



INSTITUTO DE
TECNOLOGIA

PROF. JORGE A. SABATO

UNIVERSIDAD NACIONAL
DE GENERAL SAN MARTIN
COMISION NACIONAL
DE ENERGIA ATOMICA

MAESTRIA EN
CIENCIA Y
TECNOLOGIA
DE MATERIALES

APLICACIÓN DEL MODELO DE LA GOTA LÍQUIDA A IRRADIACIONES CON IONES PESADOS

Hernán De Cicco

UNIVERSIDAD NACIONAL DE GENERAL SAN MARTIN
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
"Prof. Jorge A. Sabato"

Aplicación del Modelo de la Gota líquida a irradiaciones
con iones pesados *

por Lic. Hernán De Cicco

Director

Dr. Martín Alurralde

* Tesis para optar al título de *Magister en Ciencia y Tecnología de Materiales*

República Argentina

1998

Resumen

Los diámetros de traza teóricos, para iones de baja energía en materiales orgánicos, predichos por los modelos basados en la dosis depositada por electrones secundarios, son remarcablemente menores que los obtenidos experimentalmente por medio del método de réplicas, a nivel submicroscópico. Se pensó entonces que esta discrepancia entre datos teóricos y experimentales podría estar asociada con fenómenos de explosión térmica.

El material investigado es un policarbonato empleado en Radiobiología conocido comercialmente bajo el nombre de Makrofol-E o Lexan, y las energías específicas estudiadas pertenecen a la gama de 1.4 a 100 keV/uma.

Para evaluar el problema desde otro punto de vista se aplicó el "Modelo de la Gota Líquida" extendido a aislantes. Tanto la energía depositada en la red como en los electrones, por un ion particular, fueron consideradas; luego se estudió la evolución del pico térmico.

Se adoptó una temperatura crítica de 350 K a partir de la cual se ocasiona un daño significativo en el material, y posteriormente a la evolución térmica el radio de traza es deducido para el ion bajo consideración.

El modelo admite la formación de trazas para iones en una gama de energías considerada prohibida por la literatura. Sin embargo después de la aplicación del modelo propuesto en el presente trabajo existen discrepancias entre los valores predichos teóricamente y los obtenidos experimentalmente, lo cual sugiere la necesidad de futuros ajustes del modelo.

Indice

I Introducción.	4
II Daño por Radiación en Aislantes	7
II.1 Modelo de explosión coulombiana.	8
II.2 Modelo del pico de desplazamiento.	10
II.3 Modelo de pico térmico.	11
III Simulación de la Interacción Ion-Materia	17
III.1 Técnicas de simulación.	17
III.2 Modelo de la gota líquida.	26
III.3 Extensión del modelo al caso de aislantes.	31
IV Discusión y Conclusiones	47
Apéndice: Interacción Ion-Materia.	53
A.1 Colisiones.	53
A.2 Potencial de interacción.	54
A.3 Frenamiento del ion.	56
A.4 Proceso de pérdida de energía.	57
A.5 Frenamiento nuclear.	58
A.6 Frenamiento electrónico.	60
Referencias	66

Introducción

Los estudios sobre el daño por radiación en aislantes se basan fundamentalmente en los modelos de explosión coulombiana^{6,7} y de pico térmico^{10-19,40,42}. El primero aún no se halla totalmente desarrollado debido a la falta de acuerdo con algunos datos experimentales y consiste en una serie de criterios que determinan cuando un determinado tipo de material puede o no registrar trazas.

El segundo, basado en ecuaciones de transporte de calor, no resulta predictivo a bajas energías, aunque se ha mostrado exitoso a altas energías. Por otro lado se cuenta con muy pocos datos experimentales en energías bajas.

Otros modelos basados en la dosis depositada por los electrones^{7,23-28} tampoco resultan predictivos a baja energía. Entre otras cosas presentan umbrales para el registro de trazas que se han visto superados por la evidencia experimental^{29,30,31}.

El objetivo de este trabajo es formular un modelo de pico térmico que resulte predictivo a bajas energías y aplicarlo, concretamente, a un policarbonato de amplio interés en radiobiología como es el Makrofol-E o Lexan, para el cual se cuenta con datos experimentales a nivel submicroscópico obtenidos en la CNEA²⁹.

El modelo formulado se basa en una extensión del "Modelo de la Gota Líquida", originalmente concebido para el estudio del daño por radiación en metales, y que ha mostrado resultados similares a los predichos por Dinámica

Molecular⁵.

Un material bajo irradiación puede sufrir una serie de cambios, algunos de ellos de naturaleza irreversible, como ser el desorden o amorfización ocasionado por un calentamiento local debido a la transferencia de la energía de un ion conforme atraviesa el material. El fuerte calentamiento local puede inducir incluso la fusión del material cerca del camino del proyectil, tal como establecen resultados de Dinámica Molecular^{4,35-38}.

Luego para este tipo de fenómeno, es importante investigar el proceso a través del cual un ion transfiere su energía conforme penetra en el material.

Es bien conocido que cuando un ion pesado penetra en un material, una gran parte de su energía es transferida a los electrones (dependiendo fundamentalmente de su energía), mientras que una pequeña porción es acarreada por los núcleos. Sin embargo esta gran energía depositada en los electrones se transfiere a la red lentamente, debido a la pequeña masa de los electrones. Luego, el proceso de calentamiento local y en determinadas circunstancias, la fusión del material, son debidas principalmente a la escasa energía depositada directamente en los núcleos⁴³.

Lo anterior es válido en materiales de alta conductividad electrónica, es decir metales, donde, si bien la energía depositada en los electrones es alta, la misma es transferida con facilidad y no es relevante en efectos de tipo térmico. El Modelo de la Gota Líquida⁵ fue desarrollado para explicar el desorden de origen térmico ocasionado en metales bajo irradiación, con lo cual sólo toma en cuenta la fracción de la energía del ion depositada en los núcleos.

La extensión consiste en tomar en cuenta la energía depositada en el sistema electrónico, que junto con la nuclear constituyen toda la energía de-

positada en el material blanco por un ion. Posteriormente se difunde esta energía como calor, dejando una zona afectada térmicamente, que representa material dañado si la temperatura supera cierto valor crítico dado por las características del material blanco.

En el capítulo II se describen los principales modelos sobre daño por radiación en aislantes: modelo de explosión coulombiana, modelo de pico térmico y modelos basados en la dosis de energía depositada por los electrones.

En el capítulo III se explica muy someramente el cálculo de Dinámica Molecular, se pone un mayor énfasis en los cálculos de daño por radiación basados en la aproximación de colisiones binarias, y en especial se describe el código Marlowe empleado en este trabajo. Se describe el modelo de la gota líquida y se realiza su extensión al estudio de materiales aislantes. Algunas cascadas sobre Lexan se presentan para ejemplificar los resultados que se pueden obtener.

En el capítulo IV se presentan los resultados de todas la irradiaciones simuladas y se los compara con resultados experimentales y con los debidos a la aplicación de otros modelos.

Finalmente se agrega un Apéndice donde se tratan nociones como poder de frenamiento nuclear y electrónico, potenciales de interacción, cinemática de colisiones binarias, etc, empleadas a lo largo del presente informe.

II Daño por radiación en aislantes

Cuando una partícula pesada atraviesa un material aislante, suele dejar una zona dañada a lo largo de su camino que se denomina traza. Dicha zona dañada o traza puede ponerse en evidencia por medio de distintas técnicas, lo cual lleva a hablar de traza latente a la que no es observable, para diferenciarla de la que sí lo es por medio de alguna técnica de amplificación.

Uno de los primeros métodos empleados para visualizar trazas, fue la utilización de microscopía electrónica de muy alta amplificación^{6,7,8}. Las trazas se hacen visibles debido a la diferencia de contraste entre las zonas dañada y virgen del material. La técnica experimental basada en la elaboración de muestras delgadas resulta difícil y existen materiales que no se pueden investigar con esta técnica.

Otras técnicas, por ejemplo las basadas en ataque químico, que logran amplificar la zona dañada, son aplicables a la mayoría de los materiales.

En los trabajos realizados^{6,7,8} se observa formación de trazas sólo en materiales aislantes y excepcionalmente en malos semiconductores; también se observa la alta estabilidad de las mismas.

Por otra parte, la formación de trazas se mostró^{6,7} relacionada con la pérdida de energía, o poder de frenamiento que experimenta el ion al penetrar en el sólido, por lo cual debía estar relacionada con la energía del ion, su masa y el material irradiado⁷. En principio esta dependencia parece razonable ya que la energía perdida por el ion debe ser transferida al material y entonces a mayor pérdida de energía, es decir mayor poder de frenamiento, debiera ser

mayor el daño ocasionado al material.

La evidencia muestra que⁸ fotones, electrones y neutrones no dejan trazas; por lo tanto la formación de trazas debe ser una propiedad exclusiva de protones en adelante, y además a mayor poder de frenamiento debe esperarse mayor daño.

Actualmente no existe ninguna teoría satisfactoria que dé cuenta de los mecanismos que dan origen a la formación de trazas. Los modelos con que se cuenta^{6,7} hablan de la formación de picos térmicos, picos de desplazamiento, explosión coulombiana. Para materiales con estructura cristalina el modelo que más se ajusta, en principio, a los resultados experimentales es el de explosión coulombiana⁷.

II.1 Modelo de explosión coulombiana

En este simple modelo se considera que la partícula cargada, al penetrar en el material, deja un pequeño cilindro de unos pocos Å de diámetro cargado positivamente debido a que los electrones, de menor masa, son dispersados a grandes distancias dentro del material. Si el material es un buen conductor, dichos electrones tratarán de volver a la zona central, de potencial positivo, en un tiempo suficientemente rápido como para que la intensa repulsión coulombiana entre los átomos ionizados no actúe significativamente.

Por el contrario, si el material es un aislante, este tiempo de recombinación puede ser importante como para dejar que la intensa repulsión coulombiana actúe, con lo cual los núcleos positivos podrán salir de su posición de equilibrio en la red, dejando entonces una zona central (*core*) dañada.

Este modelo, como se observa, daría cuenta del comportamiento diferente, en cuanto a la formación de trazas, entre aisladores y conductores.

Fleischer *et al.*⁷ presentan cuatro criterios para que la explosión coulombiana dé lugar a trazas:

El primero establece que las fuerzas coulombianas de repulsión entre los iones positivos deben ser mayores que las fuerzas de unión de la red. Esto significa que las fuerzas electrostáticas locales deben superar a la resistencia mecánica local.

Matemáticamente el criterio puede formularse de la siguiente manera:

$$n^2 > \frac{Y\epsilon a_0^4}{10e^2}, \quad (II, 1)$$

donde n es la cantidad de electrones liberados, ϵ es la constante dieléctrica del material, a_0 es el parámetro de red e Y el módulo de Young del material. Se observa que se formarán trazas más fácilmente en materiales de baja resistencia mecánica, baja constante dieléctrica y bajo espaciamiento interatómico.

El segundo criterio establece que la formación de la traza debe ser un proceso continuo; luego, debe haber al menos una ionización por cada plano interatómico atravesado, es decir $n > 1$.

El tercer criterio dice que la cantidad de electrones disponibles en la zona cercana al ion positivo no debe superar cierto valor ya que en caso contrario algunos de ellos pueden acudir rápidamente en reemplazo de los arrancados durante la ionización, impidiendo la formación de una zona de carga positiva durante el tiempo suficiente como para que pueda actuar la explosión coulombiana. Como el tiempo necesario para que los iones positivos salgan de su posición de equilibrio es del orden de los 10^{-13} segundos, los electrones

cercanos no deben llegar en un tiempo menor. Si la densidad de electrones libres es n_a , las trazas no se formarán salvo que:

$$n_a < \frac{en}{\pi a_0 \mu_n k T t}, \quad (II, 2)$$

siendo k , μ_n y t la constante de Boltzmann, la movilidad electrónica y el tiempo, respectivamente.

Esto implica que no se formarán trazas en metales salvo que su densidad electrónica sea menor que $10^{20}/\text{cm}^3$.

El cuarto y último criterio se refiere a la movilidad de los huecos. En la zona ionizada existe una alta densidad de huecos que pueden moverse e impedir la formación de trazas. Para que no se produzcan trazas la movilidad de los huecos μ_p debe ser mayor que $a_0 e / t k T$. Luego, a temperatura ambiente no se producirán trazas en materiales cuya movilidad de huecos sea superior a $0.2 \text{ cm}^2/\text{V}.\text{seg}$, con lo cual resulta que los metales y la mayoría de los semiconductores no pueden presentar trazas.

II.2 Modelo del pico de desplazamiento

El modelo del pico de desplazamiento⁷ explica la formación de trazas producidas por iones pesados a baja energía, muy a la izquierda del pico de Bragg, es decir, en la gama de energías donde resulta predominante el frenamiento de tipo elástico con desplazamiento de átomos debido a una importante sección eficaz de colisión.

A energías mayores comienza a dominar el frenamiento inelástico, con poco daño colisional e importante ionización primaria donde resulta más adecuado

el modelo de explosión coulombiana. Se observa que la aplicabilidad de estos modelos depende de la gama de energías en estudio.

II.3 Modelo de pico térmico

El modelo de pico térmico postula la formación de una zona caliente⁴⁰ en la vecindad del camino del ion, con temperaturas que pueden superar la temperatura de fusión del material. La energía depositada por el ion es disipada en forma de calor, dependiendo el perfil de temperaturas de características del material. En aislantes, la baja conductividad térmica implica un intenso pico térmico cerca del camino del ion con la formación de trazas debido a una transformación de fase.

Toulemonde, Dufour *et al.*¹⁰⁻¹⁹, usando el modelo de pico térmico, pretenden dar cuenta de las trazas observadas en silicio, germanio y otros semiconductores, como también en aislantes⁴². Consideran que el tiempo en el cual se produce el incremento de temperatura, 10^{-13} - 10^{-12} s, puede recocer los defectos producidos durante la explosión coulombiana que se da entre 10^{-14} - 10^{-13} s.

Su estudio se lleva a cabo para energías altas, de tal manera que se tienen sólo excitaciones electrónicas, sin pico de desplazamiento, es decir en el régimen de poder de frenamiento electrónico (*electronic stopping power*). La energía del ion, por lo tanto, es depositada en los electrones del blanco y luego esta energía es transferida a la red a través del acoplamiento electrón-fonón, que da una medida de la eficiencia con la cual la energía del sistema de electrones puede ser transferida a la red.

