. 119, n. 5, p. 1670-1680, Sept. 1960.
- [99] ANDERSEN, H. H.; SØRENSEN, H.; VADJA, P. Excitation potentials and shell corrections for the elements  $Z_2=20$  and  $Z_2=30$ . *Physical Review*, New York, v. 180, n. 2, p. 373-380, Apr. 1969.
- [100] BICHSEL, H.; PORTER, L. E. Stopping power of protons and alpha particles in H<sub>2</sub>, He, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and air. *Physical Review A*, New York, v. 25, n. 5, p. 2499-2510, May 1982.
- [101] BICHSEL, H.; INOKUTI, M.; SMITH, D. Y. Mean excitation energy for the stopping power of metallic aluminum: comments on an article by Mc Guire. *Physical Review A*, Woodbury, v. 33, n. 5, p. 3567-3571, May 1986.

- [102] ANDERSEN, H. H.; ZIEGLER, J. F. *Hidrogen*: stopping power and ranges in all elements. New York: Pergamon Press, 1977. v. 3.
- [103] SMITH, F. M.; BIRNBAUM, W.; BARKAS, W. H. Measurements of meson masses and related quantities. *Physical Review*, New York, v. 91, n. 3, p. 765-766, Aug. 1953.
- [104] BARKAS, W. H.; DYER, J. N.; HECKMAN, H. H. Resolution of the  $\sigma^-$  mass anomaly. *Physical Review Letters*, New York, v. 11, n. 1, p. 26-28, July 1963.
- [105] HECKMAN, H. H.; LINDSTROM, P. J. Stopping-power differences between positive and negative pions at low velocities. *Physical Review Letters*, New York, v. 22, n. 17, p. 871-874, Apr. 1969.
- [106] LINDHARD, J. The Barkas effect – or  $Z_1^3$ ,  $Z_1^4$  – corrections to stopping of swift charged particles. *Nuclear Instruments and Methods*, Amsterdam, v. 132, p. 1-5, Jan./Feb. 1976.
- [107] BARKAS, W. H.; GARDNER, E.; LATTES, C. M. G. Meson mass estimation by grain counting in photographic emulsions. *Physical Review*, New York, v. 74, n. 10, p. 1558, Nov. 1948.
- [108] BARKAS, W. H.; SMITH, F. M.; GARDNER, E. Meson to proton mass ratios. *Physical Review*, New York, v. 82, n. 1, p. 102-103, Apr. 1951.
- [109] BARKAS, W. H. et al. The range-energy relation in emulsion. I Range measurements. *Il Nuovo Cimento*, Bologna, v. 8, n. 2, p. 185-200, apr. 1958.
- [110] HECKMAN, H. H. et al. Ranges and energy-loss process of heavy ions in emulsion. *Physical Review*, New York, v. 117, n. 2, p. 544-556, Jan. 1960.
- [111] ANDERSEN, H. H. et al. Stopping power of Be, Al, Cu, Ag, Pt, and Au for 5-12-MeV protons and deuterons. *Physical Review*, New York, v. 153, n. 2, p. 338-342, Jan. 1967.
- [112] ASHLEY, J. C.; RITCHIE, R. H.; BRANDT, W.  $Z_1^3$  effect in the stopping power of matter for charged particles. *Physical Review B*, New York, v. 5, n. 7, p. 2393-2397, Apr. 1972.
- [113] ASHLEY, J. C.; RITCHIE, R. H.; BRANDT, W.  $Z_1^3$ -dependent stopping power and range contributions. *Physical Review A*, New York, v. 8, n. 5, p. 2402-2408, Nov. 1973.
- [114] JACKSON, J. D.; McCARTHY, R. L.  $Z^3$  corrections to energy loss and range. *Physical Review B*, New York, v. 6, n. 11, p. 4131-4141, Dec. 1972.

- [115] HILL, K. W.; MERZBACHER, E. Polarization in distant coulomb collisions of charged particles with atoms. *Physical Review A*, New York, v. 9, n. 1, p. 156-165, Jan. 1974.
- [116] ANDERSEN, H. H. et al. Experimental investigation of higher-order  $Z_1$  correction to the Bethe stopping-power formula. *Nuclear Instruments and Methods*, Amsterdam, v. 140, n. 3, p. 537-540, Feb. 1977.
- [117] AHLEN, S. P. Apparent higher-order  $Z_1$  effects due to asymmetric energy straggling. *Physical Review Letters*, New York, v. 39, n. 22, p. 1398-1400, Nov. 1977.
