



**UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO**  
**INSTITUTO DE FÍSICA**  
**DEPARTAMENTO DE FÍSICA EXPERIMENTAL**

**Estudio de Procesos de Capas Internas de Tierras Raras por  
Impacto de Iones**

**TESIS**  
**que para obtener el grado de**  
**Maestro en Ciencias (Física)**  
**presenta:**

**Juan Reyes Herrera**

**Director de Tesis: Dr. Javier Miranda Martín del Campo**



Universidad Nacional  
Autónoma de México

Dirección General de Bibliotecas de la UNAM

**Biblioteca Central**



**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

Agradezco a mi asesor, el *Dr. Javier Miranda Martín del Campo*, por toda la paciencia y ayuda otorgada durante mi proyecto de investigación. Asimismo, a los investigadores que hicieron una revisión de la presente tesis, entre ellos mis sinodales: *Dr. Ramiro García García, Dra. Beatriz E. Fuentes Madariaga, Dr. Jorge Rickards Campbell, Dr. José Manuel Hernández Alcántara y Dra. María Isabel Gamboa de Buen.*

Igualmente, agradezco el apoyo y ayuda técnica de los señores *Karim López, Francisco Jaimos, Juan Carlos Pineda, y a Jesús y Melitón Galindo.* Por sus consejos a el *Dr. Luis Rodríguez* y al *Dr. José Luis Ruvalcaba.*

A CONACYT por el apoyo económico otorgado a través del programa de becas de posgrado, y a DGAPA por el financiamiento del proyecto PAPIIT IN-103307.

Por todo su apoyo, por alentarme y brindarme todo su cariño a mis padres *Juan Reyes Flores y María Aurora Herrera Carrillo*, a mis hermanos y hermanas *Arnulfo, Berenice, Gabriel, Fernando y Nadia*, de la misma manera al resto de la familia que también me brindó mucho apoyo.

A mis amigos y *flatmates*, *gracias por aguantarme y apoyarme: Leo y Laura.*

A mis amigos y compañeros: *Gaby, Pepe, Germán, Frank, Cebos, Fabian, Janet, Lupita, Renato, Arturo, Toño y Martita.*

A *Perla*, por estar ahí siempre para mí.

# Índice General

<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Principios Físicos</b>	<b>6</b>
2.1	Probabilidades de Transferencia Radiativa de Vacantes . . . . .	6
2.2	Sección de Producción de Rayos X . . . . .	12
2.2.1	La Aproximación de Onda Plana de Born (PWBA) . . . . .	14
2.2.2	La Corrección ECPSSR . . . . .	19
2.2.3	Modificaciones a la teoría ECPSSR . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Experimento</b>	<b>28</b>
3.1	Emisión de Rayos X Inducida por Partículas (PIXE) . . . . .	28
3.2	Retrodispersión de Rutherford (RBS) . . . . .	31
3.3	Procedimiento Experimental . . . . .	34
<b>4</b>	<b>Resultados</b>	<b>44</b>
4.1	Probabilidades de Transferencia Radiativa de Vacantes . . . . .	44
4.2	Secciones de producción de rayos X K . . . . .	54
<b>5</b>	<b>Conclusiones</b>	<b>61</b>

# Resumen

En la presente tesis se midieron las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes y las secciones de producción de rayos X para la capa K de los átomos de tierras raras cerio (Ce), neodimio (Nd), gadolinio (Gd), disprosio (Dy), holmio (Ho) y erbio (Er). Las probabilidades se midieron usando dos tipos de iones: para protones, iones de Hidrógeno  $^1\text{H}^{1+}$ , con energías de 3 MeV a 4 MeV y pasos de 0.1 MeV, y para iones de Carbono de carga cuatro  $^{12}\text{C}^{4+}$  con energías de 12 MeV a 15 MeV y pasos de 0.5 MeV. En el caso de las secciones de producción, sólo se midieron utilizando protones, con las energías antes mencionadas. Los experimentos principales se llevaron a cabo en el acelerador Pelletron del Instituto de Física de la UNAM. Cabe hacer notar que se bombardearon blancos gruesos de los elementos puros, a los cuales les fue depositada una capa delgada de Au. Los resultados experimentales se compararon tanto con predicciones teóricas como con resultados experimentales de otros autores.

# Capítulo 1

## Introducción

Existen muchas formas de extraer datos y estudiar la estructura atómica. Para obtener información de la estructura y procesos más internos del átomo, algunas de las técnicas más importantes se llevan a cabo mediante el bombardeo de átomos con partículas cargadas, haciendo uso de aceleradores de partículas.

A través de la técnica analítica llamada Emisión de Rayos X Inducida por Partículas (PIXE por sus siglas en inglés *Particle Induced X Ray Emission*) es posible realizar un análisis multielemental y encontrar las concentraciones de los elementos en cada muestra irradiada. Esta técnica, de la cual trataremos más adelante (ver 3.1), es sumamente exitosa y tiene una amplia gama de aplicaciones [1].

Para poder aplicar dicha técnica es necesario tener información sobre los procesos atómicos relacionados, como son la producción de fluorescencia, las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes y secciones de ionización. Estos procesos se han estudiado ampliamente desde el punto de vista teórico [2] pero aún existe cierta escasez de información experimental relacionada a estos procesos, sobre todo cuando los elementos de interés son las tierras raras.

Una de las tareas que se propuso en este trabajo es la de llevar a cabo la medición de algunas cantidades que tienen que ver con los procesos de las capas internas de elementos de tierras raras; a saber, las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes y la producción de rayos X de la capa K. El interés específico por estos elementos se debe a la gran variedad de aplicaciones que se les atribuyen, a continuación mencionaremos algunos ejemplos de éstas.

### ELEMENTOS DE TIERRAS RARAS

En la actualidad existe una enorme importancia de todos los elementos de transición interna o de tierras raras REE (del inglés *Rare Earth Elements*) debido a que tienen una amplia gama de usos, no sólo en la investigación básica:

- Elementos de Tierras Raras en el desarrollo tecnológico. Existe un vasto número

de aplicaciones en este ámbito, sobre todo para el campo relacionado con las tecnologías ópticas; por ejemplo, el uso de tierras raras para dopar cristales que son utilizados en la cavidad principal de los láseres [3], en la fabricación de materiales fluorescentes, en el mejoramiento de fibras ópticas [4] y en la fabricación de lámparas.

Desde el punto de vista de la tecnología en materiales, los REE<sup>1</sup> son muy utilizados en materiales superconductores, en materiales magneto-ópticos y en la aplicación en el mejoramiento de la resistencia a la corrosión [5].

Muchas aplicaciones aún están en desarrollo, por ejemplo en la refrigeración a base de magnetismo debido al descubrimiento del efecto magnetocalórico gigante en materiales dopados con tierras raras [6]. Incluso existen conferencias internacionales en las que el objetivo principal es el de exponer los avances en el desarrollo y aplicaciones de las tierras raras [7].

- Elementos de Tierras Raras como elementos nocivos. Debido al amplio uso de los REE en la industria, el ser humano se encuentra en continuo contacto con ellos; por ello, se han realizado estudios [8] en relación con el nivel de riesgo que puedan representar para la salud del hombre (como su concentración en la sangre).
- El uso de los elementos de tierras raras como elementos traza. Se han analizado concentraciones de tierras raras para determinar el origen de tormentas de polvo [9] y para el estudio de procesos geoquímicos [10].

Estos son sólo algunos ejemplos de la importancia de las tierras raras, por lo que es necesario contar con técnicas para analizar muestras en las que se encuentre la presencia de estos elementos, en particular PIXE. Ahora, cuando se utiliza PIXE para el análisis de muestras con REE existen ciertas dificultades, las cuales serán comentadas a continuación:

## PIXE PARA EL ANÁLISIS DE ELEMENTOS DE TIERRAS RARAS

Algunas de las principales dificultades que se tienen al utilizar PIXE como técnica analítica para la obtención de concentraciones de elementos de REE son las siguientes:

1. La dificultad al analizar las concentraciones usando las emisiones de la capa L. Como es bien sabido, la densidad de electrones que se encuentran en la capa L es mayor que la de la capa más interna K y su energía de ligadura es menor, por lo que la probabilidad de ionizar la capa L es mayor a la de la capa K. Es por esto que generalmente se utilizan las líneas de emisión de la capa L cuando los elementos de interés son pesados, alrededor de  $Z > 50$ . Los procesos relacionados a la ionización de la capa L de elementos de tierras raras ya han sido estudiados experimentalmente de una forma amplia haciendo uso de diferentes iones a diferentes energías, por ejemplo [11, 12, 13, 14].

---

<sup>1</sup>En adelante, por comodidad, será común referirse a los elementos de tierras raras como REE.

Sin embargo, cuando se trata de medir concentraciones elementales de tierras raras usando las emisiones L, se pueden tener dificultades debido a la superposición entre las líneas L de los REE y las líneas K de elementos más ligeros como manganeso (Mn), cromo (Cr) o hierro (Fe). Esto sucede porque las energías correspondientes a las líneas L de los REE son del orden de las líneas K del Mn o Fe; entonces, en caso de que los elementos ligeros tengan una mayor concentración en la muestra que los REE, se tendrá una mayor producción de rayos X K de los elementos ligeros que de rayos X L de los REE; dando como resultado un espectro en el que no es posible el análisis de las concentraciones de REE debido a la superposición de los picos de emisiones, por ejemplo [15].

2. El límite de detección de los elementos de tierras raras. Cuando se realiza un análisis típico con PIXE en el cual se tienen los mejores límites de detección con protones de 2 MeV a 3 MeV, la detección, y por lo tanto la cuantificación, de los REE presenta dificultades debido a la baja sensibilidad de la técnica para su detección [16]. Aunque algunos autores han realizado algunos trabajos en los que se ha logrado mejorar la sensibilidad de detección para ciertos tipos de especímenes mediante el uso de iones más pesados [17] o tomando atenciones especiales en la elección del tipo de filtros de rayos X [18], no se han realizado muchos experimentos, relacionados con los REE.

Para poder superar estas dificultades se ha pensado en el uso de haces energéticos con iones más pesados que los protones. Haciendo uso de estos haces como fuente primaria de ionización se podrían obtener resultados en los que la sensibilidad de la técnica pudiera incrementarse y además que aumente la probabilidad de ionización de la capa más interna del átomo, la capa K. Si esto sucede, podría aumentar la probabilidad de obtener rayos X provenientes de la capa K, por lo que sería posible utilizar estas líneas de emisión para hacer el análisis de los REE debido a que son más energéticas que las líneas de emisión L, y no hay interferencia con rayos X de elementos más ligeros.

