

Automatização de simulações da interação de íons com materiais

Palavras-Chave: Minerais, Séries radioativas, Defeitos de radiação

Autores:

Ivan Prearo¹

Sandro Guedes de Oliveira (orientador)¹

Arnaldo Luís Lixandrão Filho (coorientador)¹

¹Departamento de Raios Cósmicos e Cronologia, IFGW, UNICAMP

INTRODUÇÃO

Em minerais é comum a presença de elementos radioativos desde sua formação. Estes elementos decaem ao longo dos anos por diversos canais, incluindo fissão espontânea e decaimentos alfa, ambos importantes para a termocronologia. A fissão dos átomos de Urânio deixa traços de regiões amorfas no mineral que, quando detectadas, provêm uma ferramenta para a datação da amostra. Por sua vez, os decaimentos alfa emitem um núcleo de Hélio-4 e um recuo atômico que contém o restante dos nucleons do átomo original. Mesmo que essa emissão gere dois traços com densidades de defeitos menores do que os por fissão espontânea, a taxa em que ela ocorre é muito maior, gerando mais vacâncias na estrutura cristalina do mineral durante sua exposição natural aos elementos radioativos.

Para a estimativa de quantidade de vacâncias geradas por cada decaimento, é comum o uso do modelo analítico Norgett-Robinson-Torrens (NRT, Norgett et al., 1975) ou do método de Monte-Carlo através do TRansport of Ions in Matter (TRIM, Ziegler et al., 2010). Em suma, o modelo NRT estima a formação de vacâncias por uma relação linear entre a energia do íon incidente e a energia mínima para o deslocamento de um único átomo do material. Por sua vez, o TRIM, no modo de simulação completa da cascata de colisões, realiza a simulação das colisões de um íon incidindo no material com uma probabilidade por distância percorrida com os átomos da estrutura cristalina. Os átomos espalhados também geram colisões cuja produção de defeitos é também incluída no cálculo final. Ao colidir, o TRIM calcula as possíveis direções de espalhamento através de conservação de momento e energia, escolhendo entre elas por sorteio de Monte Carlo para prosseguir com a simulação. Como este cálculo no TRIM requer a simulação do transporte de milhares de íons para um resultado estatisticamente significativo, o cálculo por esse método é mais demorado que pelo modelo

NRT. Porém, o TRIM obtém resultados mais satisfatórios quanto à precisão, sendo recomendado quando possível (Weber et al., 2019).

Em experimentos destinados a simular a radiação natural, é possível a reprodução das vacâncias causadas naturalmente através da irradiação de íons acelerados. Nestes experimentos, é necessário quantificar anteriormente os defeitos naturais e o causado por um único íon acelerado, para então estimar a fluência artificial necessária para que as situações sejam correspondentes em densidade de vacâncias. Quando temos por objetivo a quantificação das vacâncias geradas por decaimentos alfa das cadeias mais comuns (U-238, U-235, Th-232,) e eventualmente isótopos do Sm, são necessárias aproximadamente 60 simulações do TRIM. Esta quantidade de simulações se torna uma dificuldade, já que o programa não apresenta uma rotina padrão para simulações em lote. Por conta disso, uma automatização dessas simulações e sumarização dos resultados é desejável.

METODOLOGIA

A simulação do TRIM requer uma série de informações de entradas, que podem ser divididas em dados do íon e do material alvo, sendo que o segundo grupo também inclui informações específicas para cada elemento que compõe o material. Esses dados são resumidos na Tabela 1 e devem ser inseridos no arquivo de entrada do TRIM, "TRIM.IN". Com este arquivo completo, basta executar o TRIM. Utilizamos a linguagem de programação R para automatizar esse processo a partir das informações do usuário. Depois de desenvolvermos uma função que automatiza essa rotina uma vez, a expansão entre uma única entrada e múltiplas foi atingida.. Para automatizar as cadeias de decaimento que queremos, criamos arquivos que contêm as informações dos íons de cada cadeia, consultados durante a criação do material como entradas de simulações em lote. Os resultados das simulações são então guardados no RDM para a comparação com as outras irradiações.

Tabela 1. Informações necessárias para simulação pelo TRIM, presentes no arquivo TRIM.IN.

Componente da simulação	Informações
Íon incidente	Número atômico Massa Energia
Material	Espessura Densidade
Elementos do material	Número atômico Massa Energia de deslocamento Energias de ligação Quantidade por molécula

Para simplificar o uso da automatização feita, como parte deste projeto, desenvolvemos uma interface web integrada ao Radiation Damage in Minerals (RDM, Lixandrão Filho e Guedes, 2017), programa desenvolvido anteriormente ao projeto. O RDM utilizava simulações feitas manualmente em minerais específicos para possibilitar a comparação da densidade de vacâncias entre irradiações artificiais e a natural. Inserindo a nova rotina, a adição de quaisquer materiais se tornou possível ao usuário, justificando a atualização do programa para Radiation Damage in Materials (Guedes et al., 2022).

