

UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA DE MEXICO
FACULTAD DE CIENCIAS

USO DE UNA RESONANCIA EN LA REACCION
 $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ PARA ESTUDIAR ESPESORES Y
PERFILES DE OXIDOS

TESIS PROFESIONAL

QUE PARA OBTENER EL TITULO DE
F I S I C O
P R E S E N T A

JOSE LUIS MARIN FLORES



Universidad Nacional
Autónoma de México



UNAM – Dirección General de Bibliotecas
Tesis Digitales
Restricciones de uso

DERECHOS RESERVADOS ©
PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

AGRADECIMIENTOS

Deseo expresar mi sincero agradecimiento al Dr. Jorge Rickards Campbell por sus valiosos consejos e infinita paciencia durante el desarrollo del presente trabajo; a Karim López por su incalculable ayuda técnica, sin la cual no hubiera sido posible la realización del experimento.

A los profesores:

M. en C. Carmen Cisneros Gudiffo

Fís. Alejandro Morales Mori

Fís. Jorge Dorantes Sierra

Fís. Alberto Barragán Vidal

por la revisión y atinados puntos de vista sobre el presente.

Al Dr. Jorge Flores Valdés por las facilidades otorgadas durante el desarrollo de esta Tesis en el Instituto de Física a su cargo.

A los investigadores del Grupo de Colisiones de dicho Instituto por la camaradería y ayuda mostrada durante mi estancia en ese lugar.

A mis compañeros de cubículo quienes hicieron amena e interesante mi estadía, en especial a Alvaro Encinas por sus valiosas aclaraciones.

A los Sres. Pedro Ortiz y Alberto Ceballos por los trabajos de fotografía y dibujo.

Al IFUNAM, INEN y CONACYT, por la beca otorgada en la fase de terminación de ésta.

Al Instituto Nacional de Energía Nuclear por la ayuda económica prestada para la impresión.

A la Srta. Rosa María Contreras por la mecanografía.

A la memoria de mi Padre

A mi Madre

A mis Hermanos

A mis Sobrinos

A mis Maestros

A mis Compañeros

Al Obrero Electricista

CONTENIDO

INTRODUCCION

CAPITULO I

MECANISMOS DE OXIDACION

- I) La oxidación como un fenómeno físico.
 - I.1 Oxidación como intercambio de electrones.
 - I.2 Oxidación como transporte por defectos en la estructura cristalina.
- II) Clasificación de los metales de acuerdo a su comportamiento al oxidarse.
- III) Leyes de crecimiento del estrato oxidado.
- IV) Oxidación por anodización.
 - IV.1 Diferencia entre películas de óxido naturales y anodizadas.
 - IV.2 Mecanismo de la formación del estrato oxidado por anodización.

CAPITULO II

RESONANCIAS EN REACCIONES NUCLEARES

- I) Núcleos con superficie bien definida.
- II) Resonancias en la sección elástica de dispersión.
- III) Fórmulas de Breit-Wigner

CAPITULO III

DESCRIPCION DEL METODO

CAPITULO IV

PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

CAPITULO V

ANALISIS Y RESULTADOS

CONCLUSIONES

BIBLIOGRAFIA

FIGURAS

INTRODUCCION

Uno de los aspectos interesantes en el estudio de superficies de sólidos, es el problema de corrosión de metales¹⁾, ya sea natural o inducida por algún mecanismo artificial²⁾.

Un caso particular de corrosión es la oxidación; este caso es bien conocido y se han llegado a desarrollar técnicas para evitarla y estudiar así el comportamiento del metal tratado en diversas condiciones ambientales.

Para tener idea del tratamiento que debe hacerse al metal para que sea inmune a este tipo de corrosión aún en las circunstancias más desfavorables, es necesario el estudio del mecanismo de oxidación³⁾ como función del tiempo y de la distribución o perfil del oxígeno dentro del óxido⁴⁾.

En este trabajo se hace un estudio fenomenológico de los mecanismos de oxidación. Se describe un método que se emplea para estudiar espesores y perfiles de óxidos, que consta básicamente de la observación de una resonancia aislada en la reacción $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$ a 631 kev de energía incidente y se da una idea conceptual del significado que tiene en sí una resonancia aislada⁵⁾ en una reacción nuclear.

Se aplicó el método para estudiar varios óxidos metálicos, haciendo un análisis simple de las curvas de excitación obtenidas al bombardear éstos con protones de energías entre 600 y 700 kev.

Se describen los problemas típicos del método, sus limitaciones así como los errores más comunes involucra-

dos en él.

Finalmente se calculan los espesores de los óxidos estudiados y se comparan el valor obtenido por dicho método y el valor esperade según como fueron prepara dos.

CAPÍTULO I

MECANISMOS DE OXIDACION

I) La oxidación como un fenómeno físico.

La combinación de un metal con el oxígeno suele parecer a simple vista un cambio químico; sin embargo, este proceso posee características generalmente diferentes de las involucradas en una reacción química. Por ejemplo, - el crecimiento de la película oxidada da como resultado una tendencia de ésta a aislar el metal cada vez más de los alrededores, este es, se controla este crecimiento - no por un fenómeno químico, sino por la migración del metal hacia el oxígeno e por la difusión del oxígeno hacia el metal, generalmente debido a un gradiente de potencial eléctrico en el estrato oxidado⁶⁾.

También tienen importancia en el desarrollo del proceso los fenómenos de transporte, que principalmente son: el intercambio de electrones⁷⁾ y los defectos de estructura cristalina³⁾, sin ser ambos totalmente independientes.

I.1) Oxidación como intercambio de electrones.

La oxidación de un metal no consiste simplemente en la unión de átomos del metal con átomos de oxígeno, sino en un intercambio de electrones que ocurre cuando el metal y el oxígeno unidos iónicamente se arreglan de tal manera que iones de distinta carga están más cercanos - que iones de la misma carga (fig. I.1).

Por esto no es de sorprender que la oxidación al ambiente sea rápida al principio y después de cierto espesor de la película de óxido, prácticamente termine⁸⁾, ya que se alcanza rápidamente el estado estable mencionado anteriormente.

Así pues, la oxidación directa a temperaturas ambientales es de poca importancia como fenómeno destructivo; sin embargo, existe otro tipo de corrosión por intercan-

bio de electrones conocido como corrosión electroquímica⁹⁾ o corrosión "húmeda"; ésta se desarrolla en medios que contienen agua y a menudo conduce a la formación de hidróxidos en lugar de óxidos anhídridos.

Por esta razón la película de óxido no es protectora como sería de esperarse, por el contrario, se presenta como un estrato muy débil o posiblemente una membrana alejada del metal que impide que éste sea protegido contra ataques posteriores, avanzando la oxidación y destruyendo al metal. Este tipo de corrosión una vez iniciada es muy difícil de controlar y se menciona aquí sólo por la importancia que tiene en otros campos, pero no se tratará detalladamente (fig. I.2).

Es preferible usar siempre materiales en los cuales el estrato oxidado los proteja de ataques ulteriores, para evitar también debilitamiento en el estrato oxidado y pérdidas precipitadas de metal que dan como resultado su inutilidad en las condiciones requeridas.

Se pueden tratar estos materiales oxidándolos a altas temperaturas hasta que se forme un estrato de óxido suficientemente grueso que garantice su resistencia a la corrosión en condiciones críticas. Sin embargo, se debe tener un control riguroso del grosor de la capa oxidada, ya que si ésta excede en cierto espesor crítico al enfriarse el material se pueden tener desprendimientos espontáneos, debido a que generalmente el coeficiente de expansión del óxido y del metal difieren¹⁰⁾.

Es conveniente por tanto, a altas temperaturas, escoger materiales cuya rapidez de oxidación sea lenta -- aunque el estrato de óxido sea delgado.

I.2) Oxidación como transporte por defectos en la estructura cristalina.

A temperaturas bajas el estrato de óxido formado en el metal es básicamente una película de oxígeno adsorbido por la superficie de éste¹¹⁾. A temperaturas aprecia-

bles sin embargo, la migración del metal hacia afuera o la difusión de oxígeno hacia adentro, es más frecuente debido a la presencia de defectos en la malla cristalina del óxido. El Cu_2O , contiene a menudo menos cobre del que indica la fórmula; se cree que algunos de los sitios donde puede existir Cu^+ , están en realidad vacantes, manteniéndose la neutralidad debido a que otros sitios están ocupados por el Cu^{++} .

En la mayoría de los óxidos sencillos (NiO , FeO , etc.) hay sitios de cationes vacantes y en otros óxidos (Fe_2O_3 , ZrO_2 , etc.) que parecen contener más metal del que la fórmula sugiere, el exceso se puede presentar como cationes intersticiales junto con electrones casi libres.

A estas temperaturas pues, las vacancias se pueden "mover", ya que un ión vecino a una vacancia dada puede pasar a ésta formando otra en la cual a su vez otro ión se puede mover y así sucesivamente. De aquí que estos defectos ayuden a la migración o a la difusión; la migración hacia afuera si hay vacancias de cationes o la difusión hacia adentro si hay vacancias de aniones. (fig. I.3).

No sólo eso es posible, sino que también puede ocurrir por estos defectos el paso de electrones; un ión Cu^{++} puede aceptar un electrón de su vecino Cu^+ , convirtiéndolo en Cu^{++} y pudiendo aceptar a su vez este último un electrón de un vecino Cu^+ , etc.

En la Física del Estado Sólido se conocen los óxidos en los cuales hay deficiencia de metal como semiconductores P; mientras que en los que tienen exceso de éste se les llama semiconductores N.

En los primeros la conducción a altas temperaturas es por "hoyos" y en los segundos básicamente es por la presencia de electrones casilibras, aunque existen también cationes en posiciones intersticiales, por medio de los cuales también puede haber conducción.

El movimiento de los cationes o de los aniones generalmente es en una dirección particular y hay dos razones por las cuales prevalece sobre el movimiento en otras¹²⁾.

Primero, cuando el oxígeno de la atmósfera es adsorbido por la superficie del metal, los átomos de oxígeno adquieren electrones del metal, dejándolo cargado positivamente; el resultado es un campo eléctrico que hará que los cationes (metal cargado positivamente) emigren hacia afuera moviéndose en la dirección del campo. Segundo, debido a que la película oxidada será cada vez más rica en oxígeno aparecerá un gradiente de concentración que restringirá el transporte en su dirección.

Per estas razones, los cationes emigrarán hacia afuera y de vez en cuando los sitios existentes entre el estrato exterior de óxido y los iones de oxígeno, serán ocupados por cationes dando lugar a un nuevo estrato de óxido, el cual puede a su vez adsorber más oxígeno formando otro y así continúa la oxidación con el depósito de óxido en el exterior de la película.

II) Clasificación de los metales por su comportamiento al oxidarse.

Pilling y Bedworth¹³⁾ dividen los metales que se oxidan en dos clases principales (Principio de Pilling y Bedworth):

- 1). Los metales ultralivianos en los cuales el óxido producido ocupa un volumen menor que el del metal destruido para producirlo.
- 2). Los metales pesados (y algunas excepciones de los ligeros) en los cuales el óxido ocupa un volumen mayor que el del metal destruido.

El Na, K, Mg, pertenecen a la primera clase, mientras que en la segunda están el Fe, Cu, Pb, Zn, Ta, Ni y las excepciones de los livianos Al y Be.

Pilling y Bedworth supusieron que la formación de la película es por la difusión del oxígeno; esto da como re-

sultado que en los metales del primer grupo las películas de óxido sean porosas y no protectoras, mientras que las del segundo grupo son resistentes y compactas.

Pfeil¹⁴⁾, demostró posteriormente que en algunos casos hay migración del metal, lo que hace necesario una revisión del Principio de Pilling y Bedworth, aunque en la mayoría de los casos éste es válido.

Cuando en un metal se predice un óxido poroso, es posible que el oxígeno se difunda a través de los poros, llegando así al metal aún sin atacar. De esta manera se favorece la difusión, mientras que la migración será obstaculizada por los poros¹²⁾.

Así pues, la difusión del oxígeno es más probable de ocurrir en los metales del primer grupo que en los del segundo.

III) Leyes de crecimiento del estrato oxidado.

A temperaturas ambientes la oxidación de la mayoría de los metales es al principio rápida, pero después de aproximadamente 3 horas, el espesor de la película es prácticamente constante (entre 20 y 30 Å).

Hart¹⁵⁾ encontró, por ejemplo, que el Al expuesto a oxígeno se oxida formando un estrato de aproximadamente 30 Å, después de lo cual la oxidación prácticamente cesa.

En general los metales obedecen diferentes leyes de crecimiento del estrato oxidado, en diferentes rangos de temperaturas; a temperaturas bajas el crecimiento involucra leyes logarítmicas, sin embargo, arriba de cierta temperatura (que depende del metal en estudio), el crecimiento obedece leyes parabólicas; este tipo de ley implica riesgos de desgaste, puesto que el crecimiento no es ya despreciable, aunque la película sea gruesa.