Ahora, se sabe que la información experimental acerca de los procesos relacionados con la ionización y emisión de radiación de la capa K de los REE cuando se usan haces del tipo antes mencionado es todavía escasa; por eso se propuso medir experimentalmente estos procesos: las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes y las secciones de producción de rayos X K de los elementos de tierras raras. En adelante se verá un poco del estudio teórico de los procesos, además del trabajo experimental que se realizó. También se presentarán los resultados obtenidos, los cuales se comparan con las predicciones teóricas y con algunos cuantos resultados experimentales realizados por otros autores. Luego finalizaremos con las conclusiones a las que se llegó en este trabajo de investigación.



# Capítulo 2

## Principios Físicos

A continuación se verán dos secciones relacionadas con los principios físicos de las capas internas de los átomos, los cuales tienen que ver con la emisión de rayos X y con la ionización de los átomos. Estos procesos tienen un gran interés y han sido estudiados tanto teórica como experimentalmente por muchos autores [2].

### 2.1 Probabilidades de Transferencia Radiativa de Vacantes

Para poder explicar las transiciones radiativas en sistemas atómicos se requiere el desarrollo de una teoría cuántica de la radiación. Para esto es necesario el concepto de campo cuantizado; existen diversos métodos para llegar a éste [19, 20, 21].

En la electrodinámica clásica, en ausencia de fuentes, el potencial escalar es idénticamente nulo y el potencial vectorial  $\vec{A}$ , bajo la llamada norma de Coulomb  $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$ , satisface [22]:

$$\square \vec{A}(\vec{r}, t) \equiv \left[ \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \nabla^2 \right] \vec{A}(\vec{r}, t) = 0, \quad (2.1)$$

que es la conocida ecuación de D'Alembert. Y los campos eléctrico y magnético son:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t}, \quad (2.2)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \vec{\nabla} \times \vec{A}(\vec{r}, t). \quad (2.3)$$

Al deducir la solución más general a la ecuación de D'Alembert y tomando en cuenta las polarizaciones *circular dextro* y *levo* [20] se obtiene una descomposición del potencial vectorial en términos de ondas parciales de la forma:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{1}{2\pi} \sum_{\lambda \pm 1} \int \frac{d^3k}{\sqrt{\omega}} [\vec{\epsilon}(\vec{k}, \lambda) a(\vec{k}, \lambda) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} + \vec{\epsilon}^*(\vec{k}, \lambda) a^*(\vec{k}, \lambda) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}]. \quad (2.4)$$

Para pasar a la versión cuantizada se sustituyen las amplitudes  $a(\vec{k}, \lambda)$  y  $a^*(\vec{k}, \lambda)$  de la ecuación (2.4) por operadores  $a(\vec{k}, \lambda)$  y  $a^\dagger(\vec{k}, \lambda)$  que aniquilan y crean, respectivamente, un fotón de energía  $\omega$ , momento  $\vec{k}$  y helicidad<sup>1</sup>  $\lambda$ ; de este modo se obtiene el potencial vectorial como un operador<sup>2</sup>:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \int d^3k \sqrt{\frac{4\pi}{2\omega}} \sum_{\lambda \pm 1} \left[ \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \vec{\epsilon}(\vec{k}, \lambda) a(\vec{k}, \lambda) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} + \frac{1}{(2\pi)^{\frac{3}{2}}} \vec{\epsilon}^*(\vec{k}, \lambda) a^\dagger(\vec{k}, \lambda) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \right]. \quad (2.5)$$

Hasta ahora hemos considerado los campos clásicos como superposición de funciones de onda de fotón con energía  $\omega$ , momento  $k$  y helicidad  $\lambda$ ; sin embargo, para desarrollar la teoría de radiación resulta más conveniente construir los campos como superposición de ondas asociadas a estados fotónicos de energía  $\omega$ , momento angular  $\mathbf{j}$ , tercera componente  $\mathbf{m}$  y paridad  $\Pi$ ; ya que los estados atómicos que emiten o absorben fotones tienen generalmente estos números cuánticos bien definidos. Este tipo de desarrollo ya ha sido realizado [20] y se obtiene el resultado:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \int_0^\infty \omega^2 d\omega \sqrt{\frac{4\pi}{2\omega}} \sum_{jm} \sum_{\lambda} [\vec{A}_{jm}(\vec{r}; \omega; \lambda) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} a_{jm}(\omega; \lambda) + \dots \dots + \vec{A}_{jm}^*(\vec{r}; \omega; \lambda) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} a_{jm}^\dagger(\omega; \lambda)], \quad (2.6)$$

donde  $a_{jm}(\omega; \lambda)$  y  $a_{jm}^\dagger(\omega; \lambda)$  son los operadores de aniquilación y creación de fotones, respectivamente, de las correspondientes ondas multipolares y satisfacen las reglas de conmutación

$$[a_{jm}(\omega; \lambda), a_{jm}(\omega'; \lambda')] = [a_{jm}^\dagger(\omega; \lambda), a_{jm}^\dagger(\omega'; \lambda')] = 0, \quad (2.7)$$

$$[a_{jm}(\omega; \lambda), a_{jm}^\dagger(\omega'; \lambda')] = \frac{1}{\omega^2} \delta(\omega - \omega') \delta_{\lambda, \lambda'}. \quad (2.8)$$

Luego, para estudiar las transiciones radiativas se descompone el Hamiltoniano total  $H$  en dos partes. La primera es el Hamiltoniano no perturbado,  $H_0$ , y la segunda parte,  $H_1$ , es la perturbación, que se supone pequeña y por lo tanto sus efectos son analizables mediante la teoría de perturbaciones. Tomando en cuenta esto, la probabilidad de emisión  $\Gamma_{i \rightarrow f}$  por unidad de tiempo está dada por [20]:

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = 2\pi |\langle f | H_1 | i \rangle|^2 \omega^2. \quad (2.9)$$

La probabilidad de emisión de un fotón de energía  $\hbar\omega$  y momento  $\hbar k$  en un ángulo sólido  $d\Omega$  con polarización  $\vec{\epsilon}$ , en un átomo que pasa del estado 1 al estado 2 es [23]:

$$\Gamma_{12} = \left(\frac{\alpha\omega}{2\pi}\right) |\langle \psi_1 | \sum_j \alpha_j \cdot \vec{\epsilon} \exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) | \psi_2 \rangle|^2 d\Omega_k. \quad (2.10)$$

<sup>1</sup>La interpretación de la helicidad es la proyección del operador espín en la dirección del momento.

<sup>2</sup>Cuando se utiliza este método para cuantizar campos se le conoce como método de la segunda cuantización.

Para calcular los elementos de matriz atómicos es conveniente introducir los estados de radiación con una paridad definida y con un momento angular relativo al núcleo atómico. Para esto, se comienza por definir la serie de vectores de campo, los cuales forman un conjunto ortogonal completo, que definidos en una esfera unitaria son<sup>3</sup>:

$$\begin{aligned}\mathbf{Y}_{LM}^{(0)}(\hat{r}) &= \hat{r} Y_{LM}(\hat{r}), \\ \mathbf{Y}_{LM}^{(e)}(\hat{r}) &= [L(L+1)]^{-1/2} r \nabla Y_{LM}(\hat{r}), \\ \mathbf{Y}_{LM}^{(m)}(\hat{r}) &= [L(L+1)]^{-1/2} r \mathbf{L} Y_{LM}(\hat{r}),\end{aligned}\tag{2.11}$$

con  $\mathbf{L} = -i\mathbf{r} \times \nabla$ . La componente 0 es normal a la esfera, mientras que las componentes e y m son tangenciales.

Así, el campo de radiación se desarrolla en términos de estos vectores armónicos esféricos en función de la dirección  $\mathbf{k}$ :

$$\begin{aligned}\epsilon \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) &= 4\pi \sum_{L,M} [\epsilon \cdot \mathbf{Y}_{LM}^{(m)*}(\hat{k}) \mathbf{A}_{LM}^m(k, \mathbf{r}) \\ &\quad - \epsilon \cdot \mathbf{Y}_{LM}^{(e)*}(\hat{k}) \mathbf{A}_{LM}^e(k, \hat{r})],\end{aligned}\tag{2.12}$$

$$\mathbf{A}_{LM}^{(m)}(k, \hat{r}) = i^L [L(L+1)]^{-1/2} j_l(kr) \mathbf{L} Y_{LM}(\hat{r}),\tag{2.13}$$

$$\mathbf{A}_{LM}^{(e)}(k, \hat{r}) = i^L [L(L+1)]^{-1/2} k^{-1} \nabla \times \mathbf{L} Y_{LM}(\hat{r}).\tag{2.14}$$

Solamente los campos magnéticos y eléctricos entrando como  $\epsilon$  son normales a  $\mathbf{k}$ . Además, las  $\mathbf{A}$  son soluciones no divergentes de la ecuación 2.1.

Por otro lado, es bien sabido que la ecuación que mejor describe al electrón es la ecuación de Dirac. La ecuación de Dirac es la incorporación de la relatividad especial y del espín del electrón a la ecuación de Schrödinger. Bajo un campo central, la solución de la ecuación de Dirac se puede separar en las partes angular y radial [19, 23]. Para ello basta escribir el bi-espinores  $\Psi = \begin{pmatrix} \Psi_A \\ \Psi_B \end{pmatrix}$  con los espinores  $\Psi_A$  y  $\Psi_B$  proporcionales a los correspondientes espinores esféricos  $\chi_\tau^\mu$  y  $\chi_{-\tau}^\mu$ :

$$\Psi = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} G(r) \chi_\tau^\mu \\ iF(r) \chi_{-\tau}^\mu \end{pmatrix},\tag{2.15}$$

con

$$\chi_\tau^\mu = \sum_m C(l, \frac{1}{2}\mu - m, m; j_\mu) Y_{l, \mu - m}(\hat{r}) \chi_{1/2}^m,\tag{2.16}$$

donde  $C(l, \frac{1}{2}\mu - m, m; j_\mu)$  son los coeficientes de Clebsch-Gordan para el acoplamiento del momento angular  $l$  con un espín  $\frac{1}{2}$ , y  $\chi_{1/2}^m$  es el espinor correspondientes al espín  $\frac{1}{2}$ . Los números cuánticos  $j$  y  $l$  están relacionados con  $\tau$  de la forma

<sup>3</sup>En este trabajo se usan las notaciones  $\vec{n}$  y  $\mathbf{n}$  para indicar un vector, indistintamente.

$$j = |\tau| - \frac{1}{2}, \quad l = |\tau + \frac{1}{2}| - \frac{1}{2}. \quad (2.17)$$

Los elementos de matriz de  $\alpha \cdot \mathbf{A}_{LM}^{(\lambda)}$  entre los estados individuales de la partícula son:

$$(j_1 m_1 | \alpha \cdot \mathbf{A}_{LM}^{(e)} | j_2 m_2) = -i^L (4\pi)^{1/2} (2j_2 + 1)^{1/2} \times b(\tau_1, \tau_2, L) R_L(e) C(j_2 L m_2 M; j_1 m_1) \quad (2.18)$$

y

$$(j_1 m_1 | \alpha \cdot \mathbf{A}_{LM}^{(m)} | j_2 m_2) = -i^{L-1} (4\pi)^{1/2} (2j_2 + 1)^{1/2} \times b(-\tau_1, \tau_2, L) R_L(m) C(j_2 L m_2 M; j_1 m_1), \quad (2.19)$$

donde tenemos<sup>4</sup>

$$b(\tau_1, \tau_2, L) = (-1)_{\frac{j}{2}}^j + L + \frac{1}{2} [(2l_1 + 1)(2l_2 + 1)(2L + 1)/L(L + 1)]^{1/2} \times \left\{ \begin{matrix} L & l_2 & l_1 \\ \frac{1}{2} & j_1 & j_2 \end{matrix} \right\} \left( \begin{matrix} L & l_2 & l_1 \\ 0 & 0 & 0 \end{matrix} \right) \quad (2.21)$$

y

$$R_L(m) = (\tau_1 + \tau_2) \int dr j_L(kr) (F_1 G_2 + G_1 F_2), \quad (2.22)$$

$$R_L(e) = \int (dr/kr) [(F_1 G_2 - G_1 F_2) L(L + 1) j_L(kr) + (\tau_1 - \tau_2) (F_1 G_2 + G_1 F_2) (r d/dr + 1) j_L(kr)]. \quad (2.23)$$

Los elementos de la matriz que no son cero deben de satisfacer la condición

$$|j_1 - j_2| \leq L \leq j_1 + j_2, \quad (2.24)$$

entonces  $l_1 + l_2 + L$  debe ser par para los multipolos eléctricos e impar para los multipolos magnéticos.