- [118] GOLOVCHENKO, J. A.; et al. Charge state dependence of channeled ion energy loss. *Physical Review B*, New York, v. 23, n. 3, p. 957-966, Feb. 1981.
- [119] AZEVEDO, G. M.; GRANDE, P. L.; BEHAR, M. Giant Barkas effect observed for light ions channeling in Si. *Physical Review Letters*, Melville, v. 86, n. 8, p. 1482-1485, Feb. 2001.
- [120] RITCHIE, R. H.; BRANDT, W. Projectile-charge dependence of stopping powers. *Physical Review A*, New York, v. 17, n. 6, p. 2102-2105, June 1978.
- [121] SUNG, C. C.; RITCHIE, R. H.  $Z_1^3$  dependence of the energy loss of an ion passing through an electron gas. *Physical Review A*, New York, v. 28, n. 2, p. 674-681, Aug. 1983.
- [122] MORGAN Jr., S. H.; SUNG C. C.  $Z_1^3$  contribution to the energy loss of heavy charged particles. *Physical Review A*, New York, v. 20, n. 3, p. 818-824, Sept. 1979.
- [123] ARISTA, N. R.  $Z_1^3$  corrections to the scattering of electrons and positrons in atoms and to the energy loss of fast particles in solids. *Physical Review A*, New York, v. 26, n. 1, p. 209-216, July 1982.
- [124] SHINDO, S.; MINOWA, H. Theory of higher-order corrections to the electronic stopping power of solids. *Physica Status Solidi B*, Berlin, v. 145, n. 1, p. 89-101, Jan. 1988.
- [125] MIKKELSEN, H. H.; SIGMUND, P. Barkas effect in electronic stopping power: rigorous evaluation for the harmonic oscillator. *Physical Review A*, Woodbury, v. 40, n. 1, p. 101-116, July 1989.
- [126] SIGMUND, P.; HAAGERUP, U. Bethe stopping theory for a harmonic oscillator and Bohr's oscillator model of atomic stopping. *Physical Review A*, Woodbury, v. 34, n. 2, p. 892-910, Aug. 1986.

- [127] GABRIELSE, G. et al. Barkas effect with use of antiprotons and protons. *Physical Review A*, Woodbury, v. 40, n. 1, p. 481-484, July 1989.
- [128] ESBENSEN, H.; SIGMUND, P. Barkas effect in a dense medium: Stopping power and wake field. *Annals of Physics*, San Diego, v. 201, n. 1, p. 152-192, July 1990.
- [129] PITARKE, J. M.; RITCHIE, R. H.; ECHENIQUE, P. M.  $Z_1^3$  correction to the stopping power of an electron gas for ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 79, n. 1/4, p. 209-212, June 1993.
- [130] PITARKE, J. M.; RITCHIE, R. H.; ECHENIQUE, P. M. Quadratic response theory of the energy loss of charged particles in an electron gas. *Physical Review B*, Woodbury, v. 52, n. 19, p. 13883-13902, Nov. 1995.
- [131] MØLLER, S. P.; et al. Direct measurements of the stopping power for antiprotons of light and heavy targets. *Physical Review A*, Woodbury, v. 56, n. 4, p. 2930-2939, Oct. 1997.
- [132] MEDENWALDT, R.; et al. Measurements of the stopping power of silicon for antiprotons between 0.2 and 3 MeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 58, n. 1, p. 1-5, May 1991.
- [133] MEDENWALDT, R. et al. Measurement of the antiproton stopping power of gold – The Barkas effect. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 155, n. 2/3, p. 155-158, May 1991.
- [134] BICHSEL, H. Barkas effect and effective charge in the theory of stopping power. *Physical Review A*, Woodbury, v. 41, n. 7, p. 3642-3647, Apr. 1990.
- [135] PORTER, L. E.; JEPPESEN, R. G. Mean excitation energies and Barkas-effect parameters for Ne, Ar, Kr, and Xe extracted from proton and alpha particle stopping power measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, Amsterdam, v. 204, n. 2/3, p. 605-613, Jan. 1983.
- [136] ZIEGLER, J. F. Stopping of energetic light ions in elemental matter. *Journal of Applied Physics*, Melville, v. 85, n. 3, p. 1249-1272, Feb. 1999.
- [137] BETZ, H.-D. Charge states and charge-changing cross sections of fast heavy ions penetrating through gaseous and solid media. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 44, n. 3, p. 465-539, July 1972.
- [138] NORTHCLIFFE, L. C. Passage of heavy ions through matter. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, Palo Alto, v. 13, p. 67-102, 1963.



