

## 6

### **Simulação do Processo de Dessorção Induzida por Elétrons Secundários (SEID) da Amônia Sólida**

Neste capítulo serão tratados teoricamente os fenômenos relevantes que ocorrem entre a interação projétil-sólido e a emissão dos íons secundários da superfície da amostra. O objetivo é, através da descrição da emissão eletrônica de elétrons secundários pelo traço nuclear e do estabelecimento das trajetórias dos íons secundários, determinar as distribuições de velocidade e de energia dos íons secundários emitidos do alvo da amônia sólida. Estas distribuições teóricas, válidas para íons secundários que não mais interagem com o sólido, podem ser comparadas com as obtidas experimentalmente para o gelo de amônia bombardeado por fragmentos de fissão. Os cálculos foram feitos com o código computacional “SEID” desenvolvido no Laboratório Van de Graaff da PUC-Rio por Iza et al [75,76].

#### **6.1**

##### **O Modelo SEID**

O modelo de dessorção iônica denominado SEID (*Secondary Electron Induced Desorption*) foi proposto para sistemas em que o alvo é bombardeado por projéteis com velocidade da ordem ou superior à velocidade de Bohr ( $v_B$ ). Nestes casos, em que a ionização por interação projétil-sólido é a dominante, há produção abundante de elétrons secundários provenientes da formação de um *traço central (infratraço) positivo*. Tais elétrons dão origem a vários processos: i) se são completamente freados dentro do sólido, geram um *traço periférico*

(*ultratraço*) *negativo*, ii) se são capturados na superfície, geram *íons negativos capazes de se dessorver*, iii) se colidem energeticamente com a superfície, podem gerar ali *íons positivos* e iv) se escapam, são detectados como *elétrons secundários livres*. O modelo SEID se propõe a descrever quantitativamente não apenas o rendimento dos íons dessorvidos, mas também suas distribuições angulares e de energia. Para tal objetivo, modela as interações elétrico-projétil-superfície e projétil-sólido, a produção e emissão de elétrons secundários ao longo do traço, a densidade eletrônica do traço negativo, o fluxo e a distribuição de energia dos elétrons secundários que chegam à superfície do alvo, as colisões elétron-átomos e elétron-moléculas na superfície e, por fim, a dinâmica de emissão dos íons secundários gerados na superfície. Além disto, o modelo considera a neutralização de ambos os traços em função ao tempo e o efeito correspondente sobre o campo elétrico gerado por eles. Na versão atual de SEID, a neutralização em vôo (por tunelamento de elétrons) de íons em início de emissão está incluída de forma simplificada, enquanto que os efeitos de emissão Auger – relevantes em certos casos - não são considerados.

A perda de energia por colisões inelásticas será a principal fonte de transferência de energia do projétil ao alvo para gerar efeitos secundários, uma vez que projéteis com velocidades próximas à velocidade de Bohr removem elétrons atômicos com muita eficiência.

A seguir serão descritos brevemente alguns conceitos utilizados no modelo SEID. Discussões detalhadas encontram-se nas referências [75-78].

### 6.1.1

#### Interação Projétil-Alvo

O estado de carga do projétil ao interagir com o alvo sólido varia de acordo com sua velocidade,  $v_p$ , e apresenta uma distribuição de carga ao longo do

traço em torno de um valor médio denominado estado de carga de equilíbrio [79], definido por:

$$q_{eq} = Z_p \left( 1 - \exp \left( \frac{-125 v_p}{137 v_B Z_p^{2/3}} \right) \right) \quad \text{Eq. (6.1)}$$

onde  $Z_p$  é o número atômico do projétil e  $v_B$  é a velocidade de Bohr. Na Fig. 6.1 é apresentada a dependência de  $q_{eq}$  com  $v_p$  obtido a partir da eq. (6.1), para um projétil de  $\text{Ba}^{q+}$  (um FF típico do  $^{252}\text{Cf}$ ) ao atravessar a superfície do alvo de amônia. Como a energia média possuída pelo  $\text{Ba}^{q+}$  é de 65 MeV, sua velocidade é de 0,95 cm/s, a qual corresponde a  $q_{eq} = 13,3$ .

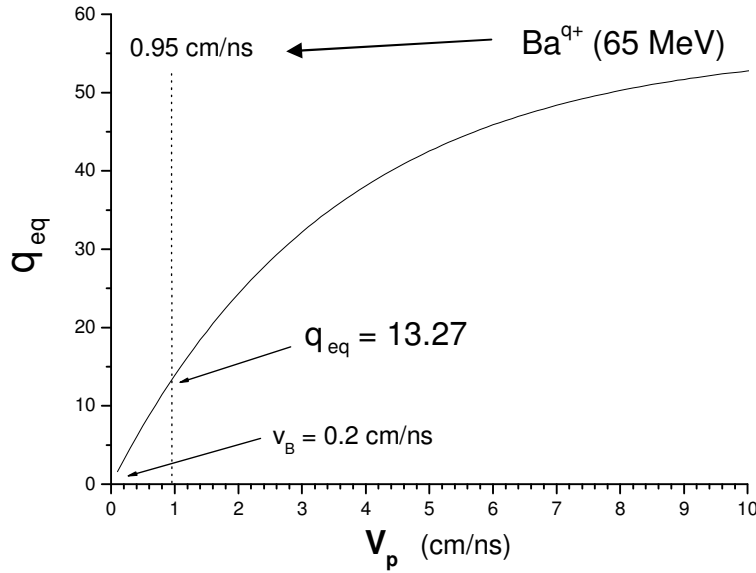


Fig. 6.1: Estado de carga de equilíbrio,  $q_{eq}$ , em função da velocidade do projétil ( $\text{Ba}^{q+}$ ).

Bohr [80] propôs que o estado de carga do projétil,  $\bar{q}(s)$ , em qualquer ponto de sua trajetória no sólido seja dado por

$$\bar{q}(s) = q_{eq} + (q - q_{eq}) \exp \left( -\frac{s}{\lambda_q} \right) \quad \text{Eq. (6.2)}$$

onde  $q$  é o estado de carga inicial,  $\lambda_q$  o comprimento característico de relaxação no interior do sólido e  $s$  é a distância percorrida pelo projétil ao longo do traço. Pelo fato dos FF passarem por uma folha de proteção radiológica ( $s \gg \lambda_q$ ) que sela a fonte radioativa, eles já chegam ao alvo com sua carga em equilíbrio, isto é,  $\bar{q}(s) \approx q_{eq}$ .

### 6.1.2

#### Transferência de Energia

##### - Modelo de Bohr

Um modelo relativamente simples para descrever a energia perdida por um íon rápido ao atravessar o sólido foi proposto por Bohr [78]. Ele considera uma sucessão de colisões atômicas independentes nas quais o projétil interage também independentemente com vários elétrons do átomo. Se a colisão acontece em um intervalo de tempo muito menor que o período  $T$  do elétron e se o parâmetro de impacto  $b$  é suficientemente pequeno para que a energia transferida  $E(b)$  seja bem superior à energia de ligação média  $I$  do elétron, então:

$$E(b) = \frac{\Delta p^2}{2m_e} = \frac{2Z_1^2 e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2 (bv_p)^2 m_e} \quad \text{Eq. (6.3)}$$

onde  $\Delta p$  é variação do momento do elétron devido ao impulso transversal transferido a ele pelo projétil de velocidade  $v_p$  e carga  $Z_1 e$ ; o elétron tem massa  $m_e$  e carga  $e$ . Notar a ausência da massa do projétil e a massa do núcleo do átomo.

