

#### UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO

#### **FACULTAD DE CIENCIAS**

Caracterización de haces moleculares de carbono en altas energías

T E S I S

QUE PARA OBTENER EL TÍTULO DE:

Físico

P R E S E N T A:

Sinuhé Sandoval Hipólito



DIRECTOR DE TESIS: Dr. Efraín Rafael Chávez Lomelí Ciudad de México (2019)





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.

Para mis papás y hermanos: Gracias por apoyarme siempre.

### Agradecimientos:

#### Para mi familia y amigos:

Le doy gracias a mi familia por su gran apoyo, sobre todo mi mamá por darme la seguridad de estudiar la carrera de Física, a mi papá por darme un empujón y recomendación de estudiar física, a mis hermanos que me dieron sus consejos ya que de no haber sido así, no me hubiera quedado en un bachillerato incorporado a la UNAM.

Le doy gracias a la Universidad Nacional Autónoma de México y al Colegio de Ciencias y Humanidades Plantel Sur por haberme adoptado y haber conocido grandes amigos y profesores en el tiempo que curse en esos inolvidables 3 años y haber obtenido el pase directo a la Facultad de Ciencias, que también le agradezco a la Facultad ya que tuve la más grande formación académica por tener buenos profesores e investigadores que se dedicaron a enseñarme, y también le agradezco por haber conocido a los grandes amigos que me acompañaron desde que entre a la carrera Mario Alberto; Mauricio; Carlos, Rebeca y Luis ya que me hicieron buenos momentos inolvidables y también hicieron que la carrera fuera agradable.

#### Para mis colaboradores:

También agradezco al Instituto de Física de la UNAM por dejarme ser su estudiante asociado, agradezco al Dr. Efraín Chávez desde luego por aceptar ser mi tutor y por haberme adoptado en el grupo de Física Nuclear y Radiaciones, también por su paciencia y su clase de Introducción a la Física Nuclear junto con el Dr. Eduardo Andrade a quien también le agradezco mucho sus consejos. Le agradezco a mi ayudante Fís. Juan Flores por haberme enseñado y aconsejado en el momento que curse la clase, y le doy un gran agradecimiento muy especial a la otra ayudante Fís. Lupita Reza ya que también me estuvo enseñando y que siempre estuvo al tanto de mis dudas y me daba el jalón de orejas cuando más lo necesitaba, es como una hermana mayor para mí.

Agradezco sobre todo al Fís. Arcadio Huerta ya que nos ayudó con la sintonización del haz en el experimento que se llevó acabo, también al Sr. Sergio Martínez que me ayudo con la preparación de cátodos y me explicó el procedimiento de su preparación, al Dr. Daniel Marín que también estuvo a cargo para que este experimento se llevara a cabo. A la Dra. Corina que me explicó las dimensiones de los cátodos y a la Dra. María Rodríguez que me explicó y me aconsejó sobre la preparación de las muestras y todo el procedimiento que se lleva a cabo.

Agradezco a todos los estudiantes asociados que fueron mis compañeros y hermanos que estuve compartiendo su estancia, muchas gracias Gustavo, Benito, Luis Enrique, Amacalli, David y Alan Omar (ya que con ellos pasé los momentos divertidos en el laboratorio), de todos ellos le doy un agradecimiento también muy especial ya que fue también como un hermano mayor al Mtro. Javier Mas ya que me aconsejo con el análisis de datos y me paso su programa para graficar los espectros en ROOT CERN (que es un programa para el análisis de datos escrito en C/C++).

Agradezco a mi jurado asignado Dr. Roelof Bijker, Dra. Beatriz Fuentes, Dr. César Fernández y Dra. Libertad Barrón por ayudar a la mejora del trabajo.

Agradezco el apoyo financiero que hizo posible mi trabajo, específicamente con los contratos: CONACYT-UNAM 271802, 280760, 299073, 299186, 294537 y DGAPAUNAM IA103218 IG101016.

#### Resumen:

En este trabajo se describe la producción de haces moleculares en el LEMA (Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores). El LEMA forma parte de la infraestructura de laboratorios del Instituto de Física (IF) que es una dependencia académica de la Universidad Nacional Autónoma de México (UNAM) de acuerdo con el artículo 9° del Estatuto General de la UNAM. En el Instituto de Física o IFUNAM se han instalado 5 aceleradores de partículas de tipo electrostático y de bajas energías. La instalación del LEMA concluyó en agosto de 2013. En 2017, gracias al apoyo financiero concurrente del CONACYT y la UNAM, fue posible instalar y poner en funcionamiento un nuevo imán de 90° con una línea de haz acoplada a una cámara de experimentación. La llamada línea de Física Nuclear fue inaugurada en noviembre de ese mismo año.

Se aprovecha también la flexibilidad que ofrece la fuente de iones tipo SNICS (Sputtering Negative Ion Cesium Source) acoplada a un carrusel al que se le pueden poner hasta 50 cátodos, lo que permite cambiar en segundos la naturaleza de los haces inyectados a acelerador. Se ha trabajado con una gran variedad de haces entre ellos el <sup>12,13,14</sup>C en estados de carga 1,2,3 y 4+, aunque en principio se pueden producir iones de cualquier elemento de la tabla periódica empezando con el hidrógeno hasta el uranio.

Una de las principales motivaciones para producir haces moleculares fue la de implantar iones a más baja energía de lo que se consigue con iones atómicos, como se explica más abajo. Además, nos interesamos en estudiar la supervivencia de haces moleculares en estados de carga elevados usando un acelerador tipo Tándem. La supervivencia de moléculas diatómicas es un tema de interés en varias áreas y, en el caso del LEMA, especialmente en lo que respecta a la posible contaminación en la identificación de los isótopos radioactivos; por ejemplo, el <sup>14</sup>C<sup>2+</sup> puede confundirse con moléculas de masa 14 (<sup>12</sup>CH<sub>2</sub>, <sup>13</sup>CH, <sup>12</sup>C<sub>2</sub>H, <sup>7</sup>Li<sub>2</sub>...). Es sabido que la contaminación molecular se destruye en los aceleradores tipo Tándem en el canal de intercambio de carga (stripper), sin embargo, cualquier fracción que sobreviva puede alterar significativamente las medidas.

Gracias a la puesta en operación de la nueva línea de Física Nuclear del LEMA del IFUNAM no sólo ha sido posible realizar este experimento, sino que ahora se pone a disposición de futuros usuarios haces moleculares de carbono. En este trabajo caracterizamos haces de 2-carbonos (diatómico), 3-carbonos (triatómico) y de 4-carbonos (tetratómicos) en varios estados de carga.

## Índice

Agradeo	cimientos:	2
Resume	en:	4
Índice d	le Figuras.	7
Índice d	le Tablas	8
	o 1: Una breve introducción sobre átomos, moléculas y las características del	9
1.1	Antecedentes históricos.	9
1.2	Enlaces moleculares y una breve explicación sobre enlaces $\pi$ y $\sigma$	10
1.3	Las fuerzas de van der Waals.	12
1.4	Propiedades del carbono.	13
1.5	Hibridaciones y formas alotrópicas del carbono.	15
1.6	Grafito al Grafeno, estructuras y propiedades.	17
1.7	Formación de iones negativos en colisiones átomos-alcalino-molécula	18
Capítulo	o 2: Acelerador LEMA y preparación de muestras	20
2.1	Preparación de las muestras de grafito	20
2.2	Preparación de los cátodos.	20
2.3	El LEMA y su separador isotópico.	22
2.4	Espectrómetro de baja energía.	22
2.5	Fuente de iones tipo SNICS.	22
2.6	Deflectores electrostáticos esféricos.	25
2.7	Acelerador tipo tándem.	26
2.8	Cámara de experimentación.	28
Capítulo	o 3: Resultados y Análisis	29
3.1	Calibración con la fuente triple alfa.	29
3.2	Parámetros del experimento y la energía de los haces moleculares	30
3.3 imán	La relación de corriente con el campo magnético y la rigidez magnética d	
3.4	Espectros resultantes de los haces moleculares.	
	2 4: Conclusiones	
-	ce A	
-	ce B	
-	ce C	
•	ce D	
-	ce E	

## Índice de Figuras.

Figura 1. 1: Modelos Atómicos a) Concepto de átomo de Dalton, b) Modelo de Thomson	(c)
Modelo de Rutherford d) Modelo de Bohr. [1],[2]	9
Figura 1. 2: Modelos orbitales usando el principio de incertidumbre y dualidad onda	
partícula	
Figura 1. 3:Diagramas para los orbitales atómicos s y p	
Figura 1. 4: Diagrama para los enlaces moleculares π y σ	. 12
Figura 1. 5: Interacción van der Waals entre dos moléculas	. 13
Figura 1. 6: Representación para el átomo de carbono y su descripción	
Figura 1. 7: Hibridación sp <sup>3</sup> o tetragonal.	
Figura 1. 8: Hibridación sp <sup>2</sup> o trigonal	
Figura 1.9: Hibridación sp o digonal.	
Figura 1.10: Estructura del grafito y sus capas (grafeno)	
Figura 2.1: Fotografía del Separador Isotópico del LEMA. Las componentes más importan	ıtes
están señaladas	.20
Figura 2. 2: En la izquierda se muestra el cátodo con su portacátodo puesto, mientras que	en
la imagen de la derecha se muestran las dimensiones de los cátodos.	
Figura 2. 3: Esquema del LEMA	
Figura 2. 4: Imagen del interior del carrusel de 50 posiciones donde se montan los cátodo	S
que se van a introducir en la fuente de iones tipo SNICS	
Figura 2. 5: Imagen del primer deflector electrostático que va enseguida de la fuente de	
	. 25
Figura 2. 6: Imagen del imán inyector o imán de baja energía, su función es inyectar los	
iones negativos al acelerador con energía de 35 keV	. 26
Figura 2. 7: Fotografía del tanque del acelerador tipo tándem de 1 MV	. 27
Figura 2. 8: Imagen de la cámara de experimentación	. 28
Figura 3.1: Espectro de la fuente triple alfa	.29
Figura 3.2: Pendiente de calibración E=p <sub>1</sub> C+p <sub>0</sub> , que es la relación de canal con energía	. 30
Figura 3.3: Barrido del imán inyector donde los picos son los carbonos moleculares (12C-	
	.31
Figura 3. 4: Gráfica que relaciona la corriente en las bobinas del imán inyector con la ma	.sa
seleccionada para ingresar al acelerador (corriente, masa).	.32
Figura 3. 5: Barrido preciso del imán inyector, se pueden apreciar los distintos tipos de	
carbono. En el segundo barrido del imán inyector se hizo de 40 a 140 A, pero la única	
diferencia es que se tomaron 1000 puntos por 10 segundos cada uno.	.32
Figura 3. 6: Rigidez magnética del imán de alta energía para la identificación de haces	
moleculares a cierta corriente de las bobinas. Los puntos rojos son los haces identificable	es
después del proceso de aceleración.	
Figura 3. 7: Espectro de 125 A.	.36
Figura 3. 8: Espectro de 130 A. Se puede identificar el haz molecular de C <sub>4</sub>	
Figura 3. 9: Espectro de energía registrado en el detector PIPS para 155 A en las bobinas	
	.38
Figura 3. 10: Espectro de energía registrado en el detector PIPS para 100 A en las bobina	ιS
del imán de alta energía.	

Figura A. 2: Espectro de 105 A.
Figura A. 3: Espectro de 110 A
Figura A. 4: Espectro de 115 A.
Figura A. 5: Espectro de 120 A.
Figura A. 6: Espectro de 125 A.
Figura A. 7: Espectro de 130 A
Figura A. 8: Espectro de 135 A.
Figura A. 9: Espectro de 140 A.
Figura A. 10: Espectro de 145 A
Figura A. 11: Espectro de 150 A
Figura A. 12: Espectro de 155 A
Figura A. 13: Espectro de 160 A.
Figura A. 14: Espectro de 165 A.
Figura A. 15: Espectro de 170 A.
Figura A. 16: Espectro de 175 A
Figura A. 17: Espectro de 180 A.
Figura A. 18: Espectro de 185 A.
Figura A. 19: Espectro de 190 A.
Figura A. 20: Espectro de 195 A.
Figura A. 21: Espectro de 200 A
Figura E. 1: Fotografía del imán de alta energía para la nueva línea de física nuclear6
Índice de Tablas
Tabla 1. 1: Tabla de los enlaces covalentes del carbono con sus energías de ligadura y la
distancia interatómica.
Tabla 1. 2: Energía de ionización para estados de carga 1 <sup>+</sup> al 6 <sup>+</sup>
Tabla 1. 3: Distintos tipos de hibridaciones para el carbono, con su configuración
electrónica y su proceso de hibridación [14].
Tabla 3. 1: Energías calculadas de los haces moleculares con la ecuación 3.3 para estados de
carga 1 <sup>+</sup> , 2 <sup>+</sup> , 3 <sup>+</sup> y 4 <sup>+</sup> . Los cuadros en amarillo son los haces más probables de ver con
corrientes de 100 a 200 A en las bobinas del imán inyector

 Capítulo 1: Una breve introducción sobre átomos, moléculas y las características del carbono.

#### 1.1 Antecedentes históricos.

Los avances que se han conseguido a lo largo de los últimos siglos en el entendimiento de la naturaleza y que integramos en lo que entendemos como "Física", aunados al gran avance de la tecnología que trajo el diseño y construcción de nuevos instrumentos, han hecho posible la planificación y desarrollo de nuevos y más sofisticados experimentos que han promovido, poco a poco, un mejor entendimiento de los procesos físicos.

Es así como se desarrolla la física moderna, que viene acompañada de muchos descubrimientos y la creación de nuevas ramas de la Física.

A partir del siglo XIX hubo interés por saber cómo estaba estructurada la materia, y en el siglo XX se empezaron a hacer avances de mecánica cuántica. Poco más adelante surgió la física nuclear y fue evolucionando en todas sus vertientes hasta llegar a su nivel de investigación actual.

Aquí un breve resumen de cómo fue la historia sobre las investigaciones del átomo.

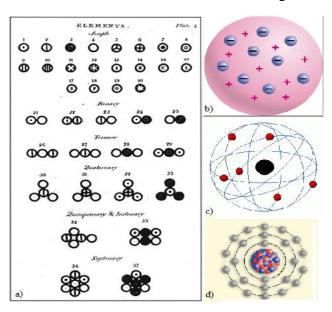


Figura 1. 1: Modelos Atómicos a) Concepto de átomo de Dalton, b) Modelo de Thomson c) Modelo de Rutherford d) Modelo de Bohr. [1],[2].