- [139] BOHR, N.; LINDHARD, J. Electron capture and loss by heavy ions penetrating through matter. *Matematisk-Fysiske Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 28, n. 7, p. 1-31, 1954.
- [140] BETZ, H.-D.; GRODZINS, L. Charge states and excitation of fast heavy ions passing through solids: a new model for the density effect. *Physical Review Letters*, New York, v. 25, n. 4, p. 211-214, July 1970.
- [141] SCHRAMM, R.; BETZ, H.-D. Problems concerning the effective charge of swift heavy ions traversing gaseous and solid targets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 69, n. 1, p. 123-126, June 1992.
- [142] LIFSCHITZ, A. F.; ARISTA, N. R. Effective charge and the mean charge of swift ions in solids. *Physical Review A*, Melville, v. 69, n. 1, 012902 5p., Jan. 2004.
- [143] MAYNARD, G.; CHABOT, M.; GARDES, D. Density effect and charge dependent stopping theories for heavy ions in the intermediate velocity regime. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, p. 139-146, Apr. 2000.
- [144] DMITRIEV, I. S.; NIKOLAEV, V. S. Semi-empirical method for the calculation of the equilibrium distribution of charges in a fast-ion beam. *Soviet Physics JETP*, New York, v. 20, n. 2, p. 409-415, Feb. 1965.
- [145] NIKOLAEV, V. S.; DMITRIEV, I. S. On equilibrium charge distribution in heavy element ion beams. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 28, n. 4, p. 277-278, Dec. 1968.
- [146] SCHIWIETZ, 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.
- [147] 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.
- [148] HUBERT F.; BIMBOT, R.; GAUVIN, H. Range and stopping power tables for 2.5 – 500 MeV/nucleon heavy-ions in solids. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, San Diego, v. 46, n. 1, p. 1-213, Sept. 1990.
- [149] YARLAGADDA, B. S.; ROBINSON, J. E.; BRANDT, W. Effective-charge theory and the electronic stopping power of solids. *Physical Review B*, New York, v. 17, n. 9, p. 3473-3483, May 1978.

- [150] AGOSTINELLI, S. et al. GEANT<sup>4</sup>: a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, v. 506, n. 3, p. 250-303, July 2003. Disponível em <<http://geant4.web.cern.ch/geant4>>. Acesso em: 27 set. 2003.
- [151] HIRVONEN, J. K. (Ed.). *Ion implantation*. New York: Academic Press, 1980. (Treatise on materials science and technology, v. 18).
- [152] CHU, W. K.; MAYER, J. W.; NICOLET, M. A. *Backscattering spectrometry*. New York: Academic Press, 1978.
- [153] LEAVITT, J. A.; WELLER, M. R.; McINTYRE Jr., L. C. Backscattering spectrometry. In: TESSMER, J. R. et al. (Eds.). *Handbook of modern ion beam materials analysis*. Pittsburgh: Materials Research Society, 1995. cap. 4.
- [154] MARION, J. B. *Classical dynamics of particles and systems*. 2. ed. New York: Academic Press, 1970.
- [155] ZIEGLER, J. F.; CHU, J. W. Stopping cross sections and backscattering factors of helium-4 ions in matter for  $Z = 1-92$ ,  $E(^4\text{He}) = 400-4000$  keV. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, San Diego, v. 13, n. 5, p. 463-489, 1974.
- [156] TESSMER, J. R. et al. *Handbook of modern ion beam materials analysis*. Pittsburgh: Materials Research Society, 1995.
- [157] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Heavy-ion stopping: Bohr theory revisited. Disponível em: <<http://www.fys.sdu.dk/sigmund/namibia.pdf>>. Acesso em: 17 mar. 2003.
- [158] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Nonperturbative theory of charge-dependent heavy-ion stopping. *Physica Scripta*, Stockholm, v. T92, p. 222-224, 2001.
- [159] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Shell correction in Bohr stopping theory. *European Physical Journal D*, Berlin, v. 12, n. 1, p. 111-116, Jan. 2000.
- [160] SIGMUND, P. Low-speed limit of Bohr's stopping-power formula. *Physical Review A*, Woodbury, v. 54, n. 4, p. 3113-3117, Oct. 1996.
- [161] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Binary theory of antiproton stopping. *European Physical Journal D*, Berlin, v. 15, n. 2, p. 165-172, Aug. 2001.
- [162] SCHINNER, A.; SIGMUND, P. Polarization effect in stopping of swift partially screened heavy ions: perturbative theory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 164/165, p. 220-229, Apr. 2000.

- [163] 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.