Estas leyes pueden expresarse de una manera simple con las ecuaciones:

Logarítmica $\frac{dy}{dt} = \frac{k}{t+a}$ ó $y = k_1 + k \log(t+a)$, $a > 0$

Parabólica $\frac{dy}{dt} = \frac{k}{y}$ ó $y^2 = 2kt + k'$

donde y es el espesor al tiempo t , mientras que k , k_1 , k' y a son constantes que dependen sólo de la temperatura y del metal involucrado.

Sin embargo, en muchos casos el crecimiento que obedece una ley parabólica es más simple, ya que bajo condiciones que los favorecen el metal se oxida a una razón casi constante declinando después a una parábola. La curva obtenida así es la llamada parábola mixta. Esto se pone en evidencia en el trabajo de Bénard¹⁶⁾.

Cuando la temperatura no es alta, para metales de uso común (Al, Cu, Ni, etc.), es posible suponer que k es razonablemente pequeña; bajo estas condiciones se acepta un metal que obedece una ley parabólica, como resistente a ataques posteriores (fig. I.4).

El problema práctico se reduce a escoger, para cada tipo de metal, técnicas de oxidación favorables, para que este material sea resistente a temperaturas altas (Mo, W, etc.).

Cuando la cantidad de oxígeno contenido en la atmósfera es baja, el crecimiento es aproximadamente constante y en el caso extremo es independiente del tiempo, con lo cual se tiene una ley de crecimiento rectilínea expresada por la ecuación:

$$\frac{dy}{dt} = k \quad \text{ó} \quad y = kt + k'$$

donde k , k' son constantes que tienen propiedades análogas a las mencionadas anteriormente. En la fig. I.5 se representan las diferentes leyes de crecimiento.

El crecimiento rectilíneo, sin embargo, puede ser causado por otro tipo de fenómeno (difusión de oxígeno)-

que hace que la película se forme en una condición forzada que conduce a un debilitamiento que destruye el metal con la misma rapidez con la que se oxida.

A bajas temperaturas este debilitamiento puede ser evitado antes de que la película alcance un espesor crítico. Este espesor se puede conocer haciendo estudios del metal en diferentes condiciones.

En Níquel las películas se desprenden a una temperatura del orden de 1000°C , el Cromo entre 950 y 1050°C en pieza a oxidarse hasta alcanzar 4800 \AA de espesor y después de 1050°C un segundo arranque se presenta alrededor de 42000 \AA ¹⁷⁾.

IV) Oxidación por anodización.

El proceso de anodización es una herramienta útil para estudiar el comportamiento de metales y aleaciones sometidos a condiciones críticas de trabajo.

Por ejemplo, el acero usado en la construcción como esqueleto de una pieza de concreto, puede ser atacado por la corrosión "húmeda", la cual al aumentar hace que el acero empiece a debilitarse poniendo en peligro la construcción ya que puede haber fracturas del concreto.

Por ésta y muchas otras razones se requiere hacer en los metales un tratamiento especial; pueden ser aleaciones a la corrosión, cubrimientos con metales poco oxidables o tratamientos por anodización ¹⁸⁾.

En nuestro caso resulta útil este proceso en la preparación de óxidos de metales que a temperaturas ambientales forman películas muy delgadas de óxido; por anodización, sin embargo, se pueden lograr espesores significativos (arriba de 1000 \AA) y altas resistencias a la corrosión.

El proceso de anodización generalmente se lleva a cabo en la siguiente forma:

En un recipiente que contiene agua se diluye un ácido apropiado, como sulfúrico, crómico o de la forma H_2XO_4 ; se colocan 2 electrodos que están conectados a

una fuente externa de voltaje (f.e.m.). Uno de los electrodos (ánodo) contiene una placa del metal que se requiere tratar; el otro (cátodo) otra placa de metal de la misma clase o de otra diferente. (fig. I.6).

En esta parte se verá, primero, una idea general de la diferencia entre una película de óxido natural y una obtenida por anodización y segundo, un resumen del mecanismo involucrado en la formación del estrato oxidado.

IV.1) Diferencia entre películas de óxido naturales y anodizadas.

Mencionamos anteriormente que los metales expuestos al oxígeno seco, forman películas que poseen propiedades protectoras, ya que después de un espesor del orden de 30 Å la oxidación prácticamente termina.

Sin embargo, cuando en el oxígeno existe humedad, la oxidación no termina sino que continúa lenta pero efectivamente y es difícil de detener una vez que comienza. Este tipo de corrosión se puede evitar formando en el metal películas de óxido por tratamiento anódico.

La formación de una película en la atmósfera es básicamente (a 1/5 de atmósfera de presión) debida a una fuerza electromotriz de alrededor de 2.7 volts, aunque al crecer el estrato disminuye hasta ser insuficiente para mover los iones y continuar la oxidación¹⁵⁾

En cambio por anodización es posible aplicar una fuerza electromotriz del orden de 100 volts y bajo las mismas condiciones formar películas más gruesas y más resistentes.

IV.2) Mecanismo de formación del estrato por anodización.

Este mecanismo difiere según el tipo de ácido usado. Cuando se usan ácidos del tipo fuerte (H_2XO_4), las películas obtenidas son generalmente resistentes y protectoras; cuando estos ácidos son débiles sucede lo contrario, son porosas y no protectoras.

Como se mencionó anteriormente, el crecimiento de la película prácticamente cesa cuando la fuerza electromotriz es tan pequeña que no puede mover los iones de un sitio a otro vecino. Por esto, cuando se usa el proceso de anodización lo que se busca es usar la mayor parte de la f.e.m. externa como una caída de potencial a través del estrato con el fin de proporcionar una gran movilidad a los iones.

Cuando esta f.e.m. se deja de aplicar, casi inmediatamente se termina el crecimiento de la película. Por esta razón el espesor del estrato es proporcional a la f.e.m. aplicada y al tiempo durante el cual se aplicó (14.5 Å por volt para Al y 16 Å por volt para Ta¹⁹), en un tiempo de aproximadamente 30 minutos).

Plumb²⁰), demostró con trazadores radiactivos que la oxidación de Al en ácido fosfórico es por la migración del metal.

En la explicación del mecanismo de la formación del estrato por anodización se va a considerar el ejemplo típico del Al_2O_3 ; aquí surge la dificultad de aclarar por qué el Al en un ácido fuerte (como H_2SO_4), en donde se espera la formación de sulfato soluble de Al, se tiene siempre alúmina (Al_2O_3); lo que no es de sorprender es que una vez obtenida la alúmina, ésta permanezca sin disolverse, ya que la razón de ataque del ácido sobre ella es extremadamente baja.

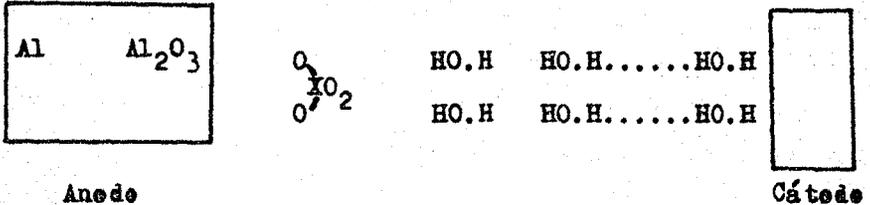
Esta dificultad desaparece si se consideran los siguientes mecanismos de corriente en el electrolito: Si se usa ácido de la forma H_2XO_4 , éste puede disociarse para dar iones $(XO_4)^{--}$ o posiblemente $(HXO_4)^{-}$ (o $(X_2O_7)^{-}$) y la mayoría del transporte de corriente entre el metal y el cátodo es a través del llamado Protón-Switch.

En éste, el movimiento aparente de un ión H^+ se puede visualizar como el paso de un protón de una molécula de agua a otra esto es:

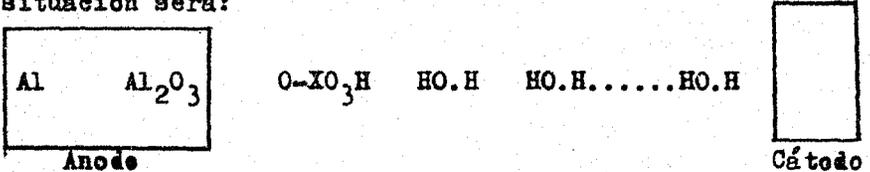
se tiene primero	HO.H	HO. $\overset{H^+}{H}$	HO.H	HO.H
en seguida	HO.H	HO.H	HO. $\overset{H^+}{H}$	HO.H
luego	HO.H	HO.H	HO.H	HO. $\overset{H^+}{H}$

y así sucesivamente.

Otra cantidad más pequeña, se transporta por medio de los iones $(XO_4)^{-}$ moviéndose en dirección contraria. Cuando este ión alcanza la capa oxidada del Aluminio, - su movimiento prácticamente termina y es presionado a la superficie, poniendo en contacto al menos dos átomos de oxígeno con la alúmina según el diagrama:



Puede ser que el ión $(HXO_4)^{-}$ predomine en cuyo caso - la situación será:



De todo esto se tienen ahora dos posibles situaciones:

- a). Los iones Al^{+++} se extraen de la parte exterior de la película oxidada y pueden pasar al líquido como sales de Al; los sitios dejados por los iones son llenados a su vez por otros debido a la migración del metal.
- b). Iones $(XO_2)^{++}$ pueden juntarse con moléculas de agua desplazando protones y regenerando el ácido; estos protones alcanzan el cátodo nuevamente por Protón-Switch, con lo cual se produce un nuevo estrato que consta básicamente de los iones dejados atrás por el $(XO_2)^{++}$ tomando Al^{+++}

de la superficie.

En la reacción anódica (a) se requiere que haya rompimiento del enlace entre el Al y el O, (o sea una energía de actividad grande) que en el tipo de estructura del Al_2O_3 es muy fuerte, aunque existe la posibilidad de que los iones se arranquen de sitios donde la estructura es defectuosa, de aquí que sea poco probable este tipo de reacción. Por este hecho la reacción (b) es la que generalmente ocurre, ya que la energía que se necesita para romper el enlace entre $(\text{XO}_2)^{++}$ y O^{--} es más baja que la necesaria para romper el enlace entre Al y O en la alúmina.

Resta decir que en la anodización de otros metales el mecanismo es similar³⁴⁾, aunque este problema es aún abierto ya que se tienen controversias³⁾ sobre la explicación de los fenómenos de transporte en el proceso de anodización.

CAPITULO II

RESONANCIAS EN REACCIONES NUCLEARES

Debido a la importancia que en este trabajo tiene una resonancia en una reacción nuclear, se analiza en esta parte de una manera sencilla el fenómeno, estudiando la interacción entre neutrones lentos ($l=0$) y núcleos con spin cero.

El tratamiento es más complicado para partículas cargadas, razón por la cual se consideran neutrones lentos, los que, al carecer de carga y tener momento angular cero, facilitan enormemente dicho tratamiento, aunque los resultados son similares.

Se empieza suponiendo que en la interacción el núcleo tiene superficie bien definida, obteniéndose las secciones de dispersión y de reacción.

Se define la condición de resonancia cuando sólo se tiene dispersión elástica, dando luego una explicación conceptual de su significado.

Después se toma en cuenta la posibilidad de que otro canal distinto al de entrada esté abierto, al aumentar la energía y se obtienen por último las fórmulas de Breit-Wigner, discutiendo sus interesantes implicaciones.

I) Núcleos con superficie bien definida²¹⁾.

Cuando el núcleo blanco tiene superficie bien definida no hay interacción con los neutrones si su separación relativa es mayor que el radio del núcleo R_n .

Para $l=0$ y $r > R_n$, la función de onda radial $u(r) = r\psi$, satisface la ecuación de Schrodinger

$$\frac{d^2u(r)}{dr^2} + k^2u(r) = 0 \quad (\text{II-1})$$

y $u(r)$ está dada por

$$u(r) = C \operatorname{sen}(kr + \delta_0) \quad (\text{II-2})$$

donde C es una constante, $k = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}$ es el número de onda del neutrón y δ_0 es el desfaseamiento.

Las condiciones a la frontera determinan completamente δ_0 ; estas condiciones consisten en la continuidad de la derivada logarítmica de $u(r)$ en la frontera nuclear a la que llamaremos f .