En el año 1803 John Dalton retoma el concepto del átomo de Demócrito de partícula indivisible sólida y compacta, aunque su concepto no era del todo correcto [1]. Más adelante en 1904, Joseph Thomson propone que el átomo está compuesto de electrones con carga negativa que están incrustados en un átomo con carga positiva. Luego en 1911, Ernest Rutherford demuestra que el átomo tiene un núcleo con carga positiva y toda su masa, con electrones girando sobre el núcleo. En 1913, Niels Bohr propuso que los electrones se mueven en órbitas circulares que están situadas en distintos niveles de energía. A partir de la década de los años 20 con la dualidad onda-partícula de Schrödinger y el principio de incertidumbre de Heisenberg (Figura 1.2), se le conoce como modelo actual o modelo estándar y se desconoce si el electrón se comporta como onda o partícula, por lo que no se puede determinar su posición y velocidad con certeza. [2], [3].

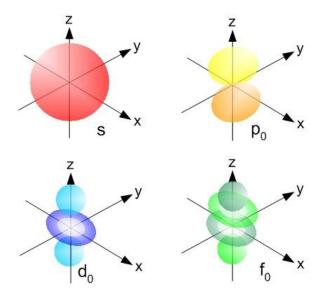


Figura 1. 2: Modelos orbitales usando el principio de incertidumbre y dualidad onda partícula

Referencia: [4]

# 1.2 Enlaces moleculares y una breve explicación sobre enlaces $\pi$ y $\sigma$ .

Un enlace molecular es la interacción entre dos átomos. En la Figura 1.3 se muestran las configuraciones atómicas orbitales s y p que son importantes para la formación de enlaces [5].

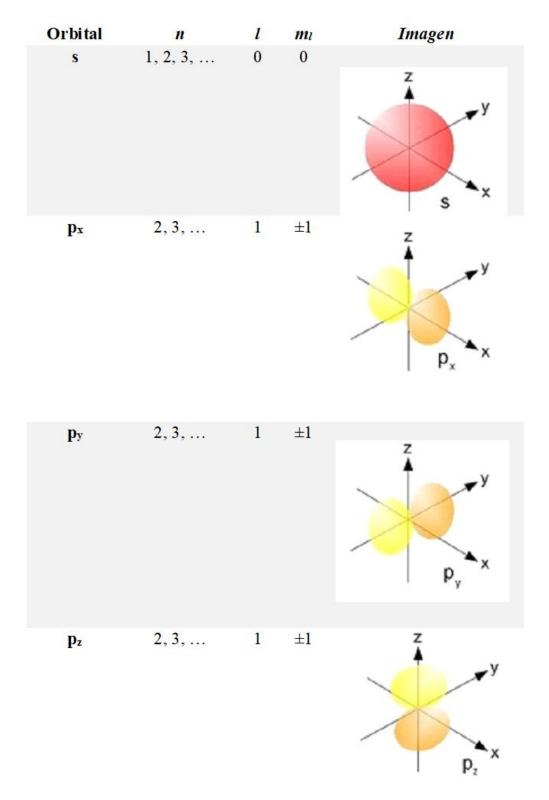


Figura 1. 3:Diagramas para los orbitales atómicos s y p.

Los enlaces moleculares están clasificados por letras griegas dependiendo de su momento angular L alrededor del eje de enlace, que es el eje z: la letra  $\sigma$  (letra griega que es equivalente a s) corresponde a L=0, mientras que  $\pi$  (letra griega que equivale a p) corresponde a  $L=\hbar$ , y así en orden alfabético. En la Figura 1.4 se muestran las formaciones de los enlaces orbitales moleculares  $\pi$  y  $\sigma$  a los enlaces orbitales atómicos s y p [5] [6].

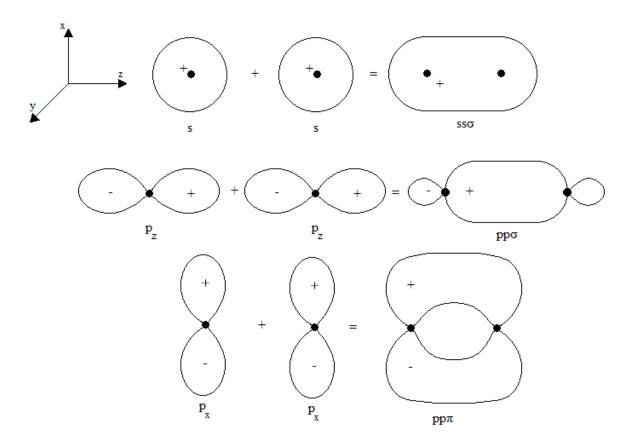


Figura 1. 4: Diagrama para los enlaces moleculares  $\pi$  y  $\sigma$ .

#### 1.3 Las fuerzas de van der Waals.

Las fuerzas de van der Waals son fuerzas de estabilización molecular; forman un enlace químico no covalente (Figura 1.5) en el que participan dos tipos de fuerzas o interacciones, las fuerzas de dispersión (que son fuerzas de atracción) y las fuerzas de repulsión entre las capas de 2 átomos contiguos [7] [8]. Los tipos de fuerzas incluyen:

• Orientación: Interacción entre 2 dipolos permanentes, por ejemplo, moléculas de agua atrayendo a otras moléculas de agua.

- Inducción: Interacción entre un dipolo permanente y un dipolo inducido, un ejemplo
  es la interacción que tendrían las moléculas de agua con las moléculas de tetracloruro
  de carbono.
- Dispersión (Fuerzas de London): Interacción entre 2 dipolos instantáneos, el ejemplo para este tipo de interacción es la interacción entre las moléculas de tetracloruro de carbono.

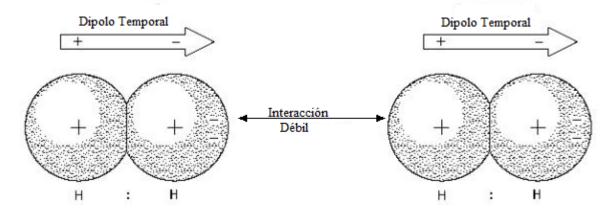


Figura 1. 5: Interacción van der Waals entre dos moléculas.

## 1.4 Propiedades del carbono.

El carbono es el elemento químico con número atómico 6, esto quiere decir que el átomo de carbono tiene 6 protones en su núcleo y está representado por el símbolo C en la tabla periódica de los elementos. El carbono pertenece al grupo de los no metales y es uno de los elementos más abundantes en la corteza terrestre y el universo [7] [8].

El isótopo más abundante (98.93%) es el <sup>12</sup>C. Es decir que tiene 6 protones y 6 neutrones. El resto es el <sup>13</sup>C (1.07%). Entre los isótopos de carbono que no son estables (del <sup>8</sup>C al <sup>22</sup>C) podemos encontrar en la naturaleza al <sup>14</sup>C que se forma en la atmósfera por interacción de la radiación cósmica con el <sup>14</sup>N. La vida media del <sup>14</sup>C es de 5730 años aproximadamente [7].

La configuración electrónica del átomo de carbono es 1s<sup>2</sup>2s<sup>2</sup>2p<sup>2</sup> cuando se encuentra en su estado fundamental y aislado.

Las propiedades químicas del carbono más importantes son [4] [7] [9]:

El carbono forma fuerte enlaces covalentes singletes dobletes y tripletes como se muestra en la siguiente tabla.

Enlace	Energía de ligadura (eV)	Distancia interatómica (pm)	
C-C singletes	3.596	154	
C=C dobletes	6.363	134	
C≡C tripletes	8.695	120	

Tabla 1. 1: Tabla de los enlaces covalentes del carbono con sus energías de ligadura y la distancia interatómica.

La electronegatividad del carbono (EN=2.55) permite formar iones  $C^{4-}$  en muchos metales y iones de  $C^{4+}$  cuando reacciona con otros no metales [10] [11] [12].

El carbono forma fuertes enlaces dobles y triples con elementos no metales, como: N, O, P y S.

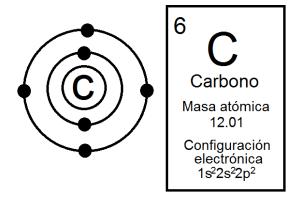


Figura 1. 6: Representación para el átomo de carbono y su descripción.

Otra de sus características es la energía de ionización, que es la cantidad de energía requerida para quitarle un electrón [7].

Energía (eV)	Ion
11.25	$C^{+1}$
24.37	$C^{+2}$
50.98	C+3
64.47	$C^{+4}$
391.97	C+5
490.13	C <sup>+6</sup>

Tabla 1. 2: Energía de ionización y afinidad electrónica para estados de carga 1<sup>+</sup> al 6<sup>+</sup>.

La afinidad electrónica (la energía de ligadura de un electrón adicional en el átomo neutro) del carbono es de 1.26 eV, para las moléculas C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub>, C<sub>5</sub> y C<sub>6</sub> sus afinidades electrónicas

son 3.27, 1.58, 3.41, 2.43 y 3.69 eV respectivamente [13] [14] [15]. Generalmente los no metales tienen afinidad electrónica positiva, esto quiere decir que los no metales les gusta ganar electrones para formar aniones y así tener una capa de electrones estable [11].

#### 1.5 Hibridaciones y formas alotrópicas del carbono.

Una de las propiedades más notables del carbono que lo distingue de otros elementos es la flexibilidad a la hora de formar enlaces químicos. En principio, los dos electrones que están en el orbital 2p están disponibles para formar enlaces, por lo que el carbono sería divalente, aunque la diferencia de energías es muy pequeña entre el orbital 2p y el 2s, por lo que son posibles distintos tipos de hibridación cuando el carbono tiene interacción con otros átomos cercanos, pues la energía total que forman los enlaces es menor que la del átomo aislado. La hibridación inicia cuando uno de los electrones del orbital 2s es promocionado al 2p, de modo que el átomo de carbono está en un estado excitado previo a la hibridación, más adelante, se producen una mezcla de orbitales puros en un estado excitado formando orbitales híbridos equivalentes, dado que los orbitales híbridos poseen orientaciones espaciales bien definidas, dando lugar a los enlaces covalentes  $\sigma$ . El carbono tiene distinto tipos de hibridaciones (ver Tabla) conocidas como  $sp^3$ ,  $sp^2$  y sp, como se explicará más adelante [16].

Estado/Hibridación	Configuración	Proceso de	Ejemplos
	electrónica	hibridación	
Fundamental	$\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow$ $\uparrow$ $\uparrow$		
	$\overline{1s}\overline{2s}\overline{2p_x}\overline{2p_y}\overline{2p_z}$		
Excitado	$\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow$		
	$\overline{1s}\overline{2s}\overline{2p_x}\overline{2p_y}\overline{2p_z}$		
Hibridación sp <sup>3</sup>	$\uparrow\downarrow$ $\uparrow$ $\uparrow$ $\uparrow$ $\uparrow$	1 orbital s + 3	Metano
	$\overline{1s}\overline{sp^3}\overline{sp^3}\overline{sp^3}\overline{sp^3}$	orbitales $p \rightarrow 4$	
		orbitales sp <sup>3</sup>	
Hibridación sp <sup>2</sup>	$\uparrow\downarrow$ $\uparrow$ $\uparrow$ $\uparrow$ $\uparrow$	1 orbital s + 3	Etileno, grafito
	$\overline{1s}  \overline{sp^2}  \overline{sp^2}  \overline{sp^2}  \overline{p}$	orbitales $p \rightarrow 3$	
		orbitales $sp^2 + 1$	
		orbital p inalterado	
Hibridación sp	$\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow$	1 orbital s + 3	Acetileno
	$\overline{1s}  \overline{sp}  \overline{sp}  \overline{p}  \overline{p}$	orbitales $p \rightarrow 2$	
		orbitales sp + 2	
		orbitales p	
		inalterados	

Tabla 1. 3: Distintos tipos de hibridaciones para el carbono, con su configuración electrónica y su proceso de hibridación [14].

Empezamos con la hibridación sp<sup>3</sup> (Figura 1.7) o también conocido como tetragonal, ya que su nombre los dice, se forman cuatro orbitales híbridos orientados en el espacio formando un tetraedro, esta hibridación es la base para los compuestos alifáticos y la estructura del diamante [16] [17].

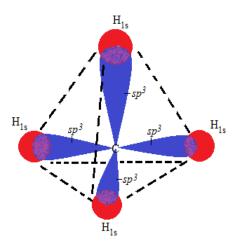


Figura 1. 7: Hibridación sp³ o tetragonal.

La hibridación sp<sup>2</sup> (*Figura 1.8*) o conocida como trigonal, involucra la formación de tres orbitales híbridos, se encuentran formando un plano con separación angular de  $120^{\circ}$  entre sí, en donde la estructura queda de forma hexagonal (como si fuera un panal de abeja) que es una característica de los materiales grafíticos. El electrón p que está deslocalizado y sin hibridar, está perpendicular al plano formado por los orbitales hibridados, y está disponible para un enlace  $\pi$  con otros átomos. Esta hibridación es la más estable del carbono a presión y temperatura ambiente, grafito, donde es la base de las estructuras grafíticas y los compuestos aromáticos [18].

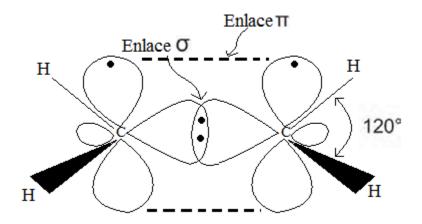


Figura 1. 8: Hibridación sp² o trigonal

El tercer tipo de hibridación es el sp o diagonal (Figura~1.9), se producen dos orbitales hibridados formando un ángulo de  $180^{\circ}$  entre sí, esto es debido a la repulsión mutua, por lo que las moléculas que se forman serán lineales, además los orbitales hibridados tienen dos orbitales deslocalizados  $\pi$  que no entran en el proceso de hibridación. Ejemplos de este tipo de hibridación son la molécula de acetileno y los carbinos [16].

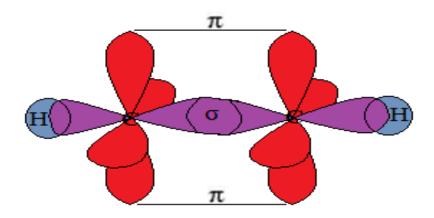


Figura 1. 9: Hibridación sp o digonal.

