

Peter Darwin Iza Toapanta

Extensão do modelo de traço
nuclear para descrever a
dessorção iônica. Aplicação aos
agregados de água

TESE DE DOUTORADO

DEPARTAMENTO DE FÍSICA
Programa de Pós-graduação em Física

Rio de Janeiro
Agosto de 2006



Peter Darwin Iza Toapanta

**Extensão do modelo de traço nuclear para
descrever a dessorção iônica. Aplicação aos
agregados de água**

Tese de Doutorado

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física do
Departamento de Física da PUC-Rio como requisito parcial para
obtenção do título de Doutor em Física

Orientador: Prof. Enio Frota da Silveira

Rio de Janeiro
Agosto de 2006



Peter Darwin Iza Toapanta

**Extensão do modelo de traço nuclear para
descrever a dessorção iônica. Aplicação aos
agregados de água**

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física do Departamento de Física do Centro Técnico Científico da PUC-Rio como requisito parcial para obtenção do título de Doutor em Física. Aprovada pela Comissão Examinadora abaixo assinada.

Prof. Enio Frota da Silveira

Orientador

Departamento de Física — PUC-Rio

Prof. Lucio Sartori Farenzena

Departamento de Física — UFSC

Prof. Pedro Luis Grande

Departamento de Física — UFRGS

Prof. Marcelo Martins Sant'Anna

Departamento de Física — UFRJ

Prof. Marco Cremona

Departamento de Física — PUC-Rio

Prof. José Eugenio Leal

Coordenador Setorial do Centro Técnico Científico — PUC-Rio

Rio de Janeiro, 24 de Agosto de 2006

Todos os direitos reservados. É proibida a reprodução total ou parcial do trabalho sem autorização da universidade, do autor e do orientador.

Peter Darwin Iza Toapanta

Formou-se como Físico, especialidade: aplicações a Biologia, na Escuela Politécnica Nacional, Quito – Equador.

Ficha Catalográfica

Iza, P.

Extensão do modelo de traço nuclear para descrever a dessorção iônica. Aplicação aos agregados de água/ Peter Darwin Iza Toapanta; orientador: Enio Frota da Silveira. — Rio de Janeiro : PUC–Rio, Departamento de Física, 2006.

v., 141 f: il. ; 30 cm

Tese (doutorado) - Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Departamento de Física.

Inclui referências bibliográficas.

1. Física – Tese 2. Dessorção iônica 3. Modelo eletrostático 4. Emissão de íons secundários 5. Velocidades iniciais 6. Distribuições de energia 7. Distribuições angulares 8. Gelo de água 9. Agregados iônicos 10. Tempo-de-vôo I. da Silveira, E. F.. II. Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro. Departamento de Física. III. Título.

CDD: 530

À minha esposa Pilar e
a meus pais Targelia e Pedro.

Agradecimentos

Gostaria de agradecer inicialmente ao Prof. Enio Frota da Silveira a oportunidade de trabalhar sob a sua orientação; seu profissionalismo, experiência e amizade ajudaram a resolver os “problemitas” que surgiram no dia a dia.

Ao Lucio, a amizade, os ensinamentos experimentais durante as estadas no LNLS e as discussões feitas no desenvolvimento da tese.

À Cássia R. Ponciano, a amizade, a paciência e a ajuda oferecida.

Ao Vladimir e à sua esposa Carmen, a atenção dispensada quando cheguei ao Rio.

Ao colegas do grupo: Rafael, Renata, Francisco “Paquito”, Eduardo e Gustavo, os bons momentos que vivenciamos.

A todos os professores do Departamento de Física, os ensinamentos.

Aos funcionários do Laboratório Van de Graaff e aos da secretaria do Departamento de Física da PUC–Rio pelo apoio.

E a todos aqueles que contribuíram para a realização deste trabalho.

À minha família o apoio e em particular à Pilar a compreensão e o respaldo pessoal necessário durante esta etapa de minha vida.

Gostaria reconhecer a importância das bolsas oferecidas pelo Centro Latino Americano de Física (**CLAF**) e pela PUC–Rio (**VRAC**), apoio financeiro sem o qual esse trabalho não seria possível.