Si en la subcapa inicial se encuentran  $N_1$  electrones y  $(2j_2 + 1 - N_2)$  vacantes en la subcapa final, la tasa de emisión promedio de la ocupación de los estados iniciales con números cuánticos magnéticos diferentes es

<sup>4</sup>En esta ecuación se usan los llamados símbolos 3-j, los cuales son proporcionales a los coeficientes de Clebsch-Gordan y se definen como[19]:

$$\left( \begin{matrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{matrix} \right) = \frac{(-1)^{j_1 - j_2 - m_3}}{(2j_3 + 1)^{1/2}} C(j_1 j_2 m_1 m_2; j_3, -m_3) \quad (2.20)$$

$$\Gamma_{12} = a\alpha\omega(\hbar\omega/mc^2)[(2j_2 + 1 - n_2)n_1/(2j_1 + 1)] \sum_L [f_L(m) + f_L(e)], \quad (2.25)$$

donde

$$f_L(e) = (2j_1 + 1)(mc^2/\hbar\omega)b^2(\tau_1, \tau_2, L)R_L^2(e), \quad (2.26)$$

$$f_L(m) = (2j_1 + 1)(mc^2/\hbar\omega)b^2(-\tau_1, \tau_2, L)R_L^2(m). \quad (2.27)$$

Para un potencial central, las funciones radiales son las soluciones, eigenfunciones, de las ecuaciones

$$\hbar c \left( \frac{d}{dr} + \tau/r \right) G(r) = [E + 2mc^2 - V(r)]F(r), \quad (2.28)$$

$$\hbar c \left( -\frac{d}{dr} + \tau/r \right) F(r) = [E - V(r)]G(r). \quad (2.29)$$

A partir de aquí, se han realizado diversas aproximaciones para resolver el problema en sistemas que implican más de un electrón; existen varios tratamientos en los cuales se toman en cuenta diferentes consideraciones y efectos [23]. Pero, en la actualidad, el método más aceptado es en el que se usa el modelo de Hatree-Fock. El modelo de Hatree-Fock es el procedimiento más importante para resolver la ecuación de Schrödinger para sistemas de más de un electrón. El método considera que cada electrón se mueve en un campo promedio producido por el resto de electrones y el núcleo y que, a su vez, contribuye a crear un campo efectivo para el resto de electrones. En dicho método se propone una función de prueba, la cual es una función completamente antisimetrizada y que incluye la dependencia espinorial, de la forma del determinante de Slater de los estados individuales de las partículas [19, 24, 25]:

$$\Psi(1, 2, \dots, N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(1) & \varphi_1(2) & \dots & \varphi_1(N) \\ \varphi_2(1) & \varphi_2(2) & \dots & \vdots \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \varphi_N(1) & \dots & \dots & \varphi_N(N) \end{vmatrix}, \quad (2.30)$$

donde todas las funciones de onda de partículas independientes son ortonormales, i. e.  $\langle \varphi_i | \varphi_j \rangle = \delta_{ij}$ . Para esta función se obtiene un sistema de ecuaciones orbitales que constituyen las llamadas ecuaciones de Hatree-Fock [19]:

$$(\hat{H}_0 + V_k)\varphi_k - \sum_{l \neq k} V_{kl}\varphi_l = E_k\varphi_k, \quad (2.31)$$

en la cual

$$V_{kl} = \int \varphi_k^* V(k, l) \varphi_l d^3r_l = \langle \varphi_k | V(k, l) | \varphi_l \rangle. \quad (2.32)$$

Estas ecuaciones son integrodiferenciales, pues sólo se conocen los potenciales efectivos si se conocen las soluciones. El procedimiento numérico para resolverlas consiste en encontrar una solución autoconsistente. Para empezar se hace una selección inicial  $\varphi_k^{(0)}$  de las funciones  $\varphi_k$ , con las cuales se calcula una primera aproximación a los potenciales  $V_k$  (y  $V_{kl}$  en su caso); los cuales se introducen en el sistema de ecuaciones, que se resuelve para determinar una nueva aproximación  $\varphi_k^{(1)}$  de las funciones de onda. Con estos nuevos valores se calculan los potenciales efectivos y se repite el proceso, para obtener una siguiente aproximación  $\varphi_k^{(2)}$ , y de esta forma sucesivamente. El procedimiento se continúa hasta que las funciones de onda que se obtienen coincidan (dentro de cierto error) con las que se introdujeron en el paso anterior.

Esta clase de cálculos numéricos ha sido realizada para evaluar diferentes tasas de emisión de fotones, tanto de electrones de capas internas como de capas externas [23]. En particular, considerando efectos relativistas, Scofield realizó los cálculos correspondientes a vacantes en la capa K [23, 26], en los que se ha cubierto un amplio grupo de elementos de la tabla periódica. Los resultados del trabajo de Scofield para las tasas de emisión de la capa K de elementos de las tierras raras se muestran en la tabla 2.1 (un esquema de las nomenclaturas usadas para las transiciones de rayos X K se muestran en el siguiente capítulo en la figura 3.2).

Tabla 2.1:  
Tasas entre las líneas de emisión de rayos X K [23, 26].

Elemento	Z	$K_\beta/K_\alpha$	$K_{\alpha_2}/K_{\alpha_1}$
Ba	56	0.2433	0.5428
Ce	58	0.2470	0.5459
Nd	60	0.2504	0.5491
Sm	62	0.2534	0.5524
Eu	63	0.2549	0.5542
Gd	64	0.2570	0.5559
Tb	65	0.2575	0.5577
Dy	66	0.2588	0.5596
Er	68	0.2612	0.5634
Yb	70	0.2634	0.5673

Por otro lado, el total de la probabilidad de transferencia de vacantes de la capa K a cualquiera de las subcapascapas L,  $\eta_{KL_i}$ , es la suma de la probabilidad de transferencia de vacantes radiativa  $\eta_{KL_i}(R)$  y la probabilidad de transferencia de vacantes no-radiativa  $\eta_{KL_i}(A)$ :

$$\eta_{KL_i} = \eta_{KL_i}(R) + \eta_{KL_i}(A), \quad (2.33)$$

donde la probabilidad de transferencia radiativa de vacantes está dada por:

$$\eta_{KL_i}(R) = \omega_K \left[ \frac{I(KL_i)}{I_K(R)} \right], \quad (2.34)$$

en la que  $I(KL_i)$  es la intensidad de rayos X de K a  $L_i$ ,  $I_K(R)$  es la intensidad total de rayos X K, y  $\omega_K$  es la producción de fluorescencia de la capa K. Ahora, debido a que la transición radiativa de la subcapa  $L_1$  a la capa K no está permitida, sólo es necesario calcular las probabilidades de transferencia  $\eta_{KL_2}$  y  $\eta_{KL_3}$  que son de  $L_2$  a K y  $L_3$  a K, respectivamente. Dichas probabilidades se calculan de la forma [27]:

$$\eta_{KL_2} = \omega_K \left[ \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left\{ \left[ 1 + \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left[ 1 + \frac{I(K_{\beta})}{I(K_{\alpha})} \right] \right\}^{-1}, \quad (2.35)$$

$$\eta_{KL_3} = \omega_K \left\{ \left[ 1 + \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left[ 1 + \frac{I(K_{\beta})}{I(K_{\alpha})} \right] \right\}^{-1}, \quad (2.36)$$

donde  $I(K_{\alpha_2})/I(K_{\alpha_1})$  y  $I(K_{\beta})/I(K_{\alpha})$  son las proporciones, o tasas, de las intensidades de rayos X correspondientes.

Entonces, utilizando los valores de la tabla 2.1, y las ecuaciones para las probabilidades de transferencia radiativas, ecs. 2.35 y 2.36, obtenemos los resultados teóricos para las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes de la capa K.

Tabla 2.2:  
Probabilidades teóricas de transferencias radiativas de vacantes.

Elemento	Z	$\eta_{KL_3}$	$\eta_{KL_2}$
Ce	58	0.4720	0.2577
Nd	60	0.4749	0.2608
Gd	64	0.4782	0.2659
Dy	66	0.4787	0.2679
Ho	67	0.4802	0.2696
Er	68	0.4792	0.2700

En esta ocasión sólo mostramos algunas de las probabilidades de transferencia radiativa de los elementos de tierras raras, ya que son éstos, REE, los que se bombardearon en los experimentos y por lo tanto éstas son las probabilidades que se midieron.

## 2.2 Sección de Producción de Rayos X

Se ha realizado un repaso sobre la teoría de las transiciones radiativas de vacantes entre las diferentes capas del átomo, en particular de la capa K. Ahora, es necesario hacer un estudio sobre los procesos que dan a lugar dichas vacantes. Las vacantes (huecos) de la capa (órbita) del átomo se crean a partir de la interacción entre un ion, al que se le llama proyectil, que incide sobre un átomo (átomo blanco) dando como resultado una cierta probabilidad de que uno o más electrones sean expulsados. Esto quiere decir que el átomo blanco se ioniza. A la probabilidad de ionizar el átomo se le llama *sección de ionización*. El fenómeno de la ionización de las capas internas de los átomos inducido por partículas es importante dentro de varios ámbitos de la física.