A taxa de perda de energia por unidade de comprimento,  $ds$ , transferida para os elétrons que se encontram entre os parâmetros de impacto  $b_{\min}$  e  $b_{\max}$ , é dada por  $2\pi N \int E(b) b db$ :

$$\frac{dE}{ds} = 8\pi N \frac{Z_1^2 e^4}{(4\pi \epsilon_0)^2 m_e v_p^2} \ln \frac{b_{\max}}{b_{\min}} \quad \text{Eq. (6.4)}$$

onde:

$$b_{\min} = \frac{Z_1^2 e^4}{4\pi \epsilon_0 m_e v_p^2} \quad \text{Eq. (6.4a)}$$

$$b_{\max}^2 = \frac{2Z_1^2 e^4}{I(4\pi \epsilon_0)^2 m_e v_p^2}$$

São previsões deste modelo: i)  $dE/ds \sim \ln(E_p) / E_p$  onde  $E_p$  é a energia do projétil, ii)  $dE/ds$  aumenta com o quadrado da carga do projétil  $q = Z_1 e$ ; iii) os elétrons arrancados de seus átomos são emitidos perpendicularmente à trajetória do projétil. São pontos fracos do modelo: i) considera que os elétrons do sólido estão distribuídos uniformemente, quando na realidade estão concentrados em torno dos núcleos de seus átomos; ii) ignora os elétrons do projétil e sua interação com o sólido; iii) embora seja bom para colisões próximas ( $E(b) \gg I$ ), falha para as colisões frontais, isto é,  $b \approx b_{\min}$ , caso em que os elétrons são emitidos em direções próximas à da trajetória do projétil, iv) falha para colisões distantes, quando a energia transferida é próxima à da ionização ( $E(b) \approx I$ ) e o núcleo do átomo não é apenas um expectador da colisão. Esta última limitação é particularmente problemática, pois incide na delimitação do infratraço ( $b_{\max}$ ): note que ela prevê que  $b_{\max}$  decresça com  $v_p$  (Eq. 6.4a) enquanto que a condição de colisão rápida ( $b_{\max} \approx v_p T$ ) leva  $b_{\max}$  a ter uma dependência oposta.

#### - Software CasP

O modelo de Bohr tem a grande vantagem de descrever razoavelmente a transferência de energia do projétil para os elétrons através de uma expressão analítica simples. Entretanto suas limitações exigem o uso de um tratamento complementar mais realista. O software CasP versão 3.1 [78,81,83] atende

parcialmente esta necessidade.

CasP usa densidades eletrônicas quânticas na colisão íon-átomo e calcula a seção de choque de freamento  $\Omega_e$  em um alvo molecular e, dela, o poder de freamento definido por  $S_e \equiv (dE/ds)_e = N\Omega_e$ , onde  $N$  é a densidade de moléculas. Fornece também a distribuição  $E(b)$  para um projétil de carga  $q$  e velocidade fixas. Os valores de  $b_{\max}$  utilizados em SEID foram determinados impondo que a energia transferida calculada por CasP seja igual à energia de ionização média, ou seja,  $E(b_{\max}) = I$ .

A Fig. 6.2a apresenta os resultados de CasP para  $S_e(E_p)$  e para  $b_{\max}(E_p)$  considerando o projétil  $Ba^{13+}$  incidindo sobre um alvo de amônia de densidade  $0.93 \text{ g/cm}^3$  e  $I = 35 \text{ eV}$ . Nota-se que, para um fragmento de fissão típico ( $\sim 65 \text{ MeV}$ ),  $S_e(E_p) = 480 \text{ eV/\AA}$  e encontra-se perto do máximo. Com o mesmo comportamento qualitativo em função de  $E_p$ ,  $b_{\max}(E_p)$  tem um valor de ordem de  $3.5 \text{ \AA}$ , resultado também fornecido pelo Modelo de Bohr (Eq. 6.4).

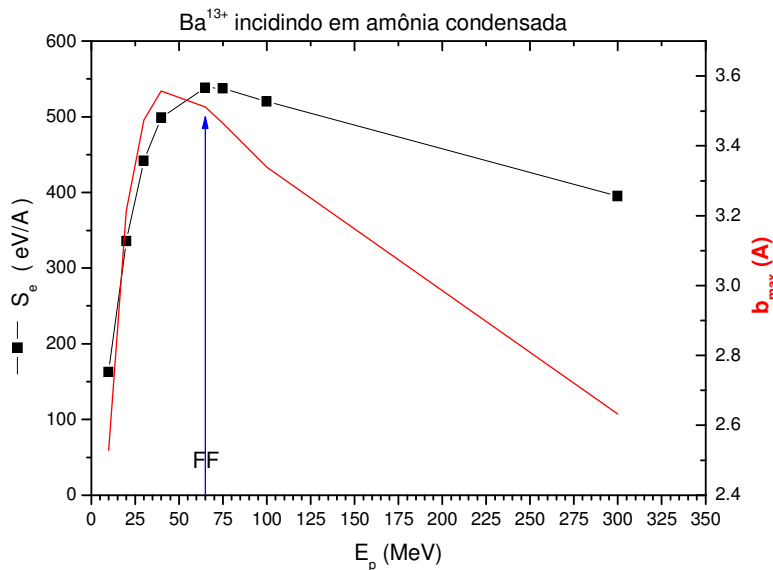


Fig. 6.2a: Perda de energia eletrônica  $S_e = (dE/dx)_e$  (símbolo e linha) e parâmetro de impacto máximo  $b_{\max}$  (linha) em função da energia do projétil  $Ba^{13+}$  incidindo sobre um alvo de amônia

A Fig. 6.2b mostra, segundo CasP, como  $S_e$  varia com  $q$ . Como esperado, as

previsões diferem consideravelmente para valores de  $q \sim 0$  com relação à Eq. (6.4).