Matemáticamente el proceso se describe mediante dos ecuaciones diferenciales acopladas, que representan la difusión del calor en cada subsistema,

electrones y red, considerados como medios continuos, siendo g la constante de acoplamiento entre ambos subsistemas, y C_e , K_e y C_l , K_l , son las capacidades caloríficas y conductividades térmicas en electrones y red respectivamente. En coordenadas cilíndricas, siendo z la dirección del ion, las ecuaciones para las temperaturas T_e y T_l de electrones y red son:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T_l) + A(r, t) \quad (II, 3)$$

$$C_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial r} \right] + g(T_e - T_l). \quad (II, 4)$$

$A(r, t)$ es la energía depositada en el sistema electrónico en el proceso de frenado del ion incidente en el material. Inicialmente la parte espacial (que depende de la energía del haz) fue determinada por Waligórski *et al.*²³. Se asume que el tiempo de relajación τ en el cual se deposita la energía es del orden de los 10^{-15} s, tiempo en el cual todos los electrones que intervienen en el proceso alcanzan el "reposo". Además se considera que la parte temporal es un decaimiento exponencial con lo que $A(r, t) = AD(r)e^{-t/\tau}/\tau$, donde A se obtiene de la condición de normalización al poder de frenamiento electrónico, por conservación de la energía:

$$\int_0^\infty \int_0^\infty A(r, t) 2\pi r dr dt = S_e \quad (II, 5)$$

Tomando en cuenta, además, que la temperatura es del orden de la temperatura de Fermi, los electrones en la banda de conducción del aislante pueden asemejarse a los electrones de conducción de un metal¹⁰, y entonces resultan

constantes $C_e = 1Jcm^{-3}K^{-1}$ y la difusividad electrónica $D_e = 2cm^2s^{-1}$, definida como $D_e = K_e/C_e$.

Por otra parte, en el modelo se relaciona la constante de acoplamiento g con el tiempo medio de interacción electrón-fonón τ_a a través de la relación $\tau_a = C_e/g$ y con el camino medio de difusión de la energía depositada $\lambda^2 = D_e\tau_a$, que funciona como parámetro libre del modelo, típicamente del orden del nanómetro. El sistema de ecuaciones es resuelto numéricamente¹⁰, tomando en cuenta las transiciones de fase sólido-líquido, obteniéndose una dependencia entre el radio efectivo de la traza y el poder de frenamiento mostrado en la figura (II.1).

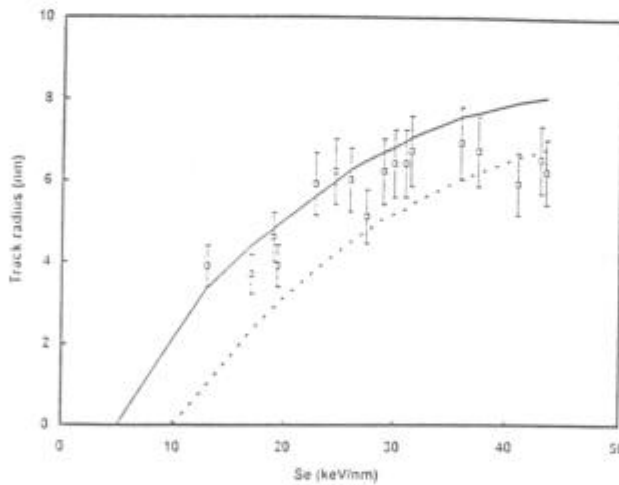


Fig II.1 Radio efectivo de traza R_e vs S_e para energías específicas de 0.2 MeV/uma y 5 MeV/uma. La curva sólida representa el ajuste con $\lambda = 6nm$, mientras que la línea punteada corresponde a $\lambda = 6.6nm$. Ref.17

Se observa un umbral de poder de frenamiento debajo del cual no es de esperar ninguna muestra de daño en el material irradiado. Si se tiene en

mente el aspecto de la curva de poder de frenamiento electrónico en función de la energía, Fig(A.1), esto implica un límite superior de energía, superado el cual no se obtendrán trazas.

Szenes^{20,21,22} aplica un modelo de pico térmico a YIG, cuarzo y mica, en el régimen de poder de frenamiento electrónico. Los experimentos reportados indican la dependencia con el poder de frenamiento electrónico S_e , como también sobre la velocidad del ion, para un mismo valor de S_e .

Su modelo se basa en dos hipótesis: la distribución radial del incremento de temperatura en el sistema fonónico es gaussiana con ancho inicial λ , y el radio R_e de la traza es igual al radio del cilindro de material fundido en el pico térmico.

Con estas hipótesis llega a:

$$R_e^2 = \lambda^2 \ln \left[\frac{gS_e}{\rho\pi C_l \lambda^2 T_M} \right], \quad 2.7S_{et} \geq S_e \geq S_{et} \quad (II, 6)$$

$$R_e^2 = \frac{gS_e}{2.7C_l \rho\pi T_M}, \quad S_e \geq 2.7S_{et} \quad (II, 7)$$

$$S_{et} = \rho\pi C_l \lambda^2 T_M / g, \quad (II, 8)$$

donde gS_e es la fracción de energía del sistema electrónico depositada en la red, y ρ y T_M son la densidad y la diferencia entre la temperatura de fusión y la temperatura inicial del material, respectivamente. Su modelo también presenta un umbral S_{et} , debajo del cual no es de esperar la presencia de daño. El ancho inicial de la distribución de energía se encuentra en el orden del nanómetro y es igual, lo que es algo notable, para todos los materiales, mientras que la constante de acoplamiento g (que en este modelo es fenomenológica

y adimensional) es la que impone la dependencia del daño con la velocidad del ion. Se observa un mayor acoplamiento en irradiaciones a baja velocidad, para el mismo S_e . Esto establece que la formación de trazas se ve favorecida en irradiaciones con baja velocidad de ion, ya que se tiene una mayor deposición de energía.

Resulta razonable esperar que la distribución de energía electrónica sea más ancha a mayores velocidades de ion. Luego se tiene una reducción en la densidad de energía y entonces un decrecimiento del pico de temperatura, con una disminución del daño. En el modelo de Szenes esto significa incrementar la velocidad del ion, manteniendo S_e y g (la cantidad de energía depositada) constantes y aumentar el ancho inicial λ de la energía depositada.

Para los materiales orgánicos la situación es diferente. En polímeros se requiere menos energía para romper uniones químicas que para ionizar los átomos, con lo que a lo largo del camino del ion se producirá una alta densidad de uniones químicas rotas, disminución del peso molecular y, por lo tanto, aumento de la reactividad química⁸.

Kobetich y Katz²⁴, y Waligorsky *et al.*²³ (para agua), desarrollaron una fórmula semiempírica que da cuenta de la dosis observada experimentalmente y de resultados de simulación numérica realizados por Hamm *et al.*⁴⁷, en la gama de energías de 0.1 a 1000 MeV/uma.

Los autores citados dan cuenta de la formación de trazas a través del concepto de energía depositada por los electrones, o dosis, a cierta distancia del camino del ion. Si dicha dosis supera determinado valor umbral se espera obtener registro de traza.

En su esquema se considera que los electrones son eyectados en forma normal

al camino del ion, se tiene en cuenta ionización primaria y excitación cerca del camino del ion y una relación potencial entre el rango de los electrones, T y la energía, E , $T = kE^\alpha$.

Si $D(r)$ es la dosis depositada en un cilindro de radio r y espesor dr , y se define $\beta = \nu/c$, y N la densidad de electrones de masa m , los autores citados llegan a una relación del tipo:

$$D(r) = \frac{Ne^4 Z^2}{\alpha mc^2 \beta^2 r} \left[\frac{\left(1 - \frac{r+\delta}{T+\delta}\right)^{1/\alpha}}{r + \delta} \right]; \quad (II, 9)$$

δ es el rango de electrones con energía de ionización I , considerada 10eV, T es el rango máximo de los electrones y α toma los valores 1.079 para energías de electrón menores que 1keV y 1.667 para energías mayores.

III Simulación de la interacción ion-materia

III.1 Técnicas de simulación

Existen básicamente dos técnicas para simular la interacción entre iones y materia: dinámica molecular y la aproximación de colisiones binarias.

En dinámica molecular se siguen la evolución tanto temporal como espacial de los átomos que entran en la cascada de colisiones.

El método consiste en integrar el sistema de ecuaciones acopladas que describen el movimiento:

$$\frac{d^2 \mathbf{r}_i(t)}{dt^2} = -\frac{1}{m} \sum \nabla_i U(r), \quad (III, 1)$$

con $\mathbf{r}_i(t)$ la posición del átomo i -ésimo y $U(r)$ el potencial.

Para daño por radiación las condiciones de contorno suelen ser baño térmico a presión constante. La técnica es tan buena como el potencial de interacción elegido.

La dinámica molecular ha sido empleada para explicar toda una variedad de fenómenos dentro de una cascada, como ser la evolución de defectos, procesos de recombinación, formación de una fase cuasi-líquida en el centro de la cascada y estructura final de defectos^{4,35-38}.

Los cálculos de dinámica molecular llevados a cabo por Diaz de la Rubia revelan la existencia de tres fases en la evolución de una cascada, tal como se muestra en la fig(III.1).

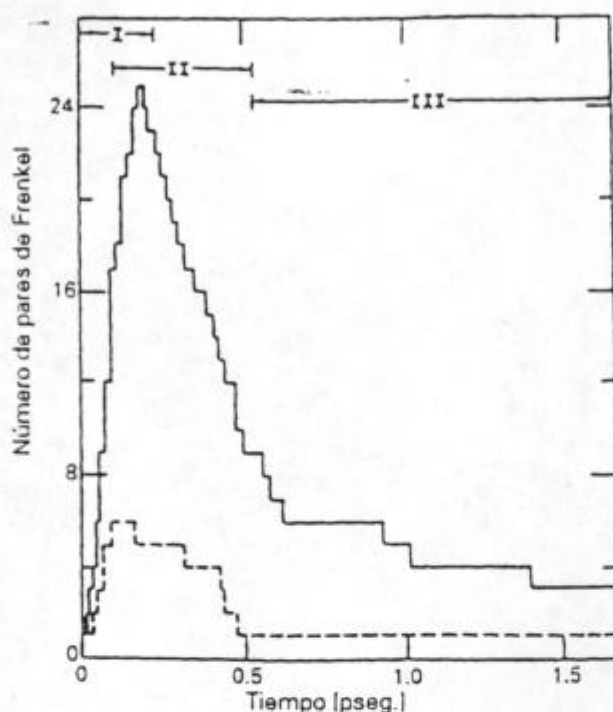


Fig. III.1 Evolución temporal del número de defectos para dos energías distintas , 600 eV (línea punteada) y 2.5 keV (línea gruesa) en W. Se observan las tres fases: Colisional (I), Relajación (II) y Enfriamiento (III).Ref.5.

La primera fase corresponde a la etapa colisional (I) de la cascada, de 1 a 2×10^{-13} seg de duración. La trayectoria de los átomos es balística y sus energías superan las decenas de eV. La vida media de esta fase refleja el tiempo en el cual todos los átomos involucrados en la cascada alcanzan una energía menor que la necesaria para desplazar átomos. Hacia el final de esta etapa la cantidad de pares de Frenkel coincide con los resultados obtenidos a partir del modelo de Kinchin, Pease y Norgett². Puede hablarse de un equilibrio térmico local y comienzo del pico térmico.

Luego se tiene una fase de relajación (II), del orden de los 0.5 picosegundos, en la cual la gran cantidad de defectos producidos durante la fase colisional

relaja, recombinándose espontáneamente un 64% de los pares de Frenkel. Finalmente, en el orden del picosegundo, la cascada se enfría (III) hasta alcanzar el equilibrio térmico con la matriz.

Recientemente, Diaz de la Rubia *et al.*^{4,35-38}, encontraron que la función de correlación de pares $g(r)$ en Ni y Cu resulta difusa y corresponde a la de esos materiales en fase líquida. Después de unos picosegundos, la función de correlación vuelve a representar un material en estado sólido. El mismo resultado se concluye si se analiza el perfil de temperaturas, siendo éstas superiores a la temperatura de fusión del material en el centro de la cascada. Como desventaja de este tipo de cálculos puede señalarse el considerable tiempo de cómputo requerido (3 meses para una cascada en Cu de 5 KeV), y a mayor energía del ion se necesita mayor tiempo de cómputo.

Una mayor eficiencia de cómputo se tiene en los códigos basados en la aproximación de colisiones binarias, si bien se obtiene a expensas de un nivel de detalle mucho menor.

Entre los principales códigos que emplean esta técnica se tienen el TRIM (*Transport of Ions in Matter*), desarrollado por Biersack, Haggmark, Ziegler *et al.*³⁹(1985), que suele ser muy empleado para cálculos de rango y distribución de daño en materiales, sin tomar en cuenta la cristalinidad del blanco. La influencia de la cristalinidad es tomada en cuenta por el código Marlowe, desarrollado por Robinson y Torrens³(1974).

Ambos códigos utilizan la aproximación de colisiones binarias. En este esquema las partículas se mueven siguiendo trayectorias rectilíneas, que son las asíntotas de sus trayectorias verdaderas en el sistema del laboratorio L . La colisión se considera compuesta de una parte elástica y de una parte de

excitación electrónica, es decir inelástica. Esta aproximación resulta razonable dado que la pequeña masa del electrón implica que este se lleve poco momento, y además las pérdidas inelásticas por colisión son pequeñas.

La parte elástica es bien representada mediante un tratamiento clásico.

En la figura (III.2) se muestran las trayectorias de dos partículas que interactúan en un campo de fuerzas central.

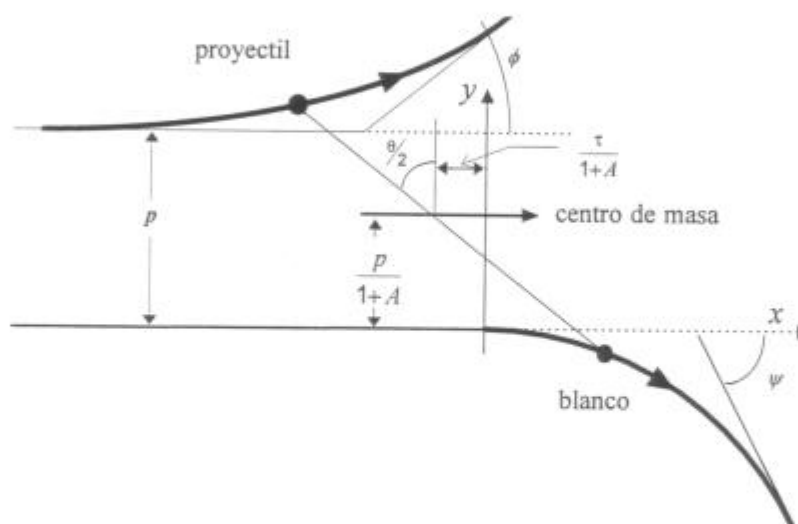


Fig.(III.2). Esquema de una colisión binaria.

Las ecuaciones de movimiento que siguen estas trayectorias, resueltas en la forma usual^{1,3}, se encuentran en el apéndice A.1, dan para el ángulo de dispersión en el centro de masa:

$$\theta = \pi - 2p \int_{r_0}^{\infty} dr \left[r^2 f(r) \right]^{-1} \quad (III, 2)$$

y para la integral temporal:

$$\tau = (r_0^2 - p^2)^{1/2} - \int_{r_0}^{\infty} dr \left[f(r)^{-1} - \left(1 - \frac{p^2}{r^2} \right)^{-1/2} \right], \quad (III, 3)$$

donde $f(r)$ viene dada por la ecuación (A,3), p es el parámetro de impacto, r es la distancia relativa, y r_0 el ápside de la colisión.