#### 1.6 Grafito al Grafeno, estructuras y propiedades.

Como se había dicho antes, tanto su estructura como sus propiedades son consecuencia directa de la hibridación sp<sup>2</sup>. El grafito es una estructura laminar, en donde cada estructura laminar está compuesta de grafeno, que es un material bidimensionalmente puro que puede considerarse como el principal componente básico para los materiales grafíticos (todos ellos basados en la hibridación sp<sup>2</sup>). El grafeno es un material muy prometedor debido a que tiene un gran número de aplicaciones, como los fullerenos, nanotubos unidimensionales y hasta el grafito tridimensional [19].

Como se comentó antes sobre la hibridación sp<sup>2</sup> que es muy común en los materiales grafiticos cada átomo de carbono se une a otros tres con enlaces covalentes de energías de 5.431 eV que son denominados  $\sigma$ . Forman una red hexagonal con distancia de 1.42 Å para los primeros vecinos. El otro orbital no hibridado p se superpone con los 3 átomos vecinos en donde se forma una banda orbital  $\pi$  que es conocida como banda de valencia. Por otro lado, se tiene una banda orbital vacía  $\pi'$ , que se denomina "banda de conducción". Es decir, los electrones  $\pi$  deslocalizados determinan las propiedades eléctricas de los materiales debido a que tienen gran movilidad en direcciones paralelas al plano. La red que compone el plano se le conoce como grafeno, que es la estructura básica de los materiales grafíticos. Entre cada plano de grafeno hay una separación alrededor de  $\sim$  3.4 Å, dónde es una separación relativamente grande debido que hay un acoplamiento entre las capas que surge de una

interacción de van der Waals entre los átomos con una energía de 0.073 eV entre los átomos de ambos planos. Aún así entre ambas bandas  $\pi$  y  $\pi'$  hay interacción que confieren al grafeno bicapa unas características electrónicas claramente diferenciadas.

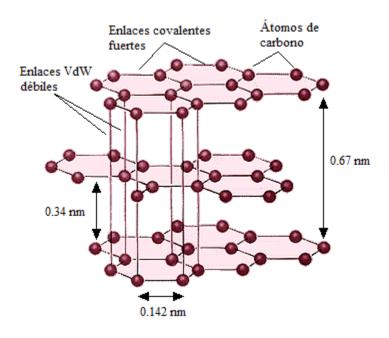


Figura 1. 10: Estructura del grafito y sus capas (grafeno).

Para el acoplamiento entre dos láminas de grafeno, las posiciones de los átomos no coinciden, sino que se encuentran desplazadas unas con respecto a las otras, por lo que debajo del centro del hexágono superior se encuentra un átomo de carbono en la parte inferior (*Figura 1.10*). Otras características importantes del grafito es el potencial de ionización ~12 eV [8] [19] [20].

## 1.7 Formación de iones negativos en colisiones átomosalcalino-molécula.

La formación de iones negativos en colisiones átomo-alcalino-molécula es un método poderoso para estudiar las propiedades dinámicas de los iones negativos. Una colisión con un donante de electrones (átomo alcalino) da acceso a lo que se llama la afinidad electrónica de la molécula.

Las afinidades electrónicas dependen de las condiciones de la colisión y no tienen que ser idénticas a afinidades electrónicas obtenidas por otros medios. Con los pares en su colisión en sus estados fundamentales los procesos que forman un ion par son generalmente enérgicas, es decir, requieren una colisión con energía mínima del orden de eV.

La captura de electrones unidos a un átomo o molécula en un par de iones formando la colisión con un átomo donante (usualmente un átomo alcalino), el proceso de formación para pares de iones puede ser representado como:

$$M + X \to M^+ + X^- \tag{1.1}$$

$$M + XY \to M^+ + (XY)^-$$
 (1.2)

$$\rightarrow M^+ + X + Y^- \tag{1.3}$$

$$\rightarrow M^+ + X^- + Y \tag{1.4}$$

donde M es un átomo alcalino y X y Y son átomos electronegativos [21].

### Capítulo 2: Acelerador LEMA y preparación de muestras.

En este capítulo se describe el dispositivo experimental, en donde se realizó el trabajo.

El Laboratorio de Espectrometría de Masas con Aceleradores (LEMA) se muestra en la *Figura 2.1*, ya con la nueva línea de física nuclear que se instaló en el 2017.

El separador isotópico (comúnmente conocido como el acelerador) se divide en varias secciones (también señaladas en la figura 2.1) que más adelante serán descritas.



Figura 2. 1: Fotografía del Separador Isotópico del LEMA. Las componentes más importantes están señaladas.

## 2.1 Preparación de las muestras de grafito.

Antes de describir el funcionamiento del LEMA se dará una breve explicación sobre la preparación de las muestras de grafito en técnicas de AMS. La fase de preparación de muestras se divide en dos procesos: proceso de combustión o hidrólisis y proceso de grafitización [22] [23] [24] . Aunque esto se explicará con más detalle en un apéndice (Apéndice D) pues el proceso de preparación no tiene mucho que ver con el tema de tesis que se va a presentar.

#### 2.2 Preparación de los cátodos.

La creación de los cátodos es mediante "A Negative Ion Cookbook" de *Middleton* [25], así que cuando se va a requerir un tipo de haz (en este caso de carbono o grafito) se hacen varios

cátodos del mismo material, la razón es que son varias horas de irradiación y es corta la vida de un cátodo por lo que se colocan 4 o 5 cátodos para cada experimento.

Otra de las razones es porque se necesita una intensidad de corriente constante durante horas, tienen una intensidad de corriente máxima pero luego comienzan a bajar su rendimiento, entonces se cambia a un cátodo nuevo para que la intensidad de corriente del haz no baje de rendimiento.

La característica de los cátodos es que son cilindros huecos de aluminio o cobre dependiendo del tipo de muestra que se va a trabajar. Las dimensiones del cátodo son 5 mm de diámetro y una altura de 9 mm (*ver Figura 2.2*).

La preparación de los cátodos pasa por dos procesos. El primer proceso es el de preparación de muestras y se realiza la limpieza de los cátodos y portacátodos.

Cuando el grafito es retirado del AGE (*Automated Graphitisation Equipment*), se vierte directamente en un cátodo de aluminio para después comprimirlo con una presión de 150 psi como mínimo (10 atmósferas aproximadamente) con una prensa; el grafito debe mostrar una superficie compacta, lisa y homogénea. Finalmente, el cátodo es colocado en un portacátodos e introducido en el separador isotópico. Más adelante, se hará una breve descripción de los cátodos.

Ya listo el cátodo se etiqueta y se guarda para que más adelante se le coloque un portacátodos antes de que ingrese al carrusel. El carrusel o sistema de inyección puede tener como máximo 50 cátodos.

Existen dos tipos de portacátodos, el primero el que se muestra en la figura es el más común en el laboratorio, el segundo se usa para trabajar con corrientes muy altas (mayor de  $100 \,\mu\text{A}$ ), es decir, una intensidad de haz mayor a lo usual (menor de  $100 \,\mu\text{A}$  para carbono) [26].

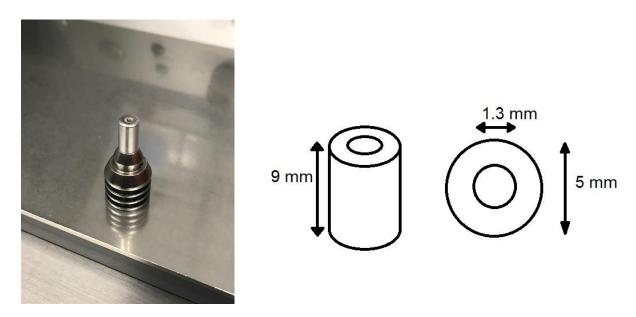


Figura 2. 2: En la izquierda se muestra el cátodo con su portacátodo puesto, mientras que en la imagen de la derecha se muestran las dimensiones de los cátodos.

#### 2.3 El LEMA y su separador isotópico.

Como se había dicho antes el LEMA está compuesto (Figura 2.3) en el siguiente orden [27]:

- 1. Fuente de iones SNICS, modelo SO110B.
- 2. Espectrómetro de masas de baja energía.
- 3. Acelerador tipo tándem 1 MV de HVEE.
- 4. Espectrómetro de masas de alta energía.
- 5. Cámara de reacción para física nuclear (instalada en noviembre de 2017).

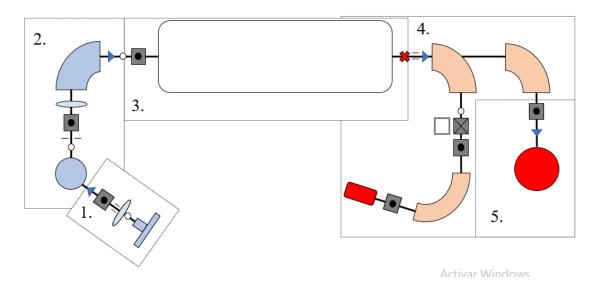


Figura 2. 3: Esquema del LEMA.

#### 2.4 Espectrómetro de baja energía.

Se trata del sistema que tiene la función de seleccionar y transportar el haz hasta la entrada del acelerador.

## 2.5 Fuente de iones tipo SNICS.

Una de las maravillas tecnológicas que han tenido que ocurrir para que la técnica de Espectrometría de Masas con Aceleradores (EMA) sea una realidad es el desarrollo de las fuentes SNICS.

El libro *A Negative-Ion Cookbook* de Roy Middleton [25], habla de este tipo de fuentes y es el documento de referencia para los que están interesados en la producción de haces negativos de cualquier especie (hidrógeno a plutonio con la excepción de los gases nobles).

La parte donde se insertan las muestras a analizar en el acelerador, y donde se inicia la producción de todos los haces, es la fuente de iones. La fuente que tiene el separador isotópico del LEMA es tipo SNICS (Sputtering Negative Ion Cesium Source), que combina los fenómenos de ablación atómica, inducidos por un haz de Cesio de 7 keV para producir átomos libres, y la ionización resonante para convertir los átomos neutros en iones negativos. El funcionamiento detallado de las fuentes de iones tipo SNICS puede encontrarse en otras publicaciones [27] [28], pero intentaré dar una idea general. Se trata de poner en contacto átomos del material del que se quieren producir haces, con vapores de cesio. En la medida que los átomos capturen un electrón adicional (electronegatividad positiva) que lo arrancan del Cesio se convierten en iones negativos que ya pueden ser manipulados.

Se sabe que el grupo de metales alcalinos (H, Li, Na, K, Rb, Cs y Fr) tienen las energías de ionización más bajas de toda la tabla periódica, ya que su configuración electrónica corresponde a un gas inerte con un electrón adicional a excepción del hidrógeno (H).

El Cs, Rb y el Fr son los elementos que tienen una menor energía de ligadura dentro de toda la tabla periódica (3.8939, 4.1771 y 4.0727 eV respectivamente) lo que les convierte en fuentes de electrones. El Fr es más caro, debido a su poca abundancia, por lo que el más utilizado para estos fines es el Cs. En algunas aplicaciones se usa también el Rb [27] [29]. En las fuentes SNICS se usa la propiedad del Cs tres veces:

- En la producción de iones positivos (Cs<sup>+</sup>).
- Para la aceleración y usarlos como proyectiles y producir átomos libres de un sólido por ablación.
- Como fuente de electrones transferibles a otros átomos que se convierten en iones negativos.

Las primeras dos se conocen y se entienden bien, tanto desde el punto de vista teórico como fenomenológico. En el tercer punto, su entendimiento conceptual se tuvo que esperar en los trabajos de John Vogel [30] [31] [32], quien usa el término de ionización resonante para describir el proceso mediante el cual un electrón ligado al Cesio (neutro) es transferido a un átomo (en nuestro caso de carbono) en la colisión de baja energía.

Vogel introduce el concepto de "Energy Deficit", y establece que cuando esta cantidad es mínima la transferencia del electrón del Cs al C (carbono ya que es lo que se está utilizando para este experimento) es óptima.

$$ED = IP_{Cs} - EA_C (2.1)$$

Vogel argumenta que el brillo azul observable en la fuente de iones tipo SNICS en operación se debe a la transición de los estados excitados  $7p_{1/2}$  y  $7p_{3/2}$  al estado base (E\*  $\cong$  2.7eV, 459.5 y 455.7 nm respectivamente), por lo que supone que hay un proceso térmico (ejemplo: 30

meV = 350 K) que provoca que una parte de los átomos neutros de Cs se encuentran abundantemente en esos estados excitados. Pues la energía de ligadura del electrón adicional en el carbono es de aproximadamente 1.2 eV estos electrones excitados en la capa 7p del Cs se trasladarían suavemente mediante ionización resonante al C, sin tener que pasar primero a un estado intermedio (el Cs<sup>+</sup>) que es mucho más costoso energéticamente.

Aunque el fenómeno que acabamos de describir sigue siendo objeto de debate, desarrollo e investigación como se puede apreciar por lo reciente de las publicaciones. En un futuro será posible producir fuentes más eficientes.

Una vez que el Cs le cede un electrón, estás partículas quedan cargadas con un estado de carga 1<sup>-</sup>. Ya una vez formados los iones negativos (en este caso de carbón) son extraídos de la fuente por un electrodo de extracción y se les aplica una diferencia de potencial de 28 kV. Y aprovechando que son iones de carga eléctrica negativa se pueden manipular (los átomos neutros no se pueden manipular con campos eléctricos).



Figura 2. 4: Imagen del interior del carrusel de 50 posiciones donde se montan los cátodos que se van a introducir en la fuente de iones tipo SNICS.

#### 2.6 Deflectores electrostáticos esféricos.

Después de la extracción de los iones se utiliza un deflector electrostático esférico (que son dos placas en forma de casquetes esféricos concéntricos de distintos radios (r<sub>1</sub> y r<sub>2</sub>),). Su función es filtrar el flujo extraído de la fuente de iones y sólo permite el paso de las partículas que tienen estados de carga "q" [33] (*Figura 2.5*).

Un ion que penetre el campo entre ambas placas será desviado fuera de la trayectoria coaxial, a menos que su energía cinética y su carga cumplan con la relación (Ecuación 2.2), por lo que sólo pasarán partículas con energía cinética de 35 keV y estados de carga 1<sup>-</sup>.

$$\frac{E}{q} = \frac{U}{d}\sqrt{r_1 r_2} \tag{2.2}$$

Donde U es la diferencia de potencial o voltaje al que están sometidas las placas, y d es la diferencia de radios entre las placas  $d = r_1 - r_2$ .

