



UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA
“JÚLIO DE MESQUITA FILHO”
Instituto de Biociências de Botucatu
Campus Botucatu – SP

UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA “JÚLIO DE MESQUITA FILHO”
INSTITUTO DE BIOCIÊNCIAS DE BOTUCATU, CAMPUS BOTUCATU

MARIANA ANTUNES PELEGATI

**FUNÇÕES DE PERDA DE ENERGIA (ELF) NO LIMITE ÓPTICO A
PARTIR DE FATORES DE FORMA ATÔMICOS**

BOTUCATU
2023



UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA
“JÚLIO DE MESQUITA FILHO”
Instituto de Biociências de Botucatu
Campus Botucatu - SP

MARIANA ANTUNES PELEGATI

**FUNÇÕES DE PERDA DE ENERGIA (ELF) NO LIMITE ÓPTICO A
PARTIR DE FATORES DE FORMA ATÔMICOS**

Monografia apresentada à Universidade Estadual Paulista
“Júlio de Mesquita Filho”, Instituto de Biociências,
Campus Botucatu, como requisito para obtenção do título
de Bacharel em Física Médica.

Orientador: Joel Mesa Hormaza

BOTUCATU
2023

P381f	<p>Pelegati, Mariana Antunes</p> <p>Funções de perda de energia (ELF) no limite óptico a partir de fatores de forma atômicos / Mariana Antunes Pelegati. -- Botucatu, 2023</p> <p>28 f.</p> <p>Trabalho de conclusão de curso (Bacharelado - Física Médica) - Universidade Estadual Paulista (Unesp), Instituto de Biociências, Botucatu</p> <p>Orientador: Joel Mesa Hormaza</p> <p>1. Funções de perda de energia. 2. Fatores de forma. 3. Função dielétrica. 4. Aproximação dielétrica. I. Título.</p>
-------	---

Sistema de geração automática de fichas catalográficas da Unesp. Biblioteca do Instituto de Biociências, Botucatu. Dados fornecidos pelo autor(a).

Essa ficha não pode ser modificada.

DEDICATÓRIA

Dedico este trabalho ao meu irmão, meu maior orgulho e amor. Espero ser para você um exemplo que te inspire a crescer e alcançar seus objetivos.

Aos meus amados pais, que são meu exemplo e inspiração. Obrigada por todo apoio e confiança.

À minha madrinha e meu tio por todo suporte sempre e todo investimento na minha educação ao longo dos anos. Sem esse apoio não teria tido todas as grandes oportunidades que tive para chegar até aqui.

AGRADECIMENTOS

Agradeço ao meu orientador Professor Dr. Joel Mesa Hormaza por todo apoio, ensinamentos e, principalmente, por toda dedicação. Seu auxílio foi fundamental para o desenvolvimento deste trabalho.

Meus agradecimentos aos meus amigos e familiares por todo amor e apoio durante todos esses anos.

Ao Instituto de Biociências de Botucatu pelo ambiente acadêmico, sempre proporcionando o aprendizado e crescimento pessoal, e pelo apoio financeiro da bolsa UNESP Presente. Agradecimentos também à Reitoria da UNESP pelo apoio financeiro com a bolsa PIBIC-RT.

Resumo

A formulação dielétrica e a função de perda de energia têm sido utilizadas no estudo de interação de partículas carregadas com materiais biológicos. A metodologia de dados ópticos é aplicável em uma ampla gama de níveis energéticos e a uma variedade de tipos de alvos. Além disso, possibilita o cálculo de grandezas de partículas carregadas em diferentes materiais, conhecidos como momentos estatísticos da distribuição de perda de energia. Contudo, existem limitações associadas a essa metodologia. O fator de forma complexo f é o parâmetro fundamental para todos os dispositivos ópticos. Em energias de fótons mais altas (raios X), o fator de forma se torna acessível para previsões teóricas com base na física atômica e no fator de forma atômico. A interação dos raios X com a matéria pode ser descrita empregando constantes ópticas, como o índice complexo de refração n_r e a função dielétrica $\varepsilon(E)$, que estão relacionados aos fatores de forma. Foram calculadas as funções de perda de energia para cada classe de fatores de forma atômicos adotada a partir da relação entre a função dielétrica e os fatores de forma atômicos. Para isso, foram utilizados dois materiais (água e PMMA) para os quais existem dados experimentais da função de perda de energia, com utilização ampla em dosimetria, como base para comparação dos resultados. Os resultados das funções de perda de energia calculadas apresentaram diferenças em relação a função de perda de energia experimental para ambos os materiais. A discrepância ocorreu principalmente para energias abaixo de 30 eV, com erros acentuados abaixo dessa energia. Essa inconsistência entre os resultados das funções de perda de energia ocorre devido à existência de diversos formalismos para o cálculo de fatores de forma atômicos, que também apresentam discrepâncias entre seus valores para energias abaixo de 30 eV.

Abstract

The dielectric formulation and the energy loss function have been used in the study of the interaction of charged particles with biological materials. The optical data methodology is applicable over a wide range of energy levels and to a variety of target types. Additionally, it enables the calculation of quantities for charged particles in different materials, known as statistical moments of the energy loss distribution. However, there are limitations associated with this methodology. The complex form factor f is the fundamental parameter for all optical devices. At higher photon energies (X-rays), the form factor becomes accessible for theoretical predictions based on atomic physics and the atomic form factor. The interaction of X-rays with matter can be described by employing optical constants such as the complex refractive index n_r and the dielectric function $\varepsilon(E)$, which are related to the form factors. Energy loss functions were calculated for each class of atomic form factors adopted from the relationship between the dielectric function and atomic form factors. For this purpose, two materials (water and PMMA) with experimental data on the energy loss function, widely used in dosimetry, were used as a basis for comparison of the results. The results of the calculated energy loss functions showed differences compared to the experimental energy loss function for both materials. The discrepancy occurred mainly for energies below 30 eV, with pronounced errors below that energy. This inconsistency between the results of the energy loss functions arises due to the existence of various formalisms for the calculation of atomic form factors, which also show discrepancies in their values for energies below 30 eV.

SUMÁRIO

RESUMO.....	6
ABSTRACT.....	7
1. INTRODUÇÃO.....	9
1.1. FORMULAÇÃO MELF-GOS.....	10
1.2. FATORES DE FORMA E ELF.....	11
2. OBJETIVO.....	13
3. METODOLOGIA	13
3.1. BASES DE DADOS.....	13
3.1.1. CHANTLER	13
3.1.2. HENKE.....	14
3.1.3. EPDL97	15
3.1.4. KISSEL.....	15
3.2. INTERVALOS ENERGÉTICOS DOS FATORES DE FORMA	16
3.3. INTERVALOS ENERGÉTICOS DAS ELFS	17
4. RESULTADOS E DISCUSSÕES	18
4.1. FATORES DE FORMA	18
4.2. ÁGUA	20
4.3. PMMA	23
5. CONCLUSÃO	27
6. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	28

1. Introdução

O conhecimento dos processos de espalhamento inelástico de íons e elétrons na matéria condensada é essencial em muitos campos aplicados, desde a ciência de materiais e de superfícies até na física médica.

O livre caminho médio inelástico (*Inverse mean free path* - IMFP) é uma medida crucial que representa a distância média entre colisões inelásticas consecutivas. Esta grandeza física desempenha um papel fundamental na análise quantitativa da interação de feixes de íons com sólidos e líquidos, assim como na aplicação da técnica de Monte Carlo. Ao mesmo tempo, é essencial considerar que elétrons secundários de baixa energia são a principal fonte de dano biológico após a exposição a projéteis iônicos energéticos [1]. Portanto, compreender a energia fornecida por elétrons que atravessam materiais biológicos é fundamental para prever e controlar os efeitos da radiação em organismos vivos. Isso implica entender a dependência da função dielétrica na transferência de energia, o que, por sua vez, tem repercussões significativas em áreas como radioterapia, física médica, radiação espacial, análise de biomateriais e nano/microdosimetria.

Apesar do crescente interesse na interação de elétrons com materiais biológicos, há uma escassez de dados experimentais nessa área. Para superar essa lacuna, várias abordagens teóricas foram desenvolvidas para calcular o IMFP e o poder de freamento (*stopping power*) dentro do contexto dielétrico. Atualmente, a metodologia de dados ópticos estendidos é a mais prática, pois combina baixo custo computacional com precisão razoável. Além disso, é aplicável em uma ampla faixa de energias e para diversos tipos de alvos, incluindo biomateriais [2, 3].