Resumo

Iza, P.; da Silveira, E. F.. **Extensão do modelo de traço nuclear para descrever a dessorção iônica. Aplicação aos agregados de água.** Rio de Janeiro, 2006. 141p. Tese de Doutorado — Departamento de Física, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro.

A dessorção de íons secundários induzida por impacto de projéteis velozes é um fenômeno de interesse tanto da pesquisa fundamental dos processos de colisão quanto da Física de Superfícies, Biociência e Astrofísica. O modelo teórico de dessorção iônica induzida por elétrons baseado na formação de um traço nuclear é aprimorado no presente trabalho. Considera-se que o traço seja composto por um infratraço de carga positiva e um ultratraço de carga negativa. Ao chegarem na superfície do sólido, os elétrons secundários emanados do infratraço geram íons que são em seguida acelerados por ação do campo elétrico produzido pelos traços. Os dados experimentais escolhidos para testar o modelo correspondem à dessorção iônica induzida em filmes finos de gelo (H_2O) por íons de nitrogênio de 1,7 MeV. As velocidades de emissão e as massas dos íons dessorvidos foram determinadas pela técnica de tempo-de-vôo. Empregou-se um detector de íons composto por um par de placas de microcanais e por um anodo sensível à posição de impacto dos íons. Os dados obtidos pela técnica XY-TOF mostram diferenças de simetrias na distribuição angular dos íons secundários. Em especial, observou-se emissão quase isotrópica dos agregados leves em relação a normal à superfície, contrastando com a dos agregados pesados que apresenta distribuição assimétrica atribuída a um efeito de "memória" da direção do projétil durante a emissão iônica. Um acordo entre os resultados do modelo e os dados experimentais é considerado razoável.

Palavras-chave

Física — Tese, dessorção iônica, modelo eletrostático, emissão de íons secundários, velocidades iniciais, distribuições de energia, distribuições angulares, gelo de água, agregados iônicos, tempo de vôo, detector sensível à posição.

Abstract

Iza, P.; da Silveira, E. F.. **Ion desorption described by an extended nuclear track model. Application to water ice clusters.** Rio de Janeiro, 2006. 141p. PhD. Thesis — Departamento de Física, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro.

Secondary ion desorption induced by impact of fast projectiles is an important phenomenon not only because it is directly connected to atomic collision processes in solids, but also to practical implications in the Physics of Surfaces, Bioscience and Astrophysics. A theoretical model describing the desorption induced by secondary electron (SEID) produced in nuclear tracks is extended in the present work. It considers that the nuclear track is composed by a positive charged infratrack and a negative charged ultratrack. Secondary electrons emanated from infratrack reach the surface of the solid and generate molecular ions which are accelerated by an electric field produced by the track. The experimental data obtained by a 1.7 MeV nitrogen beam inducing electronic sputtering on condensed water target are used to test the SEID model. The initial velocity vectors and the masses of the emitted ions were obtained by the time-of-flight technique equipped with a position sensitive delay line detector XY-TOF. The data obtained by the technique show differences of symmetries in the angular distribution of the secondary ions. In particular, isotropic emission was observed for light clusters in relation to normal to the surface, contrasting with heavy clusters that show an asymmetric distribution attributed to nuclear track "memory" direction during the emission. The agreement between the model results and experimental data is considered reasonable.

Keywords

Physics — Thesis, ion desorption, SEID, secondary ion emission, initial velocity, energy distribution, angular distribution, water ice, ion clusters, time-of-flight, position sensitive detector.

Resumen

Iza, P.; da Silveira, E. F.. **Extensión del modelo de trazo nuclear para describir la desorción iónica. Aplicación a los aglomerados de hielo.** Rio de Janeiro, 2006. 141p. Tesis de Doctorado — Departamento de Física, Pontificia Universidade Católica do Rio de Janeiro.