La energía relativa en el baricentro viene dada por:

$$E_r = \frac{AE_0}{(1 + A)}, \quad (III, 4)$$

donde E_0 es la energía cinética del proyectil y A es la razón entre la masa del átomo blanco y proyectil. Las integrales (III,2) y (III,3), en Marlowe, se llevan a cuadratura por el método de Gauss-Mehler.

La conversión al sistema del laboratorio sigue el procedimiento estándar:

$$tg\phi = Afsen\theta/(1 + Afcos\theta) \quad (III, 5)$$

$$tg\psi = fsen\theta/(1 - fcos\theta), \quad (III, 6)$$

donde $f = (1 - Q/E_r)^{1/2}$ y Q es la pérdida de energía por excitación electrónica.

La energía transferida al átomo blanco es:

$$T = \left[fsen^2\frac{1}{2}\theta + \frac{1}{4}(1 - f)^2 \right] T_m, \quad (III, 7)$$

siendo la máxima energía transferida

$$T_m = 4E_r/(1 + A). \quad (III, 8)$$

La energía del proyectil tras la colisión es:

$$E_1 = E_0 - T - Q \quad (III, 9)$$

En Marlowe las partículas se mueven en trayectorias rectilíneas entre colisiones.

En el programa las pérdidas inelásticas pueden ser omitidas del cálculo, es decir $Q = 0$ y $f = 1$, pueden ser incluidas en las pérdidas de energía y excluidas de la cinemática, $Q \neq 0$ y $f = 1$, o bien incluidas tanto en la energía como en la cinemática.

El potencial que se utiliza, debido a que la distancia entre los átomos interactuantes puede variar entre décimas de Å a distancias del orden del parámetro de red, es uno coulombiano apantallado. Se emplea por defecto el potencial de Thomas-Fermi (A,9), pero incluye la posibilidad de introducir otro potencial de interacción.

El cálculo de pérdidas inelásticas se realiza aplicando una versión corregida por Robinson al modelo de Firsov (A,23) y Lindhard (A,25). La corrección se basa en el uso del ápside de la colisión en lugar del parámetro de impacto. El límite superior de validez del modelo viene dado por la energía $\frac{1}{2}\nu_B^2 Z_1^{4/3}$, donde ν_B es la velocidad de Bohr. Se ve que la corrección de Robinson subestima las pérdidas respecto de las de Firsov.

Si bien el modelo tiene un límite superior de validez, puede observarse³ que los modelos de Firsov, Robinson y Lindhard resultan equivalentes a mayores energías.

La principal ventaja de la aproximación de colisiones binarias es que requiere sólo una pequeña cantidad de información para describir el blanco.

La desventaja es que sólo considera la parte colisional, omitiendo las fases de pico térmico y relajación hacia el equilibrio.

El esquema usado en el código Marlowe se basa en la simetría translacional del cristal. Construye una lista de las posiciones de varios átomos en el cristal, usando como origen de coordenadas uno de los sitios de la red, y para conocer la posición de cualquier átomo, se usa esta lista junto con el sitio de la red más cercano al átomo en movimiento. Además los sitios pueden ser de diferente naturaleza química.

El procedimiento para desarrollar la cascada se muestra en la figura (III.3).

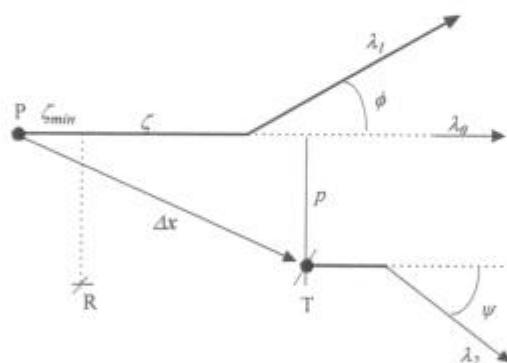


Fig.III.3 Procedimiento usado por Marlowe para el desarrollo de una cascada.

Se tiene un proyectil P cerca de un sitio de red R, moviéndose en la dirección λ_0 . Considerando la lista de vecinos de R, se genera la posición del sitio T. Puede suceder que exista un átomo más favorecido para colisionar, en virtud de lo cual se compara la distancia al punto de deflexión con cierta distancia mínima ζ_{min} . Si supera dicha distancia mínima ($\zeta > \zeta_{min}$) la colisión con el

átomo en T es considerada. Además se compara el parámetro de impacto p con un valor preestablecido, que puede modificarse, con el fin de no considerar colisiones con átomos muy lejanos respecto de esta distancia. Tras la colisión, se calcula la nueva posición y dirección de P y del átomo blanco. A partir de aquí el sitio T es reemplazado por R como origen del cristal.

El código también permite considerar colisiones simultáneas³, algo de fundamental importancia en los procesos de *channeling*, y colisiones de reemplazo. Tiene incluido un modelo simple de vibraciones térmicas para simular la temperatura de la red. La vibración de la red es lenta comparada con el tiempo de desarrollo de la cascada, y por lo tanto el código considera que los átomos están quietos, separados aleatoriamente de su posición de equilibrio. La distribución de posiciones es Gaussiana en los tres ejes cartesianos y el desplazamiento cuadrático medio se obtiene del modelo de Debye. Los únicos parámetros libres son la temperatura de la red y la temperatura de Debye. El material blanco puede tener superficies paralelas en cualquier dirección y de cualquier espesor. Además puede presentar sitios vacantes, como también pueden considerarse la presencia de impurezas u otro tipo de defectos, como ser intersticiales desde el comienzo o, evidentemente, durante el desarrollo de la cascada.

El desarrollo de la cascada en el tiempo es simulado siguiendo a la partícula más rápida, procedimiento que es alterado sólo cuando surge una secuencia de colisiones de reemplazo.

El átomo primario que inicia la cascada puede tener propiedades asignadas, o ser estas variables estocásticas, por ejemplo el sitio del primer impacto surge al azar, dentro de todos los sitios posibles.

En cuanto a las condiciones bajo las cuales un átomo resulta permanentemente desplazado de su posición en la red, el modelo de colisiones binarias no puede dar cuenta de la estabilidad de defectos e interacciones. El programa da mucha flexibilidad para definir este modelo. Si un proyectil emerge después de una colisión con una energía E_1 luego de haber transferido al blanco una energía T , éste será desplazado si su energía excede cierta energía umbral de desplazamiento E_d . Simultáneamente puede requerirse que la energía E_d sea mayor que cierta energía de ligadura E_b . Luego, si $T > E_d$, el átomo se agrega a la cascada y se lo sigue hasta que su energía es menor que cierta energía de corte E_c ; el objetivo es ahorrar tiempo de cómputo, y simular que una partícula debe disipar cierta energía cinética antes de estabilizarse en su posición de equilibrio.

Se tiene una colisión de reemplazo si la energía transferida no supera el umbral E_d .

Cuando todas las partículas tienen energía menor que E_c culmina la cascada y se construye una función de distribución de la distancia que separa átomos y vacancias. Cada vacancia se aparea con el intersticial más cercano, y si la distancia es menor que cierto valor r_v , llamado radio de captura, el defecto es eliminado, estableciéndose con esto una simulación del proceso de recombinación.

Se observa que si $r_v = E_b = 0$ y $E_d = E_c$, el modelo descrito corresponde al modelo de Kinchin y Pease.

Entre las limitaciones del modelo de colisiones binarias debe señalarse la aproximación de las trayectorias por sus asíntotas; esto modifica seriamente el ápsis de la colisión a alta energía y en colisiones con parámetro de impacto

nulo³.

Para bajas energías, a velocidades del orden de la del sonido en el material, ya no se puede hablar de interacción de a pares, pues el proyectil interactúa con el sólido como un todo.

III.2 Modelo de la Gota Líquida

Los procesos relevantes en la producción y evolución del daño por radiación pueden estudiarse correctamente a partir de la Dinámica Molecular; sin embargo se tiene la limitación computacional señalada anteriormente.

Uno de los más importantes resultados de la Dinámica Molecular, es la predicción que el centro de la cascada se comportaría como líquido bajo ciertas condiciones. Además predice que la contribución más importante al mezclado iónico es la difusión en la fase líquida³⁵⁻³⁸.

El modelo de la gota líquida es un modelo semiempírico basado en resultados de dinámica molecular⁵, con la ventaja de no requerir tan elevados rendimientos computacionales como Dinámica Molecular, lo cual permite estudiar daño por radiación a energías de hasta 1 MeV, y mayores si fuera necesario.

El modelo, de la misma manera que los modelos del pico térmico, evalúa la evolución de cascadas mediante ecuaciones de transporte de calor, pero a diferencia de aquéllos, en este caso se tiene un más detallado conocimiento de la distribución de la energía depositada.

Los modelos de pico térmico consideraban una distribución gaussiana de la energía transferida a los electrones por el ion, o bien la distribución de Waligorsky²³.

El modelo de la gota líquida acopla un código basado en la aproximación de colisiones binarias a una versión simplificada de la ecuación del calor, lo que da una descripción de la evolución de la cascada válida en diferentes materiales y en un amplio rango de energías, teniendo en cuenta en forma más detallada los aspectos geométricos de la distribución de la energía.

El código de colisiones binarias empleado es el Marlowe-12⁹, pero se puede usar cualquier código en el que se pueda conocer el detalle de las posiciones y energías finales de todos los átomos que entraron a la cascada. Para relacionar esta distribución de energía con la verdadera densidad de energía depositada se considera que la energía depositada a lo largo de su camino por un átomo que entró en la cascada es una fracción de la energía total de daño E_D , esto es la suma de la energía cinética final de todos los átomos, las energías de ligadura y la excitación de fonones, siendo el factor de proporcionalidad la fracción de energía cinética final respecto de la energía cinética total aportada por dicho átomo. Matemáticamente esto puede expresarse como sigue:

$$E_i = \frac{T_i}{\sum_{i=1}^n T_i} E_D \quad (III, 10)$$

Esta energía es depositada en la posición final del i -ésimo átomo, pero en realidad se va depositando a lo largo de todo su camino. Para cuantificar el error se puede depositar T_i , no al final, sino en la posición inicial del átomo que entró en la cascada. M. Alurralde *et al.*⁵ demostraron que la diferencia entre uno y otro criterio, en cuanto al volumen fundido, es del orden del 1%. Esta distribución inicial de energía pasa a difundirse como calor. En un medio considerado isótropo y uniforme, con conductividad térmica K , calor específico C y densidad ρ , todos considerados constantes, se tiene:

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = \nabla \left[\frac{K}{C\rho} \nabla Q \right], \quad (III, 11)$$

donde $Q = Q(x, y, z, t)$ representa la energía. A $t = 0$ Q coincide con E_i de la ecuación (III,10).

Las condiciones de contorno son muestra infinita a temperatura T , salvo en la cascada donde, en principio, la distribución de energía carece de toda simetría.

Para la dependencia del calor específico con la temperatura se asume el ajuste más simple, es decir lineal.

La contribución térmica al mezclado iónico se basa en un proceso de salto térmicamente activado en la fase líquida. Se desprecia la contribución del gradiente térmico al flujo de partículas, si bien puede incluirse, aunque el coeficiente de Onsager sería un parámetro a ajustar a partir de resultados experimentales.

Bajo estas hipótesis, el camino cuadrático libre medio recorrido por las partículas durante la difusión o mezclado iónico MI viene dado por:

$$MI = 6 \int_0^t dt' \int \rho D(T) d^3r, \quad (III, 12)$$

donde $D(T)$ es el coeficiente de difusión dado por una ley de tipo Arrhenius.

La ecuación del calor, así como el mezclado iónico, son resueltos numéricamente por el código Thespik (Thermal-Spike)⁵.

El código discretiza la ecuación del calor sobre un cubo de lado a .

$$Q(r, t + \delta t) = \left[\frac{K \delta t}{C \rho a^2} \right] [Q(x + a, y, z, t) + Q(x - a, y, z, t) + Q(x, y + a, z, t)$$

$$\begin{aligned}
& +Q(x, y - a, z, t) + Q(x, y, z + a, t) + Q(x, y, z - a, t) \\
& + \left[\frac{C\rho a^2}{K\delta t} - 6 \right] Q(r, t) \quad (III, 13)
\end{aligned}$$

Los resultados comparados con los de Dinámica Molecular permiten considerar promedios espaciales de ρ y K , los cuales en principio dependen de la temperatura T y por lo tanto de la posición y del tiempo. Definiendo a_0 tal que el paso temporal sea

$$\delta t = \left\langle \frac{C\rho a_0^2}{7K} \right\rangle, \quad (III, 14)$$

la ecuación de difusión queda:

$$\begin{aligned}
Q(r, t + \delta t) &= \left[\frac{a_0^2}{7a^2} \right] [Q(x + a, y, z, t) + Q(x - a, y, z, t) + Q(x, y + a, z, t) \\
&+ Q(x, y - a, z, t) + Q(x, y, z + a, t) + Q(x, y, z - a, t) \\
&+ \left[\frac{7a^2}{a_0^2} - 6 \right] Q(r, t). \quad (III, 15)
\end{aligned}$$

Para $a = a_0$ se ve que la ecuación es un promedio sobre celdas vecinas.

Debe tenerse en cuenta que la variación de ρ y K debe ser pequeña para justificar el promedio espacial. La convergencia y estabilidad de la solución queda garantizada si $a > a_0$.

Con la salida del código Marlowe, es decir energías cinéticas finales de cada átomo que entró en la cascada normalizadas a la energía total de daño, y posición final de los mismos, se llena una matriz cúbica de $101 \times 101 \times 101$. El espaciado de red a apropiado para contener la cascada es calculado. La distribución de energía es centrada en el baricentro de energía, previamente calculado, para irradiaciones internas. Si la irradiación es externa, por ejemplo en la dirección z , la distribución de energía se centra en x e y . A cada cubo de lado a se le asigna la suma de las energías que están contenidas en él; además se calculan los valores máximo y mínimo a cada paso, para no integrar cubos vacíos.

La temperatura de la muestra es simulada restándole a la energía de fusión del material la energía necesaria para llevar al mismo de 0 K a la temperatura correspondiente.

Para simular la condición de contorno que corresponde a un sólido infinito a la temperatura inicial del material para tiempos grandes, se debe elegir un espaciado de red a tal que en el límite superior de tiempo la temperatura en el borde del material sea la de la red. Suponiendo una distribución de energía inicial tipo delta de Dirac y una evolución térmica de, típicamente, 200 pasos, se requieren 401 nodos, uno para la cascada. Con lo anterior se desperdicia sensibilidad y eficiencia de cómputo, por lo cual se adopta una solución de compromiso. Se extrapola cuadráticamente la cantidad de calor en los bordes y si la misma es superior en un 10% al calor de fusión, se detiene el código indicando que el parámetro a , que fija el lado del cubo, debe ser aumentado para contener adecuadamente la evolución de la cascada.

A partir de aquí se procede a resolver la ecuación del calor (III,15). En

cada paso temporal se hallan los volúmenes de material fundido, el mezclado iónico, como también el número de gotas líquidas. El código se detiene cuando el volumen de material fundido es cero.