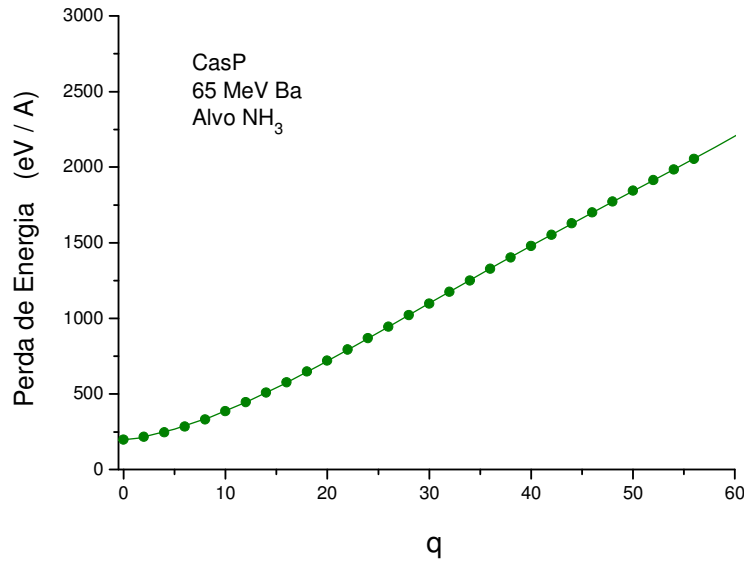


Fig. 6.2b: Previsões teóricas (CasP) para a dependência do poder de freamento com o estado de carga do projétil ( $Ba^{q+}$ ) interagindo com a amônia

Vê-se também que a dependência de  $(dE/ds)_e$  com  $q$  não é simplesmente quadrática: a função que interpola os valores obtidos para  $(dE/ds)_e$ , parametrizada por um polinômio, é:

$$(dE/ds)_e = 194.22 + 8.71q + 1.28q^2 - 0.02q^3 + 1.44893E-4q^4 \quad \text{Eq. (6.5)}$$

Admitindo que esta expressão forneça o valor médio de  $(dE/ds)_e$  com o estado de carga média  $\bar{q}(s) \approx q_{eq}$ , obtém-se a taxa de perda de energia em função da profundidade  $[dE/ds(\bar{q}(s))]_e$ .

Outros resultados fornecidos pelo programa CasP são apresentados nas Figs. 6.3 e 6.4. Os valores da energia transferida para o elétron em função do parâmetro de impacto (entre o projétil e o núcleo do átomo do sólido) e dos diferentes valores de estado de carga do projétil são mostrados na Fig. 6.3. Supondo que a energia de ionização média de uma molécula de amônia seja  $I = 35$  eV, ver apêndice A1 e ref. [83], os valores de  $b_{max}$  para vários  $q$  podem ser

extraídos desta figura e mostrados na Fig. 6.4. Esse valor relativamente alto de  $I$  vem dos valores elevados do  $(dE/ds)_e$  do FF em gelo.

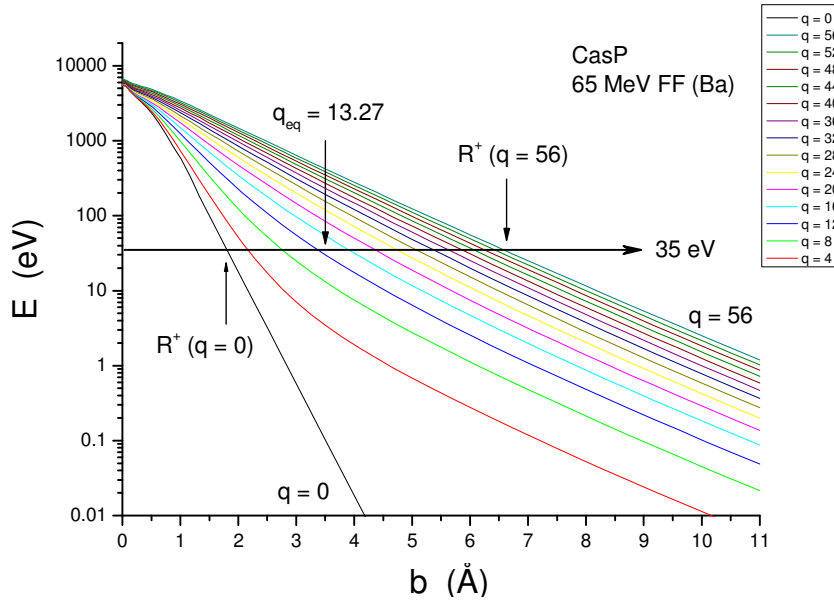


Fig. 6.3: Transferência de energia do projétil ao elétron do sólido em função do parâmetro de impacto, para diferentes valores do estado de carga do projétil.

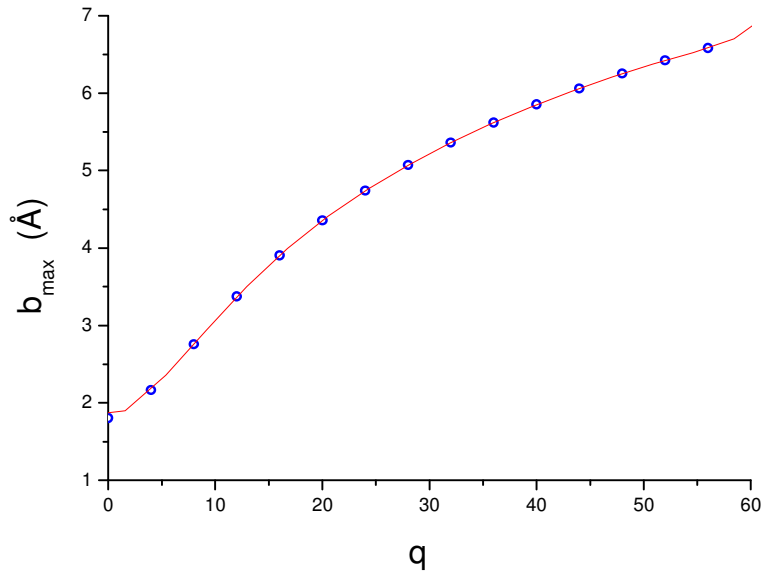


Fig. 6.4: Parâmetro de impacto  $b_{\max}(q)$  em função da carga do projétil, para a energia média de ionização da amônia de 35 eV.

Os cálculos de Casp podem ser melhorados empregando-se a aproximação de Magnus [84]; esta não foi utilizada por exigir longos tempos de computação.

### 6.1.3

#### Modelo do Potencial do Traço

O modelo considera que o traço nuclear formado pelo projétil no sólido seja constituído por dois cilindros coaxiais: um interno carregado positivamente e um outro externo carregado negativamente. Na Fig. 6.5 [76,78] é representada a geometria relevante para a análise da interação projétil-alvo e da emissão de íons secundários. Considera-se a direção Z como sendo perpendicular ao alvo e a direção X coincidente com a direção do projétil no plano do alvo mas com sentido oposto (a projeção do projétil no plano dirige-se sempre para os X negativos). O ângulo de incidência é  $\theta_p$ , o ponto de impacto no alvo ocorre no ponto  $x = y = z = 0$ . As coordenadas da posição inicial de uma dada molécula dessorvida no alvo são  $x_0$ ,  $y_0$  e  $z_0$ .