La desorción de iones secundarios a partir de la incidencia de proyectiles rápidos en superficies es un fenómeno de gran interés científico en áreas de Física de Colisiones (interacciones ión-sólido), Física de Superficies, Bio-ciencia y Astrofísica. En esta Tesis fue desarrollado un modelo teórico para describir el proceso de desorción iónica inducida por los electrones emitidos durante la formación del "trazo nuclear". El modelo considera que el "trazo nuclear" está formado por un infratrazo de carga positiva y un ultratrazo de carga negativa. Los electrones secundarios que salen del infratrazo, y que llegan hasta la superficie del sólido, ionizan las moléculas de la superficie que son entonces aceleradas por la acción del campo eléctrico producido por el "trazo nuclear". Las predicciones del modelo fueron comparadas con las mediciones de las especies emitidas por la incidencia de iones de nitrógeno de 1,7 MeV en películas delgadas de hielo (H₂O). Las especies emitidas y sus velocidades iniciales fueron determinadas utilizando la técnica tiempo de vuelo (TOF). Fue utilizado un detector formado por un par de placas de micro canales con un ánodo sensible a la posición de impacto de los iones (técnica XY-TOF). Dos tipos de distribuciones angulares de los iones secundarios fueron observadas: isotrópica para masas pequeñas y anisotrópica para masas grandes. La distribución angular de masas grandes es preferencialmente simétrica a la dirección de incidencia del proyectil con respecto a la normal a la superficie y se debe al efecto de "memoria" del trazo nuclear sobre la dirección de incidencia del proyectil. Los resultados teóricos y los valores experimentales concuerdan parcialmente.

Palabras-clave

Física — Tesis, desorción iónica, modelo electrostático, emisión de iones secundarios, velocidades iniciales, distribuciones de energía, distribuciones angulares, hielo de agua, aglomerados iónicos, tiempo de vuelo, detector sensible a la posición.

Sumário

1	Introdução	16
2	Conceitos que embasam a dessorção iônica	19
2.1	Efeitos da interação projétil-sólido	19
2.2	Gelo	20
2.2.1	Estruturas cristalinas do gelo	20
2.2.2	Parâmetros característicos da estrutura do gelo Ih	22
2.3	O projétil	23
2.4	Taxa de perda de energia do projétil	23
2.5	Modelos de dessorção	25
2.5.1	Explosão Coulombiana	25
2.5.2	Modelos “Thermal Spike”	26
2.5.3	Modelos de Expansão	27
2.5.4	Modelos de Excitação	28
2.6	Etapas do processo de dessorção	28
3	Modelo eletrostático de dessorção iônica: SEID	30
3.1	Estudo da interação projétil-alvo	33
3.1.1	Carga de equilíbrio do projétil	33
3.1.2	Evolução da carga	34
3.2	Energia transferida aos elétrons	35
3.2.1	Parâmetro de impacto máximo e mínimo	38
3.3	Calculo da perda de energia	39
3.4	Raio do traço	43
3.4.1	Infratraço	43
3.4.2	Ultratraço	45
3.5	Densidade de carga	46
3.5.1	Densidade de carga do traço positivo	47
3.5.2	Densidade de carga do traço negativo	47
3.5.3	Dependência das densidades de carga com o tempo	48
3.6	O campo elétrico produzido pelos traços	49
3.7	Carga imagem	50
3.8	Modelo para a formação de íons secundários na superfície	52
3.9	Dinâmica da emissão dos íons	56
4	Previsões do modelo proposto	58
4.1	Dependência do traço com o estado de carga do projétil	59
4.2	Campo elétrico	60
4.3	Trajectoria de íons secundários	63
4.4	Velocidade dos íons	66
5	Montagem e resultados experimentais	72
5.1	O acelerador Van de Graaff	72
5.2	Espectrometria de massa por dessorção iônica	73