Para el caso que más nos interesa, todos los iones tienen carga eléctrica negativa, por lo que un deflector electrostático se convierte en un filtro de energía cinética [27].

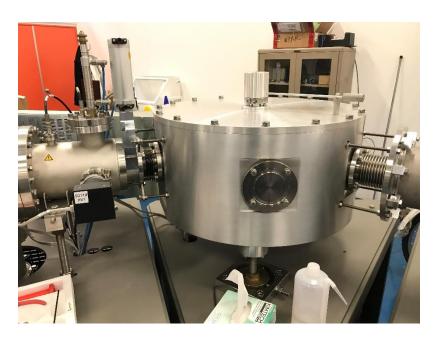


Figura 2. 5: Imagen del primer deflector electrostático que va enseguida de la fuente de iones tipo SNICS.

Luego este flujo va dirigido hacia el imán inyector o imán de baja energía (*Figura 2.6*), ya que su función es "inyectar" masas correspondientes a un valor seleccionado de rigidez magnética al acelerador [34].



Figura 2. 6: Imagen del imán inyector o imán de baja energía, su función es inyectar los iones negativos al acelerador con energía de 35 keV.

#### 2.7 Acelerador tipo tándem.

Este tipo de aceleradores pertenecen a la familia de aceleradores electrostáticos ya que las partículas son aceleradas por un campo eléctrico estático. En su interior produce aceleración a los iones que han superado los filtros cinemáticos de la zona de baja energía debido a la atracción hacia la terminal positiva (1 MV). Esta diferencia de potencial estará partida de manera ordenada y progresiva a lo largo del tubo acelerador [27]. En el interior de la terminal de alto voltaje es donde tiene lugar el intercambio de carga, mediante el cual los iones negativos pierden parte de sus electrones para ser acelerados en una segunda fase, pero ahora con carga positiva.

El diseño del sistema de carga del acelerador es de tipo Cockroft-Walton [35] [36].



Figura 2. 7: Fotografía del tanque del acelerador tipo tándem de 1 MV

Para aislar del medio externo la terminal de alto voltaje del acelerador, se le encierra dentro de un tanque que este contiene un gas aislante, en este caso es de hexafluoruro de azufre (SF<sub>6</sub>) a alta presión (entre 5 y 6 bares), eso es para evitar descargas dentro de la terminal [37]. En el proceso de intercambio de carga, los iones negativos van a interactuar con átomos de argón. Como resultado de esta interacción los iones resultantes tendrán carga distinta a aquella con la que ingresaron. Así tendremos distintos estados de carga dependiendo del tipo de haz con el que se va a trabajar. Al continuar su movimiento, los iones encuentran la segunda etapa del acelerador tándem. Los que tienen carga positiva ahora recibirán una segunda aceleración y adquirirán una energía adicional igual al producto del voltaje de la terminal del acelerador por el estado de carga [27] [38].

Otro fenómeno que ocurre es el rompimiento de moléculas, que ocurre en el canal de intercambio de carga. Los iones moleculares llegan a ser destruidos en su mayoría; la contaminación molecular es importante ya que impide la medida de los isótopos con la misma masa de las moléculas (por ejemplo, CH<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub> que tienen la misma masa que un <sup>14</sup>C). También hay que tomar en cuenta que la ruptura de moléculas dentro de este proceso es imprescindible, ya que las moléculas no sobreviven para estados de carga 3<sup>+</sup> [27] [39].

Al destruirse las moléculas, lo que encontramos a la salida del acelerador son haces de iones atómicos exclusivamente, o al menos es lo deseable y justamente el objetivo de esta tesis es

el de mostrar la supervivencia de ciertas moléculas después de pasar por el canal de intercambio de carga.

## 2.8 Cámara de experimentación.

Por último, el haz es llevado a la cámara de experimentación, que es parte de la línea de Física Nuclear. La cámara de experimentación es de acero inoxidable con forma cilíndrica de 40 cm de diámetro y diferentes puertos donde se pueden colocar detectores [26].



Figura 2. 8: Imagen de la cámara de experimentación.

## Capítulo 3: Resultados y Análisis.

### 3.1 Calibración con la fuente triple alfa.

Una parte esencial del experimento es la calibración del detector de partículas cargadas. Empleamos un detector de silicio PIPS (Canberra modelo 8850 de 40 V). Para encontrar la relación entre la altura de pulso producido por la partícula detectada y su energía (calibración) utilizamos una fuente radioactiva con tres emisores alfa naturales (fuente triple alfa). El espectro obtenido se muestra en la *Figura 3.1*. Los picos corresponden a las energías de las partículas alfa emitidas por los isótopos <sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Am y <sup>244</sup>Cm. Las energías son conocidas: 5155, 5486 y 5805 keV respectivamente.

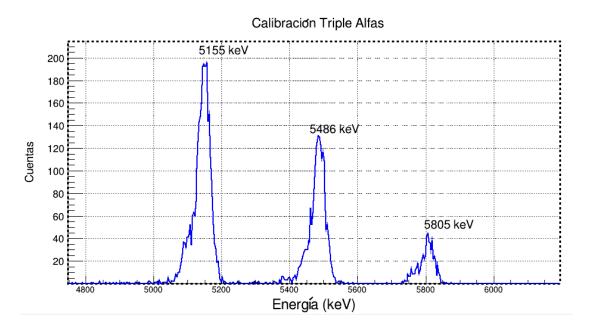


Figura 3. 1: Espectro de la fuente triple alfa.

Tenemos nuestra gráfica (Figura~3.2) de calibración con la fuente triple  $\alpha$  que nos sirve para identificar las energías de los haces.

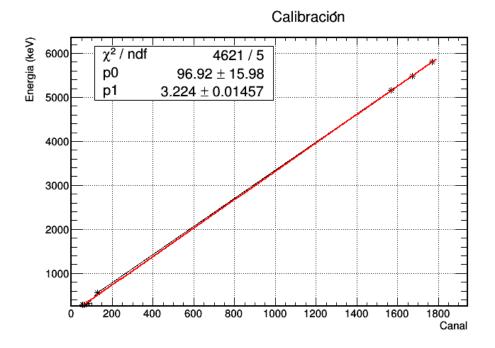


Figura 3. 2: Pendiente de calibración  $E=p_1C+p_0$ , que es la relación de canal con energía.

Tenemos una pendiente de calibración de 3.224 keV/Canal y tenemos un Offset de 96.92 keV.

# 3.2 Parámetros del experimento y la energía de los haces moleculares.

En el imán inyector se varió el campo magnético para identificar las masas para distintas moléculas de carbono para estar seguros de que pasaban masas de 12 a 72 umas (C<sub>1,2,3,4,5,6</sub>). El barrido del imán se hizo de 40 a 140 A (*Figura 3.3*), y se pueden apreciar los carbonos moleculares del C<sub>2</sub> al C<sub>6</sub>, el C<sub>5</sub> no aparece por lo que se tuvo que hacer un segundo barrido más preciso.

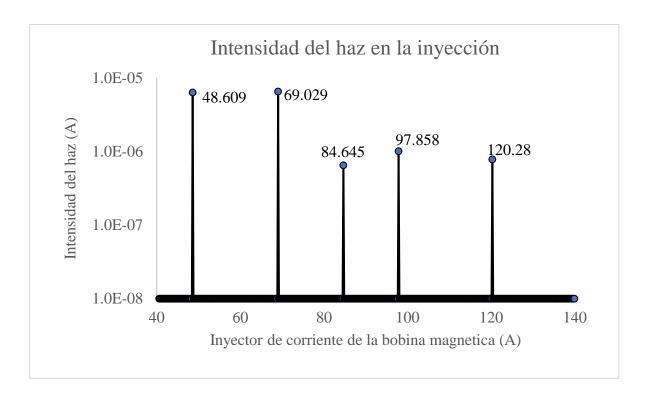


Figura 3. 3: Barrido del imán inyector donde los picos son los carbonos moleculares ( $^{12}C^{-1}_{1,2,3,4,6}$ ).

Para estar seguros de que son los haces de <sup>12</sup>C y sus moléculas, se hizo una gráfica (*Figura 3.4*) que relaciona la corriente de las bobinas del imán inyector con la masa. La gráfica se obtiene de la siguiente relación que hay entre el campo magnético y la masa (ecuación *3.1*).

$$k = \frac{q\rho}{\sqrt{2E}} = \frac{\sqrt{m}}{B} \tag{3.1}$$

Esto quiere decir que el cociente de la raíz cuadrada de la masa m con el campo magnético B es siempre constante si la energía cinética del haz E, el radio de curvatura  $\rho$  y la carga q son fijos. El cociente es igual para distinto campo magnético con su respectiva masa y entonces concluimos que:

$$\frac{B_1}{\sqrt{m_1}} = \frac{B_2}{\sqrt{m_2}} \tag{3. 2}$$

Con la expresión podemos saber a qué campo magnético está relacionada la masa de nuestro interés sabiendo que el campo magnético está relacionado directamente con la corriente de las bobinas del imán inyector.

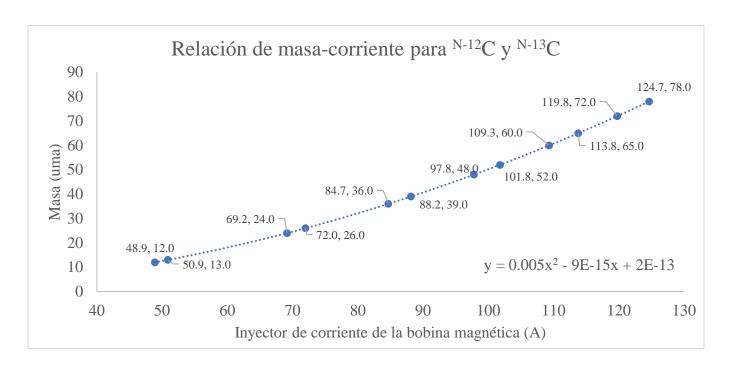


Figura 3. 4: Gráfica que relaciona la corriente en las bobinas del imán inyector con la masa seleccionada para ingresar al acelerador (corriente, masa).

Después se hizo una segunda variación de campo magnético para identificar las masas en el imán inyector y así precisar en qué corrientes están las masas de carbono, y poder capturar la masa 60. La diferencia se muestra el <sup>13</sup>C (*Figura 3.5*).

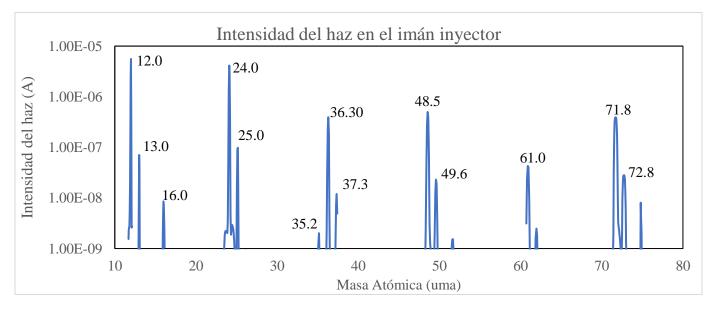


Figura 3. 5: Barrido preciso del imán inyector, se puede apreciar los distintos tipos de carbono. En el segundo barrido del imán inyector se hizo de 40 a 140 A, pero la única diferencia es que se tomaron 1000 puntos por 10 segundos cada uno.

Después comprobamos que tenemos una variedad de carbonos moleculares a la salida del imán inyector. Entonces sabemos que el carbono de masa 72 o mejor dicho <sup>12</sup>C<sup>-1</sup><sub>6</sub>, corresponde a la corriente del imán en 120 A.

Nuestro objetivo es ver si sobreviven haces moleculares de carbono para estados de carga 1<sup>+</sup> y 2<sup>+</sup> a la salida (alta energía) del acelerador. En donde buscaremos masas 24, 36, 48, 60 y 72 (*uma*).

Por otro lado, se sabe que la energía de las partículas aceleradas por un acelerador tipo tándem está dada por la expresión del capítulo anterior (ecuación 3.3), donde  $V_i = 35 \ kV$  y  $V_t = 200 \ kV$ . Sin embargo, dado que la masa inyectada (moléculas) es distinta de la finalmente acelerada, es necesario modificar la ecuación de la siguiente manera:

$$E(keV) = e\left(\frac{m_r}{m_t}\right)V_i + e\left(\frac{m_r}{m_t} + q\right)V_t \tag{3.3}$$

donde  $m_r$ = 12, 24, 36, 48, 60 y 72, y  $m_t$ = 72.

Tenemos la siguiente tabla de energía para los diferentes estados de carga y masas del <sup>12</sup>C (*Tabla 3.1*).

Carga q=1 <sup>+</sup>		Carga q=2 <sup>+</sup>	Carga q=3 <sup>+</sup>	Carga q=4 <sup>+</sup>
Masa (uma)	Energía (keV)	Energía (keV)	Energía (keV)	Energía (keV)
12	239.2	439.26	639.2	839.2
24	278.3	478.3	678.3	878.3
36	317.5	517.5	717.5	917.5
48	356.7	556.7	756.7	956.7
60	395.8	595.8	795.8	995.8
72	435.0	635.0	835.0	1035.0

Tabla 3. 1: Energías calculadas de los haces moleculares con la ecuación 3.3 para estados de carga 1<sup>+</sup>, 2<sup>+</sup>, 3<sup>+</sup> y 4<sup>+</sup>. Los cuadros en amarillo son los haces más probables de ver con corrientes de 100 a 200 A en las bobinas del imán inyector.

# 3.3 La relación de corriente con el campo magnético y la rigidez magnética del imán.

Con idea de detectar los haces producidos a la salida del acelerador, primero se puso una caja de Faraday a cero grados a la entrada de la cámara de reacción de la línea de Física Nuclear y se hizo un barrido en la corriente de las bobinas del imán de alta energía entre 100 y 200 A de 5 en 5. Una vez comprobada la ausencia de haces intensos, se permitió el paso del haz al interior de la cámara en donde se instaló un detector de silicio directamente frente a la dirección incidente del haz, donde normalmente habría un blanco.

En estas nuevas condiciones se repitió el barrido anterior para buscar, con la más alta sensibilidad, haces moleculares.