Esta condición se representa según la relación:

$$f = \left(\frac{r}{u} \frac{du}{dr} \right)_{r=R_n} \quad (\text{II-3})$$

Sustituyendo (II-2) en (II-3) se obtiene

$$f = k R_n \cot(k R_n + \delta_0) \quad (\text{II-4})$$

Rearreglando (II-4) toma la forma

$$e^{2i\delta_0} = \frac{f + ikR_n}{f - ikR_n} e^{-2ikR_n} \quad (\text{II-5})$$

Del tratamiento por ondas parciales²²⁾, la amplitud de dispersión está dada (para $l=0$) por

$$A_0 = \frac{1}{2ik} (e^{2i\delta_0} - 1) \quad (\text{II-6})$$

Sustituyendo (II-5) en (II-6) obtenemos

$$A_0 = \frac{1}{2ik} \left(\frac{f + ikR_n}{f - ikR_n} e^{-2ikR_n} - 1 \right) = -\frac{1}{2ik} e^{-2ikR_n} \left(\frac{-2ikR_n}{f - ikR_n} + e^{2ikR_n} - 1 \right)$$

La sección de dispersión²²⁾ está dada por:

$$\sigma_D^0 = 4\pi |A_0|^2 = \frac{\pi}{k^2} \left| \frac{-2ikR_m}{f - ikR_m} + e^{2ikR_m} - 1 \right|^2$$

o de otra manera

$$\sigma_D^0 = \frac{\pi}{k^2} |A_{0I} + A_{0S}|^2 \quad (\text{II-7})$$

donde

$$A_{0I} = \frac{-2ikR_m}{f - ikR_m} \quad \text{y} \quad A_{0S} = e^{2ikR_m} - 1 \quad (\text{II-8})$$

La razón para descomponer la amplitud de dispersión en dos partes, es que en algunos casos se tiene sólo - dispersión por esfera rígida, esto es, la función de onda debe cancelarse en la superficie y por tanto $f = \infty$, con lo cual sólo el término A_{0S} contribuye a la sección σ_D^0 ; cuando esta esfera tiene cierta "blandexa" aparece el término adicional A_{0I} , el que básicamente es causado por la estructura nuclear.

La sección de reacción²²⁾ está dada por:

$$\sigma_{re}^0 = 4\pi \left\{ \frac{i}{2k} (A_0^* - A_0) - |A_0|^2 \right\} = \frac{\pi}{k^2} \frac{-4kR_m \text{Im}f}{k^2 (\text{Re}f)^2 + (\text{Im}f - kR_m)^2} \quad (\text{II-9})$$

Claramente $\sigma_{re}^0 \geq 0$ solo si $\text{Im}f \leq 0$, esto es, sólo se tiene posibilidad de reacción cuando f tiene una parte imaginaria menor que cero.

II) Resonancias en la sección elástica de dispersión.

Se investigara ahora el efecto de la interacción entre el neutrón y el núcleo a bajas energías, sobre la sección de dispersión.

A energías más bajas que la energía del estado base del núcleo compuesto, el único canal en el cual puede caer éste es el de entrada, la única interacción posible es pues, dispersión elástica.

Como hemos supuesto que la energía del neutrón incidente es baja, sólo aquellos que tengan momento angular cero serán afectados por el núcleo; así que la suposición hecha al principio se impone por las condiciones físicas del problema.

En el canal de entrada la función de onda del sistema se puede representar como una onda entrante y una saliente de la misma amplitud pero desfasadas una con respecto a la otra. La función de onda en el canal de entrada es pues

$$u(r) = e^{-ikr} + e^{i(kr + 2\zeta)} \quad (\text{II-10})$$

donde ζ es real y $k = \sqrt{\frac{2M(E - V_0)}{\hbar^2}}$ es el número de onda del sistema (V_0 es la altura del pozo de potencial en el cual se encuentra el neutrón y E la energía incidente).

La condición a la frontera en $r = R_m$ da como resultado

$$f = -kR_m \tan(kR_m + \zeta) \quad (\text{II-11})$$

Se puede demostrar que $\frac{df}{dE} \leq 0$ siempre (E es la energía incidente), debido a esto f es una función que pasa através de ceros e infinitos sucesivos, ya que $kR_m + \zeta$ es monótona creciente.

Se definen las llamadas energías de resonancia cuando f pasa por un cero, esto es

$$f(E_n) = 0 \quad n=0, 1, \dots \quad (\text{II-12})$$

En la vecindad de cualquier resonancia particular - se puede desarrollar f en una serie de Taylor obteniéndose

$$f(E) = (E - E_n) \left(\frac{df}{dE} \right)_{E=E_n} \quad (E \approx E_n) \quad (\text{II-13})$$

Sustituyendo (II-13) en (II-8) se tiene

$$A_{0I} = \frac{-2ikR_n}{\left(\frac{df}{dE} \right)_{E=E_n} (E - E_n) - ikR_n} \quad (\text{II-14})$$

$$A_{0S} = e^{\frac{2ikR_n}{-1}} \quad (\text{II-15})$$

Introduciendo ahora la cantidad Γ_n (anchura media) definida por

$$\Gamma_n = - \frac{2kR_n}{\left(\frac{df}{dE} \right)_{E=E_n}}$$

se obtiene

$$A_{0I} = \frac{i\Gamma_n}{(E - E_n) + \frac{1}{2}i\Gamma_n} \quad (E \approx E_n) \quad (\text{II-16})$$

$$A_{0S} = e^{\frac{2ikR_n}{-1}}$$

La expresión (II-16) tiene la forma típica de una resonancia en una oscilación forzada con amortiguamiento²³⁾

En la resonancia ($E = E_M$) se tiene que

$$A_{0I} = 2; \quad \text{y} \quad A_{0S} = e^{2i k R_M} - 1 \approx 2i k R_M$$

como $k R_M \ll 1$, en la resonancia o muy cerca de ella $|A_{0I}| \gg |A_{0S}|$, esto es, en estas condiciones la dispersión por esfera rígida es despreciable comparada con la causada por la estructura nuclear, cuando ésto ocurre se dice que hay dispersión resonante.

La anchura media de esta resonancia es Γ_M , la cual está relacionada con la anchura o vida media del núcleo compuesto por medio del principio de incertidumbre.

Lejos de la resonancia f aumenta hasta alcanzar un valor infinito; al suceder ésto $A_{0I} = 0$ y la dispersión es sólo por esfera rígida. Sustituyendo los valores de A_{0I} y A_{0S} , para ambos casos en la relación (II-7) se tiene

$$\sigma_0 = \begin{cases} 4\pi/k^2 & \text{cerca de la resonancia} \\ 4\pi R_M^2 & \text{lejos de la resonancia} \end{cases}$$

Entre estos extremos A_{0I} y A_{0S} son imaginarios puros y tienen el mismo signo (suponiendo que $\Gamma_M \ll E - E_M$) cuando $E_M < E$ y diferente cuando $E_M > E$; ésto quiere decir que hay interferencia constructiva cuando $E_M < E$ y destructiva cuando $E_M > E$ ³²⁾. En la figura II.1 se muestra este hecho.

Así pues, la sección de dispersión muestra resonancias pronunciadas a bajas energías. Trataremos ahora de describir estas resonancias en términos puramente conceptuales.

La función de onda del neutrón fuera del núcleo es de la forma

$$A \cos(kr + \delta)$$

y dentro de éste tiene la forma

$$B \cos(kr + \gamma)$$

Como supusimos que las fronteras nucleares son bien de finidas, las magnitudes de ambas funciones y sus derivadas deben igualarse en la superficie, con lo cual se obtienen las relaciones

$$A \cos(kR_m + \delta) = B \cos(kR_m + \gamma)$$

y

$$B k \operatorname{sen}(kR_m + \gamma) = A k \operatorname{sen}(kR_m + \delta)$$

De ambas ecuaciones se obtiene

$$A^2 k^2 = B^2 \{ k^2 \operatorname{sen}^2(kR_m + \gamma) + k^2 \cos^2(kR_m + \gamma) \}$$

A menos que $\operatorname{sen}(kR_m + \gamma) = 0$, el segundo término en el paréntesis es más pequeño que el primero y $A \gg B$ ya que $k \ll K$ y cuando $\operatorname{sen}(kR_m + \gamma) = 0$ entonces $A = B$.

Esto significa que, en general, la onda incidente tiene una amplitud más grande que la transmitida, esto es, la frontera nuclear se puede visualizar como un reflector casi perfecto, exceptuando el caso en el cual ambas se acoplan en su máxima amplitud o sea que en esta ocasión el total de la energía incidente se transmite al núcleo. En estas condiciones la probabilidad de que se forme el núcleo compuesto es grande y al suceder se tiene dispersión resonante.

Como el núcleo compuesto es más estable a energías resonantes que a energías entre resonancias, se suele hablar de niveles de energía casi estables (del N.C.) incrustados

en el continuo de estados libres.

III) Fórmulas de Breit-Wigner.

Hasta aquí hemos supuesto que sólo el canal elástico está abierto, pero al aumentar la energía incidente, la probabilidad de que el núcleo compuesto decaiga por un canal diferente al de entrada aumenta, esto es, la sección de reacción empieza a ser diferente de cero.

Este hecho generalmente se traduce en la captura del neutrón por el núcleo, quedando el núcleo compuesto en un estado excitado, decayendo al estado base al emitir un fotón.

La función de onda (II-10) en el canal de entrada - tiene ahora la forma²¹⁾

$$U(r) = e^{-ikr} + e^{i(kr + 2\gamma + 2i\eta)} \quad (\text{II-17})$$

donde η es real y pequeño, k es el número de onda del sistema y γ es el desfaseamiento.

Aplicando la condición a la frontera en $r = R_m$ obtenemos

$$f(E, \eta) = kR_m \tan(kR_m + \gamma + i\eta)$$

Desarrollando f en serie de Taylor alrededor del valor $f(E_m, 0)$ se tiene

$$\begin{aligned} f(E, \eta) &= (E - E_m) \left(\frac{\partial f}{\partial E} \right)_{E_m, 0} + \eta \left(\frac{\partial f}{\partial \eta} \right)_{E_m, 0} \\ &= (E - E_m) \left(\frac{\partial f}{\partial E} \right)_{E_m, 0} - i\eta kR_m \end{aligned} \quad (\text{II-18})$$

definiendo ahora la anchuras medias

$$\Gamma_{me}^\alpha = - \frac{2kR_m}{\left(\frac{\partial f}{\partial E} \right)_{E_m, 0}} \quad , \quad \Gamma_{mr}^\beta = - \frac{2\eta kR_m}{\left(\frac{\partial f}{\partial \eta} \right)_{E_m, 0}}$$

$$\Gamma_m = \Gamma_{me}^\alpha + \Gamma_{mr}^\beta \quad (\text{II-19})$$

Cerca de la resonancia se obtiene, haciendo uso de (II-7) y (II-9) para este caso

$$\sigma_D^0 = \frac{\pi}{k^2} \left| \frac{\Gamma_{me}^\alpha}{(E - E_m) + \frac{1}{2} i \Gamma_m} + e^{2ikR_m} \right|^2 (E \approx E_m) \quad (\text{II-20})$$

y

$$\sigma_{re}^0 = \frac{\pi}{k^2} \frac{\Gamma_{me}^\alpha \Gamma_{m\gamma}^\beta}{(E - E_m)^2 + \frac{1}{4} \Gamma_m^2} (E \approx E_m) \quad (\text{II-21})$$

Estas son las famosas fórmulas de Breit-Wigner para un solo canal de reacción. En la notación Γ_{me}^α es la anchura media del canal de entrada α ; $\Gamma_{m\gamma}^\beta$ es la anchura media del canal de salida β de reacción; se tiene ahora que

$$\sigma_{re}^0 (\alpha \rightarrow \beta) = \frac{\pi}{k_\alpha^2} \frac{\Gamma_{me}^\alpha \Gamma_{m\gamma}^\beta}{(E_\alpha - E_m)^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_{me}^\alpha + \Gamma_{m\gamma}^\beta)^2} \quad (\text{II-22})$$

y

$$\sigma_{re}^0(\beta \rightarrow \alpha) = \frac{\pi}{k_\beta^2} \frac{\Gamma_{me}^\beta \Gamma_{mr}^\alpha}{(E_\beta - E_{m\beta})^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_{me}^\beta + \Gamma_{mr}^\alpha)^2} \quad (\text{II-23})$$

Sustituyendo (II-22) y (II-23) en la relación de reciprocidad

$$k_\alpha^2 \sigma_{re}^0(\alpha \rightarrow \beta) = k_\beta^2 \sigma_{re}^0(\beta \rightarrow \alpha)$$

se obtiene

$$\frac{\Gamma_{me}^\alpha \Gamma_{mr}^\beta}{(E_\alpha - E_{m\alpha})^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_{me}^\alpha + \Gamma_{mr}^\beta)^2} = \frac{\Gamma_{me}^\beta \Gamma_{mr}^\alpha}{(E_\beta - E_{m\beta})^2 + \frac{1}{4} (\Gamma_{me}^\beta + \Gamma_{mr}^\alpha)^2} \quad (\text{II-24})$$

Si se libera una cantidad Q de energía en la reacción $\alpha \rightarrow \beta$ entonces

$$E_\beta = E_\alpha + Q \quad (\text{II-25})$$

La ecuación (II-24) se satisface para toda E_α sólo si

$$E_{m\beta} = E_{m\alpha} + Q \quad (\text{II-26})$$

y

$$\Gamma_{me}^\alpha = \Gamma_{mr}^\alpha, \quad \Gamma_{me}^\beta = \Gamma_{mr}^\beta \quad (\text{II-27})$$

Se puede ver ahora que las resonancias en las reacciones $\alpha \rightarrow \beta$ y $\beta \rightarrow \alpha$ ocurren a las mismas energías totales y las anchuras medias son las mismas independientemente de que sean de entrada o de reacción.