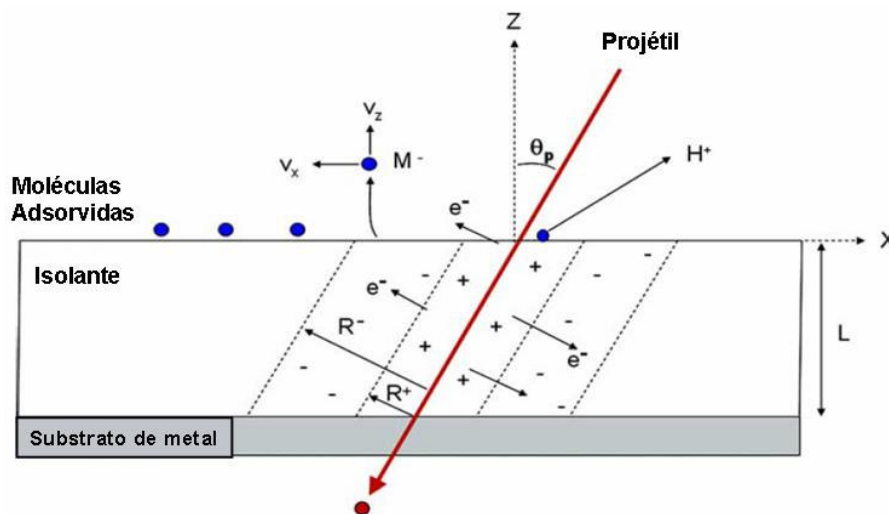


Fig. 6.5: Geometria do modelo de dessorção

O parâmetro chave no modelo é a densidade de carga  $\rho(x,y,z,t)$ . A carga total inicial do traço é  $Q_0 = \int \rho(x, y, z, 0) dx dy dz$ . Considerando o potencial  $V = 0$  como o valor de referência a uma distância infinita do traço e desprezando a polarização do meio dielétrico ( $\epsilon = \epsilon_0$ ), o potencial  $V_T$  devido ao traço, no ponto de coordenadas  $(x,y,t)$  e no tempo  $t$ , é

$$V_T(x, y, z, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int_0^{2\pi} d\varphi' \int_0^{R^-} dr' \int_0^{L_T} \frac{\rho(s, r', \varphi', t)}{D} ds \quad \text{Eq. (6.6)}$$

onde  $R^-$  é o raio do traço negativo,  $D$  a distância entre o ponto  $(x, y, z)$  e o elemento de volume  $(s, r', \varphi')$ . Uma expressão similar é obtida para o campo elétrico:

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \iiint \rho(s, r', \varphi', t) \frac{D_x \hat{X} + D_y \hat{Y} + D_z \hat{Z}}{D^3} ds r' d\varphi \quad \text{Eq. (6.7)}$$

O momento transferido a cada íon secundário (SI) é  $\Delta m \vec{v} = \int \vec{F} dt = q \int \vec{E}(x, y, z, t) dt$ , o que torna claro o efeito do tempo de neutralização dos traços ( $\tau$ ) sobre a velocidade final dos SI. As trajetórias e velocidades finais podem ser calculadas resolvendo-se a equação de movimento para os SI tendo carga  $q$  e massa  $m$ :

$$q \vec{E}(x, y, z, t) = m \frac{d^2 \vec{X}(x, y, z)}{dt^2} \quad \text{Eq. (6.8)}$$

onde  $X$  é a distância dos SI ao ponto de impacto. As condições iniciais são a posição inicial do íon secundário  $(x_0, y_0, z_0)$  e a velocidade inicial  $\vec{v}_0$ .

As expressões de  $\rho(x, y, z, t)$ ,  $\sigma(x, y, z)$  (seção de choque) e  $\vec{v}_0(x, y, z)$  dependem de outras especificações:

- a) A densidade de ionização ao longo do traço,  $\lambda_i$ , é proporcional ao poder de freamento eletrônico,  $S_e$ :  $\lambda_i = C_i \xi S_e / \bar{I}$ , onde  $C_i$  é um coeficiente que fornece a fração de energia eletrônica transferida aos elétrons secundários ( $C_i \sim 0,5$  ou menor); dessa energia, a fração  $\xi$  é usada na ionização propriamente dita. Ou seja,  $\lambda_i = dN_i/ds$  onde  $N_i$  é o número de ionizações no comprimento  $ds$ .

- b) É possível definir um intervalo de tempo  $\Delta t_{eq}$ , na ordem dos femtossegundos (fs), durante o qual a difusão dos elétrons rápidos acontece sem que a movimentação de íons secundários seja significativa. Então,  $t = \Delta t_{eq}$  define as condições de carga “iniciais” para a emissão de íons secundários: os raios dos traços positivo e negativo,  $R^+$  e  $R^-$ , a densidade de carga inicial  $\rho_0$  e um coeficiente  $C_i \xi$  que já inclua a re-neutralização parcial e rápida do traço.
- c) A aproximação na qual a densidade de carga positiva,  $\rho_0^+$ , é constante no interior do traço positivo não afeta o campo elétrico longe do traço e permite a relação simples:  $dQ_0 / ds = e \lambda_i = \pi (R^+)^2 \rho_0^+$ , ou ainda:

$$\rho_0^+ = \frac{C_i S_e \xi / I}{\pi (R^+)^2} \quad \text{Eq. (6.9)}$$

- d) Um projétil rápido ioniza os átomos no infratraço, definida como uma região cilíndrica cujo raio é dado pela Eq. (6.4a) ou pelo critério adiabático de Bohr:  $b_{max} (\text{\AA}) = v_p / w_0 = 6.7 \sqrt{E_p / M}$ , onde  $v_p$ ,  $E_p$  e  $M$  são a velocidade, energia (MeV) e massa (u) do projétil, respectivamente. Como ambos  $dE/dx$  e  $b_{max}$  variam com a carga do projétil  $q$  (ver Figs. 6.2b e 6.4), a densidade de carga instantânea  $\rho^+$  gera campos elétricos muito intensos no ultratraço perto da trajetória do projétil e que também variam com  $q$ . Os elétrons dessa região devem reagir em fs, criando buracos e expandindo o raio do traço positivo a um valor de  $R^+$ . No modelo supõe-se que – para o cálculo de emissões de íons secundários- o raio do traço interno positivo,  $R^+$ , seja proporcional a  $b_{max}$ .
- e) Os elétrons secundários são emitidos perpendicularmente à trajetória do projétil. Esta é uma aproximação em primeira ordem, especialmente para átomos do alvo que estão na superfície ou nas primeiras camadas, mas reduz o tempo do cálculo e permite ter um procedimento para determinar  $R^-$  se o poder de freamento do elétron é conhecido. Elétrons Auger são emitidos

isotropicamente, mas estes não são levados em conta no SEID.

- f) A densidade de carga negativa inicial,  $\rho_0^-$ , decresce com  $r^{-n}$  dentro do traço negativo externo, onde  $n \sim 3$ . A  $t = \Delta t_{eq}$ , e desprezando a emissão de íons secundários ao vácuo, todos os elétrons ejetados do infratraço devem estar no ultra traço:

$$\rho_0^- = -\rho_0^+ \frac{(n/2)-1}{1-(R^+/R^-)^{n-2}} \left( \frac{R^+}{r} \right)^n \quad \text{Eq. (6.10)}$$

- g) Para  $T > \Delta t_{eq}$ , supõe-se que  $\rho$  decresce exponencialmente. Se os traços positivos e negativos decrescem a taxas diferentes, considera-se que:

$$\rho^+ = \rho_0^+ \exp\left(-\frac{t}{\tau^+}\right) \text{ e } \rho^- = \rho_0^- \exp\left(-\frac{t}{\tau^-}\right) \quad \text{Eq. (6.11)}$$

#### 6.1.4

#### Formação de Íons Secundários na Superfície

Elétrons secundários com energia suficiente podem ir do infratraço até a superfície do sólido e colidir com uma molécula da primeira monocamada. A colisão elétron secundário-molécula resulta na excitação eletrônica e/ou ionização desta. O processo da ionização de átomos e moléculas pelo impacto de elétrons (incluindo a captura eletrônica) é de fundamental importância no processo de dessorção, constituindo-se na espinha dorsal do modelo SEID.