Essa abordagem utiliza dados ópticos experimentais, inicialmente relacionados à transferência de momento zero. Posteriormente, ela descreve a dependência da transferência de energia a partir da função dielétrica, incorporando uma extensão (ou extrapolação) para considerar a transferência de momento. Esse procedimento é adotado devido à falta de modelos teóricos elaborados ou cálculos para transferências de momentos finitos.

Contudo, existem duas limitações principais associadas a essa metodologia: (i) os dados ópticos nem sempre estão disponíveis (poucos ou nenhum dado publicado) ou cobrem apenas uma faixa limitada de transferência de energia, o que é especialmente problemático ao lidar com materiais biológicos; (ii) devido à escassez de dados experimentais além do limite óptico (para transferências de momento finito), a extensão usada frequentemente baseia-se em simplificações ou aproximações de Drude estendidas [4].

1.1. Formulação MELF-GOS

No formalismo dielétrico MELF-GOS (*Mermin Energy Loss Function – Generalized Oscillator Strength*) [5], o espectro de excitação de elétrons no alvo é tratado por meio de uma combinação de função de perda de energia (*Energy Loss Function – ELF*), que descrevem as excitações de elétrons nas camadas externas, e funções de força do oscilador generalizadas, que descrevem as excitações atômicas dos elétrons nas camadas internas. Esse método possibilita o cálculo de grandezas como o inverso do livre caminho médio (λ^{-1}), o *stopping power* (S) e o *straggling* (Ω^2) de partículas carregadas em diferentes materiais, conhecidos como momentos estatísticos da distribuição de perda de energia.

O formalismo dielétrico [5] fornece as expressões necessárias para calcular esses três momentos estatísticos de uma partícula energética que interage com um meio material através da aproximação dielétrica:

$$\frac{2}{\hbar\pi v^2} \int_0^\infty dk \frac{\rho_q^2(k)}{k} \int_0^{kv} (\hbar\omega)^n \text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(k, \omega)} \right] d\omega = \begin{cases} \lambda^{-1} & \text{se } n = 0 \\ S & \text{se } n = 1 \\ \Omega^2 & \text{se } n = 2 \end{cases} \quad (1)$$

Na Equação 1, temos que v é a velocidade do projétil, $\hbar\omega$ e $\hbar k$ são, respectivamente, a energia e o momento transferidos em uma colisão inelástica, $\rho_q(k)$ é a transformada de Fourier da densidade eletrônica de um estado de carga q do projétil e $\text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(k, \omega)} \right]$ é a função de perda de energia do alvo, ELF. Na Figura 1 é apresentada um exemplo de ELF.

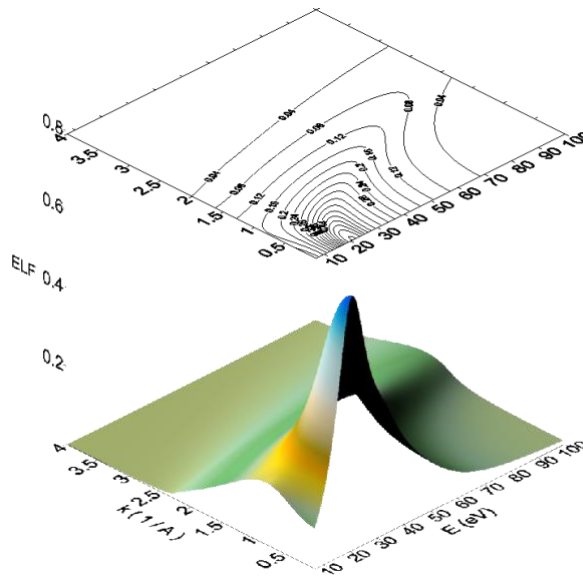


Figura 1 – Função de perda de energia (ELF) da água.

No limite óptico ($k = 0$), a ELF de Mermin coincide com a ELF de Drude, então podemos utilizar a equação abaixo para ajustar os parâmetros ω_i , γ_i e A_i :

$$\text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon_M(\omega_i, \gamma_i; k = 0, \omega)} \right] = \frac{\omega_i^2 \omega \gamma_i}{(\omega_i^2 - \omega^2)^2 + (\omega \gamma_i)^2} \quad (2)$$

Os parâmetros ω_i , γ_i e A_i na Equação 2 estão associados à posição, largura e intensidade, respectivamente, do i -ésimo pico na ELF experimental do alvo. Esses parâmetros são determinados por meio de um ajuste dos dados experimentais na região óptica e $\omega_{th,i}$ está relacionado ao limiar de energia.

1.2. Fatores de forma e ELF

O fator de forma atômico descreve a distribuição espacial de elétrons em um átomo, sendo utilizado especialmente na física de partículas e na difração de raios X, para calcular como a matéria interage com radiações eletromagnéticas. Em essência, o fator de forma atômico fornece informações sobre a distribuição de densidade eletrônica em torno do núcleo de um átomo, o que é fundamental para entender como a matéria dispersa ou absorve radiação. O fator de forma atômico é definido por:

$$f(\vec{Q}, E) = f_0(\vec{Q}) + f'(E) + if''(E) \quad (3)$$

Na Equação 3, Q é a transferência de momento igual a $\vec{Q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$, sendo $|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$, e E é a energia do fóton. No caso do espalhamento elástico, temos que $Q^2 = \vec{k}_i^2 - \vec{k}_f^2 = k_i^2 - k_f^2 = k_i^2 + k_f^2 - 2\vec{k}_i \vec{k}_f = 2Q^2(1 - \cos(2\theta))$, de maneira que $|Q| = 2|k|\sin(\theta) = \frac{4\pi\sin(\theta)}{\lambda}$ e 2θ é o ângulo total de espalhamento do fóton.

Além disso, na Equação 3 temos que o primeiro fator f_0 , é o termo não ressonante, devido ao espalhamento da radiação pela nuvem eletrônica do átomo e é proporcional ao espalhamento de Thomson. Os fatores $f'(E)$ e $f''(E)$ são os termos ressonantes, conhecidos como correções de dispersão. Também são chamados de fatores de espalhamento anômalos, embora seja aceito que não há nada verdadeiramente anômalo neles [6]. Essas correções atingem seus valores extremos quando a energia dos raios X é igual a uma das energias de borda de absorção do átomo e esse comportamento ressonante é específico para cada elemento.

Se tratarmos os átomos em um sistema condensado como dipolos, especificamente em baixas energias ou ângulos de espalhamento pequenos, a interação dos raios X com a matéria pode ser descrita empregando constantes ópticas, como o índice complexo de refração n_r e a função dielétrica $\varepsilon(E)$, que estão relacionados aos fatores de forma f_j pela relação:

$$n_r = n + ik = \sqrt{\varepsilon(E)} = 1 + \delta - i\beta \quad (4)$$

Os componentes real e imaginário, δ e β , descrevem os aspectos dispersivos e absorventes da interação entre ondas e matéria. Esses componentes podem ser calculados a partir dos fatores de espalhamento atômico (f_1 e f_2) usando:

$$\delta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1 \quad (5)$$

$$\beta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2 \quad (6)$$

Os fatores f_1 e f_2 são definidos a partir de f' e f'' de formas distintas nas diferentes formulações como será visto posteriormente. Nas Equações 5 e 6, temos que λ é o comprimento de onda do fóton, r_e é o raio clássico do elétron [6] e n_a é a densidade atômica (cm^{-3}) definida por:

$$n_a = \frac{\rho N_a}{M_a} \quad (7)$$

Na Equação 7, temos que ρ é a densidade (g/cm^3), N_a é o número de Avogadro ($6,02214129 \times 10^{23} mol^{-1}$) e M_a é a massa molar (g/mol). Em forma compacta, podemos escrever:

$$\sqrt{\varepsilon(E)} = 1 - \frac{r_e}{2\pi} \lambda^2 \sum_j n_j f_j \quad (8)$$

Sendo que, na Equação 8, n_j é a densidade atômica do elemento j do composto [6]. Com isso, utilizamos fatores de forma para calcular a função dielétrica e, a partir dela, calculamos a ELF utilizando:

$$ELF = \text{Im} \left[-\frac{1}{\varepsilon(E)} \right] \quad (9)$$

2. Objetivo

Diante das limitações apresentadas pela escassez de dados experimentais e das abordagens teóricas existentes, o objetivo do trabalho foi calcular teoricamente as funções de perda de energia (ELF) de compostos, no limite óptico ($k = 0$), a partir da relação entre a função dielétrica e os fatores de forma dos átomos que compõem o material. Para isso, serão utilizados dois materiais (água e PMMA) para os quais existem dados experimentais da ELF e que tem utilização ampla em dosimetria como base para comparação dos resultados.