Se puede concluir de (II-20) y (II-21) que las resonancias de σ_D^0 y σ_{re}^0 ocurren a la misma energía E_M y con la misma anchura media total Γ_M , lo cual es una buena prueba de la teoría.

Las fórmulas de Breit-Wigner se pueden generalizar para el caso en el que el spin del núcleo es diferente de cero²⁴).

Como se dijo al principio, para partículas cargadas la teoría es más compleja, debido a la existencia del campo Coulombiano; sin embargo, los resultados son esencialmente los mismos que para neutrones, considerándose por supuesto, que a los efectos nucleares debe añadirse la sección de dispersión de Rutherford.

Resta decir que las fórmulas de Breit-Wigner se han verificado con precisión, especialmente a bajas energías incidentes, donde la reacción más probable es la captura radiactiva.

CAPITULO III DESCRIPCION DEL METODO

La técnica usada tiene como principio el uso de una resonancia en la reacción $^{18}\text{O}(p,\alpha)^{15}\text{N}$ a 631 kev de energía incidente; para un blanco delgado esta resonancia tiene la forma de la figura III.1a, la técnica arroja buenos resultados y es no destructiva.

El análisis es simple, se bombardea la muestra en estudio con protones de energía bien definida, detectando las partículas alfa emergentes de la reacción y haciendo una curva de excitación en la vecindad de la resonancia.

La forma de esta curva depende del grosor de la capa de óxido y además del perfil o distribución del ^{18}O con la profundidad.

Mayor profundidad del ^{18}O implica mayor espesor, traduciéndose esto en un ensanchamiento de la curva de excitación (fig. III.1b) debido al siguiente hecho: La resonancia ocurre a una energía fija; si la energía de los protones es menor que la energía de la resonancia ésta no ocurre. Al alcanzar los proyectiles la energía de resonancia, ésta ocurre justo en la superficie; cuando los protones tienen energía mayor que la de resonancia, ésta ocurre más adentro del material, ya que una partícula cargada al atravesar material sufre frenamientos (pérdidas de energía) debido a las interacciones que tiene con los átomos o moléculas del medio.

La interacción con los átomos o moléculas es generalmente por choques con los núcleos o con los electrones de éstos. A las energías que nos interesan la contribución principal al poder de frenamiento es debida a los choques inelásticos con los electrones del medio.

Hay diversas teorías sobre el poder de frenamiento. (Bohr, Bethe, Bloch, Lindhard y Winter, etc.)³⁸⁾

Las Teorías de Bohr, Bethe y Bloch son válidas a altas velocidades del proyectil (comparadas con la veloci-

dad del electrón menos ligado), mientras que la de Lindhard y Winter es válida tanto a altas como a bajas (Excepto en la región intermedia).

A las energías que hemos trabajado (altas velocidades) la Teoría Clásica de Bohr²⁵⁾ explica los fenómenos antes mencionados. (fig. III.10)

Una manera directa de medir el poder de frenamiento es hacer pasar un haz de partículas cargadas de energía E , en una hoja de espesor ΔX del material por analizar.

La energía de las partículas que atraviesan esa hoja es $E - \Delta E$, donde ΔE es la energía que perdieron dentro del material.

Se puede hacer la aproximación $\frac{dE}{dx} \sim \frac{\Delta E}{\Delta X}$ si el blanco es delgado, en el sentido de que la pérdida de energía sufrida en el por la partícula sea lo suficientemente pequeña para que $\frac{dE}{dx}$ sea casi constante; pero debe tener un espesor tal que la observación experimental de ΔE sea posible.

De acuerdo a esto se puede tener una relación entre la energía de los protones y la profundidad del oxígeno 18 en el óxido, a través de la relación entre poder de frenamiento y energía, pudiéndose así relacionar los espesores de los óxidos con la semianchura de la curva de excitación.

Para obtener esa relación se usaron las tablas de poder de frenamiento de Northcliffe y Schilling²⁶⁾, éstas son muy útiles en estos casos y son de fácil manejo.

Cuando el material en estudio es un compuesto de dos o más elementos (como en nuestro caso), Bragg²⁷⁾ propone que el poder de frenamiento por molécula es simplemente una suma de poderes de frenamiento de los constituyentes según la relación:

$$\epsilon_T = \eta_1 \epsilon_1 + \eta_2 \epsilon_2 + \dots + \eta_n \epsilon_n$$

donde $\eta_1 =$ No. de átomos de la clase 1 en la molécula.
 $\epsilon_i =$ Poder de frenamiento por átomo del elemento i.
 $i = 1, 2, \dots, n$

El método descrito es muy usado en el microanálisis por Ansel et al²⁸⁾ para medir espesores y perfiles de óxidos; por Whitton et al⁴⁾ para medir el número de iones de ^{18}O implantados en Ga y su distribución con la profundidad. Dunning²⁹⁾ usa un método parecido pero con resonancias muy delgadas en reacciones (p, γ) para analizar trazas de Al y Si; el análisis por este método es en general más complicado debido a las bajas secciones de la reacción y los problemas de detección de las gammas.

Con esta técnica se tienen, en nuestro caso, buenas resoluciones en profundidad desde 200 Å hasta algunos miles.

Las principales limitaciones del método son: primero, la anchura inherente de la resonancia, segundo, la energía máxima del acelerador usado (700 kev) y por último el traslape con otra resonancia a 831 kev de energía incidente.

También juegan un papel importante en la precisión de las medidas los tiempos de exposición de cada muestra; si ésta es muy delgada, debido a la baja abundancia de ^{18}O en la naturaleza (0.2 %) el óxido tiene una cantidad pequeñísima de ^{18}O y para tener una buena estadística en el análisis se requiere un tiempo muy largo de exposición (del orden de 6 horas para muestras entre 50 y 100 Å).

Un tiempo largo implica mayor depósito de carbón sobre las muestras debido al haz, por lo que se recomienda el análisis para óxidos de espesor arriba de 200 Å, para evitar efectos de este tipo.

El análisis de la energía del haz es preciso; el máximo error en nuestras condiciones es del orden de \pm 0.5 kev.

CAPITULO IV
PROCEDIMIENTO EXPERIMENTAL

Se analizaron óxidos de Cu, Ta, Ni, y Al con un haz de protones obtenido del acelerador ANS-700 tipo Van de Graaff del Departamento de Colisiones del Instituto de Física³⁰⁾ (fig. IV.1).

Este aparato es capaz de acelerar protones y partículas alfa hasta energías del orden de 700 kev, lo que lo hace muy útil en el estudio de superficies de sólidos; - en elementos ligeros con el uso de resonancias en reacciones nucleares y en elementos pesados con retredispersión.

El acelerador tiene un sistema propio de enfoque que enfoca el haz de 60 cm. a infinito de la última placa aceleradora.

Para definir la energía del haz se usa un electroimán deflector que desvía el haz a 30° de su dirección original; el campo magnético en el imán se mide por resonancia magnética en Hidrógeno³¹⁾.

Las partículas que obedezcan la ecuación (no relativista ya que $v/c \ll 1$ en nuestro caso)

$$BR = 144 \sqrt{\frac{ME}{Z^2}}$$

donde M = masa de la partícula (amu),
E = energía de la partícula (MeV),
Z = estado de carga de la partícula.

pasarán en el imán describiendo un arco de una circunferencia de radio R.

Debido a que el imán tiene efectos de borde, no es posible medir R directamente, por esta razón se acostumbra hacer calibraciones con resonancias en reacciones nucleares que ocurren a energías fijas.

Con estas calibraciones se pueden conocer las relaciones entre B y E ó entre E y f (frecuencia medida cuando la muestra de H está en resonancia dentro del campo magnético), ésta última relación es la que comúnmente se

obtiene, ya que es más fácil de manejar y es de la forma

$$E = kf^2 \quad \text{donde } k \text{ es una constante}$$

Por tanto, con una resonancia que ocurre a una energía incidente fija E_0 , midiendo f se puede obtener k y por tanto se puede hacer una gráfica de E vs. f , de la cual se puede conocer E simplemente midiendo f .

A la entrada y salida del analizador se tienen rejillas colimadoras (cuya abertura mínima es de 1 mm.). Estas rejillas tienen como función definir la trayectoria del haz dentro del imán (y por tanto B) y además son parte de un circuito de retroalimentación que corrige las variaciones del voltaje en la terminal del acelerador y hace estable su funcionamiento.

El análisis de la energía tiene dispersiones que en general dependen de la abertura de la rejillas, en nuestro caso se cerraron hasta la mínima abertura, teniéndose un error en la medida de la energía que se estima es de ± 0.5 kev.

Una vez analizada la energía del haz, éste pasa ahora a la cámara de dispersión, antes de la cual se encuentran otras rejillas cuyo fin es evitar posibles dispersiones sufridas por el haz.

En la cámara se encuentra el blanco soportado por un portablancos, éste último está conectado a un integrador de corriente que registra la intensidad del haz. Enfrente del portablancos se tiene un aro conectado a un voltaje negativo de 300 volts cuya función es repeler los electrones emitidos al chocar el haz con el blanco, evitando que escapen y haciendo así la integración de corriente confiable.

El análisis requiere que el blanco sea normal a la dirección del haz, para asegurarse de esto se pasa la luz de un laser que sigue la dirección del haz y cuando el rayo reflejado del blanco coincide con el incidente, el blanco es normal a esta dirección.

Se detectan las partículas alfa emergente con un detector de barrera superficial de estado sólido (Si) colocado a 150° en el laboratorio. Este detector tiene un diámetro de 2.54 cm. y se coloca a 4 cm. del blanco con el propósito de sustentar el mayor ángulo sólido posible ya que la reacción tiene secciones de entre 5 y 60 millibarns (ver fig. III.1a) y como se mencionó anteriormente la abundancia del ^{18}O es baja (.2 %), entonces se requiere una buena estadística.

El ángulo sólido para nuestro caso es del orden de 0.3 esteradian.

Para evitar la detección de los protones elásticos retrodispersados se antepone al detector una lámina de mylar de aproximadamente 13 micras de espesor para absorberlos, dejando pasar sólo las alfas cuya energía es mayor, ya que el valor Q de la reacción es de 3.97 Mev (fig IV.2a).

En la figura IV.2 se representa un esquema de la cámara y del analizador.

El pulso de salida del detector se recibe con un Pre amplificador que tiene como función dar un pulso de salida de la misma amplitud, pero que puede ser transportado lejos de la cámara hasta donde se encuentra el amplificador. Después de pasar el pulso por el amplificador, se registra en un analizador multicanal de 1024 canales, acumulando las alfas producidas por unidad de carga (450 μ coul).

El número total de pulsos por unidad de carga se suman por medio de una computadora H.P.-2100 en línea con el multicanal. (fig. IV.3).

El sistema de vacío en la línea es a base de bombas de difusión de aceite (acopladas a bombas mecánicas), con trampas de aire líquido; del orden de 10^{-5} torr.

El problema de depósito de carbón en el blanco se evita en parte, enfriando con un disco circular conectado a una trampa de aire líquido, en la vecindad del blanco. (fig. IV.4).

Por último se hacen curvas de excitación para cada muestra en la vecindad de la resonancia, variando la energía incidente en intervalos de 2 y algunas veces 1 kev.

CAPITULO V
ANALISIS Y RESULTADOS

Con el fin de observar la anchura debida sólo a la anchura de la resonancia y a la resolución del haz, se efectuó una medición en un óxido delgado de Ni de 50 Å (proporcionado y medido por R. G. Musket de Sandia Laboratories).

En la figura V.1a se puede ver que la anchura a la mitad de la curva de excitación para el NiO es muy cercana a los 2.5 kev reportados para la resonancia, ya que el óxido es muy delgado.

Tomando en cuenta la resolución del haz, la anchura inherente de la resonancia es del mismo orden (2.5 kev).

Partiendo de esta última como calibración se determinaron los espesores de las muestras de óxidos de Cobre (Cu₂O), Aluminio (Al₂O₃) y Tantalio (Ta₂O₅) de la relación:

$$(\Delta E_{OBS})^2 = (\Delta E_{OX})^2 + (\Delta E_{RES})^2 + (\Delta E_{HAZ})^2 \quad (V.1)$$

(En primera aproximación)

ΔE_{OX} = energía perdida en el óxido.