- [164] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Effective charge and related/unrelated quantities in heavy-ion stopping. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 174, n. 4, p. 535-540, May 2001.
- [165] LINDHARD, J.; SØRENSEN, A. H. Relativistic theory of stopping for heavy ions. *Physical Review A*, Woodbury, v. 53, n. 4, p. 2443-2456, Apr. 1996.
- [166] SIGMUND, P.; SCHINNER, A. Anatomy of the Barkas effect. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 212, p. 110-117, Dec. 2003.
- [167] PAUL, H. *Stopping power for light ions: graphs, data, comments and programs*. Disponível em: <<http://www.exphys.uni-linz.ac.at/stopping/>>. Acesso em: 22 maio 2004.
- [168] ARISTA, N. R.; LIFSCHITZ, A. F. Nonlinear calculation of stopping powers for protons and antiprotons in solids: The Barkas effect. *Physical Review A*, Melville, v. 59, n. 4, p. 2719-2722, Apr. 1999.
- [169] ARISTA, N. R. Energy loss of ions in solids: non-linear calculations for slow and swift ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 195, n. 1/2, p. 91-105, Oct. 2002.
- [170] LENNARD, W. N. et al. Electronic stopping values for low velocity ions ( $9 \leq Z_1 \leq 92$ ) in carbon targets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 13, n. 1/3, p. 127-132, Mar. 1986.
- [171] DEDKOV, G. V. Interatomic potentials of interactions in radiation physics. *Physics Uspekhi*, London, v. 38, n. 8, p. 877-910, Aug. 1995.
- [172] KUMAKHOV, M. A.; KOMAROV, F. F. *Energy loss and ion ranges in solids*. New York: Gordon and Breach, 1981.
- [173] ORMROD, J. H.; DUCKWORTH, H. E. Stopping cross sections in carbon for low energy atoms with  $Z_1 \leq 12$ . *Canadian Journal of Physics*, Ottawa, v. 41, n. 9, p. 1424-1425, Sept. 1963.
- [174] ORMROD, J. H.; MACDONALD, J. R.; DUCKWORTH, H. E. Some low-energy atomic stopping cross sections. *Canadian Journal of Physics*, Ottawa, v. 43, n. 2, p. 275-277, Feb. 1965.
- [175] FASTRUP, B.; HVELPLUND, P.; SAUTTER, C. A. Stopping cross sections in carbon of 0.1-1.0 MeV atoms with  $6 \leq Z_1 \leq 20$ . *Matematisk-Fysiske*

- Meddelelser Kongelige Danske Videnskabernes Selskab*, Copenhagen, v. 35, n. 10, p. 1-28, 1966.
- [176] HVELPLUND, P.; FASTRUP, B. Stopping cross sections in carbon of 0.2-1.5-MeV atoms with  $21 \leq Z_1 \leq 39$ . *Physical Review*, New York, v. 165, n. 2, p. 408-414, Jan. 1968.
- [177] PUSKA, M. J.; NIEMINEM, R. M. Atoms embedded in an electron gas: phase shifts and cross sections. *Physical Review B*, New York, v. 27, n. 10, p. 6121-6128, May 1983.
- [178] BRIGGS, J. S.; PATHAK, A. P. Momentum-transfer cross-sections and  $Z_1$  oscillations in stopping power. *Journal of Physics C*, Bristol, v. 6, n. 7, p. L135-L157, Apr. 1973.
- [179] BRIGGS, J. S.; PATHAK, A. P. The stopping power of solids for low-velocity channelled heavy-ions. *Journal of Physics C*, Bristol, v. 7, n. 11, p. 1929-1936, June 1974.
- [180] ECHENIQUE, P. M. et al. Nonlinear stopping power of an electron gas for slow ions. *Physical Review A*, Woodbury, v. 33, n. 2, p. 897-904, Feb. 1986.
- [181] MIKKELSEN, H. H. The  $Z_1^4$ -term in electronic stopping: Impact parameter dependence and stopping cross section for a quantal harmonic oscillator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 58, n. 2, p. 136-148, June 1991.
- [182] GRANDE, P. L.; SCHIWETZ, G. The unitary convolution approximation for heavy ions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 195, n. 1/2, p. 55-63, Oct. 2002.
- [183] WILETS, L.; WALLACE, S. J. Eikonal method in atomic collisions I. *Physical Review*, New York, v. 169, n. 1, p. 84-91, May 1968.
- [184] FLANNERY, M. R.; MacCAAN, K. J. Differential cross sections in the multistate impact-parameter description of heavy-particle collisions. *Physical Review A*, New York, v. 8, n. 6, p. 2915-2921, Dec. 1973.