3. Metodologia

De forma inicial, foi realizado o cálculo das ELFs para cada base de dados separadamente e não foi obtido resultado satisfatório em nenhum dos casos. Sendo assim, utilizando as equações apresentadas no item 1.2 foram calculadas as ELFs da água e do PMMA de duas maneiras diferentes: (i) utilizando a média de cada fator de forma f_1 e f_2 das bases de dados; (ii) utilizando a média das ELFs de cada base de dados. Ambos os cálculos foram realizados na faixa de energia de 7 a 200 eV e implementados utilizando o R.

Na Tabela 1, são apresentadas a composição e a densidade dos materiais utilizados (água e PMMA).

Tabela 1 - Composição e a densidade dos materiais.

	Composição	Densidade (g/cm^3)
Água	H ₂ O	0,997
PMMA	C ₅ H ₈ O ₂	1,190

Para realizar os cálculos, foram utilizados os valores dos fatores de forma de 4 bases de dados diferentes: Chantler [6], Henke [7], EPDL97 [8] e Kissel [9].

3.1. Bases de dados

3.1.1. Chantler

A base de dados *Form Factor, Attenuation and Scattering Tables* (FFAST) utiliza o trabalho de Chantler [6] e está disponível no *National Institute of Standards and Technology* (NIST) e no *European Synchrotron Radiation Facility* (ESRF), sendo criada para aplicações em difração de raios X, interferometria e cristalografia.

O método utilizado é principalmente teórico e a formulação apresentada evita a maioria das limitações de trabalhos anteriores. Nele, cada átomo é tratado como um sistema isolado e os dados são calculados dentro do framework auto consistente de Dirac-Hartree-Fock (DHF) [6].

Os dados apresentam informações sobre elementos atômicos de $Z=1-92$ e alguns compostos, abrangendo energias de 0 a 433 keV. São fornecidas as tabulações para os componentes f_1 e f_2 dos fatores de forma, fatores de correção estimados e uma estimativa simples para a soma das contribuições de espalhamento de um átomo isolado.

O formalismo escolhido por Chantler [6], possui as seguintes relações que caracterizam a parte real e a parte imaginária do fator de espalhamento do átomo f :

$$Re(f) = f_0 + f' + f_{NT}, \quad f' = f_1 + f_{rel} - Z \quad (10)$$

$$Im(f) = f''(E) = f_2(E) = \frac{E\sigma_{PE}(E)}{2hcr_e} \quad (11)$$

Nas Equações 10 e 11, temos que f_{rel} é um pequeno termo de correção relativística, f_{NT} é um pequeno termo nuclear de Thomson, f_0 é o fator de forma angular, f' é o fator de espalhamento anômalo real (dependendo da energia E dos raios X e do número atômico Z) e σ_{PE} é a seção de choque do efeito fotoelétrico na energia do fóton. Os valores de f_1 e f_2 de Chantler, diferente das demais bases de dados, são apresentados em e/atom.

3.1.2. Henke

Os dados de Henke [7] estão disponíveis no *Lawrence Berkeley National Laboratory* (LBNL) e no ESRF. A determinação dos componentes do fator de espalhamento atômico, específicos para a dispersão para frente, foi realizada de forma semiempírica para 92 elementos na faixa de energia de 30 a 30.000 eV. Esses valores foram obtidos a partir de tabulações de espalhamento para frente, com a adição de uma correção de fator de forma simples dependente do ângulo.

Uma suposição crucial é que o espalhamento de raios X de baixa energia por átomos individuais dentro de um sistema é essencialmente inalterado pelo estado condensado do sistema e pode ser descrito pelos fatores de espalhamento atômicos. A determinação dos fatores de forma de espalhamento é baseada nos dados disponíveis sobre a seção de choque de fotoabsorção. Assim, esses fatores podem ser determinados de maneira única através das relações de dispersão quântica pelo espectro de fotoabsorção do átomo específico.

As equações de dispersão usadas para calcular os componentes do fator de espalhamento atômico para frente $f_1(0)$ e $f_2(0)$ a partir das seções de choque de fotoabsorção atômica μ_a são:

$$f_1(0) = Z^* + C \int_0^\infty \frac{\epsilon^2 \mu_a(\epsilon)}{E^2 - \epsilon^2} d\epsilon, \quad Z^* = Z - \left(\frac{Z}{82,5}\right)^{2,37} \quad (12)$$

$$f_2(0) = \frac{\pi}{2} C E \mu_a(E) \quad (13)$$

Nas Equações 12 e 13, temos que Z^* é o valor limite de $f_1(0)$ levando em consideração os efeitos relativísticos, C é uma constante igual a $(\pi r_e \hbar c)^{-1} = 0,9111$, E é a energia do fóton e $\mu_a(E)$ é a seção de choque de fotoabsorção atômica na energia do fóton incidente (E).

3.1.3. EPDL97

A *Evaluated Photon Data Library* (EPDL), versão 1997 (EPDL97), foi criada no *Lawrence Livermore National Laboratory* para ser utilizada em cálculos de transporte de fótons. Esta biblioteca inclui dados dos fatores de espalhamento anômalos de 1 eV a 10 MeV para os elementos $Z = 1$ a 100 e está disponível no ESRF.

Esses dados são resultado de uma compilação dos fatores de espalhamento anômalos de Cullen [10] calculados usando a relação de dispersão relativística, conforme detalhado em Pratt [11] e em conjunto com os próprios dados de fotoionização e fotoexcitação da EPDL97. Nesse formalismo, é levado em consideração que como a seção de choque fotoelétrica relativística varia como $1/E$ em altas energias, a integral de dispersão relativística não é convergente sem considerar outros efeitos contribuintes [8]. Os fatores de espalhamento anômalos resultantes variam de um valor de $-Z$ para energia do fóton igual a zero até um limite não nulo para altas energias, conforme definido por Kissel e Pratt [12].

3.1.4. Kissel

O banco de dados RTAB, base de dados de espalhamento Rayleigh, utiliza o trabalho de Kissel [9] e foi preparado com o principal objetivo de disponibilizar extensas tabulações das seções de choque diferenciais de espalhamento elástico e amplitudes. Além disso, inclui novas tabulações de fatores de espalhamento anômalo, fatores de forma totais do átomo e seções de choque de fotoefeito total do átomo.

O modelo de transições de elétrons relativísticos em um potencial local e central serve como ponto de partida. As tabulações relativas aos fatores de espalhamento anômalos no banco de dados RTAB abrangem todos os átomos com $Z = 1-99$ na faixa de energia de 0 a 10 MeV.

O sinal de f'' difere do comumente apresentado ($f'' = -f_2$ de Henke [7]) e a contribuição constante das transições ligadas-ligadas é incluída apenas nos fatores de espalhamento anômalos reais. São necessárias uma expressão analítica e forças do oscilador para calcular o resultado completo.

A principal característica dos valores dos fatores de espalhamento anômalos do trabalho de Kissel [13] é a inclusão explícita de transições ressonantes *bound-bound*, que se referem a ressonâncias associadas a transições entre estados ligados em um sistema físico, como átomos ou moléculas. No modelo subjacente de transições de elétron único em um potencial, uma transição ressonante *bound-bound* ocorre em uma única energia, representando a diferença entre as energias dos dois orbitais envolvidos na transição.

Nessa formulação, os fatores de espalhamento anômalos g' e g'' estão relacionados com os fatores de espalhamento anômalos f' e f'' definidos convencionalmente em referência ao limite de alta energia não relativística. Essa relação é dada por:

$$g' = f' + \left\{ N + \left[\frac{ReA^R(\infty, 0)}{r_e} \right] \right\} \quad (14)$$

$$g'' = f'' \quad (15)$$

Nas Equações 14 e 15, N é dado pelo número de elétrons ligados (ou seja, para um átomo neutro $N = Z$) e $ReA^R(\infty, 0)$ é a parte real da amplitude para espalhamento elástico (Rayleigh), que na aproximação dipolar não relativística se torna igual a $-Nr_e$.