ΔE_{OBS} = anchura media de la curva de excitación.

donde

ΔE_{RES} = anchura media de la resonancia.

ΔE_{HAZ} = resolución del haz.

Se usa además la conexión entre energía incidente y profundidad através del poder de frenamiento.

En las figuras V.1b, V.1c y V.2 se pueden observar claramente los ensanchamientos de las curvas de excitación debido al mayor espesor de estos óxidos con respecto al del NiO.

Las barras de error indican la raíz cuadrada del número de cuentas; donde no hay barras el error es del tamaño del punto.

Los espesores obtenidos así para Al₂O₃, Cu₂O y --

Ta₂O₅ son 1100, 500 y 975 Å respectivamente. Comparados con los espesores esperados según la técnica de preparación de los óxidos se tiene una buena precisión.

Para asegurarse si en realidad el haz ve la profundidad debida en el óxido, se hizo la siguiente prueba:

Se tomaron curvas de excitación con el blanco de Ta₂O₅ cuando éste es normal al haz e inclinándolo 15° y 30° respecto a éste (fig. V.2). Al inclinarse el blanco se espera un nuevo espesor e' = $\frac{e}{\cos \theta}$ donde θ es el ángulo de inclinación y e es el espesor real del óxido (fig. V.3).

El resultado obtenido fue que en realidad las semianchuras de las curvas a 15 y 30° son proporcionales a la semianchura a 0° (normal al haz) por $\frac{1}{\cos \theta}$ dentro de un error del 10 %; esto da confianza del método dentro de la precisión mencionada.

Si se requiere conocer tanto el espesor del óxido como la concentración de oxígeno 18 con la profundidad es posible usar también (para mayor precisión) la ecuación³⁵⁾

$$N(E_0) = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} C(x) \sigma(\eta) W(E_0; \eta, x) dx d\eta$$

donde $N(E_0)$ es proporcional al número de cuentas.
 $C(x)$ es la concentración del O¹⁸ con la profundidad.

$W(E_0; \eta, x)$ es la probabilidad de que una partícula con energía inicial E_0 tenga energía η a la profundidad x .

$\sigma(\eta)$ es la sección transversal de la reacción a la energía η .

Esta relación es válida para blancos no muy gruesos y en general para cualquier elemento cuya concentración se requiera estudiar.

Quando se tiene control sobre la oxidación (anodización, calentamiento en atmósfera controlada, etc.), como

en nuestro caso, generalmente $C(x)$ es constante; per -
tanto, aquí se considera que los óxidos estudiados tie -
nen un perfil del tipo escalón cuadrado $C(x) = \text{cte.}$ -
Así pues, el análisis se reduce a calcular, como ya se
mencioné el espesor de los óxidos estudiados usando -
las curvas de excitación, la relación entre energía y
profundidad y la relación V.1.

La tabla V.4 muestra los resultados obtenidos.

CONCLUSIONES

Se ha implementado en México una técnica útil para el estudio de espesores y perfiles de óxidos.

Se da una descripción de esta técnica; su principio es la observación de una resonancia aislada en la reacción $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ a 631 kev de energía incidente, al bombardear las muestras con protones de energías entre 600 y 700 kev.

Se discuten las bases físicas del método, que son básicamente las propiedades de la resonancia y la relación entre energía incidente y profundidad a través del poder de frenamiento.

Las limitaciones son debidas tanto a la anchura inherente de la resonancia (cota inferior) como a la energía del acelerador y la existencia de otra resonancia a 831 kev (cota superior).

Lo anterior impone un intervalo de aplicabilidad del método en óxidos de espesores desde 200 hasta aproximadamente 1500 Å, con una precisión del orden del 10 %.

La interpretación de las curvas de excitación para cada óxido es simple, ya que la anchura de ésta depende de la energía perdida dentro del óxido (ΔE_{ox}) por el proyectil, de la anchura inherente de la resonancia (ΔE_{res}) y de la resolución del haz, (en primera aproximación), según la relación:

$$(\Delta E_{obs})^2 = (\Delta E_{ox})^2 + (\Delta E_{res})^2 + (\Delta E_{haz})^2$$

de donde fácilmente se puede extraer ΔE_{ox} (y por tanto el espesor del óxido).

Esta técnica (con $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ u otras reacciones) tiene aplicación en metalurgia, por ejemplo en los casos que a continuación se mencionan:

- 1). Determinación de perfiles de Al y Na implantados en materiales²⁹⁾.
- 2). Difusión de oxígeno en Si³⁷⁾.
- 3). Crecimiento de óxidos anódicos en Al³⁾.

Por último, cabe decir que el fin perseguido por el presente trabajo es el de resaltar la importancia de las técnicas nucleares en el estudio de superficies de sólidos, que en la actualidad está tomando auge.

Dado el bajo costo de los aceleradores necesarios - (de baja energía) para la implementación de estas técnicas, se espera que en pocos años puedan aplicarse en diferentes ramas de la ciencia.

BIBLIOGRAFIA

1. U. R. Evans, The Corrosion and Oxidation of Metals, E. Arnold Ltd., 1963, p. 19-241
2. G. Amsel, C. Cherki, M. Croset, G. Feuillode, J. P. Nadai, C. Ortega, S. Rigo y J. Siejka, Coll. Czechoslov. Chem. Commun. 36 (1971)883.
3. C. Cherki y J. Siejka, J. of Electrochem. Soc. 120 (1973)734.
4. J. L. Whitton y I. V. Mitchell, Can. J. of Phys. 49 (1971)1225.
5. L. R. B. Elton, Introductory Nuclear Theory, Interscience Publishers Inc., 1959, p. 140.
6. W. Kinna y W. Knerr, Z. Metallk. 47 (1956)594.
7. L. C. Bannister y S. C. Britton, Proc. Roy. Soc. 131A(1931)355.
8. R. N. Bloemer, Nature, 179 (1957)493.
9. R. K. Hart, Trans. Faraday Soc. 53 (1957)1020.
10. R. A. Huddle, Nucl. Eng. and Soc. Congress Amer. Inst. Min. Met. Engrs., 1955.
11. B. M. W. Trapnell, Proc. Roy. Soc. 218A(1953)566.
12. A. Preece y G. Lucas, J. Inst. Met. 81(1952-53)219.
13. N. B. Pilling y R. E. Bedwerth, J. Inst. Met. 29 (1923)529.
14. L. B. Pfeil, J. Iron St. Inst. 119 (1929)501.
15. E. K. Hart, Proc. Roy. Soc. 236A(1956)68.
16. J. Bénard, Bull. Soc. Chim. Fr. (1949)D89.
17. E. A. Gulbransen y K. F. Andrew, J. of Electrochem. Soc. 104 (1957)334.
18. N. O. Inglis y E. C. Larke, J. Inst. Met. 83 (1954-55) 117.
19. A. Charlesby y J. J. Polling, Proc. Roy. Soc. 104 (1957)140.
20. R. C. Plumb, J. of Electrochem. Soc. 105C(1958)154.
21. A. P. Arya, Fundamentals of Nuclear Physics, Allyn and Bacon Inc., 1966, p. 426.

22. T. Y. Wu y T. Ohmura, Quantum theory of Scattering, Prentice Hall Inc., 1962, p. 4 a 25.
23. G. R. Fowles, Analytical Mechanics, Holt, Rinehart and Winstone Inc., 1970, p. 426.
24. J. Blatt y V. Weisskopf, Theoretical Nuclear Physics, Wiley and Sons, 1952, p. 426.
25. N. Bohr, Phil. Mag. 24(1913)10 y 30(1915)581.
26. L. C. Northcliffe y R. F. Schilling, Nuclear Data Tables A7(1970)233.
27. W. H. Bragg y R. Kleeman, Phil. Mag. 10(1905)5318.
28. G. Amsel y D. Samuel, Anal. Chem. 39(1967)1689.
29. K. L. Dunning, G. K. Hubler, J. Comas, W. H. Lucke y H. L. Hughes, Thin Solid Films 19(1973)145.
30. J. Rickards, A. Barragán, E. Andrade, J. Dorantes, K. López, F. Mercado, A. Dacal, M.E.O. de López y M. Mazari, Rev. Mex. Fís. 23(1974)FA55.
31. G. C. Lowe, Electronic Engineering, Marzo 1959, p. 138.
32. R. S. Bender, F. C. Shoemaker, S. G. Kaufmann y G. M. B. Bouricius, Phys. Rev. 76(1949)273.
33. N. D. Pullen y B. A. Scott, Trans. Inst. Met. Finishing 33(1956)594.
34. L. Young, ibid, 53(1957)841.
35. G. Amsel, J. P. Nadai, E. D'Artemare, D. David, E. Girard y J. Moulin, Nucl. Inst. and Methods 92 - (1971)481.
36. W. Bygrave, P. Treado y J. Lambert, Accelerator Nuclear Physics (Fundamental Experiments with a Van de Graaff Accelerator), High Voltage Eng. Corp., 1970, p. 241.
37. J. E. Gass, H. H. Müller, H. Schmied, L. Jörissen y G. Ziffermayer, Nucl. Inst. and Methods 106(1973) 109.
38. A. Encinas B., Tesis Profesional en elaboración, 1975.

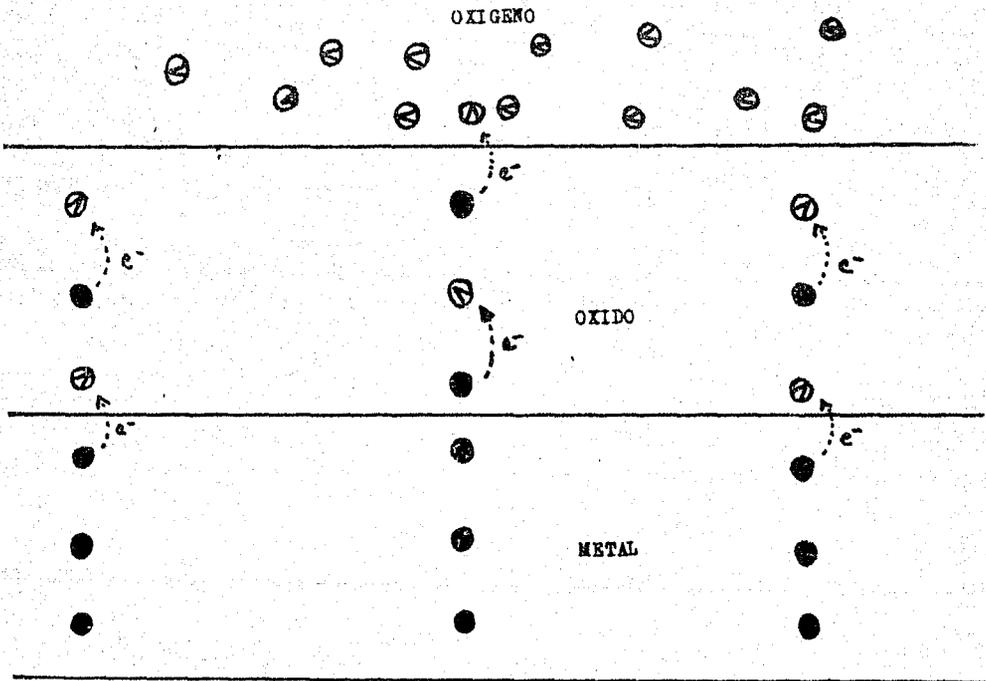


Fig. I.1 La oxidación vista como un intercambio de electrones.

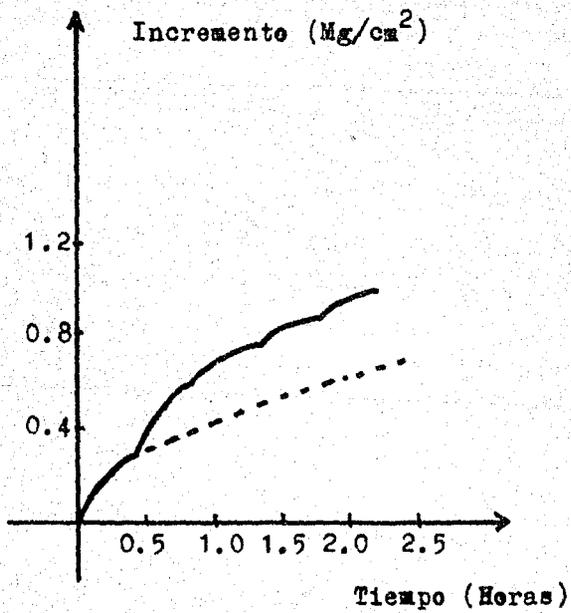


Fig. I.2 Corrosión Electroquímica del cobre.