Se sabe que las relaciones de corriente con el campo magnético del imán para baja y alta energía (ecuaciones 3.4 y 3.5 respectivamente) son [40]:

$$B = 49.0i + 62 [G] \tag{3.4}$$

$$B = 35.5 i + 29.4 [G] (3.5)$$

Y se tiene que la rigidez magnética se expresa como:

$$B\rho = 144\sqrt{\frac{mE}{q^2}}\tag{3.6}$$

donde B es el campo magnético del imán de alta energía en kG [kilogauss], la masa a trabajar m que en este caso fueron masas 24, 36, 48, 60 y 72, E es la energía del haz molecular [en MeV] y q es el estado de carga (en este caso sólo seria  $I^+$  y  $I^+$ ),  $I^+$ 0 es  $I^+$ 1 y  $I^+$ 2 cm.

Luego usando las expresiones 3.4 y 3.5, se tienen las energías de los haces esperados en relación con la rigidez magnética y corriente del imán de alta energía como se muestra en la siguiente gráfica.

Cada haz molecular tiene distinta energía y por ende distinto campo magnético del imán. (Figura 3.5).

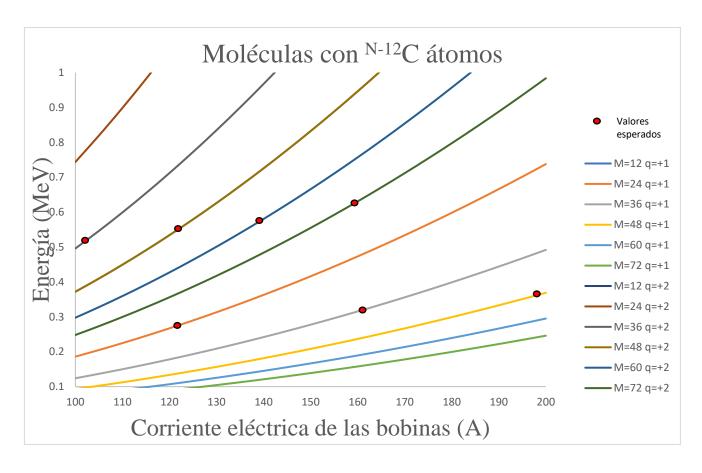


Figura 3. 6: Rigidez magnética del imán de alta energía para la identificación de haces moleculares a cierta corriente de las bobinas. Los puntos rojos son los haces identificables después del proceso de aceleración.

## 3.4 Espectros resultantes de los haces moleculares.

Tenemos nuestra gráfica (Figura~3.2) de calibración con la fuente triple  $\alpha$  que nos sirve para identificar las energías de los haces.

Como el detector está a 0° respecto al haz, para evitar que el detector se dañe cada espectro se toma sólo durante 30 segundos.

Una vez que se tuvieron los 21 espectros, por simple inspección pudimos identificar aquellos valores del campo magnético (corriente en las bobinas) en donde aparece un flujo apreciable de partículas en el detector. Posteriormente usamos la gráfica de la rigidez magnética para identificar esos haces, por ejemplo: el espectro de 125 A se aprecian dos haces que más adelante identificaremos como  $C^{+1}_2$  y  $C^{+2}_4$  (*Figura 3.7*).

#### Espectro de 125 A

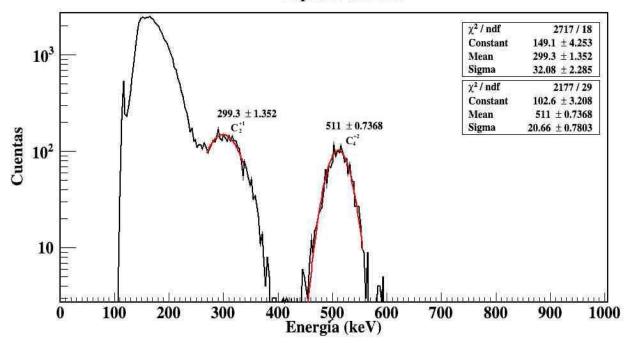


Figura 3. 7: Espectro de 125 A.

En el análisis de datos se usó el programa ROOT CERN [41] [42] [43]; que una de sus características es el ajuste gaussiano que está dado por la siguiente ecuación:

$$f(x) = C * exp \left( -0.5 * \left( \frac{x - M_v}{\sigma} \right)^2 \right)$$
 (3.1)

En donde C es una constante, Mv es el valor medio de la gaussiana y  $\sigma$  es la desviación estándar. En nuestro el ajuste viene en inglés por lo que los parametros serán Constant, Mean y Sigma.

Regresando al espectro de 125 A, el primer haz tiene una energía de  $299.3 \pm 1.4~keV$  que al compararlo con la tabla 3.1, le correspondería a un haz de  $C^{+1}_2$  ya que debería tener una energía de 278.3 keV. El segundo haz tiene una energía de  $511 \pm 0.7~keV$  que nuevamente al compararlo con la tabla se identifica como de  $C^{+2}_4$  que debería tener una energía de 556.7 keV.

En la gráfica de  $130\,A$  (Figura 3.8) es posible identificar a la molécula de masa  $48\,({\rm C}^{+2}{}_4)$ , ya que tiene energía de  $548.5\pm0.5\,keV$  en comparación con los  $560\,keV$  esperados.

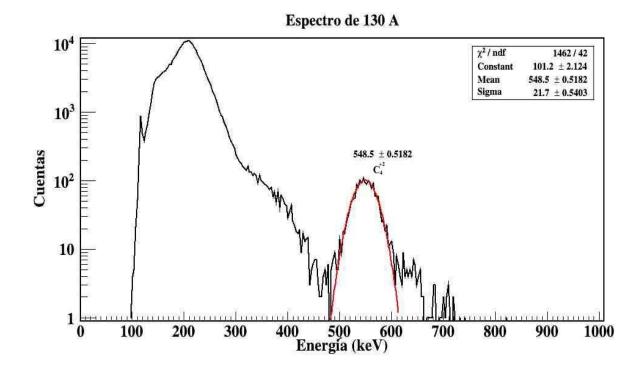


Figura 3. 8: Espectro de 130 A. Se puede identificar mejor el haz molecular de C<sub>4</sub>.

Otro espectro en el que se puede discriminar un "haz" se nuestra en la gráfica siguiente (*Figura 3.9*), que corresponde a una corriente de 155 A en las bobinas del imán. El ajuste gausiano del "pico" corresponde a una energía de  $368.2\pm1.1~keV$ , que sería consistente con un haz de  $C^{+1}_3$ . En ese mismo espectro también debería estar el haz de  $C^{+2}_6$  pero no se distingue, probablemente debido a la baja probabilidad de supervivencia de esa molécula en el estado de carga 2+.

#### Espectro de 155 A

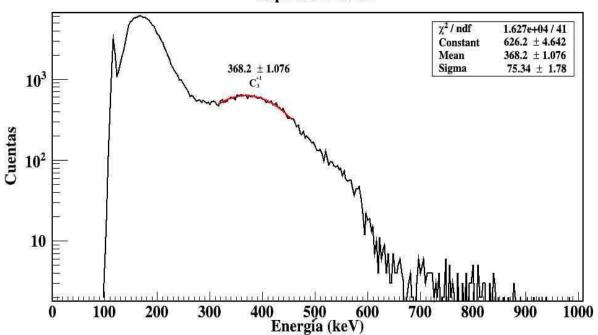


Figura 3. 9: Espectro de energía registrado en el detector PIPS para 155 A en las bobinas del imán de alta energía.

Algunos haces de carbono se llegaron a ver un poco, como es el caso de  $C^{+2}_3$  para corrientes del imán de alta energía de entre 100 y 105 A (La gráfica de 100 A está en el Apéndice A, *Figura A.1*), solo que no se apreciaba muy bien ya que tenían energías de entre  $587.4 \pm 5.3$  keV y  $658.3 \pm 2.1$  keV respectivamente (*Figura 3.10*). En ambos espectros se alcanza a ver un "valle" que no puede ser identificado.

Los haces C<sup>+1</sup><sub>4</sub> y C<sup>+2</sup><sub>5</sub> no se alcanzaron a apreciar en los espectros de 200 A y 140-145 A respectivamente. Solo se alcanza a ver un gran valle, pero eso lo consideramos como ruido que no tiene nada que ver con la electrónica del detector. Los demás espectros están en el Apéndice A.

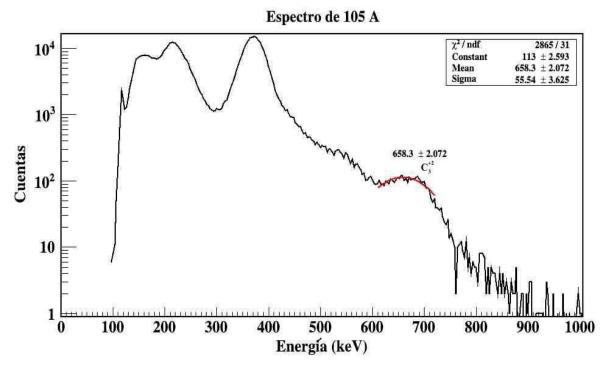


Figura 3. 10: Espectro de energía registrado en el detector PIPS para 105 A en las bobinas del imán de alta energía.

# Capítulo 4: Conclusiones.

La contaminación molecular para técnicas AMS en aceleradores tipo tándem es un problema de gran interés y con este trabajo se muestra que es necesario investigarlo bien a fondo [44]—[54]. En nuestro caso al inyectar la molécula C<sup>-1</sup><sub>6</sub> en el acelerador, sobreviven varias especies moleculares al canal de intercambio de carga.

Algunas moléculas sobreviven para estados de carga  $1^+$  y  $2^+$ , como son los casos de  $C^{+1}_{2,3}$  y  $C^{+2}_{3,4}$ .

Las moléculas que no se alcanzaron a observar, pero tenían que estar en ciertos espectros según nuestra gráfica de rigidez magnética (*Figura 3.5*) fueron los haces de  $C^{+1}_4$  y  $C^{+2}_{5,6}$  para los espectros de 200, 145 y 160 A respectivamente. Por ejemplo, en la gráfica de 155 A se alcanza apreciar el haz  $C^{+1}_3$  pero no se puede ver el  $C^{+2}_6$ .

También los cálculos de las energías de los haces moleculares difieren un poco con los resultados de los espectros, a pesar de que la calibración de la fuente triple está bien una de las cosas que se toma en cuenta es que la calibración está en el orden de 5-6 MeV. Como se trabajaron con energías menores de 1 MeV era necesario usar la rigidez magnética del imán de alta energía.

Ya demostrada la contaminación molecular, se podría usar para otras aplicaciones, por ejemplo: en la creación de películas delgadas en aceleradores tipo tándem.

# Apéndice A

# Espectros de haces moleculares de carbono.

Se presentarán todos los espectros.

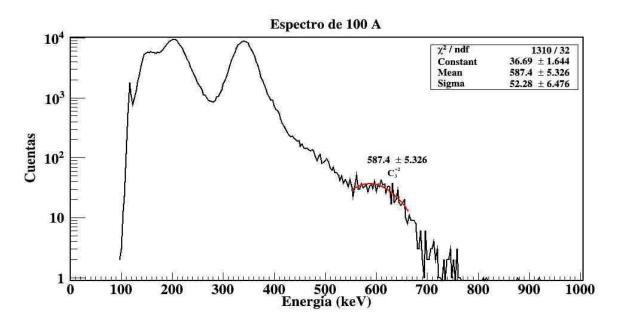


Figura A. 1: Espectro de 100 A.

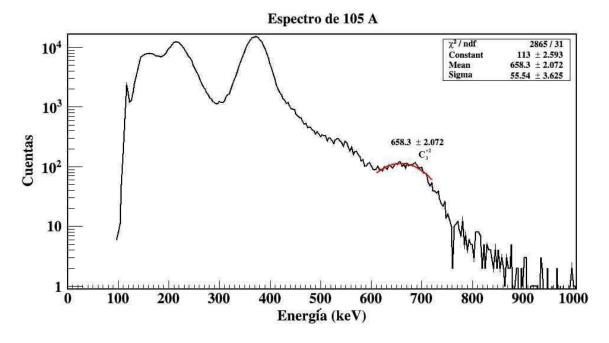


Figura A. 2: Espectro de 105 A.

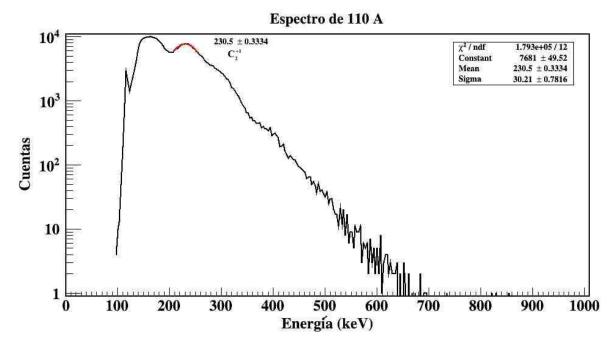


Figura A. 3: Espectro de 110 A.

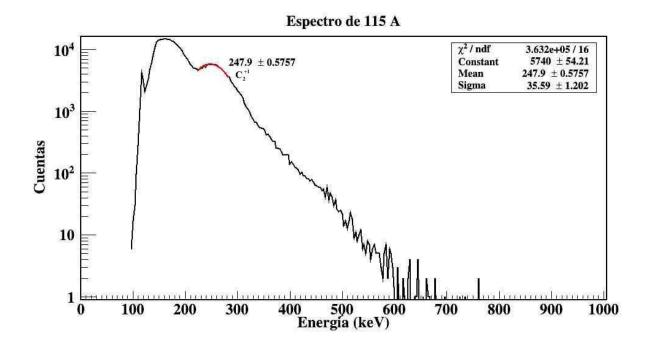


Figura A. 4: Espectro de 115 A.

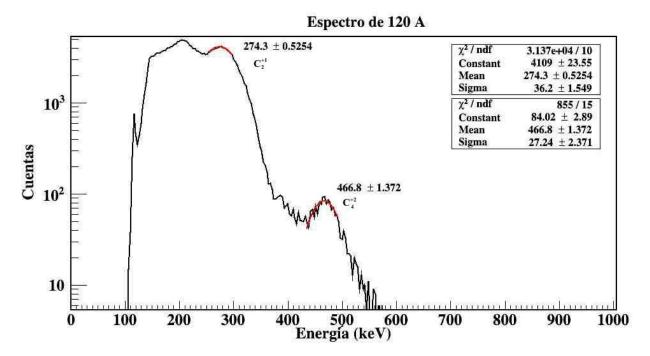


Figura A. 5: Espectro de 120 A.