Ahora, además de la probabilidad de ionizar el átomo, existe la probabilidad de que las vacantes creadas produzcan fotones de rayos X que correspondan a alguna línea en particular; la magnitud que engloba estas probabilidades es la llamada *sección de producción de rayos X*. La sección de producción de rayos X es una magnitud física que depende de varios factores como el tipo de proyectil, la energía de incidencia y el átomo blanco. Dicha magnitud, para las líneas K, se relaciona con la sección de ionización a través de la expresión

$$\sigma_{X,i} = \sigma_{I,K} \omega_K P_i, \quad (2.37)$$

donde  $\sigma_{X,i}$  es la sección de producción de rayos X,  $\sigma_{I,K}$  es la sección de ionización,  $\omega_K$  es la producción de fluorescencia y  $P_i$  es la intensidad relativa de todas las posibles transiciones que producen radiación en la línea  $i$ . La producción de fluorescencia es el cociente del número total de fotones de rayos X entre el número total de vacantes en la capa K; varía según la transición que se observe y crece con el número atómico del elemento emisor, hasta ser prácticamente la unidad para elementos muy pesados.

Con lo anterior podemos advertir que la sección de ionización es un parámetro importante. Sin embargo, esta magnitud es difícil de calcular, aunque existen varios modelos teóricos para estimarla convenientemente [28]. Los modelos más importantes son:

- La Aproximación de Encuentro Binario (BEA)
- La Aproximación Semiclásica (SCA)
- La Aproximación de Onda Plana de Born (PWBA)
- La corrección ECPSSR<sup>5</sup> a la PWBA

Existen diversos trabajos en los que se da una excelente descripción de los diferentes modelos [14, 29, 30]. En cuanto al presente trabajo, sólo se dará una somera explicación de las aproximaciones BEA y SCA; mientras que, debido al interés, se dará una inspección más amplia de la aproximación PWBA y sus correcciones correspondientes, es decir la ECPSSR.

## LA APROXIMACIÓN DE ENCUENTRO BINARIO (BEA)

Esta teoría explica el proceso de ionización de las capas internas de una manera clásica. La teoría considera al proceso de ionización como si se tratara de una colisión clásica, un encuentro binario, entre proyectil y electrón, en la que el resto del átomo, al cual pertenece dicho electrón, se considera simplemente como un medio pasivo.

La BEA se basa en el hecho de que las secciones diferenciales en el sistema centro de masa para la dispersión coulombiana son idénticas tanto en la descripción clásica como en la cuántica. El modelo es conveniente para proporcionar una descripción cualitativa de los datos experimentales, pero es insuficiente para hacer comparaciones cuantitativas. Además, la descripción de la ionización en esta aproximación no es adecuada para bajas

---

<sup>5</sup>Más adelante se explicará de donde surgen estas siglas.



energías de los proyectiles, por lo cual no tiene un uso muy extendido [28].

## LA APROXIMACIÓN SEMICLÁSICA (SCA)

Esta aproximación supone que el proyectil se mueve a lo largo de una trayectoria clásica (rectilínea), en la que el sistema de referencia se toma fijo en el átomo blanco. La interacción coulombiana entre el proyectil y el blanco se trata como dependiente del tiempo y las transiciones de los electrones del átomo blanco tienen un tratamiento bajo la mecánica cuántica.

Debido a la necesidad de aproximar la trayectoria por una recta, el uso del modelo no es válido en todos los intervalos de energía del proyectil. Cabe mencionar que esta teoría es la única que proporciona una dependencia de la sección de ionización con el parámetro de impacto [28].

### 2.2.1 La Aproximación de Onda Plana de Born (PWBA)

En esta teoría tanto el átomo blanco como el proyectil se consideran desde el punto de vista de la mecánica cuántica. Supone al ion incidente y al dispersado como ondas planas, y al átomo blanco como un centro dispersor, ver fig 2.1.

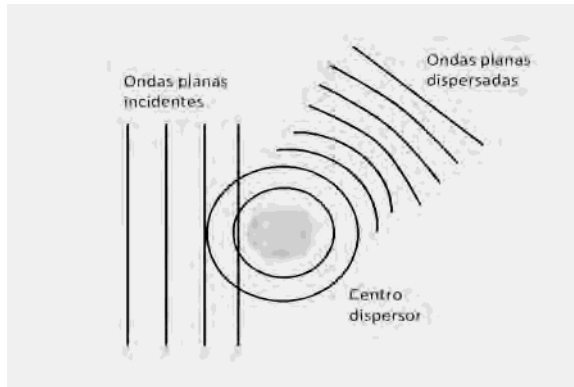


Figura 2.1: Esquema de la dispersión de ondas planas por un centro dispersor.

Luego, en la teoría de Born se hace la suposición de que es posible distinguir al proyectil incidente de los electrones atómicos. Además, la descripción de esta teoría se puede hacer dentro del marco de la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo. Entonces, si el Hamiltoniano total que describe al sistema en dispersión se expresa como

$$H = H_0 + V, \quad (2.38)$$

donde  $H_0$  es el hamiltoniano del sistema no perturbado y  $V$  se puede considerar como el potencial de perturbación. Entonces, considerando el desarrollo de la teoría de perturbaciones dependientes del tiempo a primer orden, la probabilidad por unidad de tiempo de que, como resultado de la perturbación, el sistema realice una transición del estado inicial  $\nu_0$  a algún estado en el continuo entre  $\nu$  y  $\nu + d\nu$  se expresa como:

$$dP_{\nu_0, \nu} = \frac{2\pi}{\hbar} |V_{\nu_0, \nu}|^2 \delta(E_\nu - E_{\nu_0}) d\nu, \quad (2.39)$$

con  $V_{\nu_0, \nu} = \langle \nu | V | \nu_0 \rangle$ ;  $E_i$  corresponde a la energía del  $i$ -ésimo estado del sistema.

Ahora, esto se puede aplicar al estudio de la interacción entre una partícula incidente y un átomo, donde la partícula tiene un momento inicial  $\vec{p}_0$  y luego es dispersada con un momento final  $\vec{p}$ . Cuando la colisión es inelástica se da un cambio de energías del proyectil y del átomo blanco, de manera que las energías inicial y final del sistema son

$$E_{\nu_0} = \frac{p_0^2}{2m} + E_0, \quad (2.40)$$

$$E_\nu = \frac{p^2}{2m} + E_n, \quad (2.41)$$

donde  $E_0$  y  $E_n$  corresponden a la energía electrónica inicial y final del átomo, respectivamente, y  $m$  es la masa reducida del sistema; por lo tanto el sistema de referencia se toma en el centro de masa. Entonces, la ecuación 2.39 se puede expresar, en el espacio de los momentos, como:

$$dP_{\vec{p}, E_n; \vec{p}_0, E_0} = \frac{2\pi m}{\hbar} |V_{\vec{p}, E_n; \vec{p}_0, E_0}|^2 \delta(p^2 - p_0^2 + 2m(E_n - E_0)) dp_x dp_y dp_z, \quad (2.42)$$

en la que se tiene

$$V_{\vec{p}, E_n; \vec{p}_0, E_0} = \int \int \varphi_{\vec{p}}^*(\vec{R}) \Psi_n^*(\vec{r}) V_{\varphi, \vec{p}_0}(\vec{R}) \Psi_0(\vec{r}) \varphi_{\vec{p}_0}(\vec{R}) d^3 r d^3 R, \quad (2.43)$$

donde  $\varphi$  corresponde a la función de onda del proyectil,  $\Psi$  a la función de onda electrónica del átomo;  $\vec{R}$  es la posición del átomo y  $\vec{r}$  la del electrón.

Para determinar la sección eficaz de dispersión,  $d\sigma_n$ , del proyectil cuando el átomo pasa por el estado  $n$ , es favorable expresar las diferenciales de momentos a coordenadas esféricas,  $dp_x dp_y dp_z = p^2 \sin\theta dp d\theta d\phi = p^2 dp d\Omega$ , e integrar con respecto a la magnitud del momento. En este caso  $\theta$  es el ángulo de dispersión del proyectil.

Como ya se dijo, en este modelo se hace la aproximación de que las ondas incidentes y las dispersadas son planas. Por lo tanto las funciones de los estados inicial y final de la partícula incidente se pueden expresar de la forma:

$$\varphi_{\vec{p}_0} = \sqrt{\frac{m}{p_0}} \exp \frac{i\vec{p}_0 \cdot \vec{R}}{\hbar} \quad (2.44)$$

$$\varphi_{\vec{p}} = (2\pi\hbar)^{-3/2} \exp \frac{i\vec{p} \cdot \vec{R}}{\hbar} \quad (2.45)$$

donde la función de onda inicial está normalizada de tal forma que la densidad de flujo incidente  $\vec{j}$  es igual a la unidad, y la función de onda final está normalizada según la

normalización de Dirac<sup>6</sup>. Ya que  $dP_{\vec{p}, E_n; \vec{p}_0, E_0} = d\sigma_n$ , la sección eficaz de dispersión queda así:

$$d\sigma_n = \frac{m^2}{4\pi^2\hbar^2} \frac{p}{p_0} \left| \int \int e^{-i\vec{q}\cdot\vec{R}} V \Psi_n^* \Psi_0 d^3r d^3R \right|^2 d\Omega \quad (2.47)$$

con  $p^2 = p_0^2 - 2mE - n + 2mE_0$  y  $\vec{q} = \frac{1}{\hbar}(\vec{p} - \vec{p}_0)$ , y donde  $\vec{q}$  es el momento transferido.

Si el proyectil es un ion con carga  $Z_1e$ , el blanco con carga  $Z_2e$ , y se supone que la interacción coulombiana domina durante la colisión, el potencial  $V$  es:

$$V(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R} - \sum_{j=1}^{Z_2} \frac{Z_1 e^2}{|\vec{R} - \vec{r}_j|}. \quad (2.48)$$

Entonces, si sustituimos este potencial en la ecuación 2.47, el término que contiene la interacción de los núcleos y el proyectil no interviene porque se anula al integrar con respecto a  $r$ . Debido a la ortogonalidad de las funciones de onda de los electrones del átomo, se obtiene:

$$d\sigma_n = \frac{Z_1^2 m^2 e^4}{4\pi^2 \hbar^4} \frac{p}{p_0} \left| \sum_{j=1}^{Z_2} \int \int e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} \Psi_n^*(r) \Psi_0(r) d^3r \right|^2 d\Omega. \quad (2.49)$$

Al estudiar la ionización del sistema es más conveniente trabajar con la magnitud del momento transferido en la colisión, en lugar de la dirección de dispersión del proyectil. Ahora, dado que la magnitud de  $\vec{q}$  se puede asociar con el ángulo  $\theta$  de la forma  $\hbar^2 q dq = pp_0 \sin\theta d\theta$  y  $v_1 = p_0/m$ , entonces al integrar con respecto a  $d\phi$  se obtiene la probabilidad de que la partícula incidente en la colisión con un átomo sufra un cambio en el momento entre  $q$  y  $q + dq$  y que el átomo pase del estado  $E_0$  y  $E_n$ , la cual queda dada por:

$$d\sigma_n = 8\pi \left( \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_1} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{n0}(q)|^2, \quad (2.50)$$

donde

$$F_{n0}(q) = \sum_{j=1}^{Z_2} \int e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} \Psi_n^* \Psi_0 d^3r \quad (2.51)$$

corresponde al factor de forma atómico inelástico para el potencial electrostático dado por el potencial coulombiano, ecuación 2.48.