A principal reação química que conduz à formação de íons positivos, através de transições eletrônicas que ocorrem nas moléculas na superfície do sólido, é representada pela seguinte expressão:



onde M corresponde à molécula que sofre a transição,  $M^{w*+}$  é o estado excitado da molécula com estado de carga  $w = n_e - 1$ , onde  $n_e$  é o número de elétrons liberados na colisão incluindo o incidente. Íons negativos são formados por captura eletrônica. Colisões elétron-molécula muito inelásticas podem resultar na fragmentação molecular em um cátion e um ânion. Para todos os três casos, é importante conhecer o fluxo de elétrons secundários na superfície, sua distribuição de energia na superfície e as respectivas seções de choque de colisão.

Dito de forma mais precisa, feita a média sobre um grande número de impactos, a probabilidade de ionização de uma molécula da primeira camada do alvo depende do número médio de elétrons secundários que lhe atingem, da seção de choque de ionização e da densidade superficial molecular “inicial”  $\sigma_M$  daquela molécula específica. Denomina-se  $\phi(E)$  ao número médio de elétrons por unidade de área dA que atingem a molécula M, com energia entre E e E +dE. A seção de choque de ionização  $\Omega(E)$  da molécula depende da energia E do elétron. A densidade média de íons formados na superfície, a partir da coordenada  $(x_0, y_0)$  é - ver Apêndice A.2 e ref.[78]- :

$$\sigma_I = \frac{dN_i}{dA}(x_0, y_0) = \sigma_M \int \phi_E(E, x_0, y_0) \Omega(E) dE \quad \text{Eq. (6.13)}$$

A densidade superficial molecular  $\sigma_M$ , utilizada na Eq.(6.13), pode ter papel mais importante na dessorção iônica do que um mero fator de escala, o valor “inicial” de  $\sigma_M$  pode se alterar indiretamente após a passagem do projétil e antes da colisão com os elétrons secundários. Embora não haja tempo para uma fragmentação molecular antes do impacto por elétrons, o projétil pode deixar a molécula M em um estado eletrônico excitado, alterando sensivelmente a seção de

choque de colisão com elétrons secundários. Em particular,  $\sigma_M$  deve depender das coordenadas  $x_0$  e  $y_0$  uma vez que a passagem do projétil excita as moléculas superficiais de modo mais intenso quanto mais próximas elas estão do ponto de impacto. Não se espera, pois, que moléculas ou agregados sejam emitidos do interior de um círculo de raio  $\sim b_{\max}$ ; ao contrário, a formação de íons atômicos nesta mesma região deve ser aumentada em virtude da excitação eletrônica intensa e, dependendo da velocidade do projétil, de colisões projétil-núcleo na parte central do traço.

## 6.2

### Predições do Modelo

Com as expressões mostradas na seção anterior, foi escrito um programa em linguagem FORTRAN [78] para simular a dinâmica dos íons dessorvidos de um sólido de amônia sob bombardeio de FF multicarregados do  $^{252}\text{Cf}$ , com energia de 65 MeV e incidindo com ângulo de  $\theta_p = 45^\circ$ .

Devido aos tempos de cálculo longos para as trajetórias, utilizou-se o equipamento SUN FIRE 6800 do Laboratório Nacional de Computação Científica (LNCC). Para a transferência de dados ao LNCC (com o programa já compilado) utilizou-se o programa FileZilla. O programa PUTTY facilita a compilação e execução dos arquivos no computador do LNCC que interage com o PC (para mais detalhes ver o apêndice da ref. [78]).

Foram feitos em um PC (ver apêndice A2) os cálculos do número médio de íons formados na superfície ( $dN_i/dA$ ) e do número de elétrons por unidade de área  $\phi_E$  que atingem a primeira camada do alvo e que têm a probabilidade de formar aqueles íons.

### 6.2.1

#### Trajeto rias dos  ons Secund rios

Sejam v rios  ons positivos de massa 18 u em repouso distribuídos ao longo do eixo X, entre -20 e 0  . Considerando as vidas m dias de neutraliza  o dos tra os constantes e com os valores:  $\tau^- = 0.5$  ps e  $\tau^+ = 0.2$  ps, as trajet rias dos  ons foram determinadas para os primeiros 4 ps de dessor  o para  ons de massa 18 e 86 u, localizados entre -20   e 0 (com passo de 1  ). Elas s o apresentadas na Fig. 6.6. Observa-se que os  ons de massa 86 u, localizados entre  $\sim -10$    e 0, s o dessorvidos sem serem neutralizados; ao contr rio, os  ons de massa 18 u conseguem sair de uma regi o maior. Note que  ons de massa diferente e que saem da mesma posi  o t m trajet rias bem diferentes.

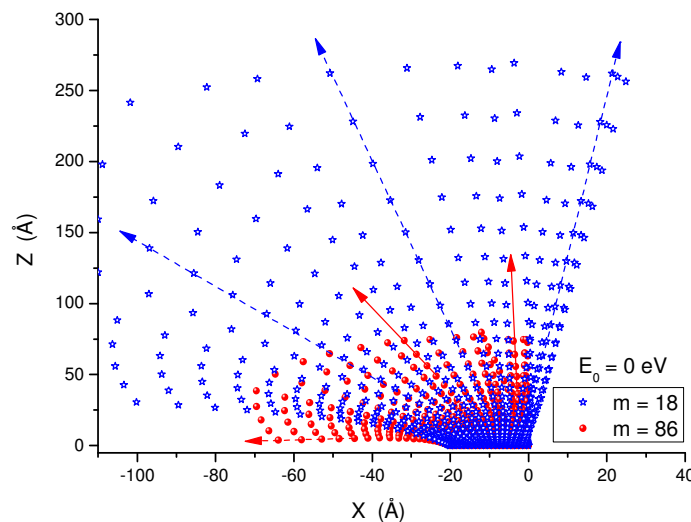


Fig. 6.6: Trajet rias para  ons de massa 18 e 86 u desenhadas para uma din mica com intervalos de tempo crescentes (passo vari vel).

### 6.2.2

#### Velocidades dos  ons Secund rios

Na Fig. 6.7   apresentada a varia  o no tempo da componente da velocidade (em km/s) normal ao plano de incid ncia do proj til considerando as condi  es para o

sistema  $\text{FF}^{252}\text{Cf} \rightarrow \text{NH}_3$ . O valor de  $\tau^- = 0.5$  ps foi mantido constante e o valor de  $\tau^+$  foi variado; considerou-se apenas os íons secundários de massa 86 u. No caso de grande diferença entre os valores de  $\tau^+$  e  $\tau^-$ , observa-se que o valor máximo da velocidade axial ocorre em tempos relativamente curtos ( $\sim 0,5$  ps), gerando velocidades finais negativas (retorno do íon secundário ao alvo).