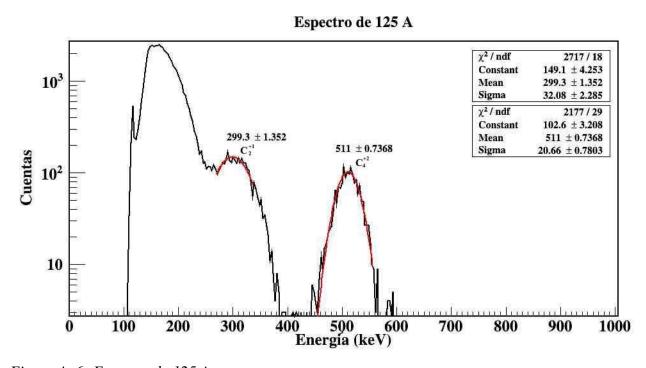


Figura A. 6: Espectro de 125 A.

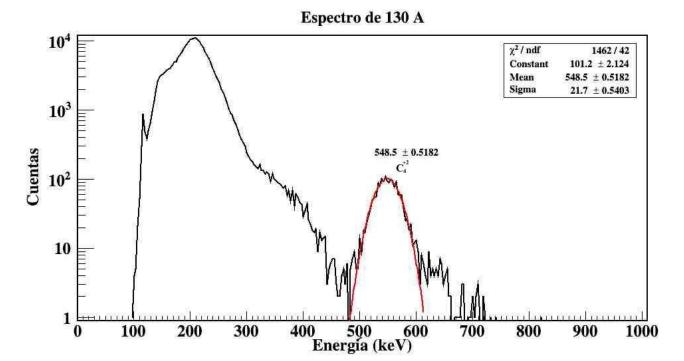


Figura A. 7: Espectro de 130 A.

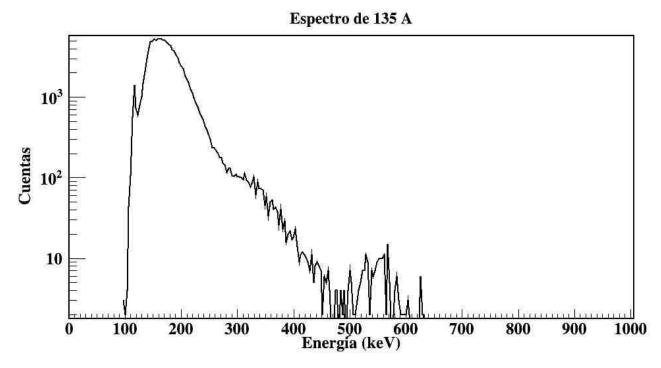


Figura A. 8: Espectro de 135 A.

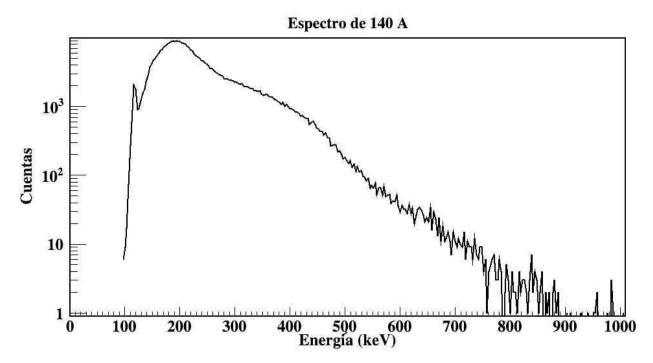


Figura A. 9: Espectro de 140 A.

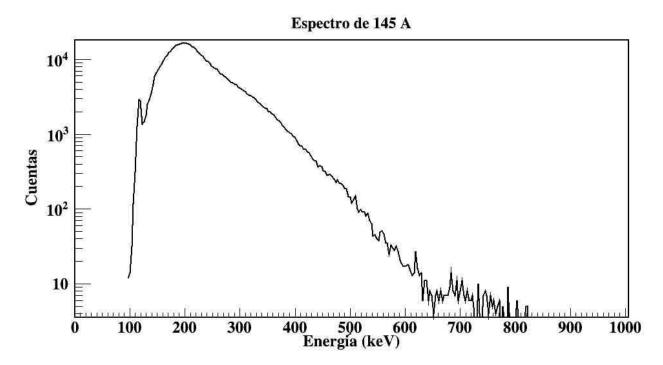


Figura A. 10: Espectro de 145 A.

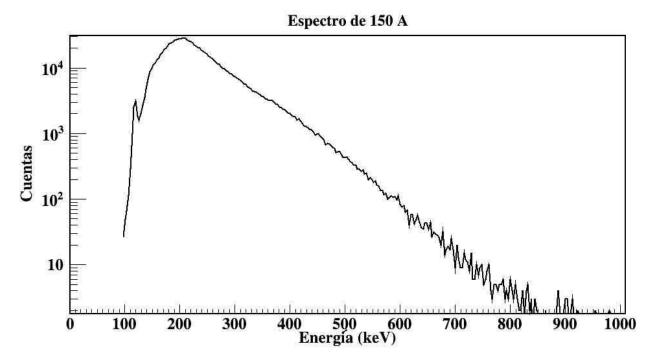


Figura A. 11: Espectro de 150 A.

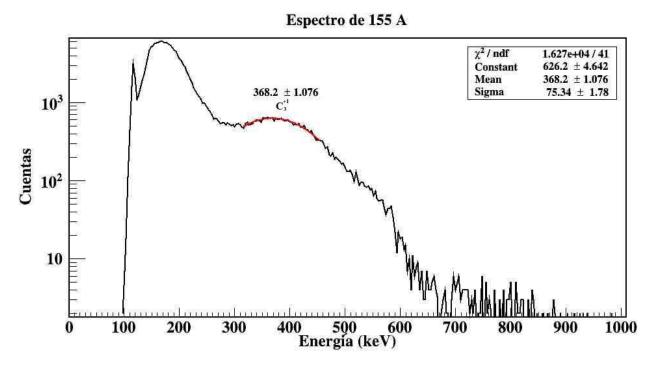


Figura A. 12: Espectro de 155 A.

#### Espectro de 160 A

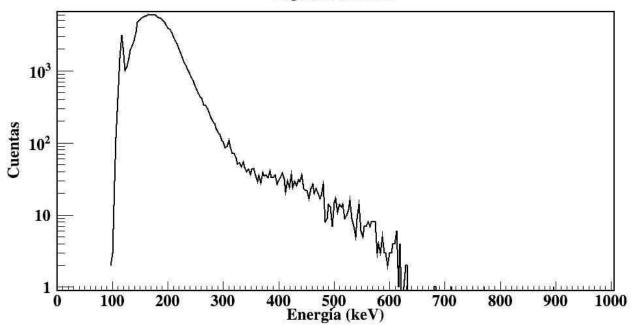


Figura A. 13: Espectro de 160 A.

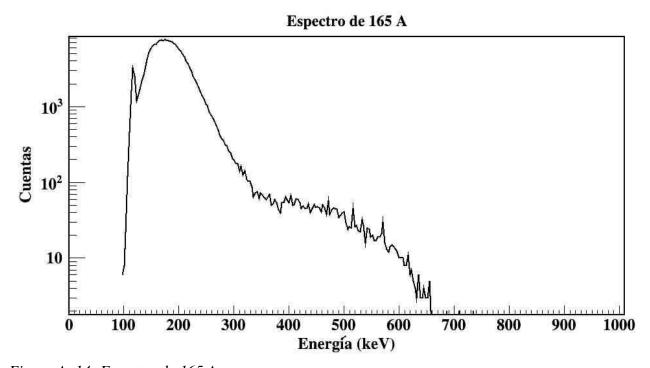


Figura A. 14: Espectro de 165 A.

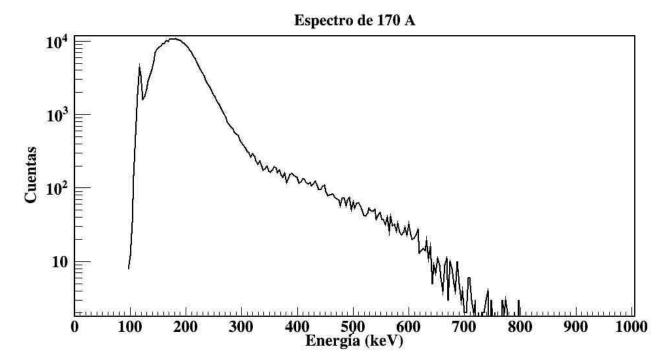


Figura A. 15: Espectro de 170 A.

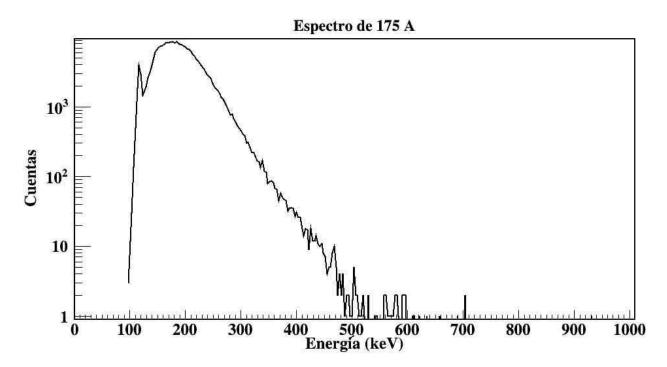


Figura A. 16: Espectro de 175 A.

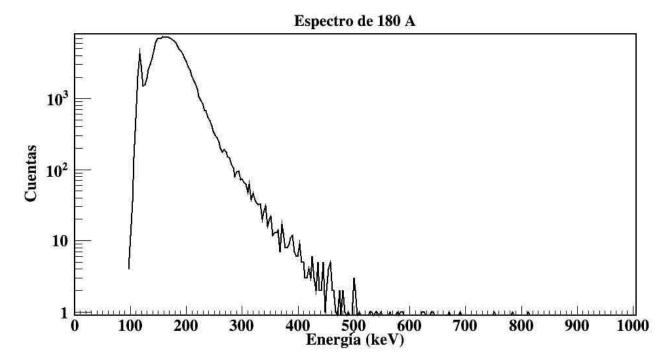


Figura A. 17: Espectro de 180 A.

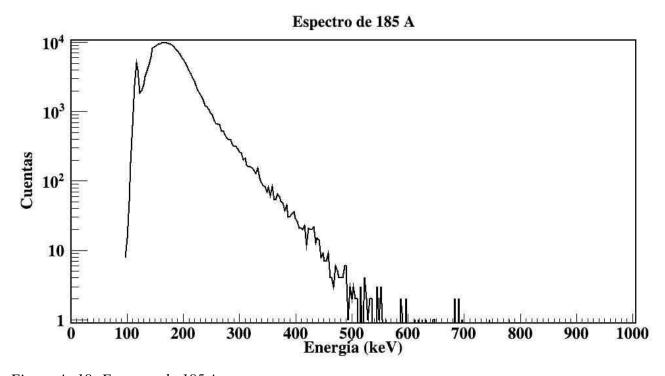


Figura A. 18: Espectro de 185 A.

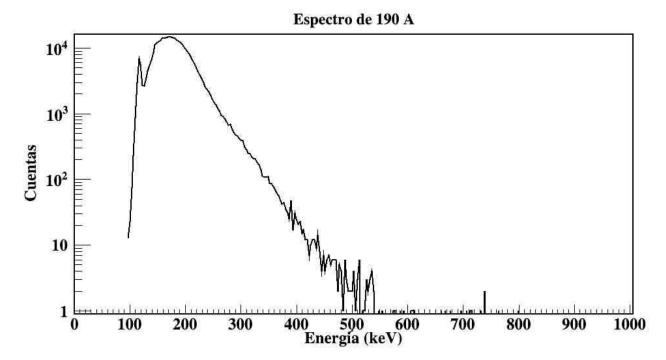


Figura A. 19: Espectro de 190 A.

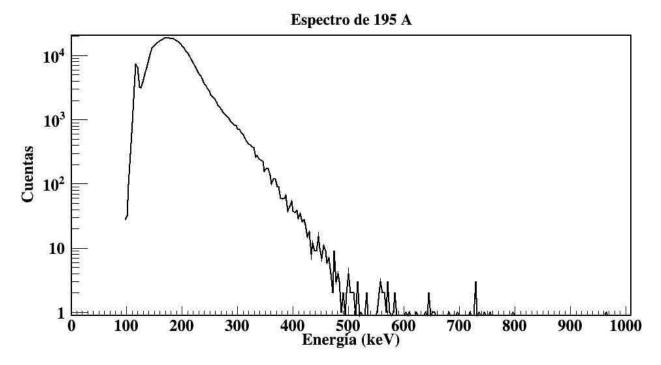


Figura A. 20: Espectro de 195 A.

# Espectro de 200 A 10<sup>3</sup> 10<sup>2</sup> 10 100 200 300 400 500 600 700 800 900 1000 Energia (keV)

Figura A. 21: Espectro de 200 A

# Apéndice B

En esta sección se presentarán las tablas de rigidez magnética para los estados de carga  $1^+$  y  $2^+$ .

		E MeV					
I (A)	B (kG)	(m=12)	(m=24)	(m=36)	(m=48)	(m=60)	(m=72)
100	3.58	0.37	0.19	0.12	0.09	0.07	0.06
105	3.76	0.41	0.20	0.14	0.10	0.08	0.07
110	3.93	0.45	0.22	0.15	0.11	0.09	0.07
115	4.11	0.49	0.25	0.16	0.12	0.10	0.08
120	4.29	0.53	0.27	0.18	0.13	0.11	0.09
125	4.47	0.58	0.29	0.19	0.14	0.12	0.10
130	4.64	0.63	0.31	0.21	0.16	0.13	0.10
135	4.82	0.68	0.34	0.23	0.17	0.14	0.11
140	5.00	0.73	0.36	0.24	0.18	0.15	0.12
145	5.18	0.78	0.39	0.26	0.19	0.16	0.13
150	5.35	0.83	0.42	0.28	0.21	0.17	0.14
155	5.53	0.89	0.44	0.30	0.22	0.18	0.15
160	5.71	0.95	0.47	0.32	0.24	0.19	0.16
165	5.89	1.01	0.50	0.34	0.25	0.20	0.17
170	6.06	1.07	0.53	0.36	0.27	0.21	0.18
175	6.24	1.13	0.57	0.38	0.28	0.23	0.19
180	6.42	1.20	0.60	0.40	0.30	0.24	0.20
185	6.60	1.26	0.63	0.42	0.32	0.25	0.21
190	6.77	1.33	0.67	0.44	0.33	0.27	0.22
195	6.95	1.40	0.70	0.47	0.35	0.28	0.23
200	7.13	1.48	0.74	0.49	0.37	0.30	0.25

Tabla B. 1: Tabla de referencia para ver con qué corriente del imán de alta energía pasaban los haces moleculares con estado de carga  $1^+$ , en amarillo son los espectros a interés.