3.2. Intervalos energéticos dos fatores de forma

Foi necessário selecionar faixas de energia para os fatores de forma de cada base de dados, visto que não são todas que iniciam a energia em 7 eV. Essa seleção foi a mesma para os elementos que compõem água e o PMMA (H, C, O). As faixas de energias e as correspondentes bases de dados utilizadas estão apresentadas na Tabela 2.

Tabela 2 – Faixas de energias e as respectivas bases de dados utilizadas no cálculo das médias dos fatores de forma.

Elemento	Fator de forma	7-10 eV	10-30 eV	30-200 eV
Hidrogênio	f_1	EPDL97 e Kissel	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel, Chantler e Henke
	f_2			
Carbono	f_1	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel, Chantler e Henke
	f_2		EPDL97, Kissel, Chantler e Henke	
Oxigênio	f_1	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel, Chantler e Henke
	f_2	EPDL97 e Chantler	EPDL97, Kissel, Chantler e Henke	

As informações são utilizadas na construção de funções para calcular a média de cada fator de forma f_1 e f_2 de cada elemento. Com esses valores, foi possível calcular uma função dielétrica (Equação 8) “média” e, a partir disso, utilizamos a Equação 9 para calcular a ELF da água e do PMMA.

3.3. Intervalos energéticos das ELFs

A segunda abordagem utilizada foi utilizar as Equações 8 e 9 de forma separada para cada base de dados, resultando em ELFs individuais e, posteriormente, determinar a ELF "média". Nesse contexto, também foi realizada uma seleção das energias em que cada conjunto de dados contribui para o cálculo da média. Essa abordagem foi adotada tanto no cálculo da ELF média da água quanto para a ELF média do PMMA. Assim, foram empregados os conjuntos de dados pertinentes em cada faixa de energia conforme detalhado na Tabela 3.

Tabela 3 – Faixas de energias e as respectivas bases de dados utilizadas no cálculo da média da ELF.

	7-10 eV	10-30 eV	30-200 eV
ELFs	EPDL97	EPDL97, Kissel e Chantler	EPDL97, Kissel, Chantler e Henke

4. Resultados e discussões

4.1. Fatores de forma

Nas Figuras de 2 a 7, são apresentados os fatores de forma f_1 e f_2 do hidrogênio, carbono e oxigênio de cada uma das bases de dados utilizadas.

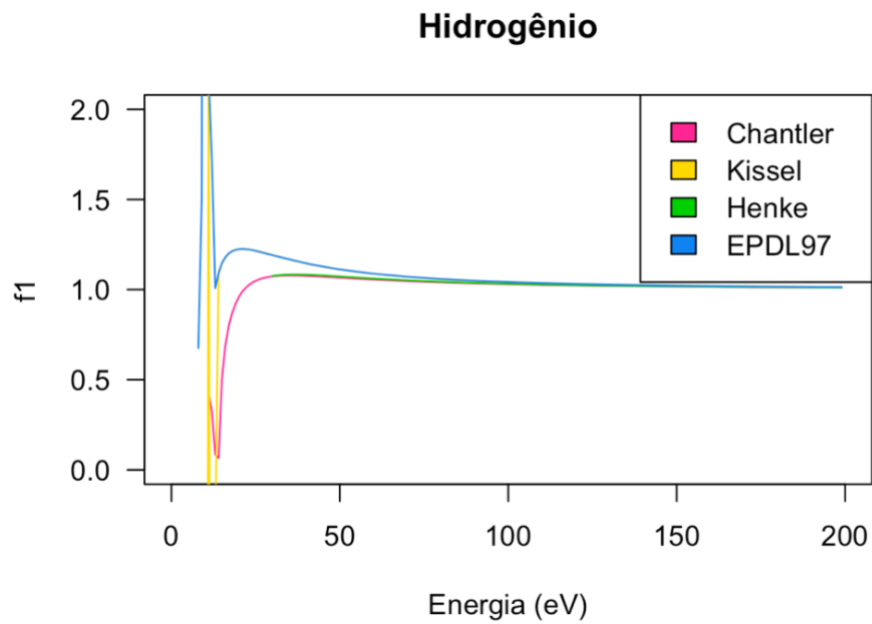


Figura 2 – Fator de forma f_1 do hidrogênio.

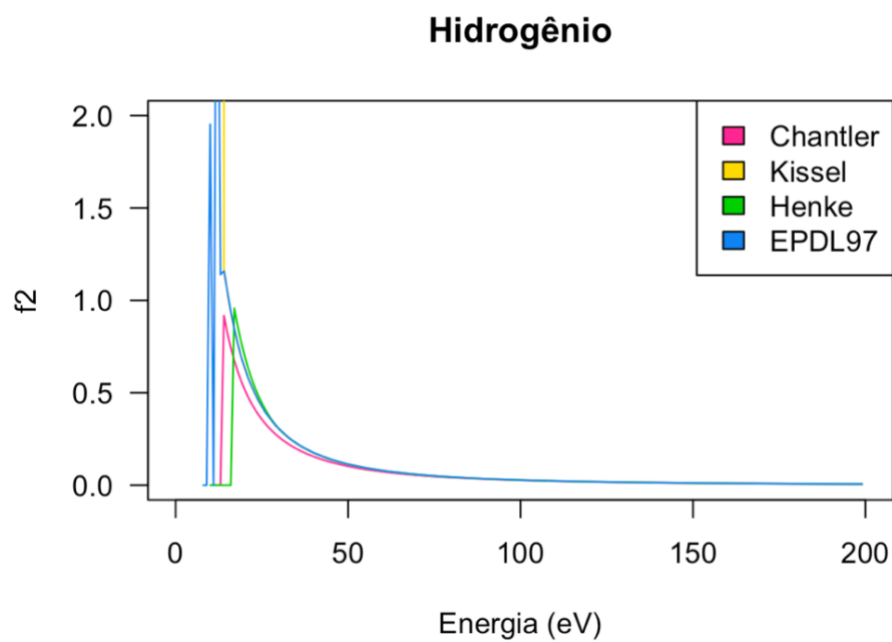


Figura 3 – Fator de forma f_2 do hidrogênio.

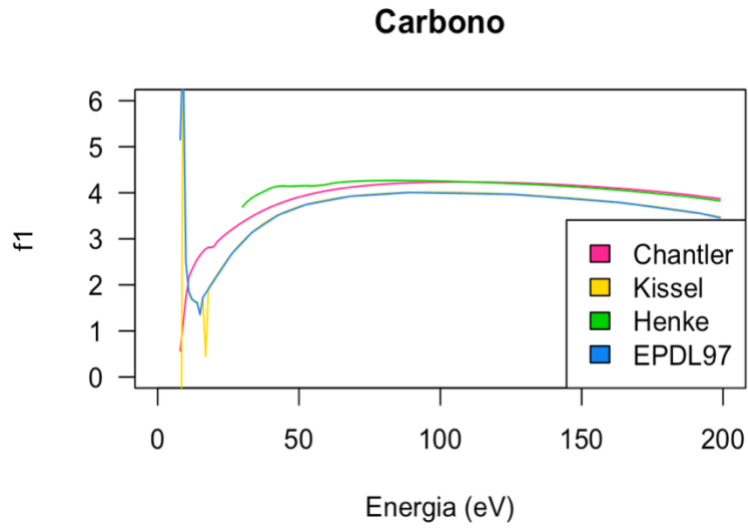


Figura 4 – Fator de forma f_1 do carbono.