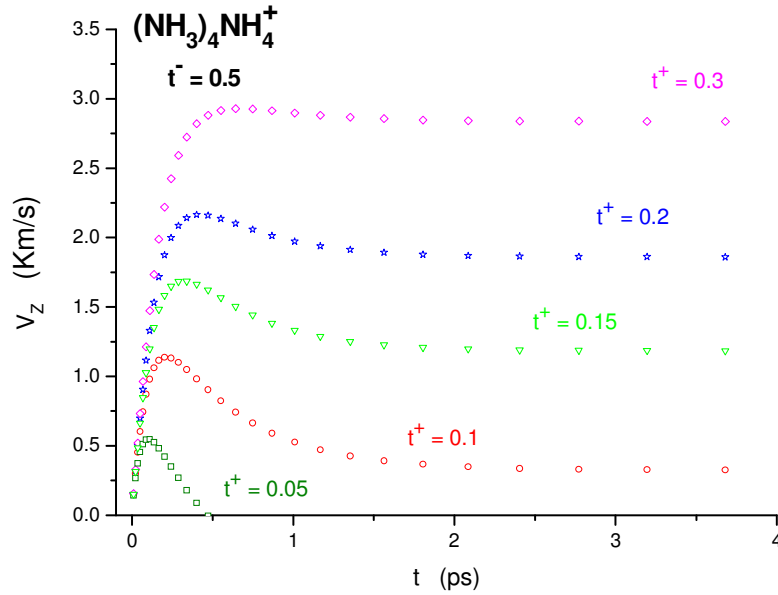


Fig. 6.7: Comportamento da velocidade axial no plano de incidência

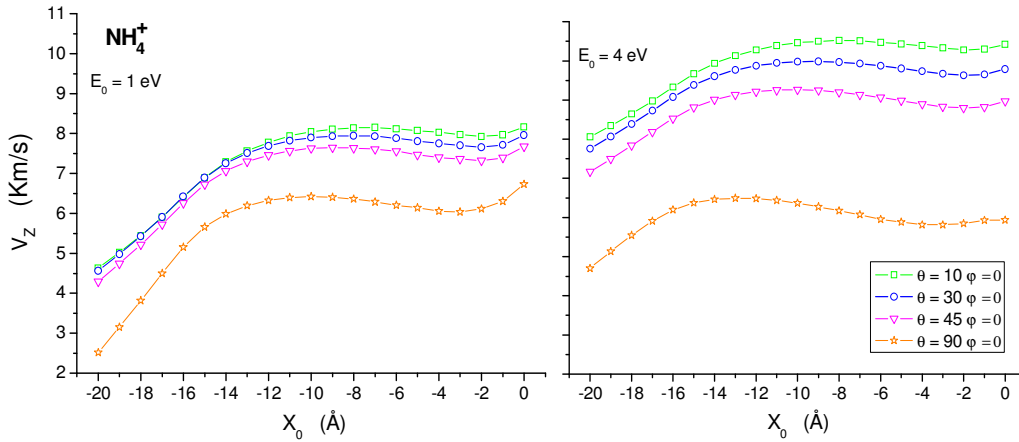


Fig. 6.8: Variação da componente axial da velocidade  $V_z$  em função da posição

inicial para energias iniciais de 1 eV (a, esquerda) e 4 eV (b, direita)

Na Fig. 6.8 a,b é mostrado o comportamento da componente axial da velocidade (de emissão iônica) final ( $t \rightarrow \infty$ ) em função da posição inicial, para

duas energias iniciais do íon (1 e 4 eV). Vários ângulos de emissão são considerados. Simula-se a dessorção dos íons de massa 18. Como se esperava, as velocidades iniciais diminuem quando o ângulo de emissão do íon secundário aumenta, ou seja, para  $\theta = 90^\circ$  as velocidades são menores. Este efeito é maior quando a energia inicial dos íons dessorvidos aumenta (Fig 6.8b).

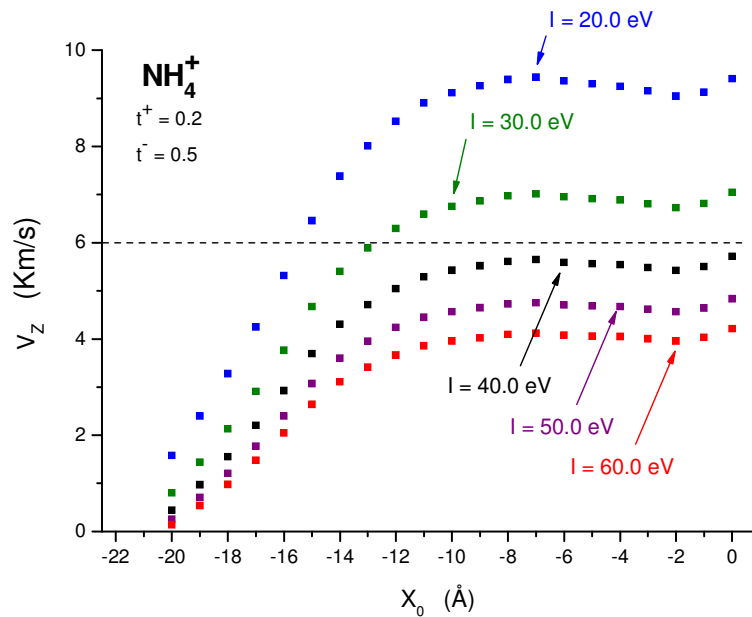


Fig. 6.9: Comportamento de  $V_z$  em função da posição inicial para diferentes valores da energia média de ionização ( $I$ ). A energia inicial considerada é de  $E_0 = 0$

Procura-se ajustar as velocidades de emissão às observadas experimentalmente. Como o traço deve ficar excessivamente carregado durante a emissão iônica, valores de  $\bar{I}$  de dezenas de eV são razoáveis. A Fig. 6.9 mostra a velocidade  $V_z$  dos íons dessorvidos em função da posição inicial para diferentes valores médios da energia de ionização ( $\bar{I}$ ), no caso do  $\text{NH}_4$ . O valor experimental obtido de 6 Km/s é reproduzido para valores de  $I$  entre 30 e 40 eV; assim, o valor empregado para os cálculos subsequentes é de  $I = 35$  eV. A Fig. 6.10 apresenta, para varias energias iniciais de emissão, as velocidades  $V_z$  para o novo valor de  $I$ , obtido com este procedimento.