Para calcular el factor de forma se utilizan funciones de estado de los electrones del átomo, en la forma de partícula independiente y potencial central, por lo que se tiene la expresión:

---

<sup>6</sup>Se le llama normalización de Dirac cuando se usa la función delta de Dirac como condición de normalización para una onda plana, es decir:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \varphi_p^*(x) \varphi_{p'}(x) dx = \delta(p - p') \quad (2.46)$$

$$\Psi(r) = \frac{1}{\sqrt{Z_2!}} A(1, 2, \dots, Z_2) \Psi_1(r_1) \Psi_2(r_2) \dots \Psi_{Z_2}(r_{Z_2}), \quad (2.52)$$

donde  $A$  representa el operador que antisimetriza a las funciones de onda y  $\Psi_i$  es la función de onda del  $i$ -ésimo electrón. Podemos suponer que durante la colisión sólo cambia uno de los estados,  $\Psi_s$ , de uno de los electrones de la subcapa  $s$ , mientras que el resto permanece sin perturbarse; entonces el factor de forma se reduce a:

$$F_{ns}(q) = \int \Psi_n^*(\vec{r}) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}} \Psi_s(\vec{r}) d^3r, \quad (2.53)$$

ahora el vector  $\vec{r}$  corresponde a la posición del electrón expulsado.

Además, en el cálculo de la sección eficaz de ionización de un átomo por la colisión con un ion, es conveniente definir una sección de transferencia de energía para el electrón perteneciente a la subcapa  $s$ , entre  $\epsilon$  y  $\epsilon + d\epsilon$ , quedando:

$$d\sigma_{\epsilon s} = 8\pi(2j_2 + 1) \left( \frac{Z_1 e^2}{\hbar v_1} \right)^2 \frac{dq}{q^3} |F_{\epsilon s}(q)|^2 d\epsilon, \quad (2.54)$$

donde  $j_2$  es el momento angular total de la subcapa  $s$ , y se le agrega el factor  $2j_2 + 1$  para tomar en cuenta la degeneración de los electrones que se encuentran en  $s$ .

Cuando el electrón es expulsado tiene una energía de  $\frac{p_e^2}{2m_e} + \hbar\omega_{2s}$ , en la cual  $p_e$  es el momento final del electrón.

Para generalizar el cálculo de las secciones de ionización es común definir las cantidades adimensionales  $W$ ,  $k$  y  $Q$ , de la siguiente forma:

$$W = \frac{\epsilon}{Z_{2s}^2 \mathfrak{R}}, \quad (2.55)$$

$$Q = a_{2s}^2 q^2, \quad (2.56)$$

$$k = \frac{a_{2s} p_e}{\hbar}, \quad (2.57)$$

donde  $Z_{2s}$  es el número atómico efectivo<sup>7</sup>,  $\mathfrak{R}$  es la constante de Rydberg y  $a_{2s} = \frac{n^2 \hbar \omega_{2s}}{Z_{2s} \mathfrak{R}}$  es el radio hidrogenoide efectivo.

Por lo tanto para calcular la sección se puede hacer el cambio a las variables nuevas y se tiene que:

$$|F_{\epsilon s}(q)|^2 d\epsilon = |F_{W_s}(Q)|^2 dW. \quad (2.58)$$

Entonces, si queremos obtener la sección total de la subcapa  $s$  se debe integrar sobre todos los posibles momentos y energías transferidas por el proyectil en la colisión. De esta manera se puede expresar la sección de ionización como:

$$\sigma_s = (2j_2 + 1) \frac{4\pi Z_1^2 a_{2s}^2}{Z_{2s}^2 \eta_s} f_s, \quad (2.59)$$

---

<sup>7</sup>Para la capa K el número atómico efectivo está dado por:  $Z_{2k} = Z_2 - 0.3$ .

en que

$$f_s = \int_{W_{min}}^{W_{max}} dW \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} \frac{dQ}{Q^2} |F_{Ws}(Q)|^2. \quad (2.60)$$

Los límites de integración para  $Q$  se obtienen a partir de:

$$\hbar q_{min} = \sqrt{2mE_1} - \sqrt{2m(E_1 - \epsilon)} \quad (2.61)$$

$$\hbar q_{max} = \sqrt{2mE_1} + \sqrt{2m(E_1 - \epsilon)}. \quad (2.62)$$

Los límites de  $W$  se obtienen de  $\epsilon_{min} = \hbar\omega_{2s}$  y  $\epsilon_{max} = E_1$  si se considera el caso en que el proyectil ceda toda su energía al electrón. De manera que los valores máximos y mínimos para  $Q$  y  $W$  son:

$$Q_{min} = \frac{m^2}{m_e} \eta_s \left[ 1 - \left( 1 - \frac{W m_e}{m \eta_s} \right)^{\frac{1}{2}} \right]^2, \quad (2.63)$$

$$Q_{max} = \frac{m^2}{m_e} \eta_s \left[ 1 + \left( 1 - \frac{W m_e}{m \eta_s} \right)^{\frac{1}{2}} \right]^2, \quad (2.64)$$

$$W_{min} = \frac{\hbar\omega_{2s}}{Z_{2s}^2 \mathfrak{R}} = \frac{\theta_s}{n^2}, \quad (2.65)$$

$$W_{max} = \frac{\epsilon_{max}}{Z_{2s}^2 \mathfrak{R}} = \frac{m}{m_e} \eta_s. \quad (2.66)$$

En ocasiones, para fines prácticos se considera  $W_{max} = \infty$ . De esta manera se tiene que la función  $f_s$  (ec. 2.60) depende de las variables  $\theta_s$  y  $\eta_s$ , por lo que la sección de ionización (ec. 2.59) se expresa de la forma:

$$\sigma_s = \sigma_{0s} \frac{f_s(\theta_s, \eta_s)}{\eta_s} = \sigma_{0s} F(\theta_s, \xi_s), \quad (2.67)$$

donde

$$\sigma_{0s} = 4\pi(2j_2 + 1) \frac{Z_1^2 a_{2s}^2}{Z_{2s}^2}. \quad (2.68)$$

El factor de forma  $F_{Ws}(Q)$  puede calcularse de manera analítica empleando funciones de onda hidrogenoides, para el electrón inicialmente en una capa interna del átomo, y utilizando la función de onda de una partícula libre bajo la acción de un potencial coulombiano, para el electrón expulsado, dada por:

$$\Psi^- = \frac{1}{(2\pi)^{3/2}} e^{\pi/2k} \Gamma\left(1 + \frac{i}{k}\right) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} {}_1F_1\left(\frac{-i}{k}, 1, -i(kr + \vec{k}\cdot\vec{r})\right), \quad (2.69)$$

con  ${}_1F_1$  como la función hipergeométrica confluyente y  $\Gamma$  es la función gama generalizada.

Entonces, para la capa K, el factor de forma está dado por:

$$|F_{WK}(Q)|^2 = \frac{2^7}{1 - e^{-2\pi/k}} Q \left( \frac{Q + \frac{1}{3}k^2 + \frac{1}{3}}{[(Q - k^2 + 1)^2 + 4k^2]^3} \right) \exp \left\{ -\frac{2}{k} \arctan \left( \frac{2k}{Q - k^2 + 1} \right) \right\}, \quad (2.70)$$

donde  $W = k^2 + 1$ .

El modelo de PWBA describe bien el proceso cuando se trata de un proyectil que actúe como una partícula, es decir, cuando la carga del ion incidente sea pequeña  $Z \ll Z_2$  y que sus velocidades sean altas  $\frac{v_1}{v_0} \gg 1$ . De lo contrario, no es adecuado usar este modelo para calcular las secciones de ionización.

## 2.2.2 La Corrección ECPSSR

La teoría ECPRRS es una mejora sustancial a la PWBA y SCA. Este modelo toma en cuenta efectos que no se consideran en los otros modelos; incluye efectos de pérdida de energía del proyectil en la colisión (E), la desviación coulombiana de éste (C), el aumento de la energía de ligadura del electrón expulsado por la presencia del proyectil, estudiada con la teoría de estados estacionarios perturbados (PSS), y la descripción relativista del electrón involucrado (R). Esta teoría reproduce mejor los datos experimentales y fue propuesta por Brandt y Lapicki [31].

### EFFECTOS POR PÉRDIDA DE ENERGÍA

Los efectos de pérdida de energía tienen una mayor importancia cuando la energía de incidencia del proyectil es pequeña, esto es  $E_1 \approx \epsilon$ , entonces la consideración en la que  $Q_{max} \rightarrow \infty$  de los límites de integración de las ecuaciones 2.59 y 2.67 no es adecuada y se deben de tomar los límites exactos, ecuación 2.64. Brandt y Lapicki [31] han propuesto una corrección para tomar en cuenta este hecho, obteniendo que la sección diferencial es:

$$\left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{EPWBA} = \left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{PWBA} \left[ \left(\frac{q_0}{q_{min}}\right)^{v+1} - \left(\frac{q_0}{q_{max}}\right)^{v+1} \right], \quad (2.71)$$

donde se tiene que  $v = 9 + l_2$ , y  $q_{min}$ ,  $q_{max}$  son las transferencias de momento mínima y máxima, respectivamente, descritas por las ecuaciones 2.61 y 2.62. Integrando la ecuación sobre todos los posibles estados finales  $E_f$ , se puede expresar la sección de ionización de la forma, debido al cambio en el factor  $f_s$  de la ecuación 2.60:

$$\left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{EPWBA} = f_s(z_s) \left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{PWBA}, \quad (2.72)$$

donde  $f_s(z_s)$  es el valor por el que difiere la corrección de pérdida de energía de la PWBA y está dado por:

$$f_s(z_s) = \frac{1}{2^v(v-1)} [(vz_s - 1)(1 + z_s)^v + (vz_s + 1)(1 - z_s)^v], \quad (2.73)$$

en el cual

$$z_s = \left(1 - \frac{m_1 \hbar \omega_{2s}}{m E_1}\right)^{\frac{1}{2}}. \quad (2.74)$$

## EFFECTOS DE DESVIACIÓN COULOMBIANA

Cuando el proyectil incide a altas velocidades sobre el átomo blanco, la interacción coulombiana con el núcleo no altera de manera apreciable su trayectoria; pero al considerar energías del ion incidente cada vez más pequeñas, esta interacción se vuelve cada vez más importante, trayendo consigo cambios en la trayectoria y en la disminución de la velocidad del ion. Para distinguir estos efectos, el proyectil se debe de tomar como una función de onda coulombiana, o bien, en vez de considerar una trayectoria recta, utilizar una trayectoria hiperbólica.