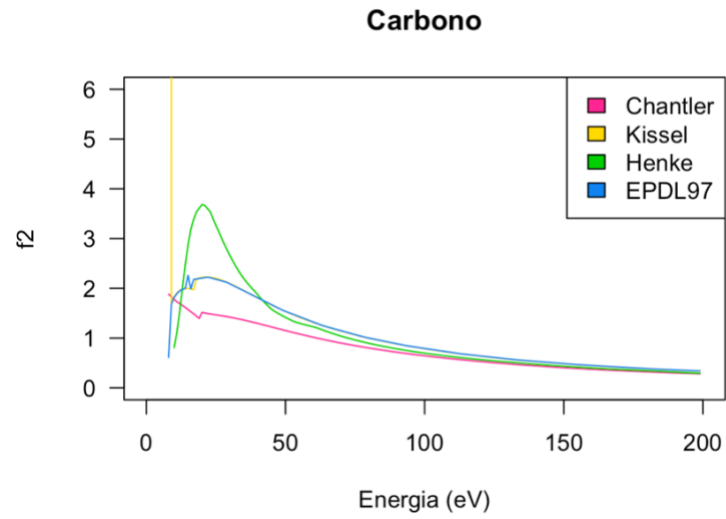


Figura 5 – Fator de forma f_2 do carbono.

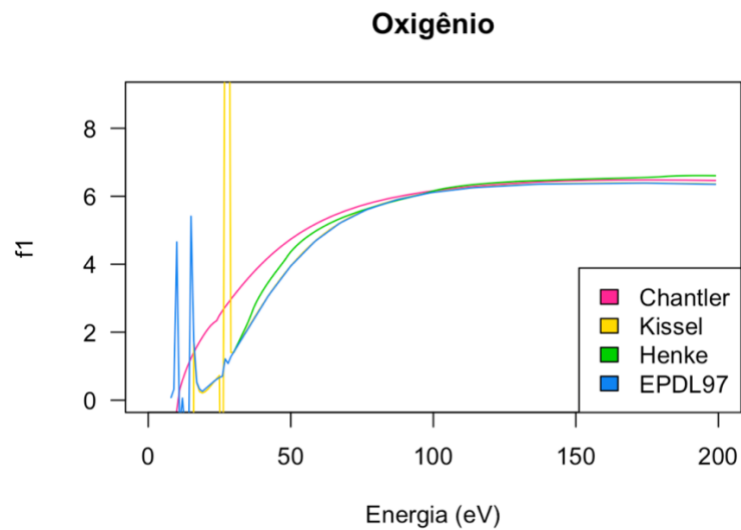


Figura 6 – Fator de forma f_1 do oxigênio.

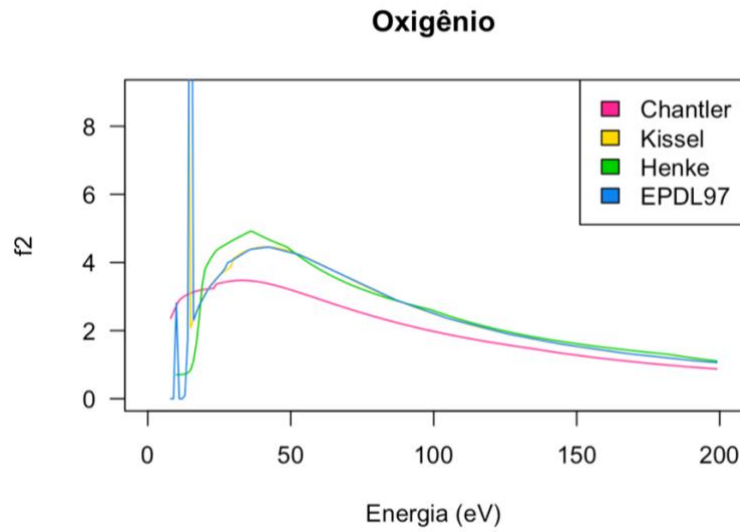


Figura 7 – Fator de forma f_2 do oxigênio.

A partir dos gráficos das Figuras de 2 a 7, podemos observar que os valores dos fatores de forma das diferentes bases de dados são próximos a partir de 30 eV, porém apresentam discrepâncias para energias mais baixas. Isso ocorre visto que os valores dos fatores de forma e suas definições são obtidos de maneiras diferentes para cada base de dados, como apresentado no item 3.1.

4.2. Água

Na Figura 8, são apresentadas as ELF's da água de cada base de dados e a ELF de Drude. Também foi calculado o erro de cada ELF (Figura 9) utilizando a Equação 16.

$$Erro = \frac{|ELF_{calculada} - ELF_{Drude}|}{ELF_{Drude}} \times 100 \quad (16)$$

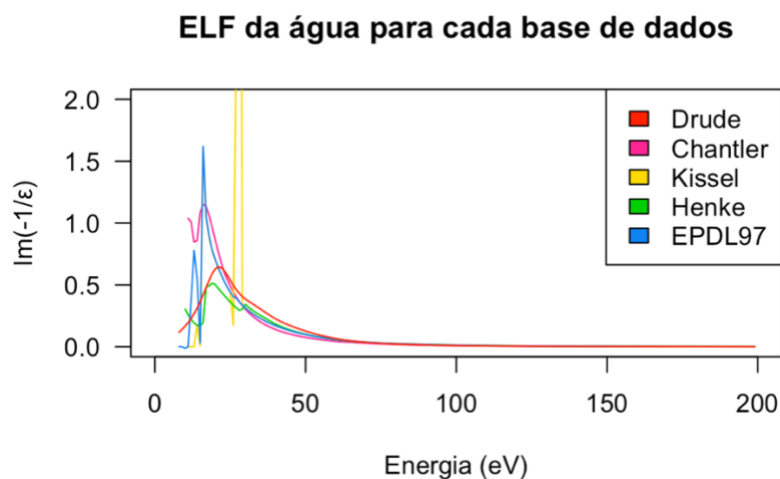


Figura 8 – ELF da água de cada base de dados e comparada com a ELF de Drude.

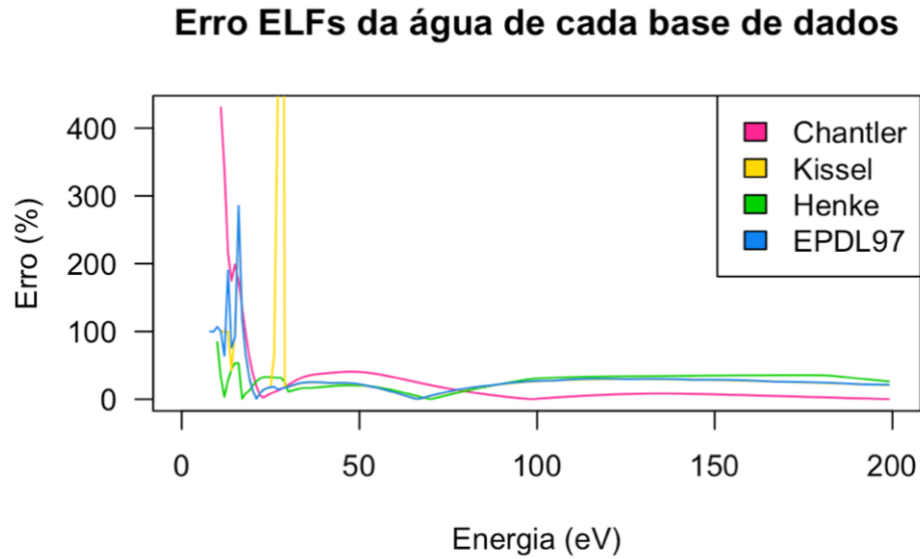


Figura 9 – Erro das ELFs da água de cada bases de dados calculadas separadamente.

Na Figura 10, é apresentada a ELF da água utilizando a média de cada fator de forma f_1 e f_2 das bases de dados, como mostrado no item 3.2. Nessa figura, não estão apresentados os resultados obtidos para energias 11 eV e no intervalo de 16-18 eV. Para essas energias, os valores médios de f_1 e f_2 calculados apresentam comportamento ressonante, devido contribuição das bases de Kissel [9] e EPDL97 [8]. A inclusão dessas energias no cálculo, distorce o gráfico e impede a verificação da proximidade com os resultados experimentais para as demais energias. Adicionalmente, foi calculado o erro (Equação 16) apresentado na Figura 11.