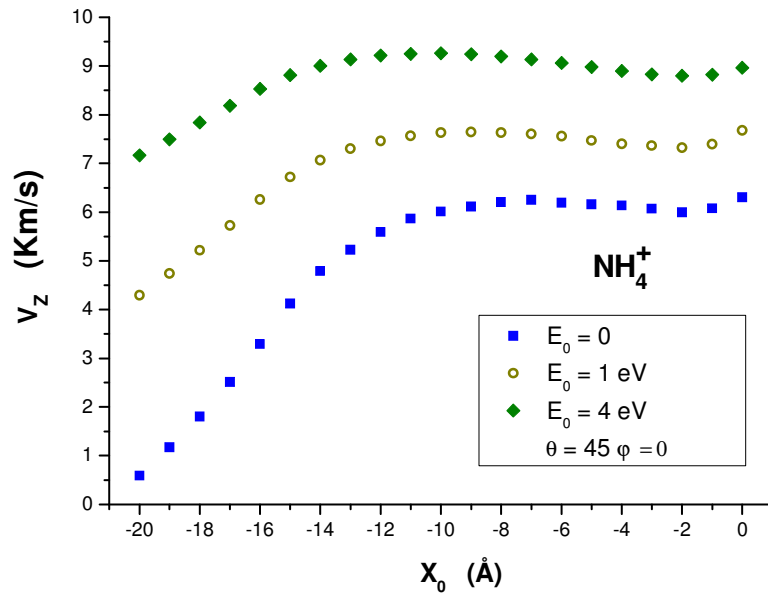


Fig. 6.10: Comportamento de  $V_z$  em função da posição inicial para energias iniciais diferentes, com energia de ionização  $I = 35$  eV

Nas Figs. 6.11 e 6.12 é apresentada a distribuição de velocidades finais  $V_z$  dos íons dessorvidos para as massa 18 e 86 u.

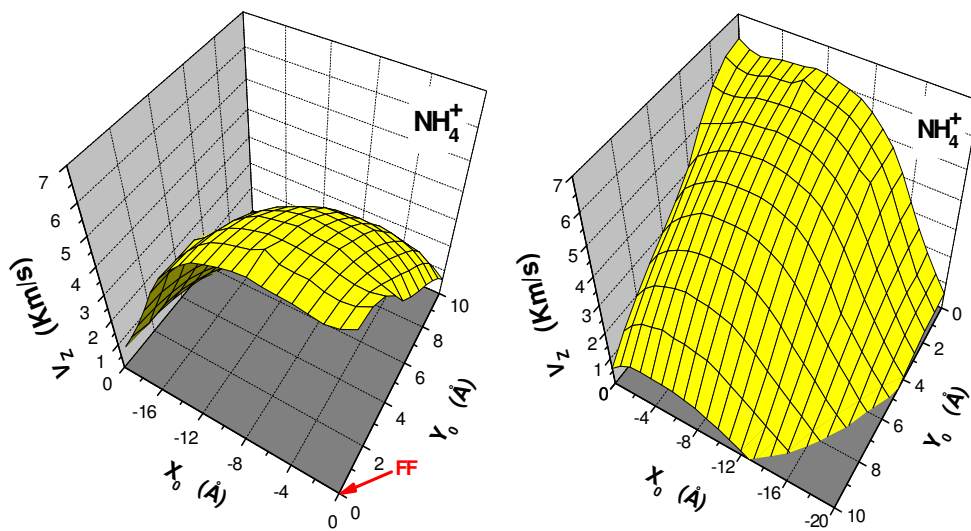


Fig. 6.11: Gráfico 3D da variação da componente axial da velocidade  $V_z$  em função das posições iniciais  $X_0$  e  $Y_0$ , para o íon de  $m = 18$

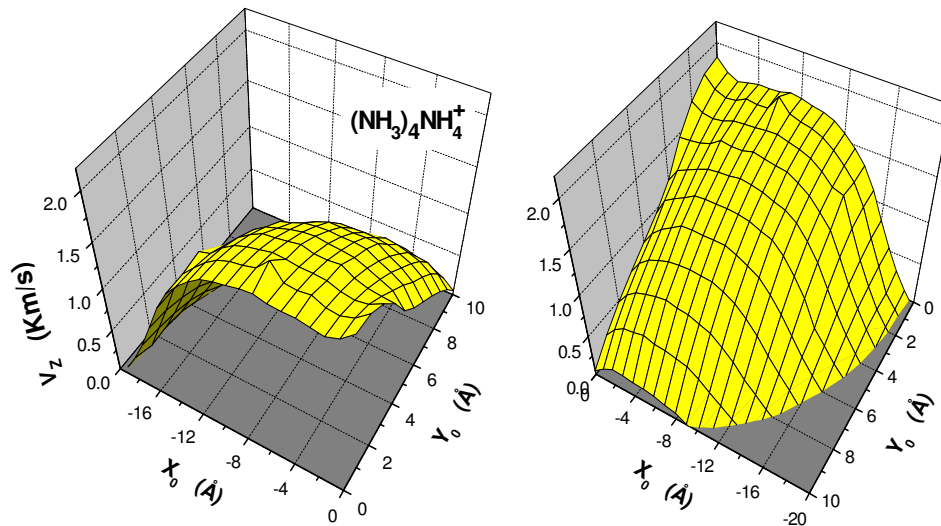


Fig. 6.12: Gráfico 3D da variação da componente axial da velocidade  $V_z$  em função das posições iniciais  $X_0$  e  $Y_0$ , para o íons de  $m = 86$

### 6.3

#### Comparação entre resultados teóricos e experimentais

##### 6.3.1

##### Metodologia

As mesmas considerações que foram feitas para o cálculo apresentado na ref. [78] são válidas para o presente trabalho: i) no modelo SEID, quase todas as ionizações na superfície do sólido situadas no semi-plano  $x > 0$  foram excluídas do cálculo quando  $\theta_p \neq 0$ , ii) no semiplano  $x < 0$ , as ionizações e trajetórias no quadrante  $y < 0$  também foram excluídas na execução do código. Este procedimento é justificado em função da simetria especular dos fenômenos em relação ao plano de incidência do feixe (plano XZ); os resultados obtidos para  $y > 0$  são repetidos para  $-y$ , iii) as simulações ficaram restritas a uma região de  $x = 20$   $y = 10$  devido ao maior rendimento de emissão de íons nesta área.

A área considerada foi dividida em células e partindo de cada uma destas, foi calculada uma trajetória para cada espécie química dessorvida. A velocidade para cada massa foi determinada passo a passo até 5 ps após o impacto. Nos primeiros 3 ps, o passo considerado foi de 0,01 ps e aumentado para 0,1 ps nos últimos 2 ps. As velocidades finais permaneceram estáveis para variações do passo em torno desses valores. Para o cálculo de distribuição de energia (ou de velocidade), uma densidade de íons secundários  $\sigma_M(x, y)$  foi associada para cada célula.

Os valores de  $\tau^- = 0,5$  ps,  $\tau^+ = 0,2$  ps e  $\lambda_q = 6$  Å (comprimento de variação de carga) foram mantidos constantes em todas as simulações.

### 6.3.2

#### Densidade Superficial de Íons $\sigma_i$

Para uma área pequena dada na superfície do sólido, o número de íons nela formados é calculado multiplicando-se o número de elétrons secundários que atravessam pelo número de moléculas ali localizadas e pela seção de choque de ionização (captura ou perda), (Eq. 6.13). A densidade de íons formados,  $\sigma_i$ , é a razão entre este número e o valor da área considerada.