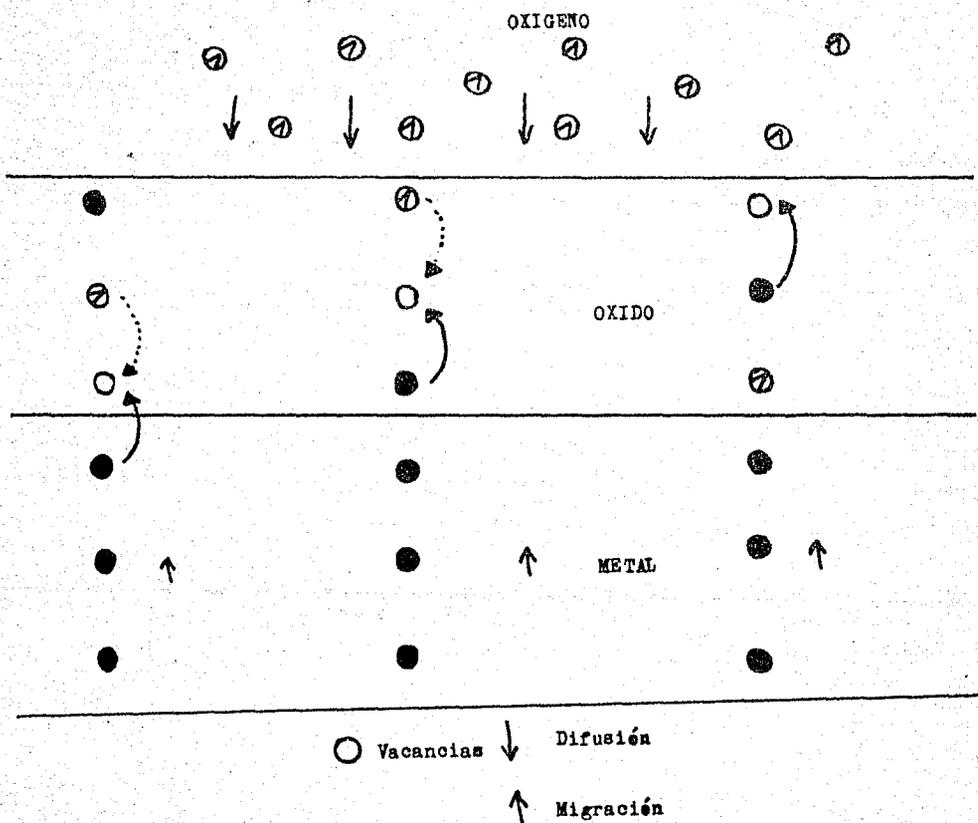


Fig. 1.3 La oxidación vista como el movimiento de las vacancias (Defectos en la estructura cristalina)

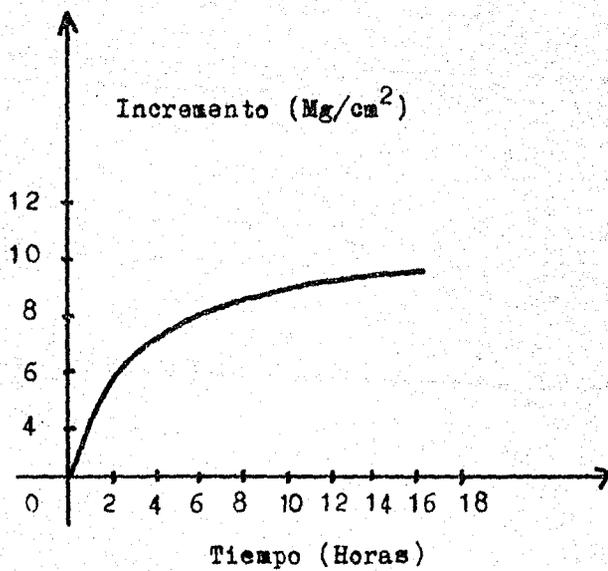
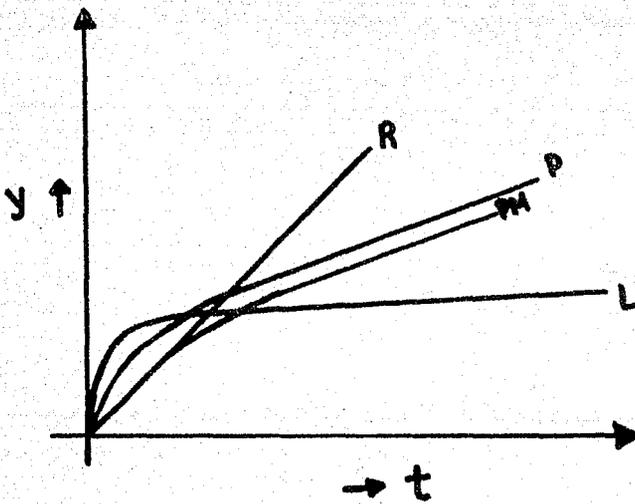


Fig. I.4 Tratamiento de Cobre oxidándolo a 800°C para evitar ataques posteriores (Obsérvese que el crecimiento obedece una ley parabólica).



R-RECTILINEA
 P-PARABOLICA
 FM-PARABOLICA MIXTA
 L-LOGARITMICA

Fig. 1.5 Principales Leyes de Crecimiento.

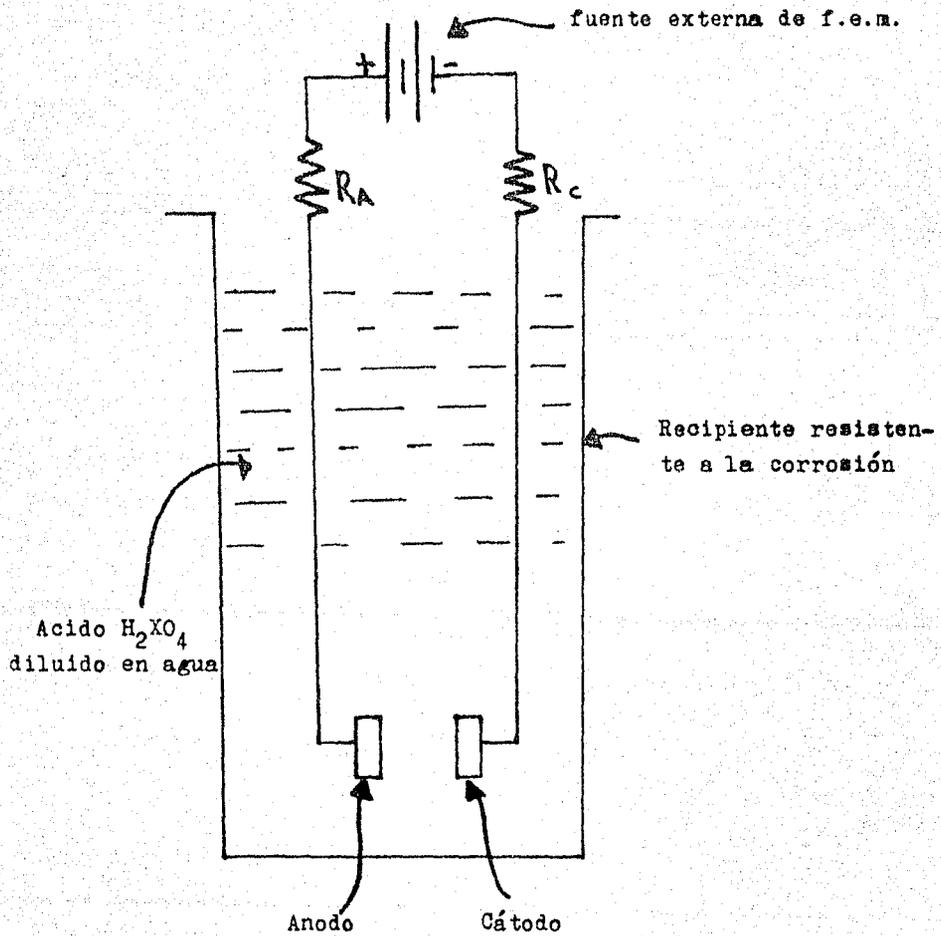


Fig. 1.6 Diagrama simple del dispositivo usado para oxidar metales por anodización.

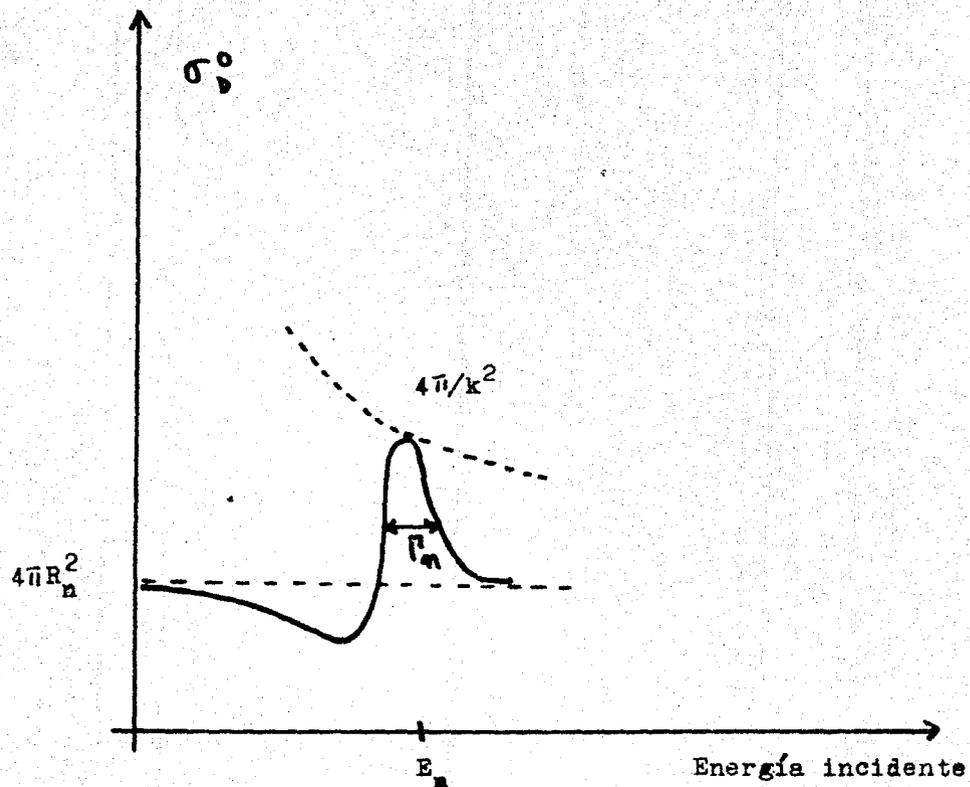


Fig. II.1 Sección de dispersión típica para neutrones con $l=0$ cerca de la resonancia.

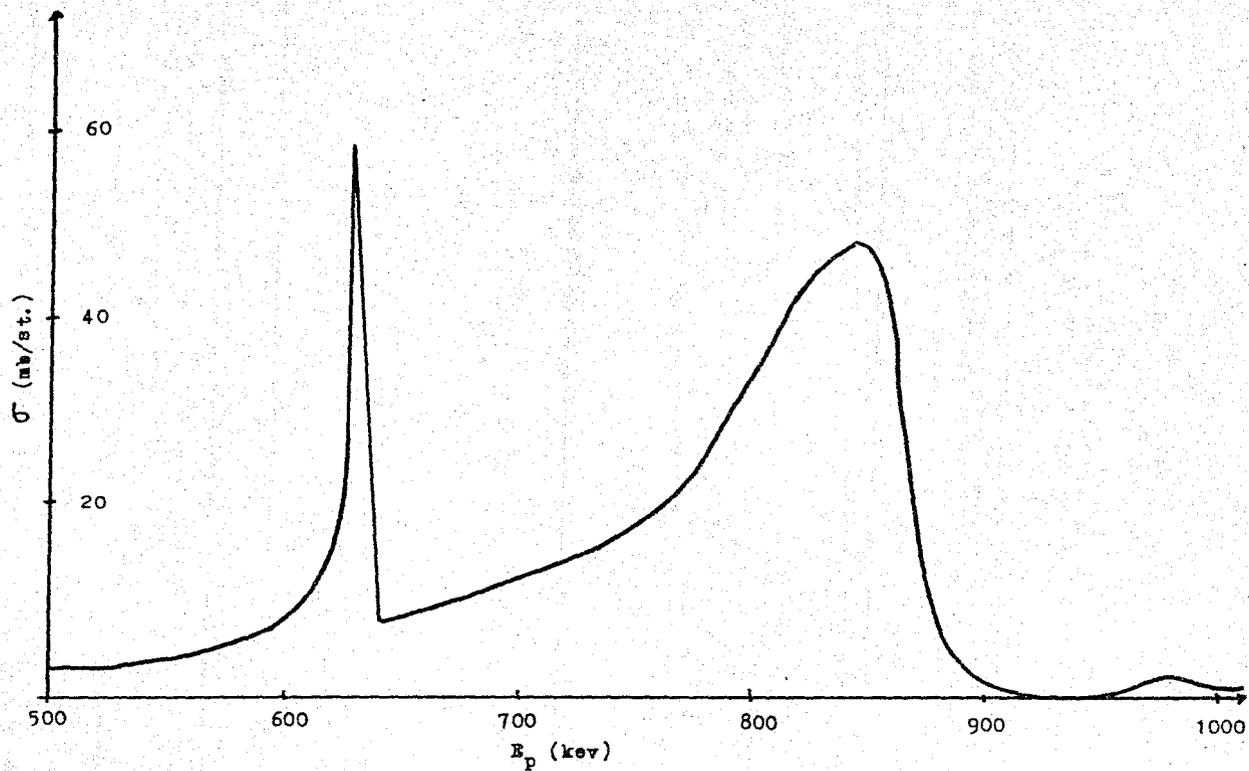


Fig. III.1a Forma típica de la resonancia en la reacción $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ a 631 kev de energía incidente³⁵⁾