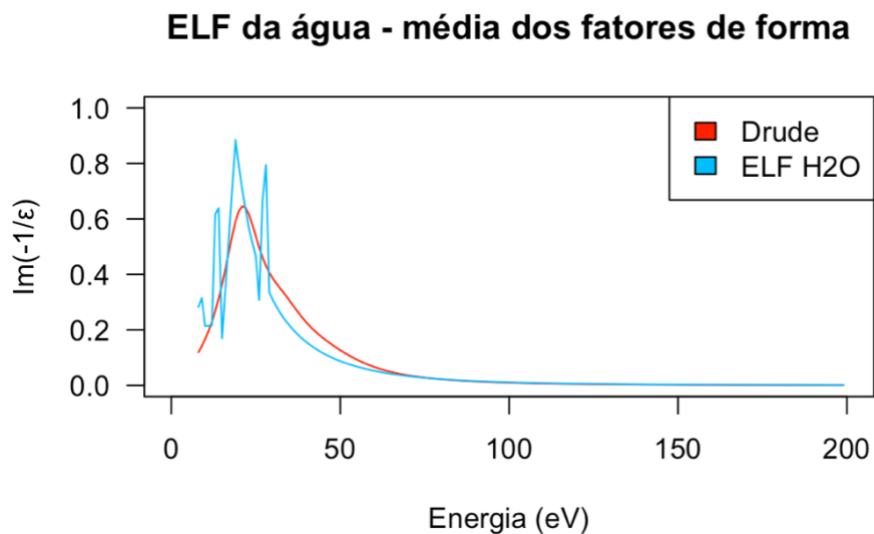


Figura 10 – ELF da água calculada utilizando a média dos fatores de forma das diferentes bases de dados e comparada com a ELF de Drude.

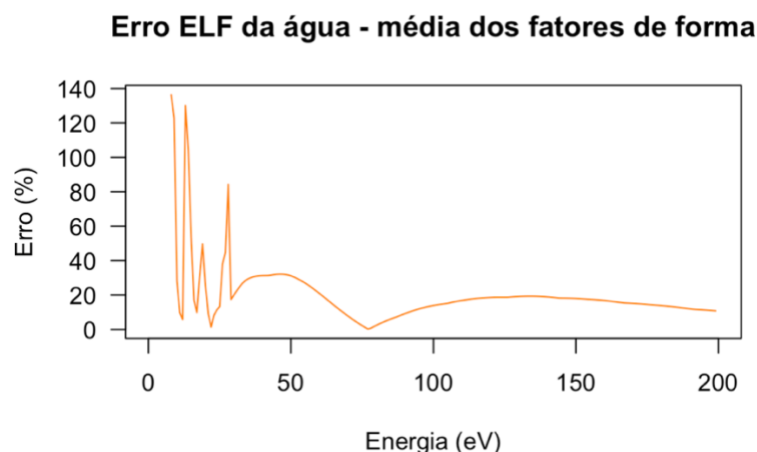


Figura 11 – Erro da ELF da água calculada utilizando a média dos fatores de forma.

De acordo com a Figura 10, a diferença entre os dois conjuntos de dados é pequena, mas é possível identificar algumas tendências. Por exemplo, a ELF calculada é ligeiramente maior que a ELF experimental em energias baixas. Isso pode ser devido a erros nos fatores de forma utilizados para levar em conta a estrutura molecular da água. Analisando a Figura 11, observamos que a discordância entre o cálculo realizado e os dados experimentais acima de 30 eV está menor ou igual a 20%. Para algumas energias abaixo de 30 eV, o erro atinge valores acima de 40%, ultrapassando 100% em alguns casos. Isso é compatível com o observado na Figura 10, em que as caudas das ELFs acima de 30 eV se aproximam enquanto a diferença é mais acentuada na subida da curva próximo ao pico da experimental (~25 eV).

Na Figura 12, temos a ELF da água calculada a partir da média das ELFs de cada base de dados, como mostrado no item 3.3, e a ELF de Drude para comparação. O erro da ELF foi calculado (Equação 16) e é apresentado na Figura 13.

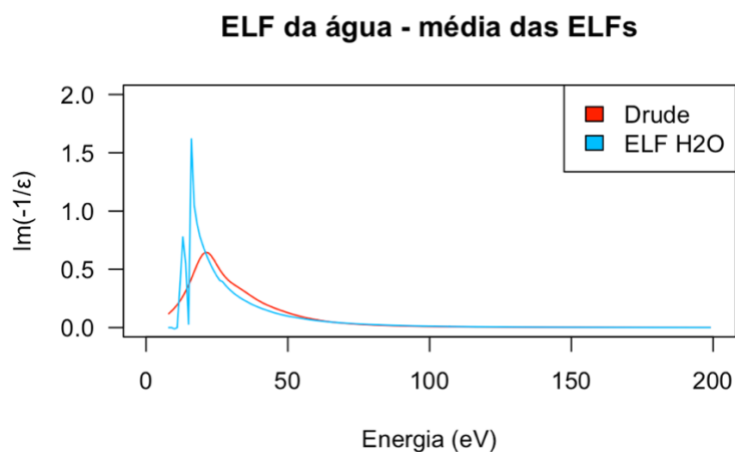


Figura 12 – ELF da água calculada utilizando a média das ELFs das diferentes bases de dados e comparada com a ELF de Drude.

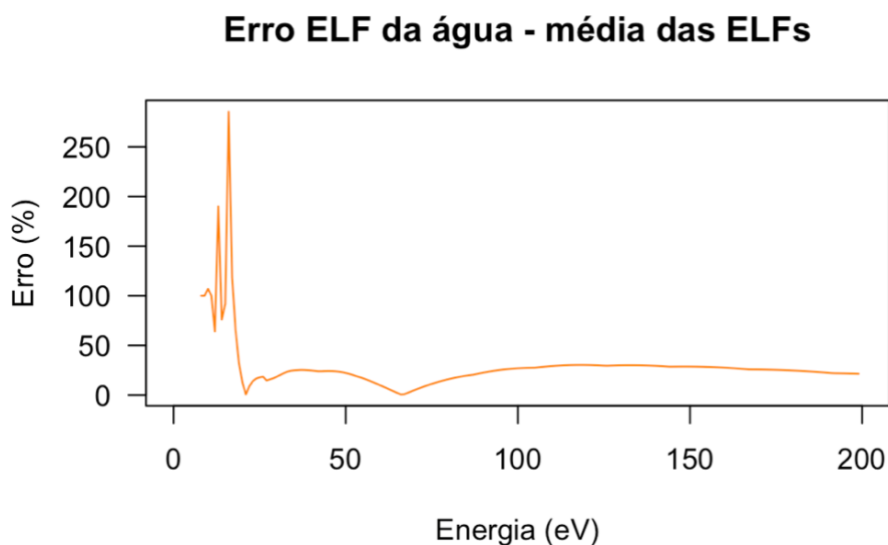


Figura 13 – Erro da ELF da água calculada utilizando a média das ELF's das diferentes bases de dados.

A Figura 12 mostra que a ELF calculada e a ELF experimental (Drude) são semelhantes em forma geral. No entanto, há algumas diferenças significativas. A ELF calculada é um pouco mais alta do que a ELF experimental em energias baixas, e é um pouco mais baixa do que a ELF experimental em energias altas. Em geral, a figura sugere que a ELF calculada parece um bom modelo para a água. Ao analisar a Figura 13, percebemos que a discrepância entre o cálculo realizado e os dados experimentais é de até 30% para energias acima de 30 eV. No entanto, para algumas energias abaixo, o erro atinge valores superiores a 100%, alcançando até 200% em determinados casos. Isso é consistente com as observações na Figura 12, em que as caudas das ELF's acima de 30 eV se aproximam e abaixo possuem uma diferença mais acentuada.

Comparando as Figuras 9, 11 e 13, podemos observar que o erro foi maior para as ELF's quando calculadas separadamente para cada base de dados, sendo que o cálculo da ELF com a média dos fatores de forma resultou em um erro menor que quando calculada pela média das demais ELF's.

4.3. PMMA

Na Figura 14, são apresentadas as ELF's do PMMA de cada base de dados e a ELF de Drude. A figura evidencia que, de maneira geral, as ELF's calculadas com base nos fatores de forma f_1 e f_2 de diferentes conjuntos de dados apresentam coerência com a de Drude. Entretanto, observam-se algumas disparidades significativas. A ELF derivada dos dados de Henke demonstra maior proximidade com a ELF experimental. Por outro lado, a ELF calculada a partir dos dados de EPDL97 é ligeiramente inferior à Drude, ao passo que a ELF obtida das

bases de dados de Chantler e Kissel revela-se um pouco superior. O erro de cada uma dessas ELF's é mostrado na Figura 15 e foi calculado utilizando a Equação 16.