Na Fig. 6.13 é apresentada a seção de choque de produção de  $\text{NH}_3$  por impacto de elétrons. Dois conjuntos de dados são encontrados na literatura (curvas ponteadas) [85,86]; a linha sólida é um ajuste destes dados visando obter uma expressão analítica para a seção de choque de ionização em função da energia do elétron.

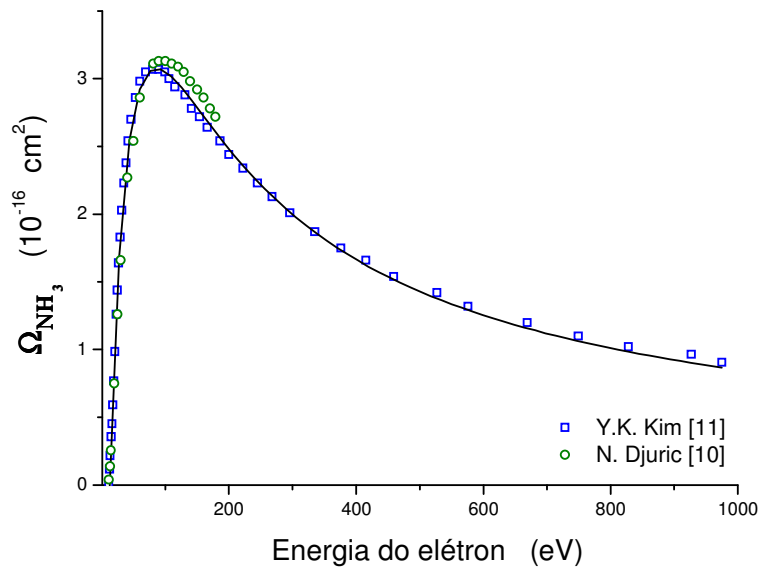


Fig. 6.13: Seção de choque de ionização  $\Omega(E)$  por impacto de elétrons em  $\text{NH}_3$

### 6.3.3

#### Distribuição da energia cinética

Os valores teóricos das componentes axiais das velocidades que podem ser comparadas às experimentais são aqueles obtidos após o termino do efeito dos campos elétricos locais no sólido. Considerou-se inicialmente neste cálculo que todos os íons tenham  $E_0 = 1$  eV ao deixarem a superfície e que sejam emitidos apenas com  $\theta_0 = 0$  (perpendicular à superfície).

A Fig. 6.14 permite fazer a confrontação dos resultados medidos e calculados para o  $\text{NH}_4$ . Embora as larguras das duas distribuições difiram substancialmente, o acordo é razoável se for considerado: i) a relativa simplicidade do modelo e ii) os valores das energias correspondendo aos máximos das respectivas distribuições concordam em valores absolutos. A cauda da direita das distribuições experimentais (parte de energia alta) é produzida pelo sputtering nuclear [87] e não tem que ser reproduzida por um modelo que só trata do sputtering eletrônico.

Em um segundo conjunto de resultados a mesma Fig. 6.14 mostra outras três distribuições, superpostas, todas com energia inicial de  $E_0 = 1$  eV mas com ângulos de emissão diferentes: a primeira corresponde a  $\theta = 0^\circ/\varphi = 0^\circ$ , da segunda a quarta com  $\theta = 45^\circ$  constante e  $\varphi = 0^\circ, 90^\circ$  e  $180^\circ$  respectivamente.

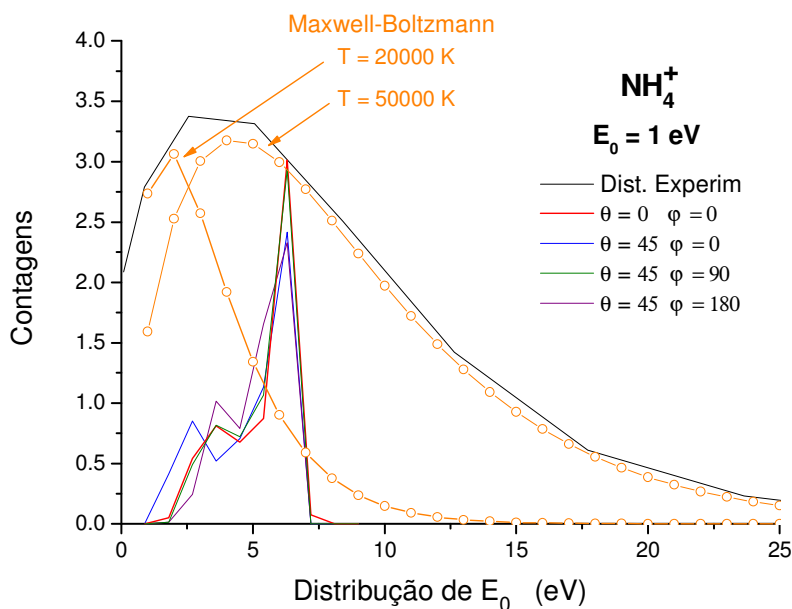


Fig. 6.14: Comparação das distribuições de energia dos dados experimentais e teóricos; os cálculos foram feitos para diferentes ângulos de emissão. Apresenta-se também um ajuste com uma distribuição Maxwell-Boltzmann.

## 6.4

### Discussão e Conclusões

O modelo SEID foi testado e verificou-se um acordo parcial nas suas previsões com os dados experimentais obtidos na dessorção de íons secundários no sistema  $\text{FF } ^{252}\text{Cf} (65 \text{ MeV}) \rightarrow \text{NH}_4$ . Os valores absolutos do rendimento de elétrons secundários, do rendimento de dessorção de íons secundários, das velocidades médias de emissão de íons e elétrons são bem reproduzidas. Essa

concordância se reflete na posição dos máximos das distribuições das energias cinéticas.

A questão que se segue após esta constatação é qual ou quais características físicas influenciam a largura das distribuições. Algumas hipóteses devem ser analisadas: emissões Auger, efeitos de ondas de choque, efeitos térmicos, explosões coulombianas.

O efeito Auger não ocorre no átomo de hidrogênio isolado, mas pode acontecer no projétil iônico, no nitrogênio e na molécula de amônia. Ele é proveniente da relaxação atômica após a emissão de um elétron de camada interna via uma segunda emissão. Neste caso, o segundo elétron ejetado será mais lento e emitido isotropicamente (e não perpendicular ao traço, como ocorre na interação direta) aumentando a densidade de elétrons livres perto do traço a apressando sua reneutralização. Os elétrons Auger são também emitidos isotropicamente pelo projétil mas, no presente caso, o efeito é menor já que o estado de carga do projétil está perto do equilíbrio.

Os efeitos térmicos podem fornecer um bom acordo para a forma da distribuição de energia. A Fig. 6.14 mostra duas previsões feitas com uma função Maxwell-Boltzmann. Os principais argumentos contrários são: i) que um equilíbrio térmico se deu em picossegundos e ii) que a temperatura obtida (dezenas de milhares de graus) não tenha dissociado a amônia.

As explosões coulombianas e as ondas de choque restam como bons candidatos para investigação futura.