Los trabajos que incluyen el efecto de desviación coulombiana elaborados por Brandt y Lapicki [32, 33] y Basbas *et al.* [34] derivan un factor de corrección; el cual se obtiene a partir de:

$$\left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{hip} = e^{-\pi dq_0 r} \left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{rec}, \quad (2.75)$$

los superíndices *hip* y *rec* se refieren a las trayectorias hiperbólica y rectilínea, respectivamente;  $d$  es la mitad de la distancia de acercamiento máximo del ion en la colisión de frente,  $d = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E_1}$ ,  $\hbar q_0 = \frac{\hbar \omega_{2s}}{v_1}$  es el momento mínimo que puede ser transferido y  $\tau = 1 + \frac{E_f}{\hbar \omega_{2s}}$ . Al considerar la sección de ionización en una trayectoria rectilínea en el límite de colisiones lentas, en términos de  $q_0$ , se tiene que:

$$\left(\frac{d\sigma_s}{dE_f}\right)^{rec} \propto (q_0 \tau)^{-(10+l_2)}, \quad (2.76)$$

y al integrar sobre todos los posibles valores de  $\tau$  desde 1 hasta  $\infty$  se obtiene que la sección de ionización corregida por la desviación coulombiana es:

$$\sigma_s^C = C_s(\pi dq_0) \sigma_s^{PWBA}, \quad (2.77)$$

en la que el factor de desviación queda como:

$$C_s(\pi dq_0) = (9 + 2l_2) E_{10+2l_2}(\pi dq_0), \quad (2.78)$$

con  $l_2$  como el momento angular orbital del electrón en la subcapa<sup>8</sup>  $s$  y  $E_l(x)$  es la integral exponencial de orden  $l$ , la cual se puede expresar como [35]:

$$E_l(x) = \int_x^\infty \frac{e^{-u}}{u^l} du. \quad (2.79)$$

## EFFECTOS DE LIGADURA Y POLARIZACIÓN

En una colisión lenta entre un ion y un átomo, los efectos por la presencia del proyectil son más notorios en los electrones del átomo, debido a que se tiene un mayor tiempo de

---

<sup>8</sup>Para la capa K y la subcapa L<sub>1</sub>,  $l_2 = 0$ .

interacción y se alteran los estados iniciales. Además, cuando la velocidad del proyectil es pequeña, es necesario que el ion penetre más profundamente en la capa atómica para poder expulsar un electrón de las capas internas del átomo blanco. Sucede que cuando el ion está cerca del núcleo aumenta la energía de ligadura de los electrones, por lo que la sección de ionización se ve disminuida.

Otro cambio en los estados iniciales del átomo blanco se da debido a la atracción de la nube electrónica hacia el ion cuando éste pasa por afuera de las capas internas. Debido a esto se da una polarización en los estados de los electrones y por consiguiente aumenta la sección de ionización.

La corrección por los efectos de ligadura y polarización, en términos de la velocidad reducida del proyectil,

$$\xi_s = \frac{2v_1}{\theta_s v_{2s}}, \quad (2.80)$$

se expresa como:

$$\zeta_s = 1 + \langle \Delta E_s \rangle = 1 + \left( \frac{2Z_1}{Z_{2s}\theta_s} \right) (g_s - h_s), \quad (2.81)$$

donde

$$\begin{aligned} g_K &= \frac{1 + 9\xi_s + 31\xi_s^2 + 98\xi_s^3 + 12\xi_s^4 + 25\xi_s^5 + 4.2\xi_s^6 + 1.97\xi_s^7}{(1 + \xi_s)^9}, \\ g_{L_1} &= \frac{1 + 9\xi_s + 31\xi_s^2 + 49\xi_s^3 + 162\xi_s^4 + 63\xi_s^5 + 18\xi_s^6 + 1.97\xi_s^7}{(1 + \xi_s)^9}, \\ g_{L_{2,3}} &= \frac{1 + 10\xi_s + 45\xi_s^2 + 102\xi_s^3 + 33\xi_s^4 + 6.7\xi_s^5 + 58\xi_s^6 + 7.8\xi_s^7 + 0.888\xi_s^8}{(1 + \xi_s)^9}, \end{aligned} \quad (2.82)$$

y

$$h_s = \frac{2n}{\theta_s \xi_s^3} I(x_s). \quad (2.83)$$

Las  $g_s$  son aproximaciones analíticas a las soluciones de la teoría de estados estacionarios perturbados que toma en cuenta los efectos de ligadura, y las  $h_s$  toman en cuenta los efectos de polarización, la función  $I(x_s)$  representa la energía de ionización del electrón, y está dada por

$$\begin{aligned} I(x_s) &= 2 \frac{e^{-2x_s}}{x_s^{1.6}} \quad \text{para } (3 \leq x_s \leq 11), \\ I(x_s) &= \frac{e^{-2x_s}}{0.031 + 0.213x_s^{1/2} + 0.005x_s - 0.069x_s^{3/2} + 0.324x_s^2} \quad (0.035 \leq x_s \leq 3), \\ I(x_s) &= 0.75\pi \left[ \ln \left( \frac{1}{x_s^2} \right) - 1 \right] \quad \text{para } (0 \leq x_s \leq 0.035). \end{aligned} \quad (2.84)$$

Por lo que la sección de ionización, bajo las correcciones de PSS, se puede escribir en función de la sección de PWBA de la forma

$$\sigma_s^{PSS} = \sigma_s^{PWBA}(\eta_s, \zeta_s \theta_s), \quad (2.85)$$



el factor de ligadura y polarización se puede tomar en cuenta como una corrección de  $\theta_s$  por  $\xi_s\theta_s$ .

## EFFECTOS RELATIVISTAS DEL ELECTRÓN

Para los casos en que se tienen blancos pesados y en los que la velocidad del proyectil es baja, los efectos relativistas del electrón del átomo blanco son muy importantes. Para el caso en que  $Z_2 > 50$  es necesario utilizar las funciones de onda relativistas para describir el electrón del blanco. Cuando la energía del proyectil es baja, la colisión tiene lugar en la posición cercana al núcleo del blanco. Ya que la densidad de la función de onda relativista para el electrón del blanco en la vecindad del núcleo es más grande que la no relativista, entonces la primera tiene una componente de momento mayor que la segunda. Por lo que la probabilidad de transferencia de momento entre proyectil y blanco es diferente para las distintas descripciones.

Brandt y Lapicki [32] desarrollaron una corrección relativista sencilla a la PWBA, en la que evitaron el tedioso cálculo con las funciones de onda relativistas. Al introducir la masa relativista del electrón en un potencial central como función de  $r$ , se reemplaza el término  $1/r$  por un valor medio del inverso de la distancia del proyectil medida desde el blanco en la trayectoria de línea recta y promediada sobre los parámetros de impacto con las funciones pesadas que se utilizan para considerar el efecto de la energía de unión. Este proceso se realiza más o menos de la siguiente forma.

En el límite de velocidades bajas,  $\xi_s \ll 1$ , se puede tener lo siguiente

$$T_{max} = 2mv_1^2 = m\theta_s\omega_{2s}\xi_s^2, \quad (2.86)$$

la cual es la energía máxima que el proyectil le puede transmitir al electrón de masa  $m$ .  $T_{max}$  se calcula introduciendo el concepto de masa relativista “local” dentro de un potencial central. Para un potencial de la forma  $Z_{2s}/r$  a la distancia  $r$  del núcleo blanco, esta masa  $m^R(r)$  es

$$m^R(r) = \sqrt{1 + \left(\frac{Z_{2s}}{2rc^2}\right)^2} + \frac{Z_{2s}}{2rc^2}. \quad (2.87)$$

Luego se sustituye  $1/r$  por un valor medio  $\langle 1/R(t) \rangle \equiv (\alpha b)^{-1}$  del inverso de la distancia del proyectil al núcleo blanco,  $R(t) \equiv (b^2 + v_1^2 t^2)^{1/2}$  donde  $b$  es el parámetro de impacto,

$$\frac{1}{\alpha b} = \left\langle \frac{1}{R(t)} \right\rangle = \frac{1}{\alpha b} \int_0^{\alpha b} \frac{d(v_1 t)}{\sqrt{b^2 + v_1^2 t^2}} = \frac{1}{\alpha} \sinh^{-1} \alpha, \quad (2.88)$$

que permite determinar  $\alpha = 1$ . Al promediar la ecuación 2.87 sobre los parámetros de impacto, utilizando las funciones  $W_s$ ,

$$m_s^R(\xi_s) = \int_0^\infty m^R(\alpha b) W_s(bq_{0s}) bq_{0s} d(bq_{0s}), \quad (2.89)$$

y se obtiene

$$m_s^R(\xi_s) \approx \sqrt{1 + 1.1y_s^2} + y_s \quad (2.90)$$

donde, para las diferentes capas,

$$y_{K,L_1} = \frac{0.40 \left(\frac{Z_{2s}}{c}\right)^2}{n \frac{\xi_{K,L_1}}{\zeta_{K,L_1}}}, \quad (2.91)$$

y

$$y_{L_2,L_3} = 0.15 \frac{\left(\frac{Z_{2s}}{c}\right)^2}{\frac{\xi_{L_2,L_3}}{\zeta_{L_2,L_3}}}. \quad (2.92)$$

Así, la corrección relativista se hace reemplazando  $\eta_s$  por  $m_s^R \eta_s$  en la sección no relativista de la PWBA.

Luego de terminar con la descripción de las correcciones ECPSSR a la teoría PWBA, se puede formular una expresión (la cual contenga dichas correcciones) para la sección de ionización ECPSSR. En términos de la sección PWBA para la capa  $s$ , se tiene que:

$$\sigma^{ECPSSR} = C_{Bs}^E (dq_{0s}^B \zeta_s) \sigma_s^{PWBA} \left( \frac{m_s^R \left(\frac{\xi_s}{\zeta_s}\right) \eta_s}{(\zeta_s \theta_s)^2}, \zeta_s \theta_s \right). \quad (2.93)$$

Ahora, es de esperarse que la aproximación ECPSSR no sea una teoría final, pues de hecho existen varias modificaciones a ésta.

### 2.2.3 Modificaciones a la teoría ECPSSR

A continuación se verán algunas de las modificaciones que se han hecho a la teoría ECPSSR que son más importantes para el presente trabajo.