Es muy importante señalar que la distribución de energía inicial, que luego es difundida en el material como calor, por la naturaleza misma del cálculo mediante el cual se obtiene, representa la energía transferida al blanco en forma elástica. Se está considerando la porción con la cual contribuye cada átomo a la energía total de daño E_D , es decir, como se mencionó anteriormente, la suma de la energía cinética final T_f de los átomos que entraron en la cascada más la energía de ligadura de los mismos E_b más la energía transferida a la red como fonones E_{st} por átomos cuya energía no superó el umbral de desplazamiento:

$$E_D = T_f + E_b + E_{st} \quad (III, 16)$$

Luego el modelo, tal cual ha sido descrito, resulta sólo aplicable a metales, donde la energía transferida en forma inelástica al blanco, es decir, depositada en el sistema electrónico, se encuentra muy diluida debido a la alta conductividad de los mismos, con lo cual, dado que lo relevante es la energía depositada por unidad de volumen, su incidencia en efectos de tipo térmico, por ejemplo fusión del material, es despreciable.

III.3 Extensión del modelo al caso de aislantes

Extender el modelo a semiconductores y fundamentalmente aislantes significa tomar en consideración todo el proceso de transferencia de energía al blanco en forma inelástica.

En el modelo del pico térmico (en la versión de Toulemonde *et al.*, ecuaciones (II,3) y (II,4)) esto es tenido en cuenta. Ciertamente la energía depositada inelásticamente en el sistema electrónico, $A(r, t)$, es la única fuente de calor en el mismo. Se desprecia la energía depositada en forma elástica en el blanco, y la razón de esta omisión es que los que concibieron el modelo se hallaban concentrados en explicar el daño por radiación en la gama de muy altas energías, a la derecha del pico de Bragg, donde la contribución al frenamiento del ion en forma elástica es despreciable (Fig (A.1)).

Por otra parte el modelo de la gota líquida, pensado para metales, naturalmente no considera la energía depositada en el sistema electrónico.

Luego, la extensión de estos modelos significa incluir la energía elástica en el modelo de pico térmico por un lado, o bien incluir la energía transferida al blanco en forma inelástica en el modelo de la gota líquida.

Contando con el código Marlowe y con el código Thespik, que implementa el modelo de la gota líquida, se optó por realizar lo segundo, si bien el resultado debe ser el mismo, aunque no lo sean las estrategias para obtenerlo. El problema es cómo tomar en consideración la energía transferida al blanco inelásticamente⁴⁸.

Para resolver esto hay, en principio, dos posibilidades: puede considerarse que la energía depositada en el sistema electrónico es la empleada en los modelos de pico térmico, $A(r, t)$ (ecuaciones (II,3) y (II,4)), discutidos anteriormente, donde la distribución espacial venía, por ejemplo, dada por la distribución de Waligorsky (II,9). Luego en cada nodo de la malla creada por el código Thespik se tiene una energía dada por la suma de la parte elástica, la salida del Marlowe discutida anteriormente, más una parte inelástica, tomada del

modelo de pico térmico:

$$Q_{i,j,k} = T_{i,j,k} + g \cdot A(A, j, k) \quad (III, 17)$$

En esta ecuación $T_{i,j,k}$ es la energía elástica en el nodo i,j,k , y $A(A, j, k)$ es la contribución inelástica en ese mismo nodo. Tal cual ha sido escrita la contribución inelástica, se asume que la energía puesta en el sistema electrónico relaja muy lentamente respecto del tiempo de transferencia de la misma a la red y por esta razón la distribución aparece independiente del tiempo. El factor g es la constante de acoplamiento electrón-fonon mencionada anteriormente.

El problema que presenta esta estrategia es, además de considerar una distribución de energía $A(i, j, k)$ independiente del tiempo, de dudosa validez, la constante de normalización de la misma, es decir el poder de frenamiento electrónico S_e es una función de la posición x, y, z (o de su discretización i, j, k), ya que $S_e = S_e(E)$ y la energía depende de la historia de colisiones del proyectil en el material.

Luego, se requiere un detallado conocimiento del poder de frenamiento S_e en cada evento de colisión, lo cual sólo es posible obtener por medio de códigos tipo TRIM o Marlowe.

La otra estrategia, que es la que se implementó puesto que es inevitable recurrir a un código de colisiones binarias, es obtener del código Marlowe, el detalle de poder de frenamiento S_e en cada evento de colisión. Luego integrando el mismo entre cada colisión, por definición se obtiene la energía transferida inelásticamente al blanco. Es decir, si un proyectil colisiona en, digamos A y luego en B, la energía E_{AB} transferida al blanco entre A y B

viene dada por:

$$E_{AB} = \int_A^B S_e dl \quad (III, 18)$$

Si conocemos S_e en A como en B, la integral puede aproximarse de la siguiente forma:

$$E_{AB} = S_e(B)l + \frac{S_e(A) - S_e(B)}{2}l, \quad (III, 19)$$

donde l es la distancia entre A y B; la expresión simplemente dice que se aproxima la integral por un trapecio.

Para conocer el poder de frenamiento S_e en cada evento de colisión, o esquemáticamente en A y B, se desarrollaron dos rutinas. En una de ellas se toma el detalle de la energía E en cada colisión de un determinado ion, que puede ser PKA o cualquier otro ion secundario, junto con la posición del evento. Se obtiene un archivo de hasta 10000 posiciones y energías, dependiendo de la energía del PKA, de todos los átomos involucrados en la cascada.

Con esta información se calcula el poder de frenamiento electrónico en cada una de ellas mediante el modelo de Lindhard-Scharff (ecuación (A,25)), es decir

$$S_e(A) = k\sqrt{E(A)}, \quad (III, 20)$$

donde la constante k es calculada por Marlowe, según el tipo de proyectil y átomo blanco, usando la regla de Bragg³² si se tratara de un blanco compuesto.

Finalmente, a través de (III,19) se integra S_e , obteniéndose el detalle del proceso de transferencia de energía en forma inelástica al blanco.

De nuevo, se tiene que decidir dónde colocar, es decir en qué posición ubicar, esta energía, considerada no-local. Esquemáticamente puede ponerse en A o en B. Simulaciones realizadas ubicando las pérdidas en A y otras en B no mostraron sensibilidad respecto a esta elección, luego se decidió optar por poner las pérdidas de energía en la posición final, B, de cada colisión.

Lo que se obtiene como salida de Marlowe son dos archivos: uno con posiciones y energía correspondiente, de naturaleza elástica, junto con la naturaleza química del sitio, como se describió oportunamente. El otro archivo contiene lo mismo, salvo que la energía, en este caso, es de naturaleza inelástica.

Juntos, ambos, representan todo el proceso de transferencia de energía, elástica e inelásticamente, de parte de un ion incidente, PKA, a un material blanco. Estos archivos se fusionan en uno solo que es lo que considera como información de entrada el código Thespik, dado que a este último no le importa la naturaleza de determinado sitio y si su energía es elástica o inelástica. Sólo ve una tabla de posición y energía correspondiente que pasará a difundir como calor. Es importante señalar que toda la energía inelástica es puesta en la red, es decir $g=1$. Ciertamente g debe considerarse como un parámetro de ajuste del modelo, menor o igual a 1 para que tenga el significado físico de II.3.

En cuanto al material blanco investigado, de interés en Radiobiología, se trata de un policarbonato comercialmente conocido como Makrofol-E o Lexan.

La razón del empleo de este material, del cual como veremos se desconocen

muchas propiedades físicas y cristalográficas, es que se dispone de resultados experimentales²⁹ de la zona dañada bajo irradiaciones a baja energía, lo cual permite evaluar el modelo propuesto en este trabajo.

Su fórmula química es $C_{16}H_{14}O_3$, su densidad 1.2 g/cm^3 ^{44,45} y los calores específicos a 300 K y a 400 K son 1.093 eV/at.K y 1.23 eV/at.K respectivamente⁴⁶; la temperatura de fusión es 425 K ^{44,45} y no se cuenta con más información, al menos de carácter termodinámico, que es lo relevante para nuestro trabajo. Por ejemplo se desconocen los coeficientes de difusión en el sólido y líquido, el coeficiente de Onsager y el calor de ablandamiento, lo cual impide realizar un estudio termodinámico completo de la evolución de la cascada.

Además, no se dispone de la estructura detallada del polímero, es decir las posiciones de cierto número mínimo de átomos que Marlowe utiliza para crear el blanco. Por lo tanto se decidió crearlo mediante números aleatorios para cada coordenada x, y, z de cada átomo del polímero, con un parámetro de red adecuado, 6 Å para que la densidad sea la correcta.

Otra limitación se halla en la disponibilidad de memoria que emplea el código Marlowe para crear el blanco de Lexan⁹. Sólo es posible indicar 15 sitios del material blanco, lo cual llevó a considerar un blanco de composición química $C_7H_8O_2$ como émulo del verdadero Lexan.

Para evaluar cuan parecido son estos materiales, ambos con la misma densidad, se compararon los rangos obtenidos en Marlowe con los provistos por el código TRIM, que sí cuenta con Lexan en su base de datos. En TRIM se obtiene 650 Å ³⁹ mientras que en Marlowe 730 Å , lo cual permite considerar buena la aproximación llevada a cabo.

Tratándose de un polímero, más importante que el volumen fundido del ma-

terial es cierta temperatura en la cual empiezan a romperse algunos enlaces lo cual evidentemente sucede a temperaturas menores que la de fusión del mismo.

Dado que la técnica de revelado de las trazas es mediante ataque químico, la rotura de la cadena en algún sitio implica una mayor reactividad química en ese sitio, y en toda la zona donde se produjeron roturas de enlace, la cual quedará manifiesta como zona dañada.

Dicha temperatura o energía de enlace también es desconocida; sin embargo se sabe que es mayor que 350 K, dado que esta es la temperatura a la cual se lleva a cabo el ataque químico, y no es de esperar que a dicha temperatura se ocasione daño en material sin irradiar.

Por lo tanto, y a falta de otra información, se decidió investigar la morfología, es decir, radio de las trazas, del material cuya temperatura en algún momento de la evolución de la cascada resultó mayor que 350 K.

Puede observarse que esta temperatura resulta un parámetro libre del modelo hasta tanto se sepa más sobre este material.

Para implementar este cálculo se realizó una pequeña modificación al código Thespik, que consiste en obtener la temperatura máxima alcanzada en cada nodo, sin importar el paso en el cual se alcanza. Luego se filtran todos los puntos cuya temperatura resulta menor que, en nuestro caso, 350 K. El gráfico de dichos puntos, que representan puntos del material con temperatura mayor que 350 K, sería una representación espacial de la zona dañada por la irradiación.

A continuación se muestran algunos resultados de simulación del daño por radiación en Lexan. Todas las irradiaciones simuladas fueron normales a la

superficie, sin divergencia de haz, en el origen de coordenadas. Además, por razones de sensibilidad en la discretización, sólo se investigaron los primeros 700 Å desde la superficie.

El análisis térmico se lleva a cabo a una profundidad de aproximadamente 125 Å, dado que se dispone de valores experimentales a esa profundidad, dependiendo del tipo de discretización, ya sea ésta de 7, 10 o 14 Å³.

En la figura III.4.a se observa la pequeña cascada de desplazamientos de ⁴He de 100 keV obtenida con el código Marlowe, compatible con las curvas de poderes de frenamiento nuclear y electrónico mostradas en la figura III.4.b, para la energía investigada. El pico de desplazamiento se halla a profundidades mayores.

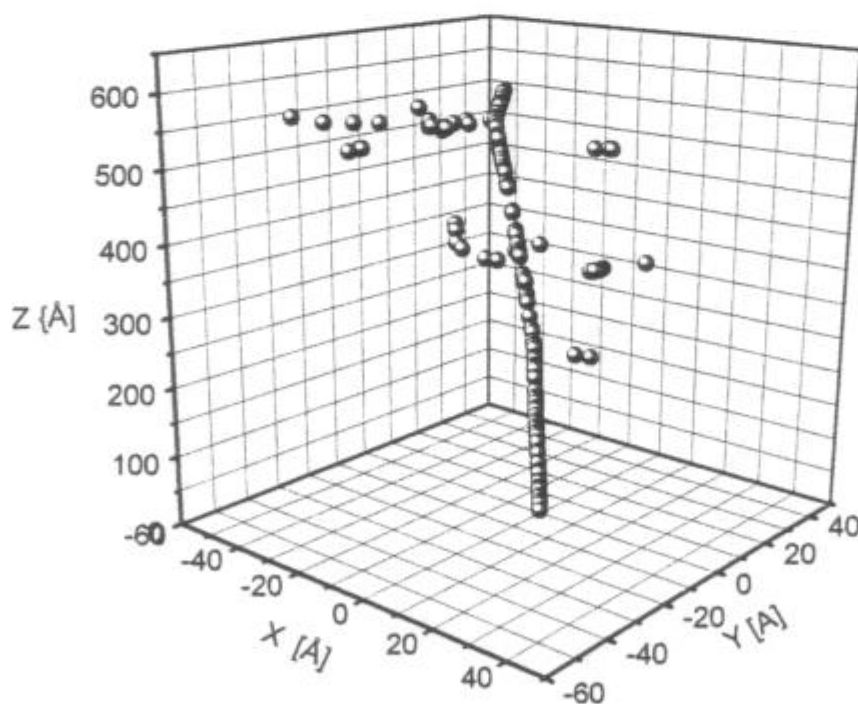


Fig. III.4.a Cascada de ⁴He de 100 keV en Lexan.

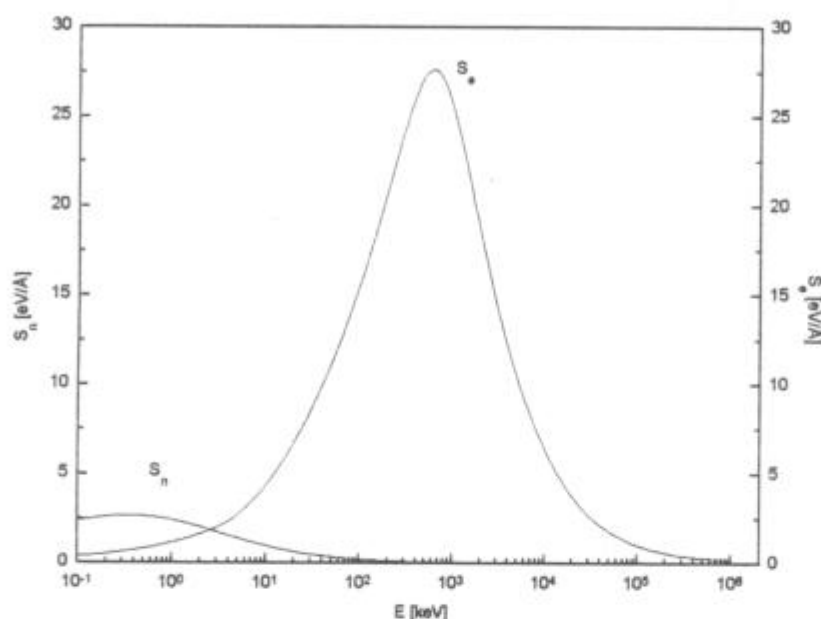


Fig. III.4.b Poderes de frenamiento nuclear S_n y electrónico S_e de He sobre Lexan.