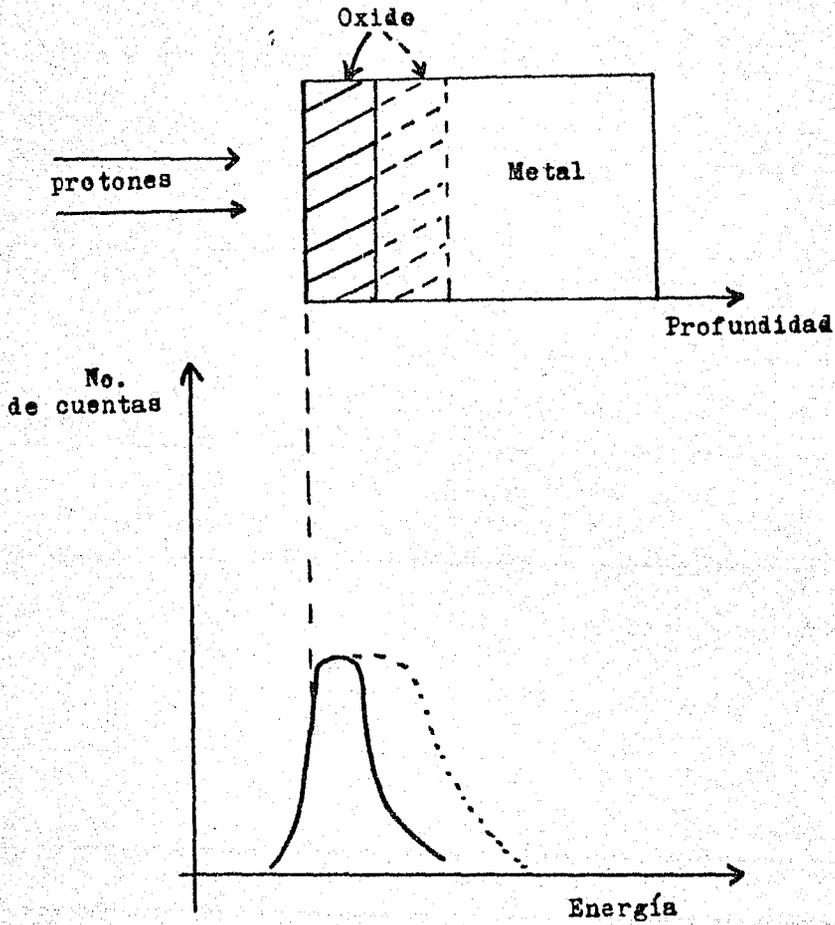


Fig. III.1b Relación entre profundidad de ^{18}O y curva de excitación.

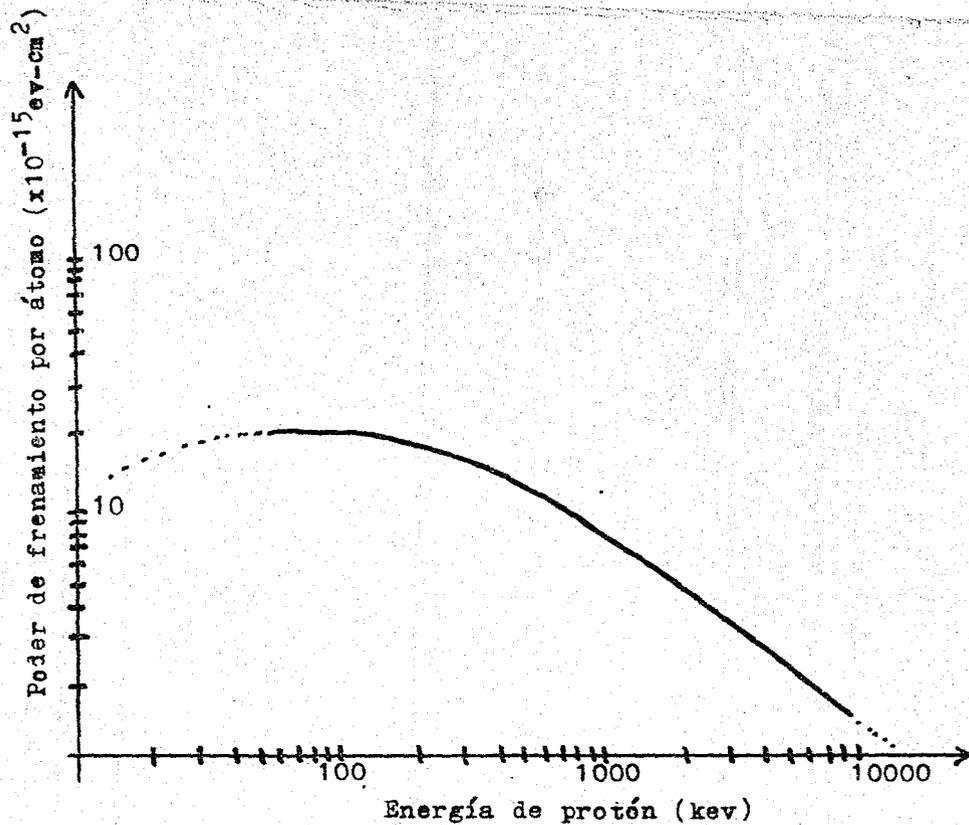


Fig. III.1a Curva de poder de frenamiento de protones en Al. En la parte descendente de la curva es válida la teoría de Bohr. (obtenida de la referencia 36)

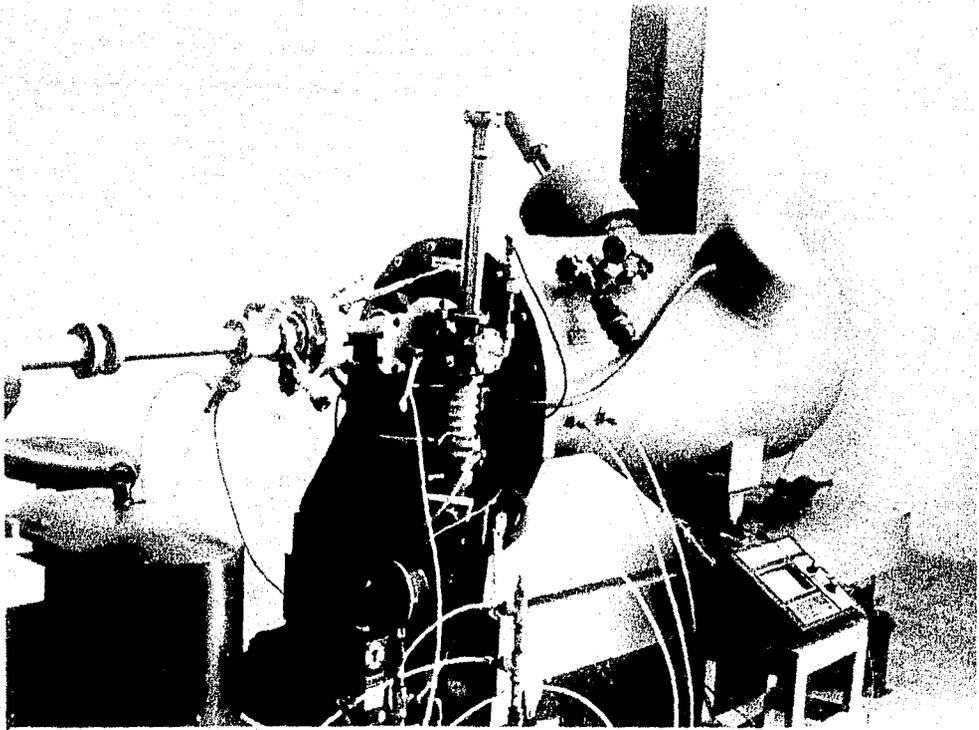


Fig. IV.1 Acelerador Van de Graaff del
Departamento de Colisiones.

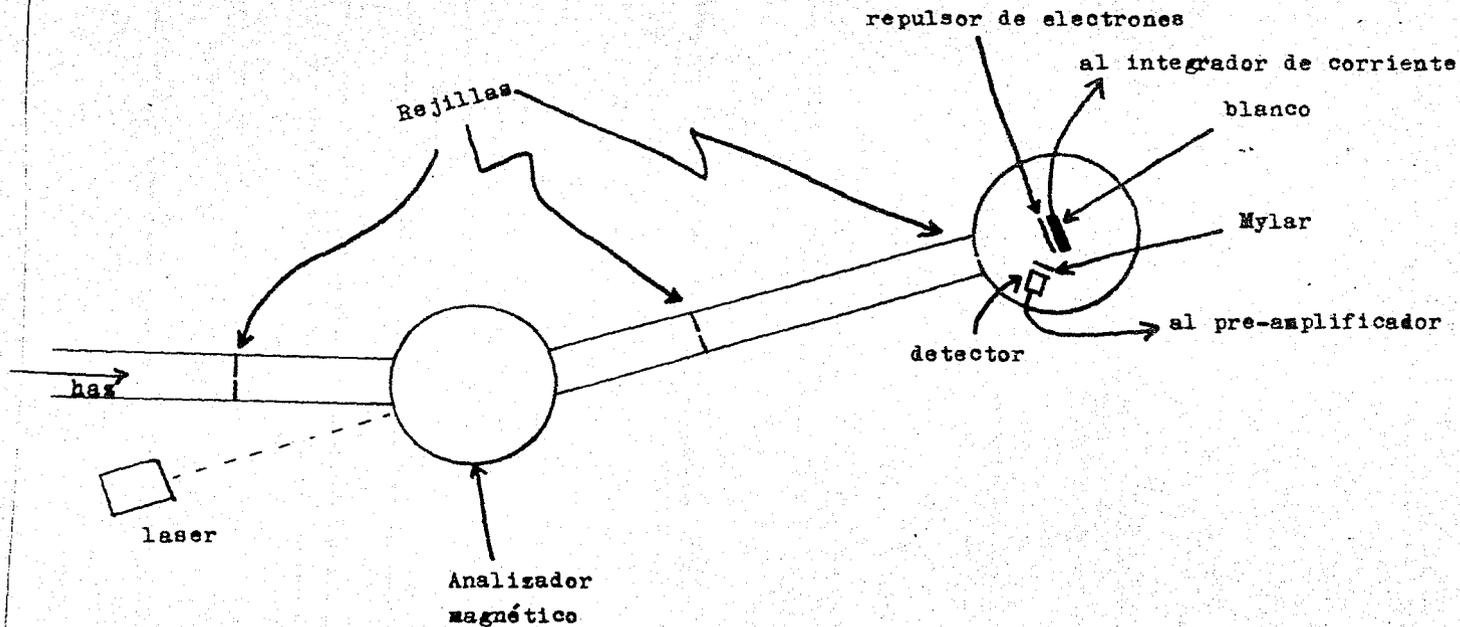


Fig. IV.2 Esquema de la cámara de dispersión y del analizador magnético.