ELF do PMMA para cada base de dados

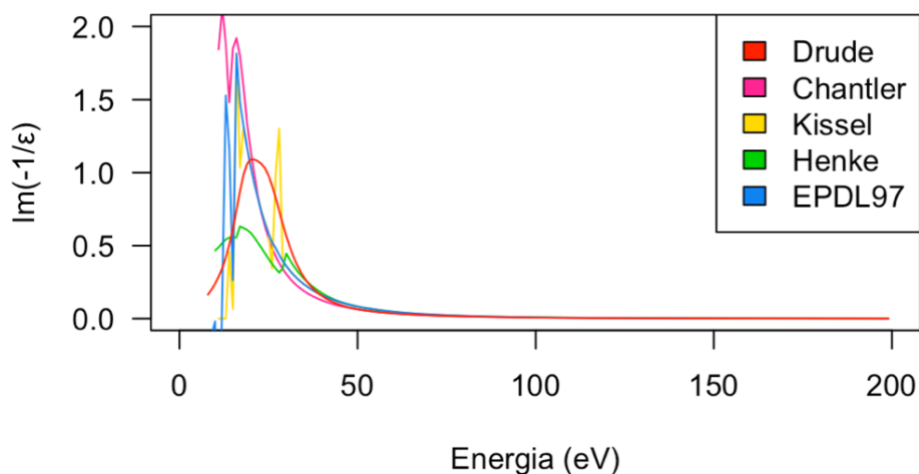


Figura 14 – ELF do PMMA para cada base de dados e comparada com a ELF de Drude.

Erro ELF's do PMMA de cada base de dados

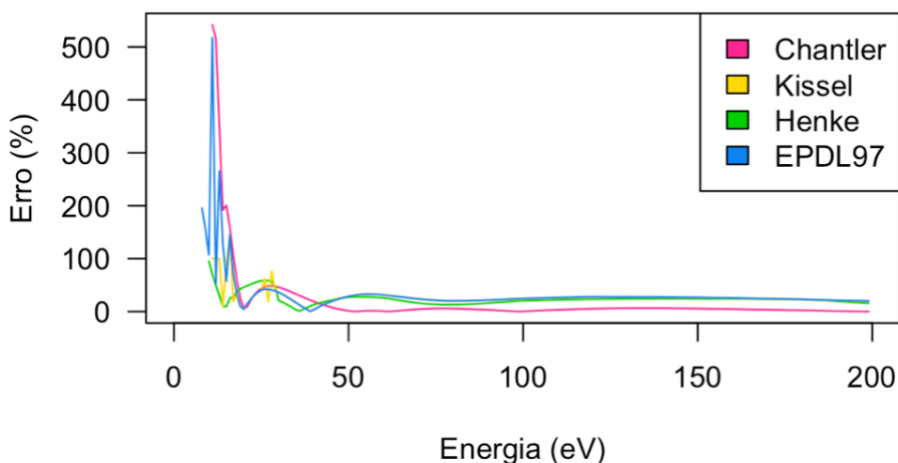


Figura 15 – Erro das ELF's do PMMA de cada bases de dados calculadas separadamente.

Na Figura 16, a ELF do PMMA é derivada pela média dos fatores de forma de diferentes conjuntos de dados, conforme descrito na seção 3.2. Os resultados indicam uma consistência aparente entre as ELF calculadas a partir dessas médias e a ELF experimental. No entanto, a análise também evidencia disparidades entre as ELF calculadas e as experimentais, especialmente com um aumento discreto nas ELF calculadas em baixas energias. O erro da ELF foi calculado utilizando a Equação 16 e é apresentado na Figura 17.

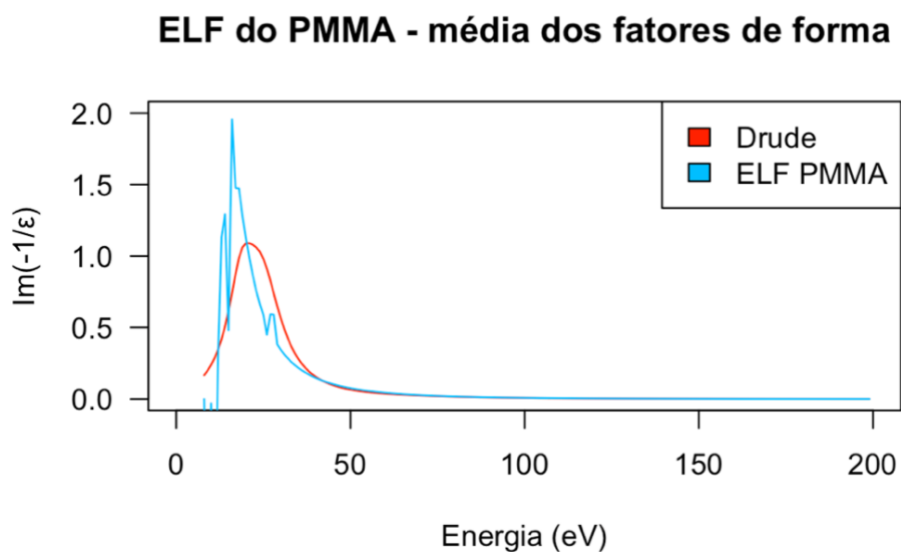


Figura 16 – ELF do PMMA calculada utilizando a média dos fatores de forma das diferentes bases de dados e comparada com a ELF de Drude.

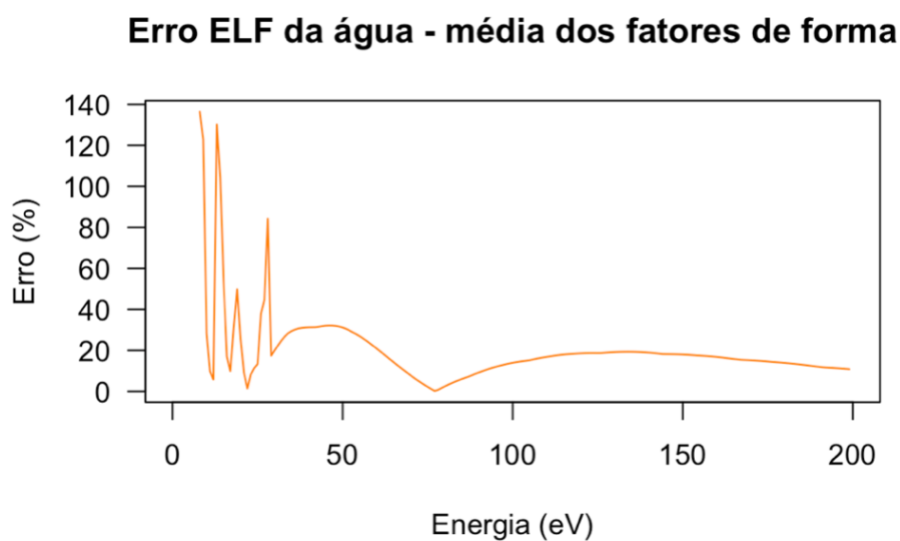


Figura 17 – Erro da ELF do PMMA quando calculada utilizando a média dos fatores de forma.

A partir da Figura 17, podemos observar que o erro obtido acima de 30 eV é na faixa de 20 a 30%, sendo que para energias menores que essa, o erro atinge valores mais altos, ultrapassando 100%. Dessa forma, ao analisar a Figura 16, vemos que as caudas das ELF's acima de 30 eV se aproximam e a discrepância aumenta abaixo dessa energia.

Na Figura 18, a ELF do PMMA é determinada pela média das ELF's de cada conjunto de dados, conforme explicado na seção 3.3. A análise revela que as ELF's calculadas a partir dessas médias, derivadas dos fatores de forma f_1 e f_2 de diferentes bases de dados, são consistentes com a ELF experimental definida pela formulação de Drude. Observa-se também

que, na região de baixa energia, as ELF's calculadas exibem uma ligeira elevação em relação à ELF experimental. O erro associado à ELF, como demonstrado na Figura 19, foi calculado por meio da Equação 16.