En la figura III.4.c se observa una representación de la traza dejada en Lexan por ^4He de 100 keV, constituida por puntos del material cuya temperatura máxima resultó mayor a 350 K en algún momento de la evolución de la cascada.

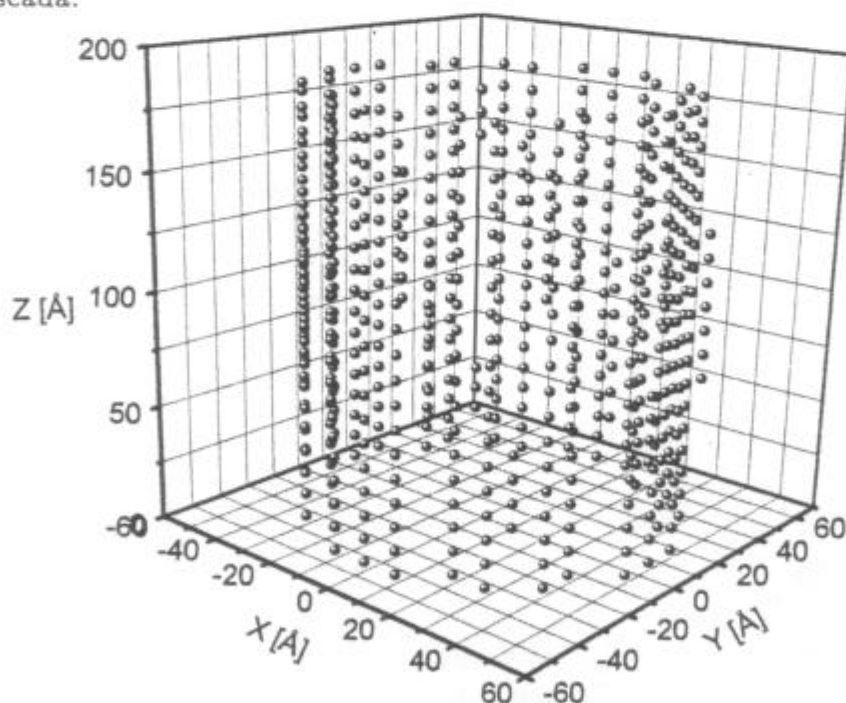


Fig. III.4.c Traza de ^4He de 100 keV en Lexan.

La figura III.4.d muestra el perfil de temperaturas máximas mayores a 350 K, a la profundidad de control, en este caso 125 Å. Además se muestran las proyecciones del perfil en los planos xy, zx, zy.

En la figura III.4.e se detalla el aspecto de la traza vista frontalmente a la profundidad de control. Puede establecerse un diámetro de traza de aproximadamente 100 Å.

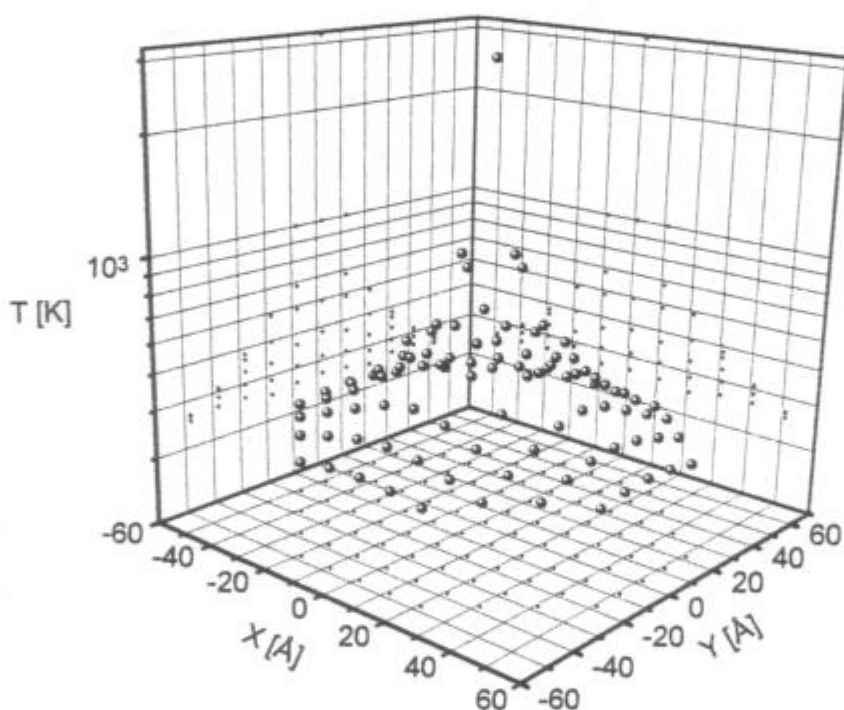


Fig. III.4.d ^4He de 100 keV en Lexan. Distribución de temperaturas máximas a la profundidad de control.

En las figuras (III.5.a,b,c,d,e) se lleva a cabo el mismo análisis, en este caso para ^{12}C de 240 keV. La profundidad de control también resultó de 125 Å.

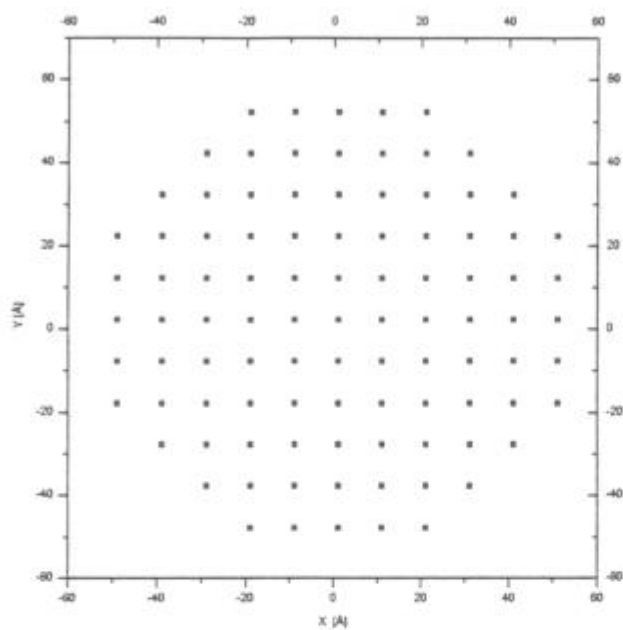


Fig. III.4.e ^4He de 100 keV en Lexan. Vista frontal de la traza a la profundidad de control.

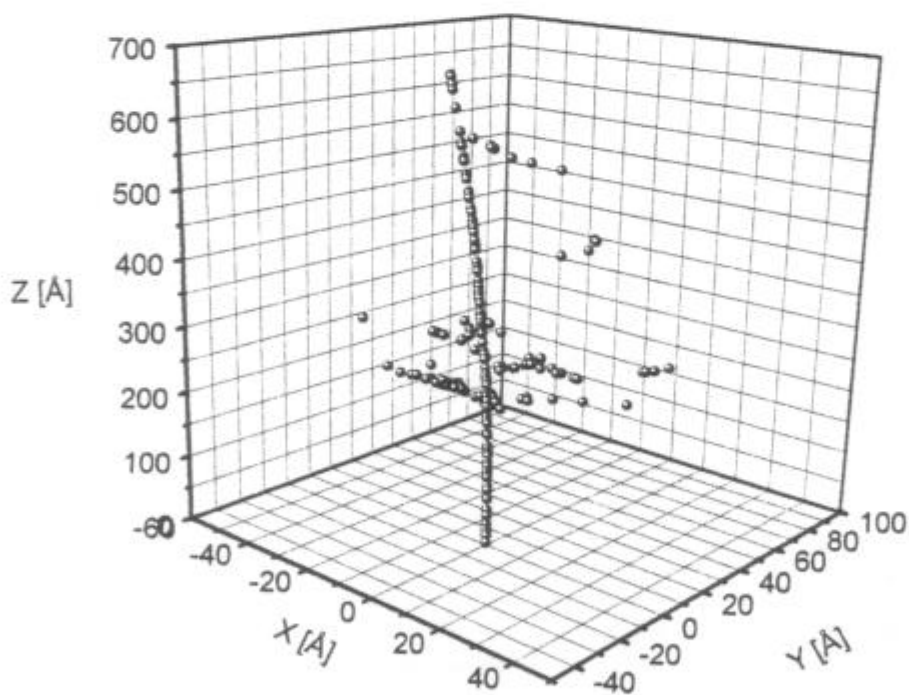


Fig. III.5.a Cascada de ^{12}C de 240 keV en Lexan.

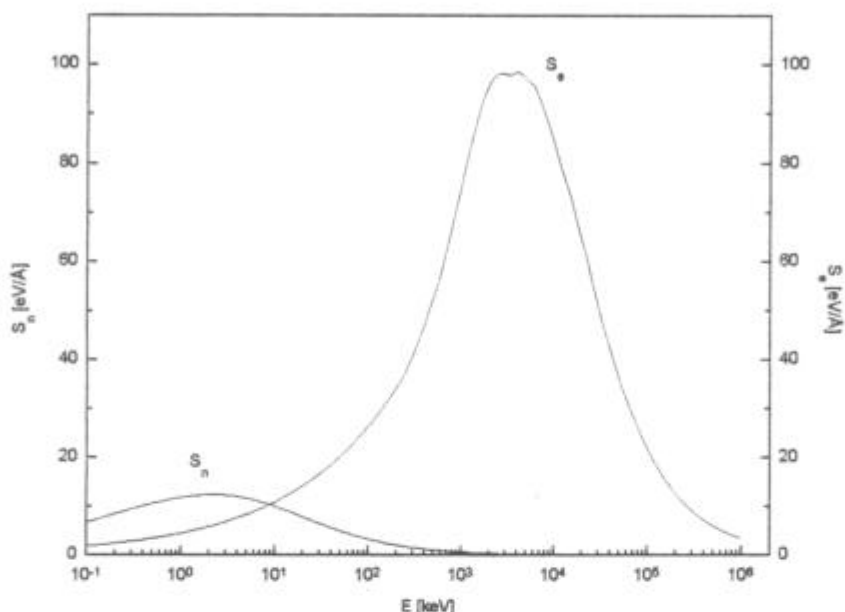


Fig. III.5.b Poder de frenamiento nuclear S_n y electrónico S_e de ^{12}C en Lexan.

Se observa, nuevamente, un predominio de transferencia de energía al material en forma inelástica (Fig. III.5.a y III.5.b), con algunas subcascadas debidas a una sección eficaz nuclear no despreciable.

En las figuras III.5.c,d,e se muestran la morfología de la traza, la vista frontal de la misma y la distribución de temperaturas máximas a la profundidad de control. Puede deducirse un diámetro medio de traza de aproximadamente $150 \text{ \AA}$.

Para el caso de irradiación con ^{39}Ar de 50 keV (figuras III.6.a,b,c,d,e) se ve una importante cascada de desplazamientos, siendo evidentemente S_n la contribución dominante al frenado del ion (fig. III.6.b). El amplio pico de desplazamiento da lugar a una distribución de energía de poca simetría, la cual deja una traza irregular (fig. III.6.c). Puede inferirse un diámetro medio de traza de aproximadamente $150 \text{ \AA}$ (fig. III.6.d y e).

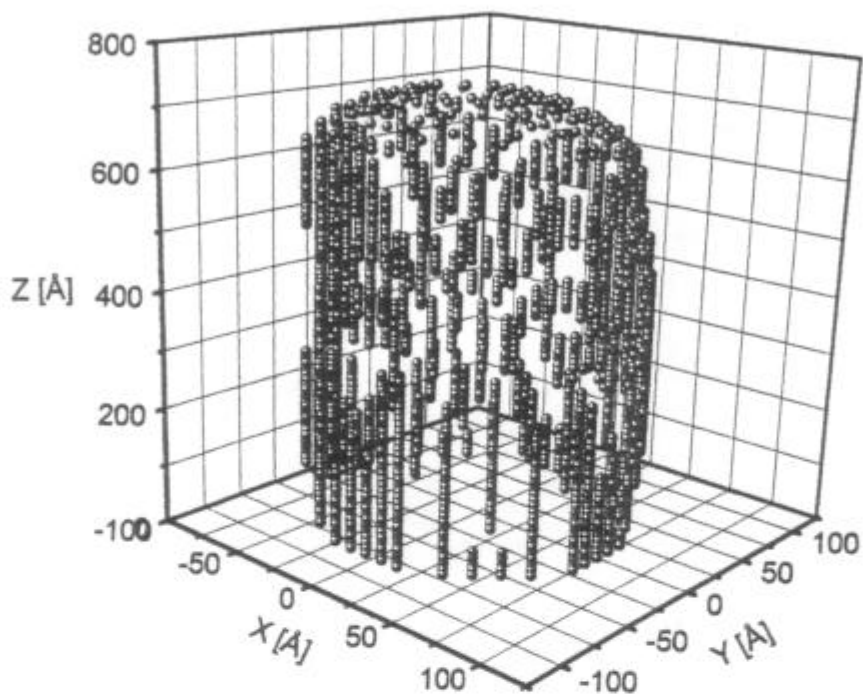


Fig. III.5.c Traza de ^{12}C de 240 keV en Lexan.

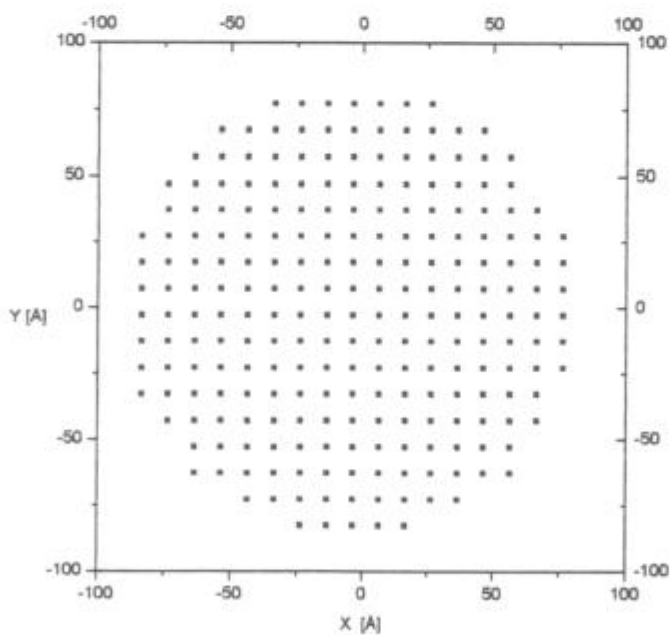


Fig. III.5.d ^{12}C de 240 keV en Lexan. Vista frontal de la traza a la profundidad de control.