5.2.1	Preparação da amostra	75
5.2.2	Tempo-de-vôo	75
5.3	O detector de placas de microcanais	76
5.4	O sistema de aquisição	78
5.5	Determinação das velocidades iniciais	80
5.5.1	Cálculo do tempo-de-vôo	81
5.5.2	Cálculo da velocidade inicial axial	82
5.5.3	Velocidade radial	83
5.5.4	Velocidade “inicial”	83
5.6	Ângulo de emissão	84
5.7	Determinação da energia “inicial”	84
5.8	formas de exibição dos dados experimentais	85
5.9	Resultados experimentais	88
5.9.1	Espectros de massa dos agregados iônicos da água	88
5.9.2	Distribuições de velocidade e de energia iniciais dos íons secundários	88
5.9.3	Distribuição angular	93
6	Comparações entre resultados teóricos e experimentais	96
6.1	Metodologia	96
6.2	Grandezas físicas de controle	98
6.2.1	Potencial eletrostático na superfície do sólido	98
6.2.2	Rendimento de elétrons secundários γ	100
6.2.3	Densidade superficial de íons σ_I	101
6.3	Emissão dos íons H^+ e H^-	104
6.3.1	Rendimentos de desorção em valores absolutos	104
6.3.2	Distribuição de velocidades axiais	104
6.3.3	Distribuição de energia cinética	106
6.4	Distribuição angular do H^+	108
6.5	Emissão dos agregados iônicos da água $(H_2O)_nH^+$	109
6.6	Distribuições de energia	111
7	Conclusões e perspectivas	113
7.1	Análise crítica das previsões do modelo	113
7.2	Comentários finais e perspectivas	116
	Referências Bibliográficas	118
A	Códigos	125
A.1	Solução da equação de movimento pelo algoritmo de Verlet	125
A.2	Estrutura do programa CoboldPC	130
B	Programas utilizados	131
B.1	SRIM	131
B.2	CasP	132
B.3	CoboldPC	133
B.4	FileZilla	135
B.5	Putty	135
C	Agregados iônicos	137
C.1	Agregados iônicos	137

C.1.1	Propriedades dos agregados iônicos	137
C.1.2	Formação de agregados iônicos de água	138
D	Lista de Artigos Publicados no Doutorado	140
D.1	Artigos Relacionados a esta Tese	140
D.2	Outros Artigos publicados	140

Lista de figuras

2.1	Efeitos observados na interação projétil–alvo.	19
2.2	Molécula de água	20
2.3	Estrutura hexagonal do gelo de água.	21
2.4	Diagrama de fase do gelo de água.	21
2.5	Curvas de taxas de perdas de energia em gelo de água de um projétil de nitrogênio em função da sua energia.	24
3.1	Esquema do modelo eletrostático de dessorção.	32
3.2	Curvas do estado de carga de equilíbrio q_{eq} em função da velocidade de íons de nitrogênio.	34
3.3	Curvas do estado de carga média ($\bar{q}(s)$).	35
3.4	Geometria da colisão.	36
3.5	Energia transferida em função do parâmetro de impacto.	38
3.6	Taxa de perda de energia em função da carga.	40
3.7	Transferência de energia do projétil ao elétron do sólido, em função do parâmetro de impacto a esse elétron e para diferentes valores de carga do projétil.	42
3.8	Raio do infratraço (b_{max}) em função da carga no tempo $t = 0$.	42
3.9	Límites hipotéticos do raio do infratraço.	44
3.10	Geometria do modelo de dessorção	49
3.11	Geometria da carga formada no traço e da carga imagem no metal.	51
3.12	Geometria empregada no modelo de ionização da superfície.	53
4.1	a) Taxa de perda de energia eletrônica, b) raio do traço e c) densidade de carga linear em função da profundidade, para um projétil de nitrogênio de 1,7 MeV em gelo.	59
4.2	Contribuição dos traços positivo e negativo na determinação da componente z do campo elétrico em função da espessura do alvo.	61
4.3	Componente z do campo elétrico como função do ângulo de incidência do projétil.	62
4.4	Componente z do campo elétrico em função do tempo.	63
4.5	Trajetórias de íons positivos de massa 181 u no plano XZ em função de várias vidas médias de neutralização de τ^+ , mantendo τ^- fixo.	64
4.6	Trajetórias para íons de massa 19, 217 e 343 u , com $\tau^+ = 4 ps$ e $\tau^- = 10 ps$.	65
4.7	Comportamento da velocidade axial no plano de incidência, para diferentes valores de τ^+ e para $\tau^- = 100 ps$ fixo.	66
4.8	Velocidade axial de íons de massa 19 u para diferentes valores da carga inicial do projétil $q = 0, 3, 7$; para a) $\lambda_q = 10 \text{ \AA}$ e b) $\lambda_q = 3 \text{ \AA}$.	67
4.9	Velocidade axial dos íons de massa: 1, 19 e 343 u em função do parâmetro η_1 e da posição inicial de dessorção.	68
4.10	Influência do parâmetro C_i na velocidade axial dos íons de massa 1, 19 e 343 u .	70