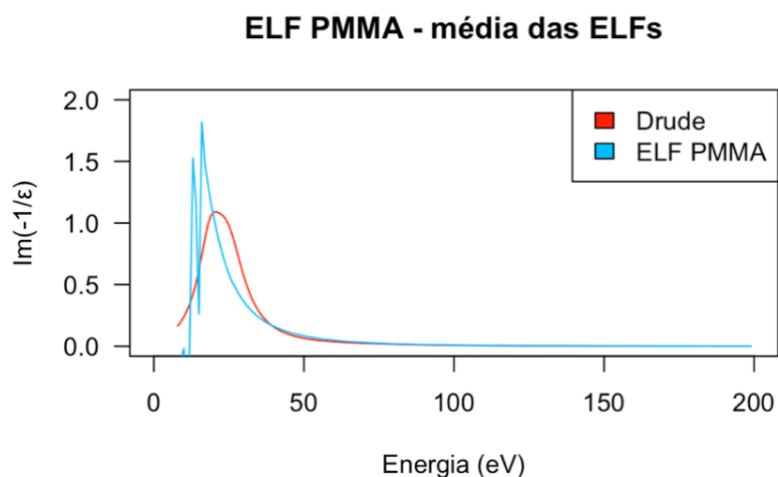


Figura 18 – ELF do PMMA calculada utilizando a média das ELF's das diferentes bases de dados e comparada com a ELF de Drude.

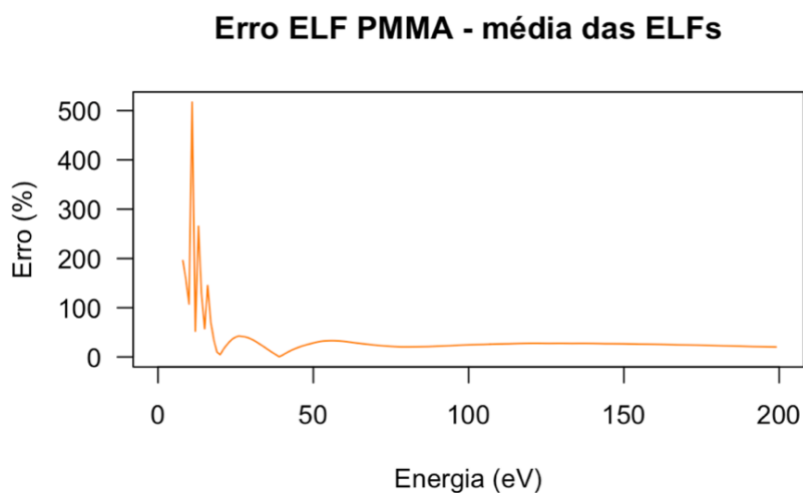


Figura 19 – Erro da ELF do PMMA quando calculada utilizando a média das ELF's das diferentes bases de dados.

Ao analisar a Figura 19, temos que a discrepância entre o cálculo realizado e os dados experimentais é de até 40% para energias acima de 30 eV. Porém, para algumas energias abaixo, o erro atinge valores muito superiores a 100%. Isso é consistente com os resultados Figura 18, em que as caudas das ELF's acima de 30 eV se aproximam e abaixo possuem uma diferença mais acentuada.

Assim como para a água, ao comparar as Figuras 15, 17 e 19, podemos observar que o erro foi maior para as ELF's quando calculadas separadamente para cada base de dados, sendo que o cálculo da ELF com a média dos fatores de forma resultou em um erro menor que quando calculada pela média das demais ELF's.

5. Conclusão

As ELF's calculadas individualmente por cada modelo não atingem resultados satisfatórios. Em todos os cálculos realizados, observamos um aumento acentuado no erro, especialmente para energias inferiores a 30 eV. Esse fenômeno decorre das divergências nos valores dos fatores de forma das bases de dados, particularmente abaixo dessa energia específica. Essa disparidade é atribuída à adoção de diferentes formalismos nos modelos utilizados, resultando em uma inconsistência entre os dados. As notáveis discrepâncias entre os resultados impactam significativamente as ELF's da água e do PMMA, desviando-os do resultado esperado.

No contexto mais amplo deste estudo científico, onde a formulação dielétrica e a ELF são aplicadas na investigação da interação de partículas carregadas com materiais biológicos, a metodologia de dados ópticos revela sua aplicabilidade em diversos níveis energéticos e tipos de alvos. A capacidade de calcular grandezas para partículas carregadas em diferentes materiais, conhecidas como momentos estatísticos da distribuição de perda de energia, é destacada. No entanto, são evidenciadas limitações associadas à metodologia, especialmente em relação ao fator de forma complexo f , que desempenha um papel fundamental em processos de interação da radiação com a matéria na região óptica.

Ao empregar energias mais elevadas, como raios X, o fator de forma torna-se acessível para previsões teóricas fundamentadas em princípios de física atômica e no fator de forma atômico. A interação dos raios X com a matéria é descrita através de constantes ópticas, como o índice complexo de refração n_r e a função dielétrica $\varepsilon(E)$, ambos relacionados aos fatores de forma. Diante das limitações, as ELF foram calculadas para cada classe de fatores de forma atômicos, utilizando a relação entre a função dielétrica e esses fatores. Os materiais escolhidos, água e PMMA, possuem dados experimentais da ELF amplamente utilizados em dosimetria, proporcionando uma base sólida para a comparação dos resultados.

Os resultados dos cálculos das ELF's revelaram diferenças substanciais em relação às ELF's experimentais para ambos os materiais. Essa inconsistência é atribuída à existência de diversos formalismos para o cálculo de fatores de forma atômicos, destacando a complexidade e os desafios associados a essa abordagem.

6. Referências bibliográficas

- [1] B. Boudaïffa, P. Cloutier, D. Hunting, M. A. Huels, L. Sanche, *Science*. 287, 1658, **2000**.
- [2] D. Emfietzoglou, I. Kyriakou, I. Abril, R. Garcia-Molina, H. Nikjoo, *Int. J. Radiat. Biology*. 88, 22, **2012**.
- [3] Z. Tan, W. Liu, *Appl. Rad. Isotop.* 82, 325, **2013**.
- [4] H. Nikjoo, S. Uehara, D. Emfietzoglou, *Interaction of Radiation with Matter*, CRC, Boca Raton, FL, **2012**.
- [5] I. Abril, R. Garcia-Molina, C. D. Denton, F. J. Pérez-Pérez, e N. R. Arista, *Phys. Rev. A*. 58, 357, **1998**.
- [6] Chantler C.T., *Theoretical Form Factor, Attenuation and Scattering Tabulation for Z=1-92 from E=1-10 eV to E=0.4-1.0 MeV*, J. Phys. Chem. Ref. Data 24, pp. 71-643, **1995**.
- [7] Henke B.L., Lee P., Tanaka T.J., Schimabukuro R.L. and Fujikawa B.K., *Low-energy x-ray interaction coefficients: photoabsorption, scattering, and reflection. E=100- 2000 eV Z=1-94*, atomic Data Nucl. Data Tables 27, pp. 1-144, **1982**.
- [8] Cullen D.E, Hubbell J.H and Kissel L., *EPDL97 The Evaluated Data Library, 97 Version*, UCRL-50400, Vol 6, Rev 5, **1997**.
- [9] Kissel L., *RTAB: the Rayleighscattering database*, Radiat. Phys. Chem. 59, pp. 185-200, **2000**.
- [10] Cullen D.E, *Program SCATMAN: A Code Designed to Calculate Photon Coherent Scattering Anomalous Scattering Factors and Cross Sections*, Lawrence Livermore National Laboratory, **1989**.
- [11] Pratt R.H., Kissel L. and Bergstrom P.M., *New relativistic S-matrix results for scattering-beyond the usual anomalous factors / beyond impulse approximation*, *Resonant Anomalous X-ray Scattering: Theory and Application*, ed G. Matterlik, C.J. Sparks and K. Fischer (Amsterdam: Elsevier), pp. 9-33, **1994**.
- [12] Kissel L. and Pratt R. H., *Corrections to tabulated anomalous scattering factors*, Acta Cryst. A46, pp. 170-175, **1990**.

- [13] Kissel L., Zhou B., Roy S.C., Sen Gupta S.K. and Pratt R.H, *The validity of form-factor, modified-form factor and anomalous-scattering-factor approximations in elastic scattering calculations*, Acta Cryst. A51, pp. 271-288, **1995**.