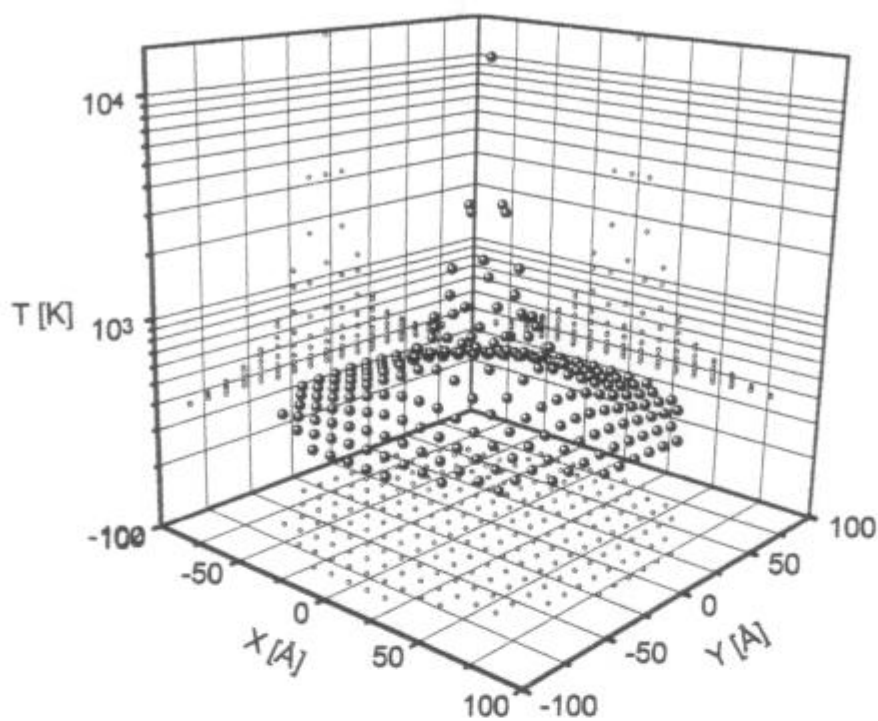


Fig. III.5.d ^{12}C de 240 keV en Lexan. Distribución de temperaturas máximas, a la profundidad de control.

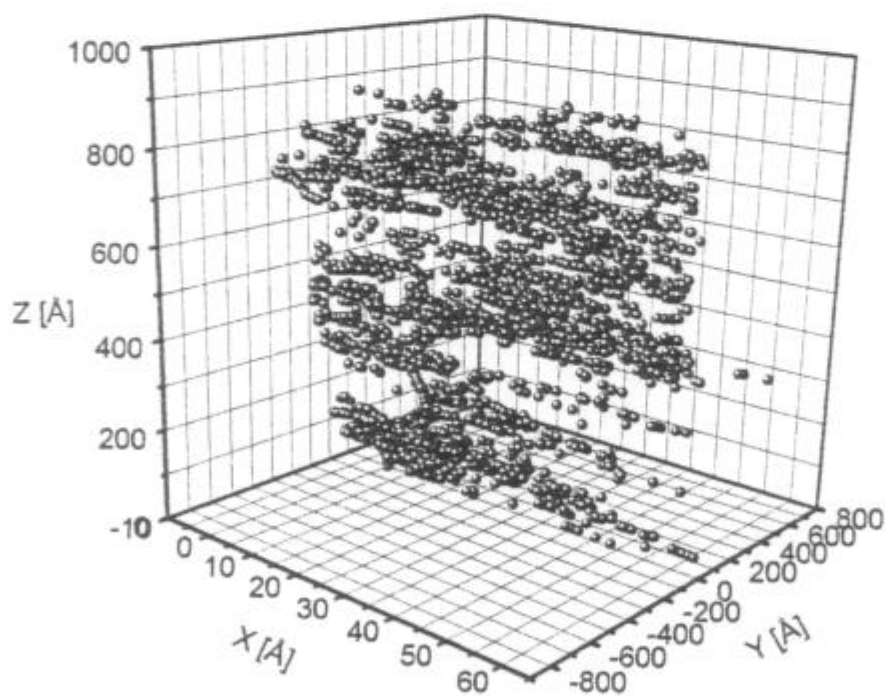


Fig. III.6.a Cascada de ^{39}Ar de 50 keV en Lexan.

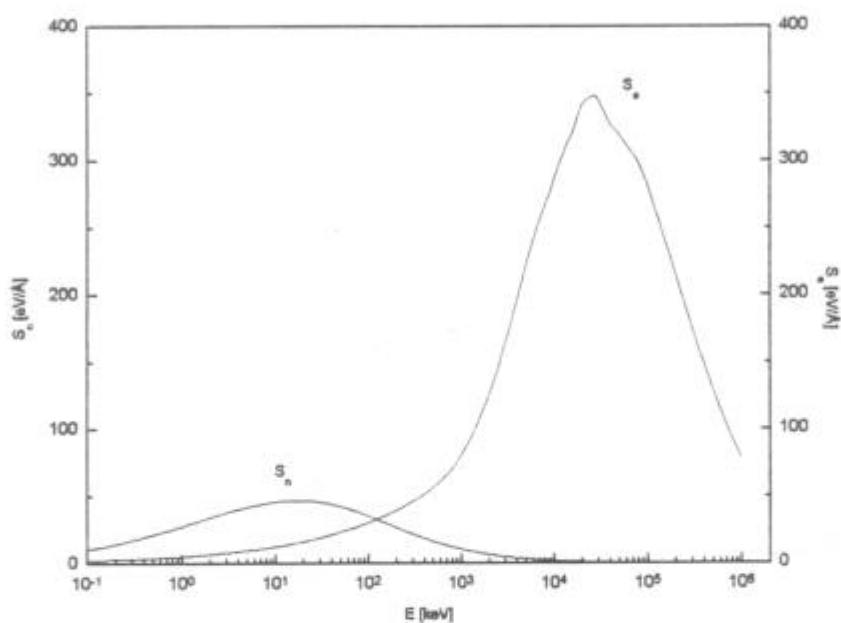


Fig. III.6.b Poderes de frenamiento nuclear S_n y electrónico S_e de ^{39}Ar en Lexan.

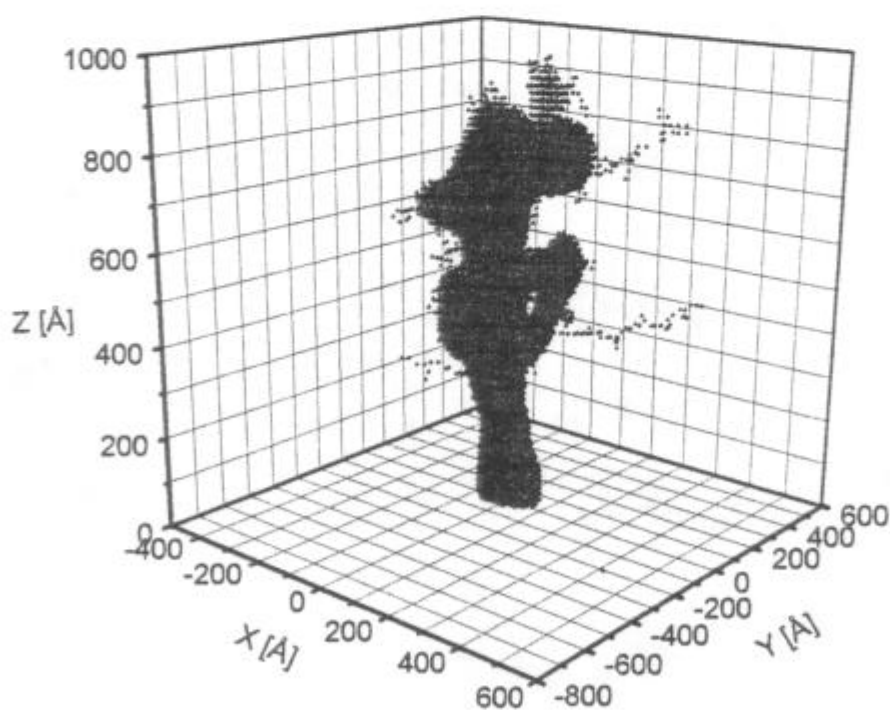


Fig. III.6.c Traza de ^{39}Ar de 50 keV en Lexan.

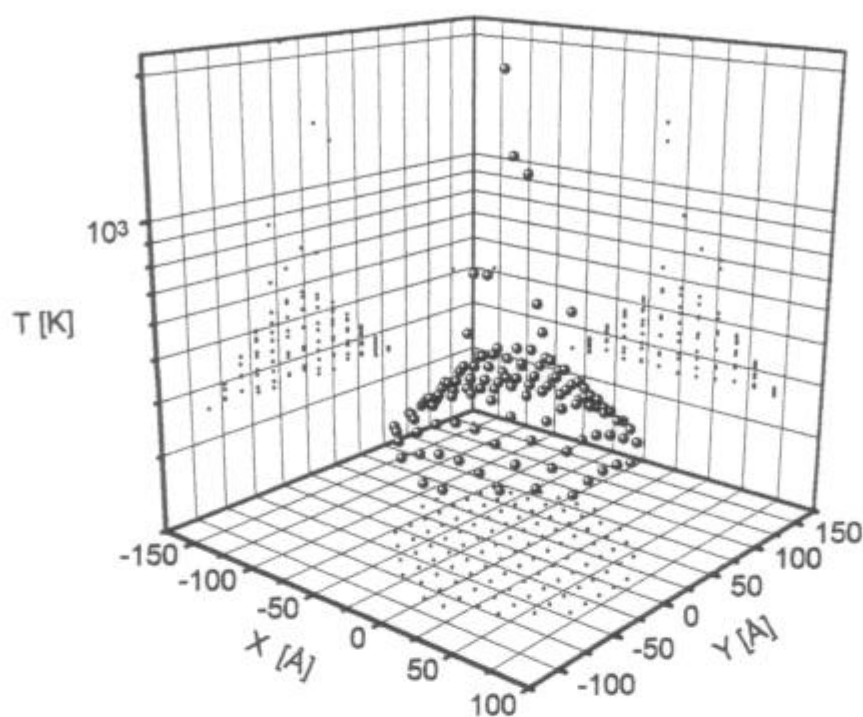


Fig. III.6.d ^{39}Ar de 50 keV en Lexan. Distribución de temperaturas máximas a la profundidad de control ($119 \text{ \AA}$)

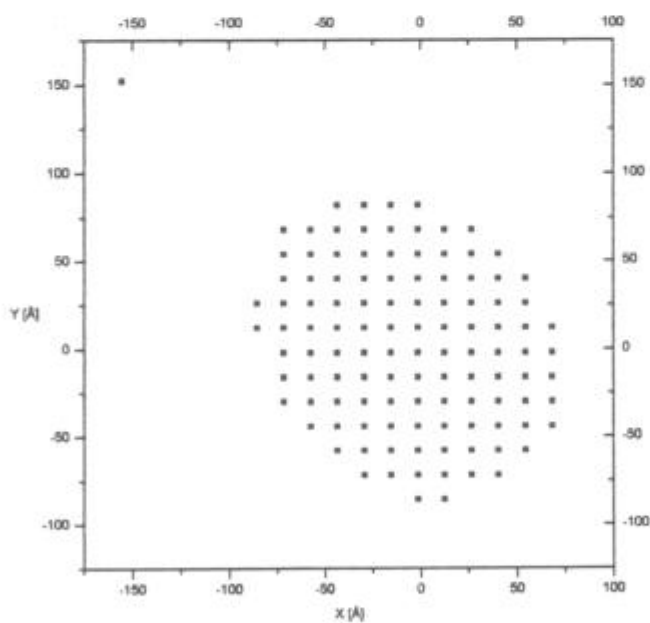


Fig. III.6.e ^{39}Ar de 50 keV. Vista frontal de la traza a la profundidad de control.

IV Discusión y Conclusiones

En la tabla IV.1 se muestran resultados de simulación mediante el modelo de la gota líquida, y experimentales aportados por O. Bernaola y G. Saint-Martin²⁹ del Departamento de Radiobiología (TANDAR-CNEA). En la misma se muestran la energía E del ion, su energía específica E_{esp} , la energía depositada E_d en $700 \text{ \AA}$ (el espesor de Lexan evaluado) y los diámetros de traza a la profundidad de control, teóricos y experimentales, D y D^* , respectivamente.

ion	E [keV]	E_{esp} [keV/a.m.u]	E_d [keV]	D [$\text{\AA}$]	D^* [$\text{\AA}$]
^{39}Ar	50	1.38	50	150	550
^{12}C	240	20	15.3	150	240-300
^{12}C	150	12.5	15.8	125	—
^{12}C	100	8.3	14.3	110	—
12	50	4.16	11.3	100	—
^4He	120	30	11.1	110	500
^4He	100	25	7.9	100	240-300
^4He	40	10	5.07	80	240-300
^2H	200	100	10.7	110	470
^2H	88	44	6.17	80	430
^2H	60	30	5.4	80	430
^2H	40	20	4.4	63	no deja
^2H	24	12	3.36	57	no deja
H	30	30	5.6	60	no deja
^{16}O	125	7.81	16.1	120	240-300

Tabla IV.1

Se observa que los valores teóricos se encuentran subvaluados respecto de los experimentales. Razones por las cuales se dan estas discrepancias, hay

diversas. Por ejemplo, puede decirse que el material cede elásticamente tras la formación del poro, un efecto post-irradiación, como así también que la cinética del ataque químico puede dar lugar a trazas mayores que las predichas teóricamente. Todas estas, sin embargo, resultan hipótesis *ad hoc*, que no han sido investigadas, ni hallan ningún tipo de fundamento en el presente trabajo.

Lo que sí establece el modelo, en acuerdo con los resultados experimentales, y *donde ningún otro modelo ha acertado*, es la predicción de la formación de trazas en una gama de bajas energías específica virtualmente prohibida según la literatura²³⁻²⁸.

El concepto de umbral de detección es de naturaleza subjetivo, pero si las trazas latentes se revelan por medio de ataque químico, el tamaño de la molécula del reactivo se estima en el orden de los 20 Å³⁰, mientras que la resolución en TEM es de 10 Å, puede establecerse objetivamente que trazas mayores que 20 Å deben ser detectadas.

Katz y Kobetich²⁷ establecen como umbral de detección en Lexan dosis de 3×10^5 Gy (J/kg) a 17 Å del camino del proyectil. Es decir: dosis menores a este valor no pueden ser registradas. Si la dosis ($D(r)$) se calcula usando la ecuación (II.9) dada por los autores citados y T representa el rango máximo de los electrones secundarios ($T = kW^\alpha$, si W es la máxima energía transferida a un electrón), se obtiene para las irradiaciones investigadas los siguientes resultados:

ion	E [keV]	E_{esp}	D(17 Å) [J/kg]	T [Å]
^{39}Ar	50	1.38	0	0.9
^{12}C	240	20	2.58×10^4	17.1
^4He	120	30	3.66×10^5	26.5
^4He	100	25	2.38×10^5	21.7
^4He	40	10	0	8.1
^2H	200	100	2.07×10^5	97
^2H	88	44	2.26×10^5	40
^2H	60	30	1.67×10^5	26.5
^2H	40	20	4.6×10^3	17
^2H	24	12	0	9.8
H	30	30	1.67×10^5	26.5
^{16}O	125	7.81	0	6.2

Tabla IV.2

Luego, según el criterio de dosis a 17 Å establecido por estos autores, sólo sería detectable ^4He de 120 keV, con un rango máximo de electrones secundarios de 26.5 Å, es decir un diámetro de traza del orden de los 50 Å.