O número de vacâncias geradas pela irradiação de um íon depende de sua carga, energia e massa, além da composição do alvo. Por esse motivo, a comparação direta entre vacâncias geradas em irradiações com diferentes íons ou em diferentes materiais pode ser difícil de interpretar. Para

diminuir a diferença entre alvos, utilizamos a unidade de deslocamentos por átomo (dpa), que é resultado da normalização de vacâncias geradas em um volume pelo número de átomos do material no mesmo volume. Adicionalmente, o RDM apresenta os gráficos de dpa por profundidade no material, que demonstra a diferença entre íons incidentes na distribuição dos defeitos gerados, como na Figura 1.

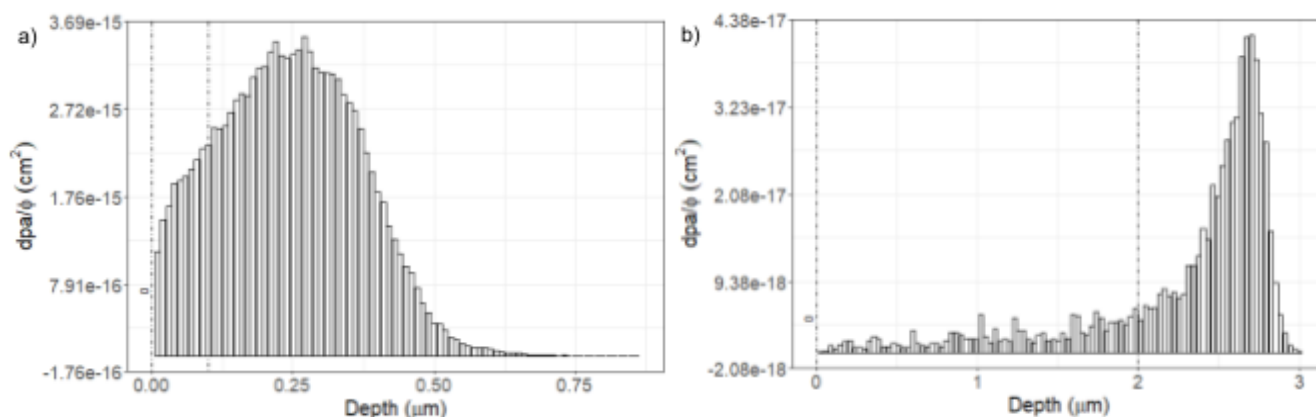


Figura 1. Perfis de dpa de irradiações em apatita. (a) Irradiação de ^{107}Ag a 1 MeV. (b) Irradiação de partículas alfa a 1 MeV.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Com a automatização do cálculo de dpa para os decaimentos alfa, conseguimos aumentar o repertório de minerais padrão do RDM para apatita, epidoto, halita, muscovita, quartzo, zircão e epsomita. Este número de simulações levaria cerca de duas semanas de trabalho ativo se feito manualmente, mas o RDM o fez em aproximadamente uma semana de computação automatizada.

Em Nasdala et al. (2002), os autores estudam a recuperação da estrutura cristalina do zircão durante o processo de *annealing* em diferentes temperaturas. Eles começaram o processo de *annealing* com amostras amorfizadas naturalmente por cadeias de decaimento. A fim de comparar os danos entre as amostras N17, K1 e K2, a idade geológica de cada uma foi calculada como 551 Ma, 324 Ma e 552 Ma, respectivamente. Esta idade foi utilizada em conjunto com a concentração de Tório e Urânio para o cálculo da dose de decaimentos alfa, resultando em $10,6 \times 10^{18} \alpha/g$, $3,1 \times 10^{18} \alpha/g$ e $4,3 \times 10^{18} \alpha/g$ nas amostras N17, K1 e K2, respectivamente.

Apesar da quantidade de decaimentos alfa por grama indicar uma comparação relativa da amorfização entre amostras, o dpa seria mais apropriado para tal, uma vez que cada decaimento alfa causará um número diferente de vacâncias dependendo do material. A densidade apresentada para o zircão de Nasdala et al. (2002) é excepcionalmente baixa ($3,86 \text{ g/cm}^3$ em comparação com $4,65 \text{ g/cm}^3$ do zircão já simulado no RDM). Esta diferença em densidade não só afeta o dpa causado por cada decaimento alfa, mas também a fluência a ser calculada. Por esses motivos, foi necessário simular o zircão novamente para uma densidade menor, processo que demora apenas cerca de 2,5 horas utilizando a automatização obtida neste projeto (Prearo et al., 2022).