		E MeV	E MeV				
I (A)	B (kG)	(m=12)	(m=24)	(m=36)	(m=48)	(m=60)	(m=72)
100	3.58	1.49	0.74	0.50	0.37	0.30	0.25
105	3.76	1.64	0.82	0.55	0.41	0.33	0.27
110	3.93	1.80	0.90	0.60	0.45	0.36	0.30
115	4.11	1.96	0.98	0.65	0.49	0.39	0.33
120	4.29	2.14	1.07	0.71	0.53	0.43	0.36
125	4.47	2.32	1.16	0.77	0.58	0.46	0.39
130	4.64	2.51	1.25	0.84	0.63	0.50	0.42
135	4.82	2.70	1.35	0.90	0.68	0.54	0.45
140	5.00	2.90	1.45	0.97	0.73	<mark>0.58</mark>	0.48
145	5.18	3.11	1.56	1.04	0.78	0.62	0.52
150	5.35	3.33	1.66	1.11	0.83	0.67	0.55
155	5.53	3.55	1.78	1.18	0.89	0.71	0.59
160	5.71	3.79	1.89	1.26	0.95	0.76	0.63
165	5.89	4.02	2.01	1.34	1.01	0.80	0.67
170	6.06	4.27	2.14	1.42	1.07	0.85	0.71
175	6.24	4.53	2.26	1.51	1.13	0.91	0.75
180	6.42	4.79	2.39	1.60	1.20	0.96	0.80
185	6.60	5.05	2.53	1.68	1.26	1.01	0.84
190	6.77	5.33	2.67	1.78	1.33	1.07	0.89
195	6.95	5.61	2.81	1.87	1.40	1.12	0.94
200	7.13	5.90	2.95	1.97	1.48	1.18	0.98

 $\textit{Tabla B. 2: Tabla de referencia para haces moleculares de carbono con estado de carga~2^+.}$ 

# Apéndice C

La rigidez magnética es importante para el transporte de una partícula cargada moviéndose en trayectoria circular a través de un campo magnético, por lo tanto, se puede reducir que el momento de una partícula.

De la ecuación de la fuerza de Lorentz (*ecuación C.1*), una partícula cargada se mueve en dirección de las líneas de campo magnético (de manera paralela) sin la presencia del campo eléctrico entonces la fuerza resultante es cero. Si la partícula se mueve perpendicular a las líneas del campo magnético entonces la fuerza es distinta de cero.

$$\mathbf{F}_{L} = \mathbf{q}\vec{\mathbf{E}} + \mathbf{q}\vec{\mathbf{v}} \times \vec{\mathbf{B}} \tag{C. 1}$$

Consideramos que no hay campo eléctrico y la partícula se mueve perpendicular a las líneas del campo magnético. Entonces la fuerza de Lorentz se reduce como:

$$F_L = qvB \tag{C. 2}$$

Y como la partícula tiene un movimiento circular de radio  $\rho$ , usamos la fuerza centrípeta que se expresa como:

$$F_C = \frac{mv^2}{\rho} \tag{C. 3}$$

Igualamos amabas fuerzas (C.2 y C.3) y tenemos:

$$B\rho = \frac{mv}{q} \tag{C. 4}$$

En donde  $B\rho$  es la rigidez magnética, pero la deducción no está completa debido a que hay que saber la relación con la energía cinética de la partícula. La rigidez magnética es proporcional al momento de la partícula. Usando la definición de momento y el concepto de masa relativista tenemos:

$$m = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}} \tag{C. 5}$$

Despejando (C.5) nos queda de la forma:

$$m^2 - \frac{m^2 v^2}{c^2} = m_0^2 \tag{C. 6}$$

La expresión (C.6) se puede ver de la siguiente forma  $m^2c^2 - m^2v^2 = m_0^2c^2$ , en dónde p = mv, la ecuación se transforma en:

$$p^2 = m^2 c^2 - m_0^2 c^2 (C.7)$$

Que también se puede ver de la siguiente forma:

$$p = \sqrt{m^2c^2 - m_0^2c^2} = \frac{1}{c}\sqrt{m^2c^4 - m_0^2c^4}$$
 (C. 8)

Por otro lado, la energía cinética  $E_c$  de la partícula con velocidades cercanas a la de la luz se puede ver con diferencia la energía total y la masa en reposo.

$$E_c = mc^2 - m_0 c^2 (C. 9)$$

Elevamos la ecuación (C.9) al cuadrado y desarrollamos.

$$E_c = m^2 c^4 - 2m m_0 c^4 + m_0^2 c^4$$

$$\rightarrow m^2 c^4 = E_c^2 + 2m m_0 c^4 - m_0^2 c^4$$

$$\rightarrow m^2 c^4 = E_c^2 + 2m_0 c^2 (mc^2 - m_0 c^2 + m_0 c^2) - m_0^2 c^4$$

$$\rightarrow m^2 c^4 = E_c^2 + 2m_0 c^2 E_c + 2m_0^2 c^4 - m_0^2 c^4 = E_c^2 + 2m_0 c^2 E_c + m_0^2 c^4 \qquad (C. 10)$$

Sustituimos en la ecuación (C.8).

$$p = \frac{1}{c} \sqrt{E_c^2 + 2m_0 c^2 E_c + m_0^2 c^4 - m_0^2 c^4} = \frac{1}{c} \sqrt{E_c^2 + 2m_0 c^2 E_c}$$
 (C. 11)

La ecuación de movimiento se puede ver también como:

$$mv = B\rho q = \frac{1}{c}\sqrt{E_c^2 + 2m_0c^2E_c}$$
 (C. 12)

Y la carga se ve como q=Ze y lo sustituimos con (C.12).

$$B\rho = \frac{1}{cZe}\sqrt{E_c^2 + 2m_0c^2E_c} = \frac{1}{cZe}\sqrt{E_c^2\left(\frac{2m_0c^2E_c}{2m_0c^2E_c}\right) + 2m_0c^2E_c}$$

$$= \frac{1}{cZe} \sqrt{\left[\frac{E_c^2}{2m_0c^2E_c} + 1\right] 2m_0c^2E_c} = \frac{\sqrt{2m_0E_c}}{Ze} \sqrt{\frac{E_c}{2m_0c^2} + 1}$$
 (C. 13)

Pero el término  $\frac{E_c}{2m_0c^2} \approx 0$  debido a que los aceleradores tienen energías bajas del orden de MeV a comparación de GeV. Por lo tanto, la ecuación (C.13) queda de la forma:

$$B\rho = \sqrt{\frac{2m_0 E_c}{(Ze)^2}}$$

Pero en sistema cgs, la ecuación se reduce a:

$$B\rho = 144\sqrt{\frac{mE_c}{Z^2}} \tag{C. 14}$$

### Apéndice D

La combustión es el primer paso para transformar la muestra en grafito puro. Hoy en día hay varias formas de realizar este paso: el primero es oxidando la muestra en tubos de borosilicato en presencia de óxido de cobre en una línea de vacío; la otra es oxidando la muestra en presencia de óxido de cobre dentro de un tubo de cuarzo sellado en una mufa y por último de forma automatizada en un Analizador Elemental (AE), que se usa en el LEMA.

El método por AE consiste en colocar dentro de un tubo de borosilicato una muestra previamente pesada a la que se añade una cantidad diez veces mayor en masa de óxido de cobre. La mezcla se calienta con un mechero Fischer hasta que se logre la oxidación completa de la muestra sin que se reduzca el cobre a cobre metálico. Logrado esto, se utiliza una línea de vacío para eliminar el agua y vapores condensables utilizando mezclas criogénicas. Posteriormente, la mezcla gaseosa resultante se circula a través de una columna con plata y cobre metálico a alta temperatura para reducir óxidos de nitrógeno y eliminar compuestos de azufre. Por último, se condesa el CO<sub>2</sub> con nitrógeno líquido (-195.8 °C) y al final se purgan los gases incondensables como el N<sub>2</sub> u otros que pudieran estar presentes. La muestra también puede oxidarse en los tubos de cuarzo sellados al vacío (1.0x10<sup>-3</sup> Torr) por lo que se ha agregado óxido de cobre en las mismas proporciones que el método anterior. Los tubos son calentados a 900 °C en una mufla durante 3 horas hasta que logren la oxidación completa. La reacción puede describirse como en la siguiente ecuación [22]:

$$C_nH_n + CuO \rightarrow CO_2 + H_2O + gases incondensables$$

Se puede ver que tenemos como resultado el CO<sub>2</sub>, que más adelante es purificado con vapores condensables, agua, óxidos de calcógenos y halógenos.

Para agilizar el proceso de oxidación, así como la purificación y captura de dióxido de carbono, se ha recorrido el uso de analizadores elementales. El analizador elemental del LEMA (VARIO micro Cube) realiza de forma automatizada el proceso de oxidación en atmósfera de oxígeno y tiene la ventaja de que realiza análisis cuantitativo de N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub> y CO<sub>2</sub>.

El AE consta de los siguientes elementos:

- Válvula de bola
- Tubo de secado
- Horno con revestimiento para protección al calor
- Revestimiento de cristal de cuarzo para protección térmica

En la sección del horno tiene dos calentadores independientes, donde su temperatura es monitoreada y preseleccionada en una computadora. Tiene dos tubos de reacción (uno de reducción y otro de oxidación). La parte superior del instrumento consta de un carrusel de 120 posiciones con una cubierta de anillo. Si las sustancias afectan de forma negativa a los análisis del instrumento son todas aquellas que contienen halogenuros, fosfatos y metales pesados.

Las unidades funcionales del AE son las siguientes [22]:

- 1. Dosificación de O<sub>2</sub> e inserción mecánica de la muestra
- 2. Zona de reacción y área del horno
- 3. Separador
- 4. Detector

La función de la unidad comienza con la inserción mecánica, todas las muestras se colocan en serie en el carrusel para que después sean transportadas dentro de la válvula de bola. Luego el aire atmosférico dentro del AE es desplazado con helio (He) o una mezcla de helio y argón (Ar), después la muestra es transportada dentro del tubo de combustión. El horno mantiene el tubo de oxidación y reducción a una temperatura constante (950 °C) que es controlada por el usuario. En el tubo de oxidación se realiza la catálisis completa de la combustión en exceso de oxígeno y gases (entre ellos el CO<sub>2</sub>). Por último, las cenizas en forma de residuos sólidos de la muestra analizada se mantienen en un crisol de estaño.

Los gases generados durante la combustión entran al tubo de reducción donde se retienen compuestos halógenos volátiles y reduce el exceso de oxígeno, también reduce los óxidos de nitrógeno a nitrógeno (NO<sub>n</sub> a N<sub>2</sub>). Después la mezcla de gases es llevada a la columna de absorción o columna TPD (*Temperature Programmed Desorption*), consta de diferentes absorbentes físicos selectivos. La columna absorbe CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O y SO<sub>2</sub>, por lo que se mide primero el flujo de N<sub>2</sub> ya que es un gas incondensable, luego la columna incrementa su temperatura a 60°C para liberar CO<sub>2</sub>, después a 100°C para liberar el H<sub>2</sub>O y finalmente a los 200°C para liberar el SO<sub>2</sub>. Un tubo de absorción adicional es usado para retener el H<sub>2</sub>O durante la desorción del SO<sub>2</sub>. Se le asigna una señal eléctrica a cada componente que se mide, debido a que, las células de referencia y medición forman parte de un sistema de medición que reacciona a las fluctuaciones en la composición de la mezcla de gases.

El sistema de medición es un detector de conductividad térmica (TCD) que consiste en dos cámaras, una que contiene mezcla de gases y la otra contiene como referencia helio puro, y el gas a medir fluye entre ellos de manera simultánea. Las cámaras forman un puente para medir, que es sensible a la adición de gases extraños de la muestra, lo cual se registra como una señal eléctrica y después se muestra digitalizado a la computadora. El detector no diferencia el tipo de gas que registra por lo que se mide un gas a la vez, por lo que es vital la retención de gases en la columna. La secuencia y los tiempos de medición están en función

de una calibración previa del instrumento, que también permite la medición de porcentajes absolutos. Todos los procesos que fueron descritos se hacen en condiciones estables de presión y flujo, para así poder determinar las concentraciones molares de la muestra fiablemente. La columna de absorción está formada de óxido cúprico e hilo de plata separados con lana de cuarzo [22].

En el proceso de hidrólisis, se realiza para muestras de carbonatos y se puede realizar en dos formas: en una línea de vacío purificando el CO<sub>2</sub> de la forma criogénica o en un sistema que se usa en el LEMA que es un sistema automatizado llamado *Carbonate Handling System* (CHS). La reacción en el proceso de hidrólisis es la siguiente [24] [23]:

$$2H_3PO_{3(ac)} + 3CaCO_{3(ac)} \rightarrow 3CO_{2(g)} + 3H_2O_{(g)} + Ca_3(PO_4)_{2(ac)}$$

La reacción de ácido fosfórico  $[H_3PO_4]$  con carbonato de calcio  $[CaCO_3]$  genera el fosfato de calcio  $[Ca_3(PO_4)_2]$  más dióxido de carbono  $[CO_2]$  y agua  $[H_2O]$ .

Antes de realizarse la reacción, la muestra pasa por un "pretratamiento", después de asegurar que está seca, se muele y se pesa para que al final se coloque en un vial de 12 mL con tapa de goma. Ya que está sola la muestra, se necesita 1 mg de carbono, 10 mg de muestra son suficientes, si colocamos más puede ocasionar que la tapa se dispare debido a la presión dentro del vial durante la reacción.

El vial se coloca dentro de la rejilla de muestras del CHS; es importante limpiar la atmósfera que entró junto con la muestra -que contiene CO<sub>2</sub>-, por lo que el sistema cuenta con una aguja en la que pueden entrar y salir gases; por un lado, entra flujo de helio y por otro sale el helio acarreando los gases que contenga el vial. El flujo de helio usado para limpiar el vial es de 70 mL/min y se realiza durante 10 minutos, dado que el equipo cuenta un flujómetro interno, solo se ajusta mediante una perilla.