Posteriormente Bernaola y Saint-Martin^{30,31} han reportado un umbral para ^3Li de 1.2×10^5 Gy a 17 Å, con lo cual ^{39}Ar de 50 keV, ^{12}C de 240 keV y ^{16}O de 125 keV no deberían ser registrados, aunque los mismos autores posteriormente los detectan, como se ve en la tabla IV.1. Por lo tanto pareciera ser que no puede encontrarse un umbral, o bien un criterio para establecer qué combinación ion-energía será o no registrada, según queda establecido aplicando los modelos de Kobetich, Katz²⁴⁻²⁸ y Waligorski *et al.*²³. Además, según estos autores el daño en el material no puede ir más allá que el máximo rango de electrones secundarios, y entonces tampoco dan cuenta de la morfología observada experimentalmente. Por ejemplo, el ^{39}Ar de 50 keV, en primer lugar no deja traza observable, y en segundo lugar, la traza latente tendría apenas 0.9 Å, cuando experimentalmente se ven trazas de 500 Å.

Parece más razonable suponer que la energía depositada va más allá o difunde más que la materia, dando lugar a trazas de mayor tamaño que el determinado por el rango de los electrones δ (electrones secundarios), en acuerdo con lo que se observa experimentalmente. Esto conduce a los modelos de pico térmico como el presentado en este trabajo. Sin embargo aquí tampoco parece haber acuerdo. Por ejemplo el modelo de Szenes, descrito en este trabajo (II.3) establece un umbral de detección, tomando $g=0.36$ (baja velocidad de ion) y $\lambda=45 \text{ \AA}$, de $S_{et}=89.3 \text{ eV/\AA}$. En la tabla IV.3 se detallan los poderes de frenamiento nuclear S_n y electrónico S_e en $\text{ev/\AA}$.

ion	E [keV]	$E_{esp}[\text{keV}/a.m.u]$	S_e	S_n
³⁹ Ar	50	1.38	23.2	42.34
¹² C	240	20	36.55	1.75
⁴ He	120	30	16.79	0.167
⁴ He	100	25	15.47	0.19
⁴ He	40	10	9.94	0.38
² H	200	100	9.67	0.016
² H	88	44	8.4	0.03
² H	60	30	7.64	0.044
² H	40	20	6.67	0.06
² H	24	12	5.6	0.089
H	30	30	7.62	0.039
¹⁶ O	125	7.81	32.4	5.5

Tabla IV.3

Así, con este umbral ninguna de estas irradiaciones debería detectarse. Colocándose en la situación más favorable, es decir suponiendo una eficiencia en la transferencia de la energía del 100% ($g=1$), $S_{et}=32.1 \text{ eV/\AA}$, sólo se tendría registro de ¹²C de 240 keV y ¹⁶O de 125 keV, pero con diámetros de traza de 60 $\text{\AA}$ y 55 $\text{\AA}$ respectivamente, 4 veces menos que lo obtenido

experimentalmente. ^{39}Ar de 50 keV se encontraría sobre el umbral si se considerara la contribución elástica S_n , cosa no tomada en cuenta en el modelo de Szenes.

También puede tomarse un valor menor de λ (ancho inicial de la energía depositada en el sistema electrónico), más razonable teniendo en cuenta la baja velocidad del proyectil; sin embargo tampoco se obtiene un mejor resultado así, ya que baja el umbral $-S_{et}=3.5 \text{ eV}/\text{\AA}$ -, si $\lambda=25 \text{ \AA}$, con lo cual entran todas las irradiaciones, pero se pasa al régimen lineal (ecuación (II,8)), $S_{et} > S_e$ con lo cual la relación queda independiente de λ no dando trazas mayores que $30 \text{ \AA}$.

En resumen, tanto el modelo de Kobetich *et al.*, como el de pico térmico en la versión de Szenes^{20,21,22} y también Toulemonde *et al.*¹⁰⁻¹⁷ (ecuaciones (II,3) y (II,4)), que utiliza los mismos supuestos y trabaja en la misma gama de energías, no resultan predictivos en cuanto a la formación y morfología de trazas en la gama de energías estudiadas.

En cambio el modelo de pico térmico presentado en este trabajo, si bien no da cuenta de todo el daño detectado por medio de ataque químico, *resulta predictivo* en cuanto a la formación de trazas a energías donde no se pensaba que podía existir registro de daño por radiación.

Además es el primero en tomar en cuenta en forma precisa el proceso de deposición de la energía, ya sea elástica como inelástica de todos los átomos que participan de la cascada de colisiones, obteniendo la detallada distribución de energía, en principio carente de toda simetría, debida al pasaje del ion a través del material.

Creemos, sin duda, que este debe ser el verdadero punto de partida de todo

modelo de pico térmico, válido en todo el espectro de energías donde la aproximación de colisiones binarias resulta adecuada.

Queda en deuda explicar por qué los valores predichos teóricamente resultan inferiores a los obtenidos experimentalmente, ya sea térmicamente o por medio de otro mecanismo presente en la producción de daño por radiación en este tipo de materiales.

Apéndice

Interacción ion-materia

A.1 Colisiones

Sean E_1 , m_1 , Z_1 y E_2 , m_2 , Z_2 las energías en el sistema del laboratorio, masa y carga del proyectil y blanco, respectivamente. Sea p el parámetro de impacto, $V(Z_1, Z_2, r)$ el potencial de interacción y ψ el ángulo de dispersión en el sistema del laboratorio.

Si la distancia entre ambas partículas es infinita a tiempo $-\infty$ y mínima a tiempo cero, a partir de la mecánica clásica, una colisión binaria queda determinada, en el sistema del laboratorio, mediante las siguientes variables^{1,2,3}:

El ápsis o distancia mínima entre los dos átomos interactuantes, r_0 :

$$r_0 = \frac{m_2 E_1}{m_1 + m_2} \left(1 - \frac{p^2}{r_0^2} \right) \quad (A, 1)$$

El ángulo de dispersión en el sistema del centro de masa, ϕ :

$$\phi = \pi - 2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{d\psi}{dr} dr = \pi - 2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 f(r)}, \quad (A, 2)$$

donde $f(r)$ queda determinada por:

$$f(r) = \sqrt{1 - \frac{p^2}{r^2} - \frac{m_1 + m_2}{m_2} \frac{V(r)}{E_1}} \quad (A, 3)$$

El ángulo de dispersión respecto a la dirección de incidencia, θ :

$$\theta = \frac{\pi - \phi}{2} \quad (A, 4)$$

La energía transferida T y su máximo T_M vienen expresadas por:

$$T = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_1 \cos^2 \theta \quad (A, 5)$$

$$T_M = 4 \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_1 \quad (A, 6)$$

La sección eficaz diferencial de dispersión es:

$$d\sigma = 2\pi p dp \quad (A, 7)$$

De esta manera, si se dispone del potencial de interacción la colisión queda completamente determinada.

A.2 Potencial de Interacción

Dependiendo de la naturaleza química del blanco y de la energía de la partícula incidente se requieren distintos potenciales de interacción.

Por encima de la barrera coulombiana, claramente se requiere un potencial que tome en cuenta las fuerzas nucleares. Por encima de las energías de ligadura de las partículas interactuantes, el potencial es coulombiano, como en el caso de la dispersión de Rutherford. Si la energía es aún menor, hay que tomar en cuenta el apantallamiento de los electrones.

Entre los potenciales que tienen en cuenta el apantallamiento, el más simple es el de Born y Mayer que depende de sólo dos parámetros α y β :

$$V(r) = \alpha \exp\left(\frac{-r}{\beta}\right) \quad (A, 8)$$

Los parámetros se ajustan para una dada combinación proyectil-blanco, a parámetros del cristal en equilibrio. En la gama de 0.1 a 10^3 eV este potencial ajusta razonablemente bien a sistemas con capa cerrada tales como gases nobles o elementos iónicos.

Para el caso de dispersiones, donde la distancia al ápside de la colisión puede variar desde el radio de Bohr a_0 hasta valores del orden de la distancia interatómica, se requiere de un potencial que vaya desde uno coulombiano, hasta uno tipo Born-Mayer. Robinson³ propone el empleo de un potencial coulombiano apantallado:

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \phi\left(\frac{r}{a_{12}}\right), \quad (A, 9)$$

usando como función de apantallamiento $\phi(x)$, la aproximación de Moliere² a la función de apantallamiento de Thomas-Fermi.

$$\phi(x) = 0.35y + 0.55y^4 + 0.10y^{20}, \quad (A, 10)$$

con $y = e^{-0.3x}$.

La longitud de apantallamiento a_{12} puede calcularse mediante la siguiente fórmula sugerida por Firsov³²:

$$a_{12} = \left(\frac{9}{128}\pi^2\right)^{1/3} a_B (Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3} \quad (A, 11)$$

A.3 Frenamiento del ion

Cuando un ion penetra en un sólido sufre una serie de colisiones con los átomos y electrones del blanco. En estas colisiones la partícula incidente pierde energía a una tasa dE/dx , que depende del tipo de ion incidente, su energía y el tipo de blanco.

La profundidad de penetración, o rango R , de los iones se determina a través de la pérdida de energía a lo largo del camino del ion:

$$R = \int_{E_0}^0 \frac{1}{dE/dx} dE, \quad (A, 12)$$

donde E_0 es la energía del ion incidente y, evidentemente, el signo de dE/dx es negativo ya que representa una pérdida de energía conforme avanza en el blanco.

Los principales parámetros que gobiernan el rango o la tasa de pérdida de energía son la energía incidente E_0 y número atómico Z_1 del ion incidente y el número atómico Z_2 del sustrato o blanco como también su cristalinidad. En materiales cristalinos puede darse el proceso de acanalamiento con lo cual el proyectil puede alcanzar distancias mayores que en materiales amorfos.

Al penetrar el ion en el sustrato sufre, como se dijo, colisiones con átomos y electrones; siendo procesos de características aleatorias resulta más apropiado hablar de una distribución de profundidades alcanzadas y de pérdidas de energía.

A.4 Proceso de pérdida de energía

Se acostumbra distinguir dos diferentes mecanismos de pérdida de energía^{2,6}: nuclear, donde la energía se transmite en forma elástica a los átomos blanco ocasionando desplazamientos de los mismos, y electrónica o inelástica, donde la pérdida o transferencia de energía se produce por excitación o eyección de los electrones atómicos. Esta separación no es estrictamente cierta pero para la mayoría de los propósitos es una buena aproximación.

La tasa de pérdida de energía dE/dx puede entonces expresarse como:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{dE}{dx}|_n + \frac{dE}{dx}|_e, \quad (A, 13)$$

donde los subíndices n y e denotan la contribución nuclear y electrónica respectivamente.

Las colisiones nucleares pueden involucrar grandes transferencias de energía en forma discreta e importantes deflexiones de la trayectoria del proyectil. Este es el proceso responsable de la producción de desorden en la red debido a desplazamiento de átomos de su posición de equilibrio.

Las colisiones electrónicas, en cambio, involucran menores cantidades de energía por colisión, despreciable deflexión de la trayectoria del proyectil y despreciable desorden de la red; sin embargo la densidad de energía depositada puede resultar importante, sobre todo en materiales de muy baja conductividad electrónica, es decir aislantes.

La relativa importancia de uno u otro mecanismo de pérdida de energía depende fuertemente de la energía E y del número atómico de la partícula. El frenamiento nuclear ocurre predominantemente a baja energía y gran número

atómico, mientras que el frenamiento electrónico es importante a alta energía y bajo número atómico. Unidades típicas de tasa de pérdida de energía son eV/nm o keV/nm. Para independizarse del material blanco se habla de la *sección eficaz de frenado* (S)³⁴, la cual se define como:

$$S = \frac{dE/dx}{N}, \quad (A, 14)$$

con unidades de eVcm²/átomo, siendo N la densidad atómica del material.

A.5 Frenamiento Nuclear

En el poder de frenamiento nuclear lo relevante es la energía promedio perdida tras las colisiones elásticas con los núcleos por unidad de longitud viajada en el blanco.

Para un desplazamiento infinitesimal dx el poder de frenamiento nuclear puede escribirse⁴ como

$$\frac{dE}{dx}|_n = N \int_{T_{min}}^{T_M} T \frac{d\sigma(E)}{dT} dT, \quad (A, 15)$$

donde T es la energía cinética y $\sigma(E)$ es la sección eficaz de colisión (A.7). El límite inferior en la integral T_{min} no es necesariamente cero. Un valor usual es considerar la energía necesaria para desplazar un átomo de su sitio en la red, típicamente entre 10 y 30 eV.

El límite superior T_M es la máxima energía transferida en una colisión dada por la ecuación (A,6), $T_M = 4M_1M_2E/(M_1 + M_2)^2$.

La sección eficaz de frenado puede obtenerse usando la ecuación (A,14).

El cociente $d\sigma(E)/dT$ representa la sección eficaz diferencial (A,7) por energía transferida.

Si se considera $T_{\min} = 0$, la sección eficaz de frenamiento nuclear resulta⁴:

$$S_n(E) = \frac{C_m E^{1-2m}}{1-m} \left[\frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)} \right]^{1-m}. \quad (A, 16)$$

Esta ecuación permite calcular secciones eficaces de frenado basada en un átomo de Thomas-Fermi. Los valores tomados por el parámetro m son: $1/3$ si $\epsilon \leq 0.2$ o $1/2$ si $0.08 \leq \epsilon \leq 2$, siendo ϵ la energía reducida definida en el sistema de laboratorio por:

$$\epsilon = \frac{M_2}{(M_1 + M_2)} \frac{a_{TF}}{Z_1 Z_2 e^2} E \quad (A, 17)$$

Para altas energías, en el régimen de Rutherford la sección eficaz de frenado va como E^{-1} .

Un mayor nivel de exactitud se obtiene usando, en vez de la función de apantallamiento de Thomas-Fermi, la función de apantallamiento universal de Ziegler, Biersack y Littmark (ZBL)³³. Basándose en este potencial y mediante integración numérica, Ziegler *et al.* calcularon una sección eficaz universal de frenado que puede expresarse de la siguiente forma:

$$S_n(\epsilon) = \frac{0.5 \ln(1 + 1.1383\epsilon)}{(\epsilon + 0.01321\epsilon^{0.21226} + 0.19593\epsilon^{0.5})} \quad (A, 18)$$

para $\epsilon \leq 30$.

En el régimen de altas energías es:

$$S_n(\epsilon) = \frac{\ln(\epsilon)}{2\epsilon} \quad (A, 19)$$

para $\epsilon > 30$.

En estos cálculos la energía reducida viene dada por²:

$$\epsilon = \frac{32.53 M_2 E_0}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2) (Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}, \quad (A, 20)$$

con E_0 en keV.

A.6 Frenamiento electrónico

Este proceso es fuertemente dependiente de la velocidad del ion. Para velocidades del ion significativamente menores que la velocidad de Bohr de los electrones atómicos ν_0 , el ion tiende a neutralizarse por captura electrónica. A estas velocidades se tiene predominantemente pérdidas elásticas con los núcleos del blanco.

Sin embargo, conforme aumenta la energía del ion la pérdida de energía nuclear, que también podemos llamar *pérdida elástica*, decae como $1/E_0$ y la pérdida de energía por interacción con los electrones, o *pérdida inelástica* comienza a volverse dominante (fig A.1). La pérdida total de energía es la suma de ambas contribuciones, nuclear y electrónica, siendo esta última proporcional a $E^{1/2}$ ³⁴ en la gama de velocidades del ion que va desde $0.1\nu_0$ a $Z_1^{2/3}\nu_0$.