#### MODELO ECPSSR+UA

Una de las modificaciones más importantes es la que considera al átomo unido<sup>9</sup>. En esta aproximación se supone que el electrón del blanco se encuentra influenciado por un potencial que se debe al núcleo del proyectil y al núcleo del blanco, esto es bajo el campo central de un átomo cuyo número atómico es  $Z_1 + Z_2$ . Para esto se propone una función de onda relajada, la cual puede estimarse considerando que tiene la misma forma que

---

<sup>9</sup>UA, por sus siglas en inglés.

antes de la colisión, sólo que ahora con el radio orbital  $r'_K$ . Este radio debe de ser tal que minimice la energía de unión del electrón, por lo que la energía de unión  $E_B(r'_K)$  está dada por:

$$E_B(r'_K) = \frac{e_2 a_0}{2r_K'^2} - \frac{Z_{2K} e^2}{r'_K} + \Delta E_K(R, r'_K), \quad (2.94)$$

el primer término del lado derecho de la ecuación corresponde a la energía cinética del electrón, el segundo al potencial del núcleo apantallado y  $\Delta E_K(R, r'_K)$  corresponde al cambio de energía de unión del electrón en la capa K, para una distancia dada  $R$  y un radio orbital  $r'_K$ , la cual es

$$\Delta E_K(R, r'_K) = \frac{Z_1 e^2}{R} \left[ 1 - \left( 1 + \frac{R}{r'_K} \right) \exp \left( -\frac{2R}{r'_K} \right) \right]. \quad (2.95)$$

La distancia  $R$  depende del parámetro de impacto del ion. La distancia mínima separación al núcleo está dada por:

$$R_m = \frac{b_0}{2} + \sqrt{\frac{b_0}{4} + b^2}, \quad (2.96)$$

donde  $b_0 = 2d$  es la distancia de máximo acercamiento en una colisión frontal. Aunque, haciendo consideraciones de la sección de transferencia de energía al electrón, algunos autores [36] proponen que el cambio de energía de ligadura se debe de evaluar con

$$R' = \sqrt{R_m^2 + r_{rad}^2}, \quad (2.97)$$

donde  $r_{rad} = \hbar\omega_{2s}/\hbar\nu_1$  y se le conoce como distancia adiabática de la colisión.

### ECPSSR+MI

Se ha mencionado repetidamente el hecho de que al bombardear un átomo con un ion pesado se pueden ionizar las capas internas del blanco; pero además, se puede obtener la expulsión de más de un electrón de las capas superiores; a este fenómeno se le conoce como ionización múltiple<sup>10</sup>.

Es bien sabido que la ionización múltiple afecta a la producción de fluorescencia de las capas internas [37]. Debido a la carencia de electrones en los átomos, causada por la ionización múltiple, las transiciones de vacantes tanto radiativas como no radiativas se ven inhibidas. Como las transiciones radiativas sólo requieren la presencia de un electrón y las transiciones no radiativas, como el efecto Auger, requieren de dos electrones, las tasas de emisión de rayos X se ven menos limitadas que las de procesos Auger, es por esto que la ionización múltiple incrementa la producción de fluorescencia.

---

<sup>10</sup>MI, por sus siglas en inglés.

Ahora, debido al desconocimiento exacto del número de vacantes que se crean en cada una de las capas superiores a las capas internas del átomo después de cada colisión y a la enorme complejidad de las posibles transiciones entre estas vacantes múltiples, es difícil y poco útil tratar de derivar rigurosamente una expresión que cubra todas y cada una de las posibilidades.

Basados en estos fundamentos, Lapicki y colaboradores [38] propusieron una fórmula heurística que modifica las producciones de fluorescencia de una manera aproximada, la cual se encuentra en términos de probabilidades clásicas de este fenómeno. La expresión para la fluorescencia corregida es, en unidades atómicas:

$$\omega_S = \frac{\omega_S^0}{\left[1 - \frac{Z_1^2}{2\beta v_1^2} \left(1 - \frac{\beta}{4v_1^2}\right) (1 - \omega_S^0)\right]}, \quad (2.98)$$

donde  $\omega_S^0$  es la fluorescencia clásica,  $\beta$  es un parámetro ajustable,  $Z_1$  y  $v_1$  la carga y velocidad del proyectil, respectivamente.

O lo que es lo mismo, la siguiente expresión para  $\omega_s$

$$\omega_S = \frac{\omega_S^0}{[1 - P(1 - \omega_S^0)]}, \quad (2.99)$$

en la que

$$P = AZ_1 \frac{207.36}{8(0.579) \left(\frac{m_e}{m_p}\right) E_p} \left[ \frac{1}{\beta \mathfrak{R}} - \frac{A}{4 \left(\frac{m_e}{m_p}\right) E_p} \right], \quad (2.100)$$

$A$  es el número de masa,  $Z_1$  es la carga del proyectil,  $m_e$  es la masa del electrón,  $m_p$  es la masa del proyectil,  $E_p$  es la energía del proyectil,  $\mathfrak{R}$  es la constante de Rydberg y  $\beta$  es un parámetro ajustable que depende de la energía promedio de amarre del átomo blanco y de su número atómico  $Z_2$ .

Es así que la ionización múltiple aumenta la producción de fluorescencia por lo que, en combinación con las secciones de ionización de la ECPSSR, aumenta también las secciones de producción de rayos X. Existen diversos trabajos donde se ha mostrado la importancia del uso de la producción de fluorescencia corregida, por ejemplo el realizado por Miranda y colaboradores para la ionización de la capa L mediante el impacto de protones [39].

## CAPTURA ELECTRÓNICA

Otro proceso que se puede llevar a cabo en la colisión de un proyectil con el átomo es la llamada captura electrónica. Cuando un ion altamente ionizado pasa a través de un blanco es posible que electrones del átomo blanco sean capturados en una capa interna del proyectil. Por lo que, aunado a las secciones de ionización directa, están las secciones

por captura electrónica <sup>11</sup>. De este modo, dentro del contexto de la teoría ECPSSR, la sección de ionización total se puede expresar como:

$$\sigma_I^T = \sigma_I^{ECPSSR} + \sigma_I^{C.E.}, \quad (2.101)$$

donde  $\sigma_I^{ECPSSR}$  y  $\sigma_I^{C.E.}$  son las secciones por ionización directa y por captura electrónica, respectivamente.

Los investigadores Lapicki y McDaniel desarrollaron fórmulas para calcular las secciones de captura electrónica [40]. Según los autores, aunque las fórmulas obtenidas se expresan en función de la aproximación OBK<sup>12</sup> el desarrollo no debe ser tomado como una mera modificación. Los autores tomaron en cuenta, de manera consistente, efectos de la teoría ECPSSR, a saber, efectos por la desviación coulombiana, efectos en la energía de ligadura y efectos relativistas.

Usando una descripción basada en funciones de onda hidrogenoides apantalladas no-relativistas y energías de ligadura observadas, Nikolaev [42] obtuvo las secciones de captura electrónica de capas internas por iones totalmente ionizados. Para las secciones de captura electrónica de un capa S a un estado S' (los cuales están caracterizados por los números cuánticos  $n_1$  y  $n_2$ , respectivamente) y una velocidad del proyectil  $v_1$  tenemos que:

$$\begin{aligned} \sigma_{SS'}^{OBK} &= \frac{2^9 \pi}{5} \left( \frac{n_1 n_2}{v_1} \right)^2 \left( \frac{v_{1S'}}{v_{2S}} \right)^5 \xi_{SS'}^{10}(\theta_S) \\ &\times \frac{\Phi_4 [(1 - \theta_S) \xi_{SS'}^2(\theta_S)]}{[1 + (1 - \theta_S) \xi_{SS'}^2(\theta_S)]^3}, \end{aligned} \quad (2.102)$$

donde

$$\xi_{SS'}(\theta_S) = \frac{v_{2s}}{[v_{1S'}^2 + q_{SS'}^2(\theta_S)]^{1/2}}. \quad (2.103)$$

Aquí

$$q_{SS'}(\theta_S) = \frac{1}{2} \left[ v_1 + \frac{v_{2S}^2 \theta_S - v_{1S'}^2}{v_1} \right] \quad (2.104)$$

representa la mínima transferencia de momento con  $\frac{1}{2} v_{2S}^2 \theta_S$  como la energía de amarre del electrón observada y,  $v_{2S} = Z_{2S}/n_2$  y  $v_{1S'} = Z_1/n_1$  representan las velocidades orbitales del electrón antes y después de la captura, respectivamente. Ahora, para la captura de electrones que se encuentran en la capa K hidrogenoide apantallada,  $n_2 = 1$ , descrita por  $Z_{2K} = Z_2 - 0.3$  y  $\theta_K$ , tenemos que el factor del efecto de ligadura, es (véase la ecuación 2.81):

<sup>11</sup>Aunque la aportación a la ionización por captura electrónica es casi despreciable para la capa K, cuando  $Z_1 \ll Z_2$ , empieza a tomar importancia cuando se tienen iones cada vez más pesados.

<sup>12</sup>Aproximación llamada OBK debido a sus creadores Oppenheimer, Brinkman y Kramers [41].

$$\epsilon_K^B(\xi_{KS'}; c_K = 1.5) = 1 + \frac{2Z_1}{Z_{2K}\theta_K} g_K(\xi_{KS'}; c_K = 1.5), \quad (2.105)$$

donde  $g_K$  está dada por la ecuación 2.82.

Tomando en cuenta esto, se obtiene que la sección para iones de baja velocidad es:

$$\sigma_{KS'}^< = C \cdot \sigma_{KS'}^{OBK} [\xi_{KS'}(\epsilon_K^B \theta_K), \epsilon_K^B \theta_K], \quad (2.106)$$

aquí  $C$  es el factor de desviación coulombiana<sup>13</sup>, ecuación 2.78. La sección para iones de baja velocidad está relacionada con la sección de los iones de alta velocidad

$$\sigma_{KS'}^> = \frac{1}{2} \sigma_{KS'}^{OBK} [\xi_{KS'}(\theta_K), \theta_K], \quad (2.107)$$

mediante la expresión:

$$\sigma_{KS'}^> = \frac{\sigma_{KS'}^< \sigma_{KS'}^{OBK}}{\sigma_{KS'}^{OBK} + \sigma_{KS'}^<}. \quad (2.108)$$

Finalmente, se obtiene la sección eficaz de captura electrónica para la capa K del átomo a todas las capas vacías del ion totalmente ionizado de la forma:

$$\sigma_K = \sum_{S'} \sigma_{KS'} \simeq \sigma_{KK'} + \sigma_{KL'} + 2\sigma_{KM'}. \quad (2.109)$$

Para tomar en cuenta los efectos relativistas, se sigue la misma aproximación que en el modelo ECPSSR, donde se obtiene un factor de masa relativista del electrón  $m_K^R$ , ec. 2.90 y con  $y_K$  de la ec. 2.91. En este caso se sustituye  $m_K^R[\xi_{KS'}(\theta_K)]v_1^2$  por  $v_1$  en la ec. 2.102. Debemos mencionar que un aspecto importante del anterior desarrollo es que se pueden calcular las secciones de captura electrónica mediante ecuaciones analíticas y por lo tanto no se requiere de procedimientos numéricos.