Al agregar el ácido fosfórico se debe cambiar el tipo de aguja a una hipodérmica diseñada especialmente para el CHS, 1 mL es suficiente para llevar a cabo la reacción mostrada anteriormente. Para asegurar que se completa la reacción, el vial se calienta a 70°C durante 30 minutos; el CHS tiene una placa térmica que permite calentar las muestras.

Mientras se lleva a cabo la hidrólisis, se reinstala la aguja inicial para acarrear con helio el CO<sub>2</sub> formado al sistema de grafitización (AGE). El agua es eliminada utilizando una trampa de pentóxido de fósforo. Todos estos pasos se realizan con el CHS programado y calibrado previamente, las únicas intervenciones manuales se realizan en los cambios de las agujas después de depositar viales de muestra.

En el proceso de grafitización, el CO<sub>2</sub> generado en la oxidación en el AE o la hidrólisis del CHS, se reduce a través de una reacción catalítica que lo transforma en grafito. La forma más común de reducir el CO<sub>2</sub> a grafito es usando hierro [Fe] como catalizador e hidrógeno [H<sub>2</sub>] como reductor -reacción de Bosch-, requiriéndose temperaturas de entre 550-650°C y que se puede esquematizar como [23]:

$$CO_2 + 2H_{2(g)} \xrightarrow{Fe,550-650^{\circ}C} C_{(s)}(Grafito) + 2H_2O_{(g)}$$

Esta reacción descrita es el resultado de dos reacciones:

$$CO_{2(g)} + H_{2(g)} \xrightarrow{Fe,550-650^{\circ}C} CO_{(g)} + H_2O_{(g)}$$

$$CO_{(g)} + H_{2(g)} \xrightarrow{Fe,550-650^{\circ}C} C_s(Grafito) + H_2O_{(g)}$$

Aparte, se tiene óxido de hierro [FeO]. Existe otra reacción catalítica de reducción de forma de CO<sub>2</sub> usando zinc metálico, pero es mayor el tiempo de reacción. La reacción de Bosch se puede realizar en sistemas de vacío convencionales con hornos diseñados específicamente para esta reacción. El LEMA realiza el proceso de grafitización de manera automatizada por medio de un sistema AGE (*Automated Graphitisation Equipment*) acoplado a los equipos de combustión e hidrólisis.

El AGE es un desarrollo que permite preparar muestras de forma rápida y eficiente para AMS. Una vez que la muestra ha sido quemada en el AE, el CO<sub>2</sub> es acarreado a una trampa empacada con zeolita X13, sustancia capaz de absorber selectivamente el CO<sub>2</sub>. Posteriormente y de manera controlada, el CO<sub>2</sub> es liberado térmicamente de la trampa, envuelta en un hilo de calentamiento monitoreado por un termopar, desde lo cual es transferido a un reactor mediante la expansión gaseosa de capilares de 0.5 mm de diámetro. El AGE tiene 7 reactores cada uno de ellos con un tubo de reacción en la base por medio de una conexión tipo *Swagelok*; es decir, es un arreglo conectado a una válvula neumática que permite la entrada y aislamiento del CO<sub>2</sub> un sensor de presión, una trampa de agua y sus respectivos hornos con sensores de temperatura. Los hornos están diseñados para alcanzar temperaturas arriba de los 700°C, en tanto que la trampa de agua es enfriada a -10°C durante la reacción mediante un enfriador Peltier (dispositivo que al aplicarle un cierto voltaje crea una diferencia de temperatura).

Una vez que el CO<sub>2</sub> es atrapado en la zeolita, se necesita 450°C para expandir al gas hacia un reactor donde sucede la reducción con H<sub>2</sub>, como temperatura de reacción se usan 580°C. El hierro (5mg) es colocado previamente en un tubo reactor para activarlo (150 s, 500°C). La selección del tipo de zeolita radica ene el tamaño del poro, su polaridad y capacidad de absorción (además que sea reversible) ya que las diferentes formas catiónicas pueden dar diferencias en la absorción del gas. La trampa de zeolita se limpia a 500°C con un flujo de argón para evitar la contaminación por CO<sub>2</sub> por efecto "memoria" de la siguiente muestra. El control del proceso de grafitización se hace por medio de una interfaz de cómputo llamada LabView [22].

La forma de grafitizar carbonatos por medio de CHS es análoga, el tiempo de grafitización toma entre 2-4 horas y se hace lo mismo para cada reactor.

# Apéndice E

Otras partes que no explique debido a que tiene que ver con AMS (nada que ver con el tema de esta tesis) es el espectrómetro de alta energía y detección del gas

Espectrómetro de alta energía.

La separación final del isótopo raro es de nueva cuenta con la rigidez magnética del imán, y vuelve a desviar el haz a 90° de su posición inicial y el imán tiene un radio de curvatura  $\rho$  de 85 cm, más adelante en la salida del imán. Pero antes de eso debe de pasar por el cuadrupolo eléctrico ya que su función es enfocar el haz que sale del acelerador, y luego de que se ha realizado el enfoque permite la entrada del imán a alta energía



Figura E. 1: Fotografía del imán de alta energía para la nueva línea de física nuclear.

Detección del gas.

Luego de pasar por el cuadrupolo, el haz pasa por el detector de gas y su función es como un telescopio que detecta partículas y se generan espectros bidimensionales entre la pérdida de energía  $\Delta E$  de una trayectoria corta y la energía E es transmitida a la energía restante de la partícula [29].

# Bibliografía

- [1] J. Dalton, A New System of Chemical Philosophy. 1808.
- [2] "Modelos Atómicos." [Online]. Available: https://modelosatomicos.com/.
- [3] "The American Physical Society A Century of Physics." [Online]. Available: https://timeline.aps.org/APS/
- [4] "Spherical Harmonics and Hydrogen Atom." [Online]. Available: https://mathworld.wolfram.com/SphericalHarmonic.html
- [5] Beiser, "Concepts of Modern Physics" 2003.
- [6] Levine, "Physical Chemistry" 2009.
- [7] "Encyclopedia Britannica." [Online]. Available: https://www.britannica.com/.
- [8] "Chemistry Libretexts." [Online]. Available: https://chem.libretexts.org/.
- [9] J. Girard, *Principles of Environmental Chemistry*, 3rd ed. Jones and Bartlett Learning, 2013.
- [10] "Carbon Properties." [Online]. Available: https://courses.lumenlearning.com/introchem/chapter/properties-of-carbon/.
- [11] "Carbon properties of free atoms." [Online]. Available: https://www.webelements.com/carbon/atoms.html.
- [12] "Carbon Electron affinity." [Online]. Available: https://www.nuclear-power.net/carbon-affinity-electronegativity-ionization/.
- [13] S. L. Lu, "Electron affinities with diffusion quantum Monte Carlo for C2 and BO molecules," *J. Chem. Phys.*, vol. 121, no. 21, pp. 10495–10497, 2004.
- [14] D. Bresteau, C. Drag, and C. Blondel, "Isotope shift of the electron affinity of carbon measured by photodetachment microscopy," *Phys. Rev. A*, vol. 93, no. 1, pp. 1–8, 2016.
- [15] L. Adamowicz, "Electron affinities of small linear carbon clusters. Coupled cluster calculations with first-order correlation orbitals," *J. Chem. Phys.*, vol. 94, no. 2, pp. 1241–1246, 1991.
- [16] P. Solís, "Modificación superficial de materiales de carbono: grafito y grafeno," *Univ. Oviedo*, 2011.
- [17] G. Eda and M. Chhowalla, "Chemically derived graphene oxide: Towards large-area thin-film electronics and optoelectronics," *Adv. Mater.*, vol. 22, no. 22, pp. 2392–2415, 2010.
- [18] O. C. Compton and S. T. Nguyen, "Graphene oxide, highly reduced graphene oxide, and graphene: Versatile building blocks for carbon-based materials," *Small*, vol. 6, no. 6, pp. 711–723, 2010.
- [19] S. Stankovich *et al.*, "Graphene-based composite materials," *Nature*, vol. 442, no. 7100, pp. 282–286, 2006.
- [20] "The Inorganic Chemistry of Carbon." [Online]. Available: https://chemed.chem.purdue.edu/genchem/topicreview/bp/ch10/carbon.php.
- [21] R. Antunes *et al.*, "Negative ion formation in potassium-nitromethane collisions," *Phys. Chem. Phys.*, vol. 12, no. 39, pp. 12513–12519, 2010.
- [22] O. A. Lara, "Enseñanza de la técnica de datación con radiocarbono por espectrometría de masas con aceleradores: material didáctico y libro de apoyo.,"

- Universidad Nacional Autónoma de México, 2016.
- [23] L. Wacker, M. Nemec, and J. Boruquin, "A revolutionary graphitisation system: Fully automated, compact and simple.," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 268, no. 7–8, pp. 931–934, 2010.
- [24] L. Wacker, R. H. Fulop, I. Hajdas, M. Molnár, and J. Rethemeyer, "A novel approach to process carbonate samples for radiocarbon measurements with helium carrier gas," in *Proceedings of the Twelfth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, 2013, pp. 214–217.
- [25] R. Middleton, "A Negative-Ion Cookbook," vol. 1989, no. October 1989, 1990.
- [26] G. Reza, "Caracterización y uso de haces de iones en el (LEMA)," 2019.
- [27] E. R. Chavez, M. E. Ortíz, and C. Solís, *Espectrometría de masas con aceleradores*, 1ra edición. Universidad Nacional Autónoma de México, 2018.
- [28] G. Reza *et al.*, "Characterization of the new hybrid low-energy accelerator facility in Mexico," *Eur. Phys. J. Plus*, vol. 134, no. 12, 2019.
- [29] C. Solís, E. Chávez-Lomelí, M. E. Ortiz, A. Huerta, E. Andrade, and E. Barrios, "A new AMS facility in Mexico," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, 2014.
- [30] J. Vogel, "Neutral Resonant Ionization in the High-Intensity Cesium Sputter Source," *AIP Conf. Proc.*, vol. 1515, no. 1, p. 89, 2013.
- [31] J. Vogel and J. A. Giacomo, "Increased 14C AMS Efficiency from Reduced Competitive Ionization," *Cambridge Univ. Press*, vol. 59, no. 3, pp. 957–965, 2016.
- [32] J. S. Vogel, J. A. Giacomo, and S. R. Dueker, "Quantifying absolute carbon isotope ratios by AMS," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 294, pp. 340–348, 2013.
- [33] R. Middleton, "A versatile high intensity negative ion source," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res.*, vol. 214, no. 2–3, pp. 139–150, Sep. 1983.
- [34] M. Suter, "A new generation of small facilities for accelerator mass spectrometry," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 139, no. 1–4, pp. 150–157, 1998.
- [35] J. Cockcroft and E. Walton, "Experiments with High Velocity Positive Ions. I. The Disintegration of Elements by High Velocity Protons," *Proc. Roy. Soc.*, vol. 1, no. A136, pp. 619–630, 1932.
- [36] J. Cockcroft and E. Walton, "Experiments with High Velocity Positive Ions. II. The Disintegration of Elements by High Velocity Protons," *Proc. Roy. Soc.*, vol. 2, no. A139, pp. 619–630, 1932.
- [37] W. Khechen and J. R. Laghari, "Breakdown studies of SF/sub 6//argon gas mixtures," *IEEE Trans. Electr. Insul.*, vol. 24, no. 6, pp. 1141–1146, 1989.
- [38] J. F. Ziegler and J. P. Biersack, *The Stopping and Range of Ions in Matter*, Treatise o. Boston, MA: Astrophysics, Chemistry and Condensed Matter, 1985.
- [39] G. F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement (Hardcover)," *Book*, vol. 3 edition. p. 816, 2005.
- [40] HVEE, *Operator Manual 1.0MV Tandetron for AMS*. High Voltage Engineering Europa, 2018.
- [41] T. Bose, "ROOT Tutorial," *Neppsr*, pp. 1–28, 2007.
- [42] "Root CERN User Guide." [Online]. Available: https://root.cern.ch/.
- [43] J. Mas, "Programa para análisis de datos en ROOT CERN", Comunicación personal, 2019.

- [44] M. Suter, S. A. W. Jacob, and H. A. Synal, "Tandem AMS at sub-MeV energies Status and prospects," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 172, no. 1–4, pp. 144–155, 2000.
- [45] S. A. W. Jacob, M. Suter, and H. A. Synal, "Ion beam interaction with stripper gas Key for AMS at sub MeV," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 172, no. 1–4, pp. 235–241, 2000.
- [46] J. M. Anthony *et al.*, "Materials characterization using accelerator mass spectrometry," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 56–57, no. PART 2, pp. 873–876, 1991.
- [47] A. Galindo-Uribarri, H. W. Lee, and K. H. Chang, "Beams of doubly ionized molecules from a tandem accelerator," *J. Chem. Phys.*, vol. 83, no. 7, pp. 3685–3693, 1985.
- [48] P. Kumar *et al.*, "Stripping of a molecular beam to a higher charge state by means of two successive stripper foil," vol. 269, p. 2011, 2011.
- [49] L. R. Kilius, X. L. Zhao, A. E. Litherland, and K. H. Purser, "Molecular fragment problems in heavy element AMS," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 123, no. 1–4, pp. 10–17, 1997.
- [50] J. Lachner, M. Christl, C. Vockenhuber, and H. A. Synal, "Detection of UH3+ and ThH3+ molecules and 236U background studies with low-energy AMS," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 294, pp. 364–368, 2013.
- [51] L. R. Kilius, M. J. Nadeau, J. C. Rucklidge, and A. E. Litherland, "Isobar discrimination using the negative ion instability of hydrogen halides," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 29, no. 1–2, pp. 57–58, 1987.
- [52] L. R. Kilius, J. C. Rucklidge, and A. E. Litherland, "Background reduction for heavy element accelerator mass spectrometry," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 31, no. 3, pp. 433–441, 1988.
- [53] L. R. Kilius *et al.*, "AMS of heavy ions with small accelerators," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 52, no. 3–4, pp. 357–365, 1990.
- [54] D. L. Weathers, F. D. McDaniel, S. Matteson, J. L. Duggan, J. M. Anthony, and M. A. Douglas, "Triply-ionized B2 molecules from a tandem accelerator," *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. B*, vol. 56–57, no. PART 2, pp. 889–892, 1991.