- [185] GOLDSTEIN, H. *Classical mechanics*. 2. ed. Reading: Addison-Wesley, 1980.
- [186] SCHIWETZ, G. et al. Angular dependence of energy loss in proton-helium collisions. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 14, p. 2159-2162, Apr. 1994.

- [187] MONTENEGRO, E. C. et al. Separation of the screening and antiscreening effects in the electron loss of  $\text{He}^+$  on  $\text{H}_2$  and He. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 69, n. 21, p. 3033-3036, Nov. 1992.
- [188] STOLTERFOHT, N. Dielectronic processes and electron correlation in energetic ion-atom collisions. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 53, n. 4, p. 477-492, Apr. 1991.
- [189] KONAC, G. et al. Energy loss and straggling of H and He ions of keV energies in Si and C. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 136/138, p. 159-165, Mar. 1998.
- [190] NIEMANN, D.; OBERSCHACHTSIEK, P.; KALBITZER, S. Energy loss and straggling of MeV  $^4\text{He}$  ions in a Si/Sb multilayer target. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 80/81, n. 1, p. 37-40, June 1993.
- [191] WHITLOW, H. J. et al. Measurement and uncertainties of energy loss in silicon over a wide  $Z_1$  range using time of flight detector telescopes. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 195, n. 1/2, p. 133-146, Oct. 2002.
- [192] ZHANG, Y.; WEBER, W. J.; WHITLOW, H. J. Electronic stopping powers for heavy ions in silicon. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 215, n. 1/2, p. 48-56, Jan. 2004.
- [193] SANTOS, J. H. R. dos et al. Electronic stopping power of  $^{10}\text{B}$  in Si in random and  $\langle 100 \rangle$  channeling directions. *Physical Review B*, Woodbury, v. 55, n. 20, p. 13651-13657, May 1997.
- [194] JIANG, W. et al. Random and channeling stopping powers and charge-state distributions in silicon for 0.2–1.2 MeV/u positive heavy ions. *Physical Review B*, Melville, v. 59, n. 1, p. 226-234, Jan. 1999. Erratum: *Physical Review B*, Melville, v. 60, n. 1, p. 714-716, July 1999.
- [195] SANTRY, D. C.; WERNER, R. D. Measured stopping powers of  $^{16}\text{O}$  and  $^{19}\text{F}$  ions in thin elemental films. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 69, n. 2/3, p. 167-173, June 1992.
- [196] WILLIAMS, J. S.; MÖLLER, W. On the determination of optimum depth-resolution conditions for Rutherford backscattering analysis. *Nuclear Instruments and Methods*, Amsterdam, v. 157, n. 2, p. 213-221, Dec. 1978.
- [197] DYGO, A.; LENNARD, W. N.; MITCHELL, I. V. 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.
- [198] SANTOS, J. H. R. dos et al. Electronic stopping power of <100> axial-channelled He ions in Si crystals. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 106, n. 1/4, p. 51-54, Dec. 1995.
- [199] SCHIWIETZ, G.; GRANDE, P. L. *The CASP program: convolution approximation for swift particles*. Versão 2.2. Disponível em: <<http://www.hmi.de/people/schiwietz/casp.html>>. Acesso em: 13 fev. 2004.
- [200] ARISTA, N. R.; LIFSCHITZ, A. *The HISTOP program: heavy ion stopping*. Versão 2.1. Disponível em: <<http://cabcat1.cnea.gov.ar/~colato/grupos/stop/index.html>>. Acesso em: 13 fev. 2004.
- [201] AZEVEDO, G. de M. et al. Random and channeling stopping powers of He and Li ions in Si. *Physical Review B*, Melville, v. 65, n. 7, 075203 9p., Feb. 2002.
- [202] LULLI, G. et al. Determination of He electronic energy loss in crystalline Si by Monte-Carlo simulation of Rutherford backscattering–channeling spectra. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Amsterdam, v. 170, n. 1/2, p. 1-9, Sept. 2000.
- [203] EISEN, F. H. et al. Channeling of energetic protons through very thin silicon crystals. *Radiation Effects*, Glasgow, v. 13, p. 93-102, Aug. 1972.
- [204] SANTOS, J. H. R. dos. *Estudo do poder de freamento eletrônico de íons de He e B canalizados em Si*. 1997. 130 f. Tese (Doutorado em Ciências) – Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1997.
- [205] SILVA, D. L. da. *Estudo da perda de energia e da flutuação da perda de energia de íons de Li em direções aleatórias do Si*. 2000. 89 f. Dissertação (Mestrado em Física) – Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2000.