4.11	Dependência da velocidade axial com o tempo para diferentes pares de tempos de neutralização do traço.	71
5.1	Esquema da câmara de análise.	74
5.2	Detector sensível à posição.	77
5.3	Esquema dos sinais no detector sensível à posição.	79
5.4	Esquema do espectrômetro de massa linear.	81
5.5	Geometria da emissão dos íons secundários.	84
5.6	Espectro dos íons dessorvidos de gelo de água.	85
5.7	Histogramas de posição relativos aos eixos X e Y do íon hidrogênio.	86
5.8	Espectro XY do íon hidrogênio.	87
5.9	Espectro de massa dos agregados iônicos positivos da água.	89
5.10	Espectro de massa dos agregados iônicos negativos da água.	89
5.11	Espectros das componentes da velocidade do primeiro agregado iônico da água.	90
5.12	Distribuições de velocidade inicial axial e radial do primeiro agregado da água.	90
5.13	Distribuições de velocidade axial.	91
5.14	Distribuições de energia “axial” e “radial” inicial do primeiro agregado da água.	92
5.15	Distribuições de energia axial.	92
5.16	Distribuições de energia total inicial.	93
5.17	Definição das coordenadas da projeção ortográfica.	94
5.18	Projeções ortográficas de agregados de água.	94
5.19	Ângulo de emissão (θ) dos íons dessorvidos do gelo.	95
6.1	A superfície reticulada foi considerada para o cálculo, onde uma trajetória se inicia a cada célula de $0,5 \text{ \AA}$ de lado.	97
6.2	Potencial eletrostático $V(x,y)$ na superfície.	99
6.3	Rendimento de elétrons secundários em função do ângulo de impacto do projétil, θ_p .	101
6.4	Seção de choque do H^+ .	102
6.5	Seção de choque do H^- .	102
6.6	Comparação das seções de choque de produção de H^- , H^+ e H_2O^+ por impacto de e^- em H_2O .	103
6.7	Densidades superficiais, ao longo do eixo x , de formação dos íons H^+ , H^- e $(H_2O)^+$.	103
6.8	Distribuições de velocidade axial comparadas entre o modelo e os dados experimentais. a) para H^+ , e b) H^- .	105
6.9	Velocidade axial final calculada por SEID para íons H^+ dessorvidos, em função de seu sítio de emissão.	106
6.10	Distribuições de energia total comparadas: experimental e simulada.	107
6.11	Distribuição angular experimental e teórica para H^+ .	108
6.12	Densidades de íons ao longo do eixo x .	109
6.13	Densidades de velocidades axiais de íons $(H_2O)_nH^+$.	110
6.14	Distribuições de velocidade axial.	111
6.15	Distribuições de energia.	112
A.1	Diagrama de blocos do programa principal	127

A.2	Subrotina Força.	128
A.3	Subrotina traço positivo.	129
A.4	Subrotina traço negativo.	129
A.5	Diagrama de blocos que o ColboldPC utiliza.	130
B.1	CasP	132
B.2	Janela do CoboldPC	134
B.3	FileZilla	135

Lista de tabelas

2.1	Características das diferentes estruturas cristalinas do gelo.	22
2.2	Propriedades da estrutura cristalina Ih do gelo de água.	22
3.1	Valores da componente normal do campo elétrico do traço e da carga imagem.	51
5.1	Voltagens de polarização do detector sensível à posição.	78
6.1	Rendimentos de dessorção teóricos e experimentais.	104