Após o processo de simulação, o resultado de dose de alfa e dpa nas amostras é rápido. Por exemplo, para a amostra N17 (Tabela 2), conseguimos a mesma dose de alfa citada no artigo de $10,6 \times 10^{18} \alpha/g$, mas adicionalmente obtivemos o dpa total causado por esses decaimentos, 0,327 deslocamentos por átomo. Este resultado é relativamente baixo, indicando que o zircão estudado não é totalmente amorfo. A mesma conclusão foi encontrada em Nasdala et al. (2002) por imageamento por difração de raios-x e microscopia eletrônica de alta resolução, técnicas que possibilitam a visualização do ordenamento da rede cristalina. Adicionalmente, o RDM fornece a fluência necessária caso fôssemos simular esses danos por irradiação de íons acelerados no material. Para obter o mesmo dpa dos recuos da alfa a partir de íons de ^{107}Ag a 1 MeV, a irradiação da amostra deveria atingir uma fluência de $4,6 \times 10^{14}$ íons/cm², enquanto que a simulação do dano das partículas alfa por incidência de ^4He a 1 MeV necessitaria de uma fluência de $1,64 \times 10^{16}$ íons/cm².

Tabela 2. Saída do RDM para a amostra N17, consideradas em Nasdala et al. (2002).				
Sumarização de dpa e dose calculadas				
Fonte	dpa do recuo	dpa da alfa	dpa total	Dose de alfa (decaimentos/g)
Cadeia do Urânio	$2,70 \times 10^{-1}$	$3,47 \times 10^{-2}$	$3,05 \times 10^{-1}$	$9,97 \times 10^{18}$
Cadeia do Actínio	$1,56 \times 10^{-2}$	$1,84 \times 10^{-3}$	$1,74 \times 10^{-2}$	$5,15 \times 10^{17}$
Cadeia do Tório	$4,45 \times 10^{-3}$	$5,04 \times 10^{-4}$	$4,96 \times 10^{-3}$	$1,48 \times 10^{17}$
Total natural	$2,90 \times 10^{-1}$	$3,70 \times 10^{-2}$	$3,27 \times 10^{-1}$	$1,06 \times 10^{19}$
dpa do íon por fluência	$6,31 \times 10^{-16}$	$2,27 \times 10^{-18}$		
Fluência correspondente do íon pesado	$4,60 \times 10^{14}$		$5,18 \times 10^{14}$	
Fluência correspondente do feixe de alfa		$1,63 \times 10^{16}$		

CONCLUSÕES

O módulo desenvolvido para o RDM neste projeto se tornou complementar ao programa base. As simulações em lote viabilizam o aumento do número de materiais estudados e situações a serem analisadas. Ao mesmo tempo, o módulo de simulações pelo TRIM diretamente no RDM diminui o número de operações manuais do usuário, tornando o processo de cálculo de dpa por método de Monte Carlo mais eficiente, rápido e fácil enquanto menos propenso a erros humanos.

Mostramos por meio da comparação entre os resultados do RDM e de Nasdala et al. (2002) que os cálculos de defeitos fornecidos pelo programa são úteis. Os valores de dpa poderiam auxiliar no planejamento experimental ao fornecer uma primeira estimativa sobre o grau de amorfização do zircão. Se o objetivo fosse o estudo dos efeitos de *annealing* em um zircão mais amorfo, o RDM ajudaria a calcular a fluência necessária em uma irradiação artificial para controlar o dpa final da amostra.

BIBLIOGRAFIA

Guedes, S., Lixandrão Filho, A.L., Prearo, I., Radiation Damage in Materials - RDM 2 , 2022, Brasil. Instituição de Registro: INPI - Instituto Nacional da Propriedade Industrial, Número do Registro: BR512022001109-3.

Jay, Eleanor E., et al. "Prediction and characterisation of radiation damage in fluorapatite." *Journal of Materials Chemistry A* 3.3 (2015): 1164-1173.

Lixandrão Filho, A.L., Guedes, S. Radiation Damage in Minerals - RDM , 2017, Brasil. Instituição de Registro: INPI - Instituto Nacional da Propriedade Industrial, Número do Registro: BR512017000421-8.

Nasdala, Lutz, et al. "Annealing radiation damage and the recovery of cathodoluminescence." *Chemical Geology* 191.1-3 (2002): 121-140.

Norgett, MJ et al. "A Proposed Method of Calculating Displacement Dose Rates." *Nuclear engineering and design*, vol. 33, no. 1, 1975, pp. 50-54.

Prearo, I., Lixandrão Filho A. L., Guedes S., "Rdm: An R Interface for High-Throughput Simulation of Ion-Material Interactions Using TRIM." *Computer Physics Communications*, 2022, vol. 279, p. 108451.

Weber, William J and Yanwen Zhang. "Predicting Damage Production in Monoatomic and Multi-Elemental Targets Using Stopping and Range of Ions in Matter Code: Challenges and Recommendations." *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 23, no. 4, 2019, p. 100757.

Ziegler, James F. and Ziegler Matthias D. and Biersack Jochen P. "Srim--the Stopping and Range of Ions in Matter (2010)." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. 268, no. 11-12, 2010, pp. 1818--23.