Fermi y Teller analizaron el frenamiento de iones en un gas de Fermi para velocidades menores que la velocidad de Fermi, esto es entre 0.7 y 1.3 de ν_0 , es decir el ion no se encuentra totalmente desnudo. En el modelo sólo

los electrones con velocidades cercanas a la velocidad de Fermi contribuyen al frenado, mientras que el cambio en la velocidad de los electrones es del mismo orden que la velocidad del ion. Considerando además la densidad de electrones en dicho rango de velocidades y la corriente de electrones que inciden sobre el ion, ambos autores llegan a un poder de frenamiento dado por

$$\frac{dE}{dx}|_e = \pi a_0^2 n_e m_e \nu_F \nu, \quad (A, 21)$$

donde a_0 es el radio de Bohr, y m_e , n_e y ν son la masa del electrón, densidad electrónica y velocidad del ion, respectivamente.

Se observa la dependencia lineal con la velocidad, si bien la aproximación puede resultar burda.

Firsov^{2,33,41} propone otro modelo para velocidades de ion $\nu < \nu_0 Z_1^{2/3}$. Considera que el proceso de pérdida de energía se basa en el trabajo involucrado en la transferencia de momento que ocurre cuando los electrones del ion se mezclan con los del blanco. Se asume que la colisión entre el proyectil y el blanco puede ser bien representada por una interacción entre dos átomos de Thomas-Fermi. Además, la baja velocidad del ion permite un tiempo suficiente como para que ocurra la mezcla entre ion y átomo blanco de manera tal que se forme una cuasi-molécula.

Durante el período de colisión y vida media de la cuasi-molécula se produce intercambio de electrones entre proyectil y blanco. Los electrones que pasan del blanco al proyectil son acelerados a la velocidad del ion, adquieren un momento $m_e \nu$ a expensas de la velocidad del ion y en consecuencia contribuyen al frenamiento del proyectil. Inversamente, para los electrones que pasan del

proy ctil al blanco el momento se transfiere a este  ltimo, con lo cual no hay contribuci n al proceso de p rdida de energ a.

Anal ticamente se llega a una transferencia de energ a por colisi n T_e dada por la siguiente f rmula:

$$T_e = \frac{0.35(Z_1 + Z_2)^{5/3}\hbar/a_0}{[1 + 0.16(Z_1 + Z_2)^{1/3}p/a_0]^5}\nu. \quad (A, 22)$$

Se observa una dependencia lineal con la velocidad ν del ion y adem s se ve que la p rdida decae como $1/p^5$, siendo p el par metro de impacto.

La energ a perdida por unidad de distancia viajada por el proyectil en el blanco puede calcularse integrando lo anterior respecto de la secci n eficaz, $2\pi b db$, de cero a infinito:

$$S_e(E) = 2\pi \int_0^\infty T_e b db = 2.16\pi e^2 a_0 (Z_1 + Z_2) \frac{\nu}{\nu_0} \quad (A, 23)$$

El modelo de Firsov da cuenta de los resultados experimentales bajo la condici n de que Z_1/Z_2 o Z_2/Z_1 no exceda 4. Esta limitaci n surge del potencial de interacci n y de la funci n de apantallamiento con las cuales se intenta describir la densidad de carga en la cuasi-mol cula.

El otro bien conocido modelo de poder de frenamiento electr nico en este r gimen de velocidad es el de Lindhard y Scharff². La diferencia entre este modelo y el de Firsov⁴¹ se encuentra en el potencial interat mico utilizado. Lindhard y Scharff asumen que la interacci n en la cuasi-mol cula formada por cualquier combinaci n arbitraria de proyectil y  tomo blanco puede ser bien representada por dos veces la media geom trica de un campo coulomb-

biano individual. La función de apantallamiento resulta ser proporcional a $(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}$, y el potencial es ahora:

$$V(r) = \frac{2(Z_1 Z_2)^{1/2} e^2}{r} \psi_{TF} \left[1.13 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2} \frac{r}{a_0} \right]. \quad (A, 24)$$

Empleando el mismo desarrollo que el que conduce a la fórmula de Firsov se llega a una sección eficaz de frenado dada por

$$S_e(E) = 3.83 \frac{Z_1^{7/6} Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \left[\frac{E}{M_1} \right]^{1/2}, \quad (A, 25)$$

donde $S_e(E)$ queda expresada en unidades de 10^{-5} eVcm²/átomo para iones de energía dada en keV y masa dada en uma.

A velocidades de ion mayores el estado de carga aumenta hasta que el ion puede considerarse totalmente desnudo. En este régimen puede considerarse al ion como una carga puntual de valor Z_1 , moviéndose a una velocidad mayor que la velocidad orbital media de los electrones orbitales. Este esquema conduce a la teoría de Bohr³⁴ del poder de frenamiento. La sección eficaz de frenado decrece con la energía debido al corto tiempo que permanece el ion en la vecindad del átomo blanco. Bohr sugirió que la carga efectiva Z^* del ion puede expresarse como:

$$\frac{Z^*}{Z} = \left[\frac{\nu}{\nu_0 Z_1^{2/3}} \right]. \quad (A, 26)$$

Dicha expresión da lugar a dos regímenes. Si $\nu < \nu_0 Z_1^{2/3}$ se tiene $Z^*/Z < 1$, es decir el ion no está totalmente desnudo y está en el régimen de validez de los modelos de Firsov y Lindhard.

Por el contrario para $\nu > \nu_0 Z_1^{2/3}$, $Z^*/Z = 1$, el ion se encuentra totalmente desnudo. Para este último caso, donde el tiempo de vida de la cuasi-molécula sería extremadamente corto, evidentemente carecen de validez los modelos anteriormente descritos.

El modelo que da cuenta del proceso de pérdidas de energía en este régimen de velocidades es debido a Bohr³⁴ (1913), y posteriormente fue mejorado por Bethe. Se basa en consideraciones clásicas. Se considera una partícula pesada como un protón o una partícula α , de carga $Z_1 e$, masa M y velocidad ν , pasando a una distancia b de un electrón del blanco. Por simetría, evidentemente, la fuerza media en la dirección paralela al movimiento del proyectil es nula; sin embargo no ocurre lo mismo en la dirección normal, donde sí existe transferencia neta de momento. Para esta colisión el potencial de interacción se considera puramente coulombiano y se deriva un poder de frenamiento dado, en el límite no relativista, por²

$$\frac{dE}{dx} = \frac{2\pi Z_1^2 e^4}{E} N Z_2 \left[\frac{M_1}{m_e} \right] \ln \frac{2m_e \nu^2}{I}, \quad (A, 27)$$

siendo I la energía de excitación promedio de los electrones y N la densidad atómica del blanco.

En la zona de transición entre el régimen de baja velocidad y alta velocidad se propone³² un poder de frenado mezcla entre el poder a baja velocidad S_{LS} y a alta velocidad S_{BB} , dado por:

$$S_e^{-1} = S_{LS}^{-1} + S_{BB}^{-1} \quad (A, 28)$$

En la figura (A.1) se muestra el aspecto de las curvas que representan los poderes de frenado nuclear y electrónico.

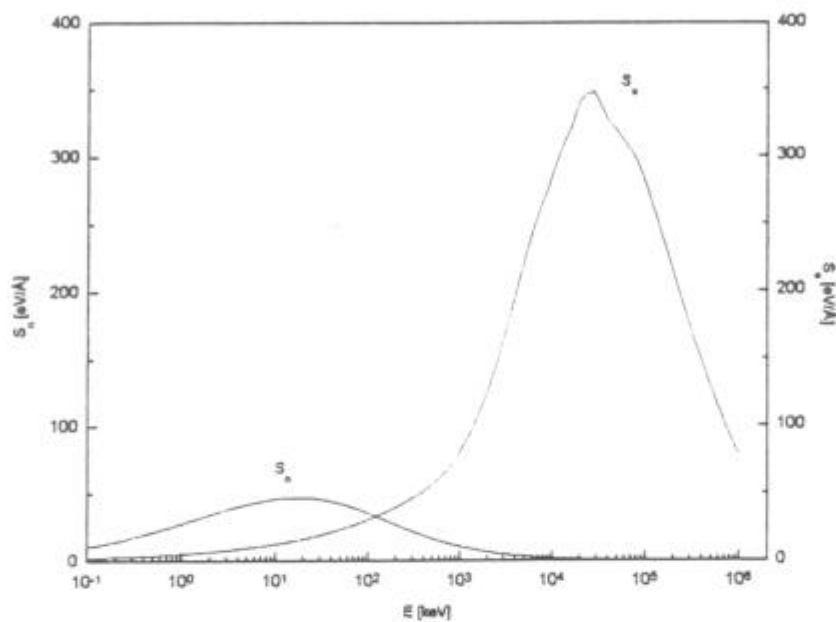


Fig (A.1).Resultado de simulación llevada a cabo con TRIM 91³⁹. Poderes de frenamiento nuclear S_n y electrónico S_e en función de la energía E para ^{39}Ar sobre Lexan.

Referencias

- 1) Landau y Lifshitz *Mecánica*, Reverté, Barcelona (1978).
- 2) M. Nastassi, J. Mayer y J. Hirvonen, *Ion Solid Interactions: Fundamentals and Applications*, Cambridge University Press (1996).
- 3) M. T. Robinson y I. M. Torrens, Phys. Rev. B **9**, 5008 (1974).
- 4) T. Diaz de la Rubia y W. J. Phythian, J. Nucl. Mat. 191-194, 108 (1992).
- 5) M. A. Alurralde, *Tesis de Doctorado* (1995).
- 6) R. Sphor, *Ion Tracks and Microtechnology*, Braunschweig (1990).
- 7) R. L. Fleischer, P. B. Price y R. M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids*, University of California Press (1975).
- 8) O. Bernaola, R. Mazzei, G. E. Massera y B. Molinari de Rey, Acta Cient. Venezolana **35**: 6-29 (1984).
- 9) Marlowe User's Guide, Binary Collision Cascade Simulation Program Version 12 (1984).
- 10) M. Toulemonde, C. Dufour y E. Paumier, Phys. Rev. B **46**, 14362 (1992).
- 11) M. Toulemonde, J. M. Costantini, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier y F. Studer, Nucl. Instr. Meth. Res. B **116** (1996) 37-42.
- 12) C. Dufour, B. Lesellier De Chezelles, V. Delignon, M. Toulemonde y E. Paumier, Modifications induced by irradiation in glasses, ed. P. Mazzoldi (Elsevier, North-Holland, 1992) p. 61.
- 13) M. Toulemonde y F. Studer, Solid State Phenomena, Vol 30-31 (1993) p. 477-488.
- 14) C. Dufour, E. Paumier y M. Toulemonde, Radiat. Eff. Def. Solids **126** (1993) 119-122.
- 15) M. Toulemonde, E. Paumier y C. Dufour, Radiat. Eff. Def. Solids **126**

- (1993) 201-206.
- 16) M. Toulemonde, C. Dufour, Z. Wang y E. Paumier, Nucl. Instr. Meth. Res. B112 (1996) 26-29.
- 17) A. Meftah, J. M. Costantini, M. Djebara, N. Khalfaoui, J. P. Stoquert, F. Studer y M. Toulemonde, Nucl. Instr. Meth. Res. B122 (1997) 470-475.
- 18) J. M. Costantini, F. Brisard, M. Toulemonde y F. Studer, Nucl. Instr. Meth. Res. B122 (1997) 514-521.
- 19) C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J. P. Girard, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier y M. Toulemonde, J. Phys.: Condens. Matter 5 (1993) 4573-4584. Printed in the UK.
- 20) G. Szenes, Phys. Rev. B52, 6154 (1995).
- 21) G. Szenes, Nucl. Instr. Meth. Res. B107 (1996) 146-149.
- 22) G. Szenes, Nucl. Instr. Meth. Res. B107 (1996) 150-154.
- 23) M. P. R. Waligorski, R. N. Hamm y R. Katz, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 11, 309 (1986)
- 24) E. J. Kobetich y R. Katz, Phys. Rev. B170, 391 (1968).
- 25) E. J. Kobetich y R. Katz, Phys. Rev. B170, 397 (1968).
- 26) E. J. Kobetich y R. Katz, Phys. Rev. B170, 391 (1968).
- 27) E. J. Kobetich y R. Katz, Phys. Rev. B170, 401 (1968).
- 28) E. J. Kobetich y R. Katz, Phys. Rev. B170, 405 (1968).
- 29) O. Bernaola y G. Saint-Martin, Comunicación privada.
- 30) O. Bernaola, G. Saint-Martin y C. Grasso, Nucl. Tracks Radiat. Meas. 22, 25 (1993)
- 31) G. Saint-Martin, O. Bernaola, I. Nemirovsky y A. Filevich, Radiat. Meas. 26 (1996) 733-735.

- 32) W. Eckstein, *Computer Simulation of ion-Solid Interactions*, Springer Verlag, primera edición (1991).
- 33) J. F. Ziegler, J. P. Biersack y U. Littmark, *The stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York (1985).
- 34) S. A. Cruz, *Radiation effects* 88, 159 (1986).
- 35) T. Diaz de la Rubia y M. Guinan, *Phys. Rev. Lett.* 66, 2766 (1991).
- 36) T. Diaz de la Rubia, R. S. Averback y R. Benedek, *J. Mater. Res.* 4, 579 (1989).
- 37) T. Diaz de la Rubia, R. S. Averback, R. Benedek, y W. E. King, *Phys. Rev. Lett.* 59, 1930 (1987)
- 38) T. Diaz de la Rubia, R. S. Averback, R. Benedek y I. M. Robertson, *Rad. Eff. Def. Sol.* 113, 39 (1990).
- 39) TRIM 91, código de distribución libre, solicitar a J. M. Ziegler, IBM-Research 28-0 Yorktown, Nueva York 10598 USA.
- 40) F. Seitz y J. S. Koehler, *Solid State Physics* 2, 251 (1956).
- 41) O. B. Firsov, *Sov. Phys.-JETP* 36, 1076 (1959).
- 42) A. Meftah, F. Brisard, J. M. Costantini, E. Dooryheee, M. Hage-Ali, M. Hervieu, J. P. Stoquert, F. Studer y M. Toulemonde, *Phys. Rev B* 9, 12457 (1994).
- 43) I. M. Lifshits, M. I. Kaganov y L. V. Tantarov, *Nucl. Energy, Part A: Reactor Science*, 1960, Vol. 12, pp. 69-78. Pergamon Press Ltd..
- 44) A. Prietshk, *Kolloid-Z*, 156 (1),8, Dr. Dietrich Steinkopff Verlag, Darmstadt (1958).
- 45) J. A. Brydson, *Materiales Plásticos*, Butterworth Co., Cap.20, pp.541, (1975).

- 46) Handbook de Polimeros.
- 47) R. N Hamm, H A. Wright, R. H. Ritchie, J. E. Turner y T. P. Turner,
Proc. Fourth Symposium on Microdosimetry (1976).
- 48) Platón, *Filebo*, 60a, Gredos (1992).