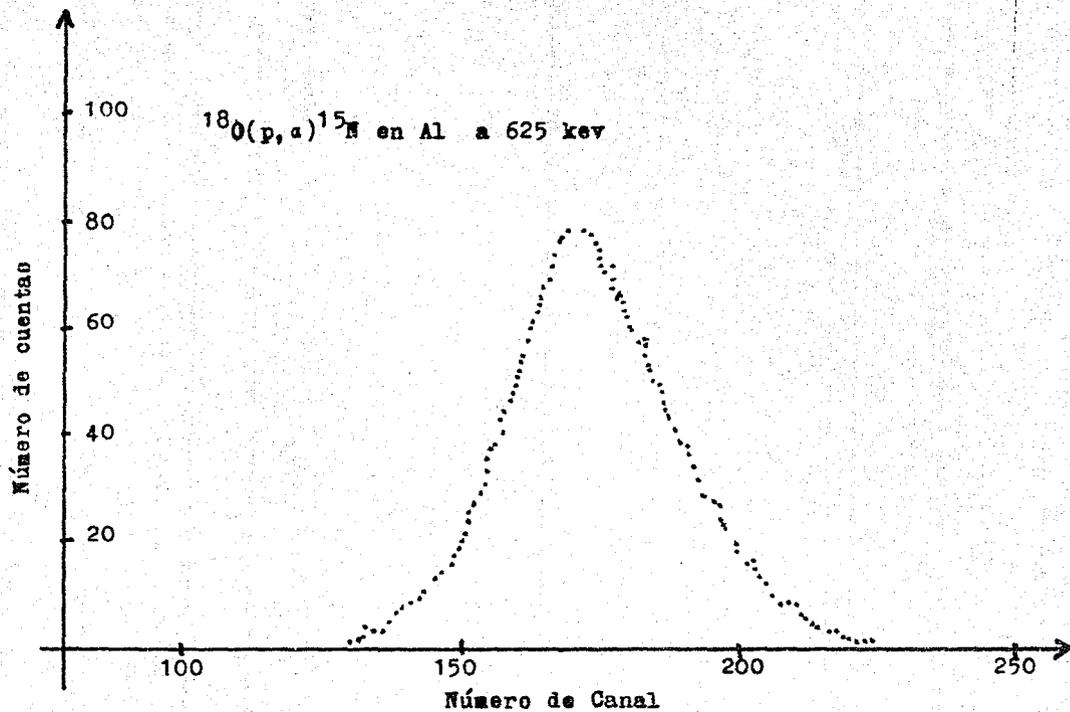


Fig. IV.2a Espectro de alfas obtenido al anteponer al detector el mylar de 13 μ (Obsérvese la limpieza debido a la ausencia de los protones elásticos que son absorbidos por el mylar)

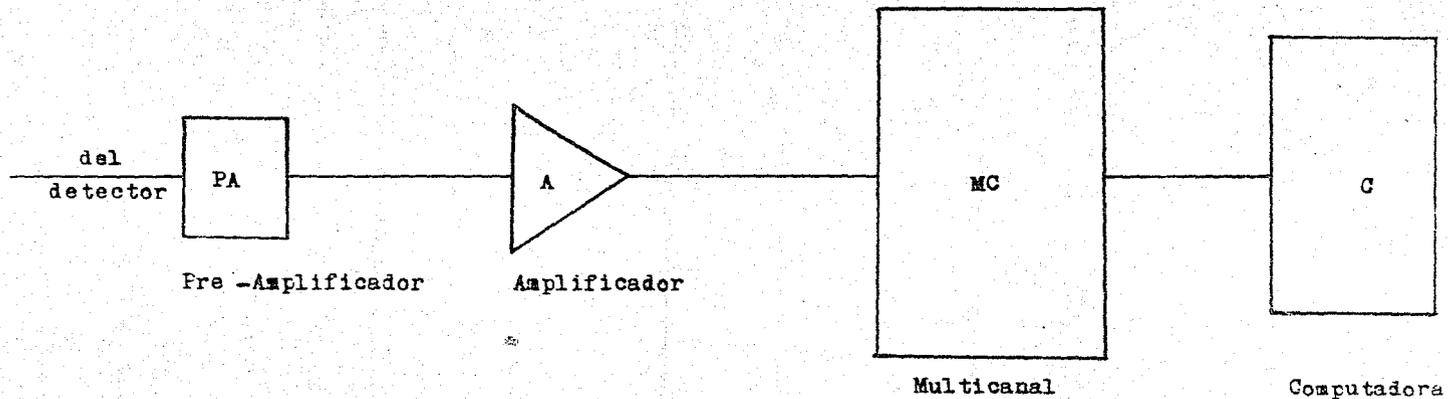


Fig. IV.3 Esquema de la electrónica asociada al análisis de las partículas alfa detectadas.

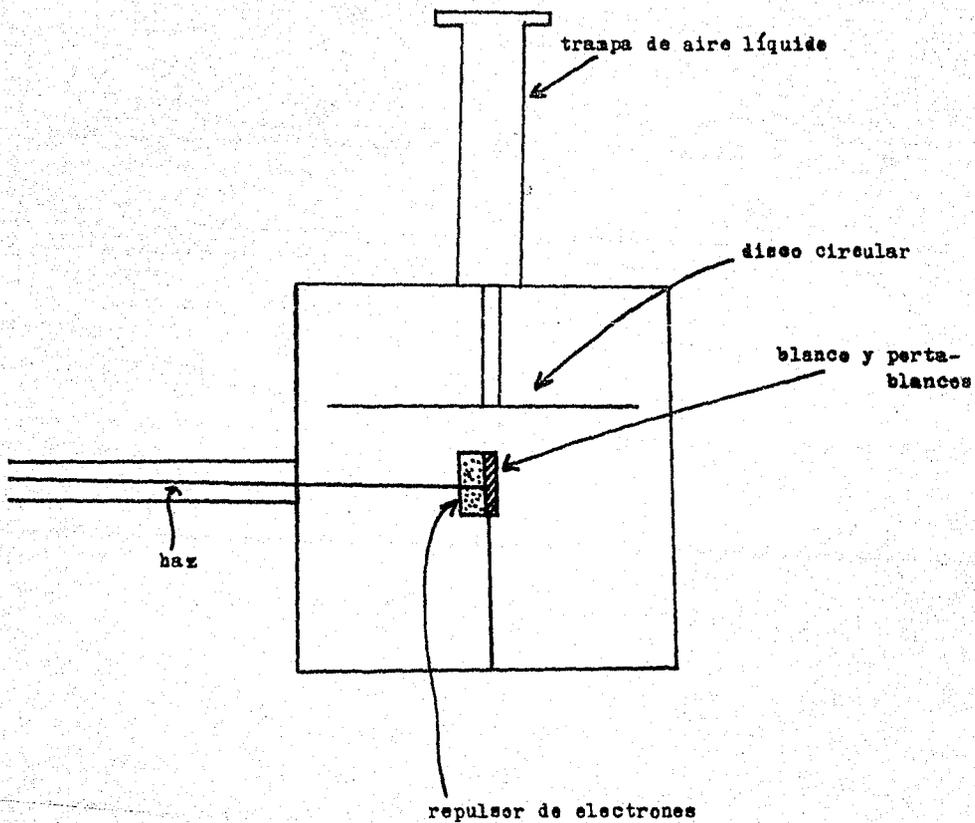


Fig. IV.4 Esquema del dispositivo usado para evitar el depósito de carbón en el blanco.

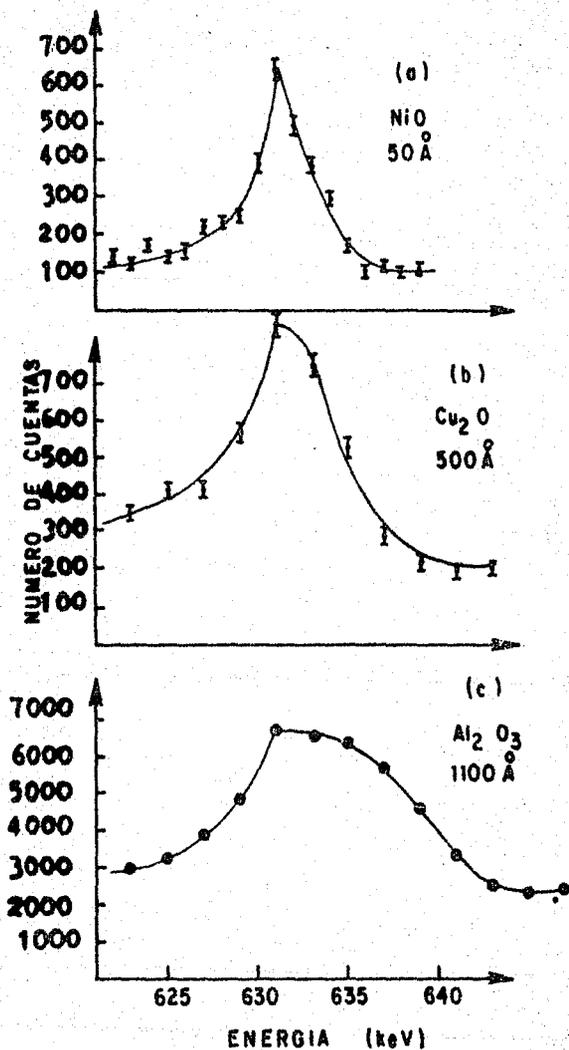


Fig. V.1 Curvas de excitación obtenidas para óxidos de Ni, Cu y Al. El NiO muy delgado indica la limitación en anchura medida, debida sólo a la resonancia y a la resolución del haz.

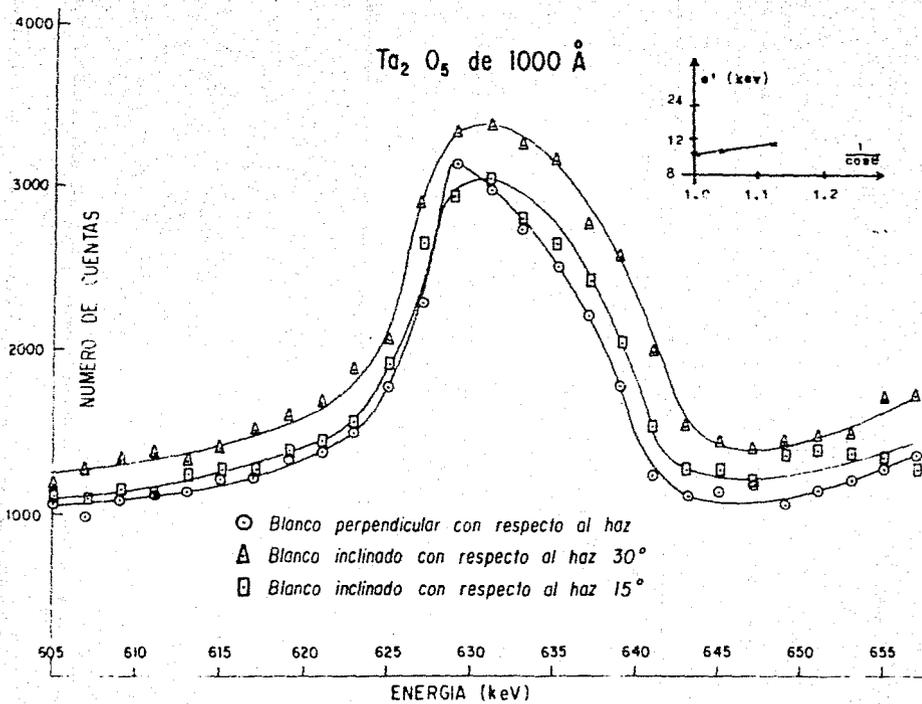
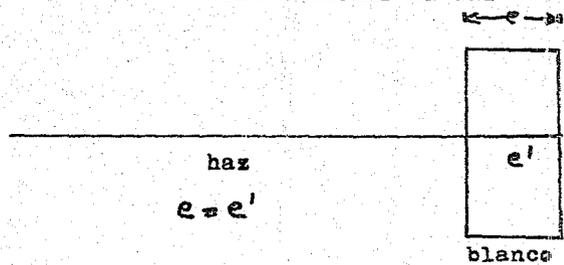
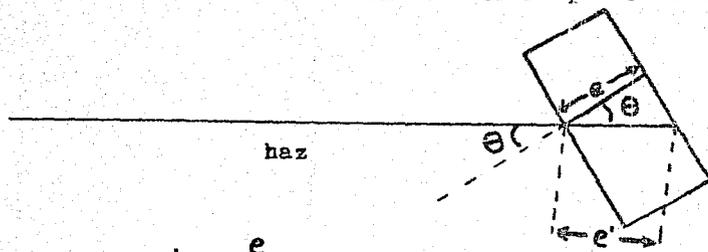


Fig. V.2 Curvas de excitación para el $Ta_2 O_5$ a diferentes ángulos de inclinación con respecto al haz.

Blanco normal al haz



Blanco inclinado con respecto al haz



$$e' = \frac{e}{\cos \theta}$$

Fig. V.3 Esquema de la prueba realizada con el Ta_2O_5 para asegurarse de la profundidad vista por el haz.

OXIDO	ΔE_{obs} (kev)	ΔE_{ex} (kev)	$\frac{dE}{dX}$ ($\frac{MeV}{cm}$)	Espesor obtenido por la técnica descrita (\AA)	Técnica de preparación	Espesor esperado al prepararlo (\AA)
Al_2O_3	11.30	11.02	1002.4	1100	Anodización	~1200
Cu_2O	6.00	5.46	1076.0	500	Calentamiento en atmósfera controlada	450-550
Ta_2O_5	11.40	11.11	1139.0	975	Anodización	~1000

Tabla V.4 Resultados obtenidos.