Hasta ahora se han repasado las teorías, modificaciones y efectos más importantes en cuanto a la ionización de las capas internas del átomo. Es preciso indicar que, en el presente trabajo, las secciones de producción de rayos X teóricas que se utilizaron se obtuvieron mediante el uso del programa ISICS [43], las cuales corresponden a las teorías PWBA y ECPSSR-UA, además de que se realizaron los cálculos correspondientes para tomar en cuenta las contribuciones en la sección de ionización por el efecto de captura electrónica y la contribución en la producción de fluorescencia del proceso de ionización múltiple.

---

<sup>13</sup>Este factor proviene de la descripción de la trayectoria del proyectil y es esencialmente independiente de las funciones de onda del blanco.

# Capítulo 3

## Experimento

### 3.1 Emisión de Rayos X Inducida por Partículas (PIXE)

Existen diferentes técnicas de análisis elemental relacionadas con el bombardeo con iones acelerados; sin duda una de las más exitosas es la llamada Emisión de Rayos X Inducida por Partículas (PIXE por sus siglas en inglés). Las principales razones son la capacidad de análisis multielemental, su rapidez en el análisis y una gran sensibilidad, ya que esta técnica permite detectar concentraciones elementales de hasta 1 mg/kg.

PIXE consiste en la ionización de las capas internas de un átomo blanco por medio de la incidencia de una partícula acelerada y la medición de la radiación de rayos X producida por la ionización, figura 3.1. Debido a la naturaleza del átomo, cuando se tiene una vacante en alguna de las capas internas eventualmente ésta es ocupada por un electrón proveniente de alguna de las capas superiores, dando a lugar a la emisión de un fotón, el cual por su longitud de onda corresponde a rayos X. Así como el número de protones es característico en cada uno de los diferentes elementos atómicos, los niveles de energía de las capas internas de éstos también son característicos, por lo que la energía (o longitud de onda) de los rayos X emitidos por los átomos nos proporciona la información necesaria para identificar al tipo de átomo emisor.

La producción de radiación por ionización no es el único proceso que se puede llevar a cabo en el átomo, compite con otro proceso llamado efecto Auger. Este efecto también consiste en el decaimiento de un electrón para cubrir la vacante, pero sin la emisión de un fotón. En vez de esto, la transición es acompañada por la emisión de un electrón para liberar el exceso de energía.

Ahora, como ya se mencionó (ver sección 2.1) las transiciones de vacantes entre los diferentes niveles de energía del átomo no son arbitrarias, sino que son gobernadas por las reglas de selección para el cambio de los números atómicos:

$$\Delta l = 0, \Delta j = 0 \text{ o } \pm 1 \quad (3.1)$$

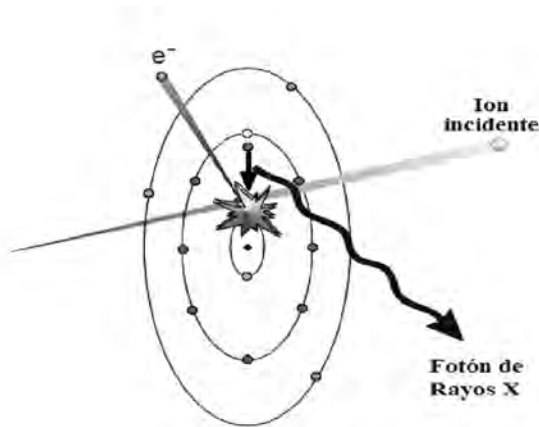


Figura 3.1: Esquema del proceso en el que se basa la técnica PIXE.

Por lo tanto, existen determinadas transiciones en las emisiones de fotones, a las cuales se les llama líneas de emisión. Existe un amplio número de líneas de emisión de rayos X a las que se les etiqueta según las capas entre las cuales se realiza la transición. En la figura 3.2 se muestran algunas de las líneas de emisión de rayos X<sup>1</sup>.

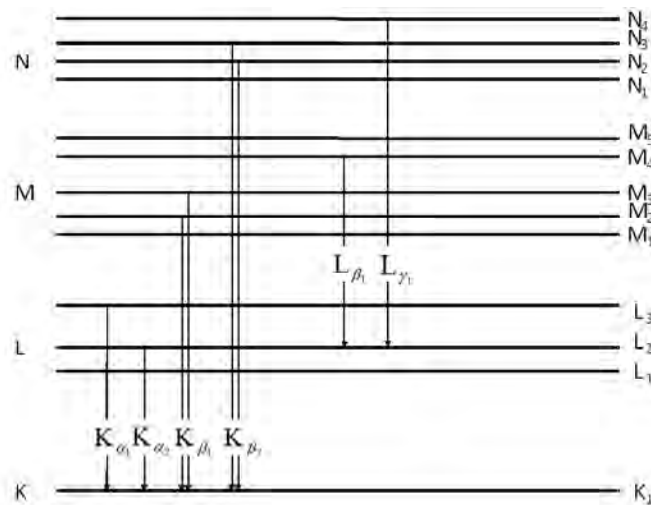


Figura 3.2: Transiciones de Vacantes de la capa K y algunas de la capa L.

Como ya se dijo, la energía del fotón proveniente de la transición es característica de cada elemento, por lo que mediante la detección y medición de esta energía, en principio, es posible la identificación de los elementos que componen la muestra y, además, calcular la concentración de cada uno de ellos [1, 16].

<sup>1</sup>Las líneas que más nos interesan son las líneas K, es decir las provenientes de la transferencia de vacantes de la capa K a las otras capas superiores.



Entonces, al obtener la energía de los fotones provenientes de la muestra que es bombardeada por iones, es posible identificar los elementos que la componen, es decir realizar un análisis cualitativo. En la tabla 3.1 se muestran algunas de las energías correspondientes a las transiciones de elementos que son de nuestro interés.

Tabla 3.1:  
Energías de las principales líneas K y L de emisión de rayos X (keV)[16].

Z	Elemento	K <sub>β<sub>2</sub></sub>	K <sub>β<sub>1</sub></sub>	K <sub>α<sub>1</sub></sub>	K <sub>α<sub>2</sub></sub>	L <sub>γ<sub>1</sub></sub>	L <sub>β<sub>2</sub></sub>	L <sub>β<sub>1</sub></sub>	L <sub>α<sub>1</sub></sub>	L <sub>α<sub>2</sub></sub>
57	La	38.728	37.799	33.440	33.033	5.789	5.384	5.043	4.651	4.635
58	Ce	40.231	39.255	34.717	34.276	6.052	5.613	5.262	4.840	4.823
60	Nd	43.298	42.269	37.359	36.845	6.602	6.090	5.722	5.230	5.208
64	Gd	49.961	48.718	42.983	42.280	7.788	7.102	6.714	6.039	6.027
66	Dy	53.491	52.178	45.985	45.192	8.418	7.638	7.249	6.495	6.457
67	Ho	55.292	53.934	47.528	46.686	8.748	7.912	7.528	6.720	6.680
68	Er	57.088	55.690	49.099	48.205	9.089	8.188	7.810	6.948	6.904
79	Au	80.165	77.968	68.794	66.980	13.379	11.582	11.439	9.711	9.625

Uno de los pasos importantes que se debe considerar, antes de realizar el análisis cuantitativo de los componentes de la muestra, es el de identificar qué tipo de blanco se tiene. Según el espesor del blanco a analizar y el alcance del ion incidente, los blancos se dividen principalmente en tres tipos:

1. Blanco Delgado. Se dice que se tiene un blanco delgado cuando el proyectil no pierde mucha energía (no más del 2-3%) al atravesar la muestra, y además la atenuación de los rayos X emitidos por el blanco es despreciable.
2. Blanco Intermedio. En este caso, aunque el proyectil aun atraviere la muestra, su pérdida de energía y la atenuación de los rayos X emitidos por la muestra ya no pueden ignorarse.
3. Blanco Grueso. Cuando el proyectil deposita toda su energía en la muestra y queda finalmente detenido en ella, se dice que se tiene un blanco grueso. En este caso es muy importante el conocimiento completo del frenado que sufre el proyectil en la matriz y la atenuación de los rayos X en la muestra.

Una vez que se identifica el tipo de blanco, le sigue el análisis. Por ejemplo, el caso más simple es cuando se bombardea un blanco delgado, en el cual se tiene la siguiente relación:

$$Y_0(Z) = \frac{N_A C_Z \epsilon_Z(E_0) \sigma_Z(E_0) b_Z^a N_p}{A_Z \sin \theta}, \quad (3.2)$$

donde  $Y_0(Z)$  es el número de fotones de rayos X para una línea determinada de un elemento con número atómico  $Z$ ,  $N_A$  el número de Avogadro,  $C_Z$  es la concentración del

elemento analizado en la muestra,  $\epsilon_z$  es la eficiencia absoluta para la línea  $X_i$ ,  $\sigma_z(E_0)$  es la sección eficaz de ionización a la energía de incidencia de los proyectiles  $E_0$ ,  $A_z$  es el peso atómico del elemento,  $\theta$  el ángulo entre el haz incidente y la superficie de la muestra,  $N_p$  el número de partículas incidentes y  $b_z^a$  es la fracción de los rayos X de la línea  $X_i$  sobre los totales K, L o M.

## 3.2 Retrodispersión de Rutherford (RBS)

Hasta ahora, se ha visto que al bombardearse un átomo, el ion interacciona fuertemente con los electrones pertenecientes al blanco provocando ionización. Pero la ionización del átomo blanco no es el único proceso que se lleva a cabo durante la colisión ion-átomo. Durante la colisión entre un ion y un átomo los núcleos pueden llegar a experimentar una fuerte interacción si se aproximan lo suficiente como para que la repulsión coulombiana entre los núcleos no sea apantallada por la nube de electrones que rodean el blanco.

Obviamente, tanto el núcleo del ion como el del blanco están cargados positivamente, por lo que la repulsión entre ambos es bastante intensa. En consecuencia, al hacer incidir un haz de partículas sobre un determinado blanco, muchas de estas partículas son retrodispersadas.

Fue así como el científico Ernest Rutherford, al observar la dispersión de partículas en sus experimentos, pudo determinar su modelo del átomo. En honor a este investigador se le dió el nombre a esta técnica de análisis de materiales: Retrodispersión de Rutherford<sup>2</sup>. Esencialmente, la técnica consiste en colocar un blanco frente a un haz monoenergético de iones normalmente ligeros. Los iones que son retrodispersados por la interacción son detectados y analizados.

En los experimentos que se realizaron en la presente investigación sólo se utilizaron principios muy básicos de la técnica de RBS. La técnica resultó ser una excelente herramienta de apoyo y, como se verá más adelante, gracias a ella se obtuvieron mediciones primordiales para ciertos cálculos<sup>3</sup>.

Ahora, si se quiere obtener un amplio conocimiento de dicha técnica es necesario, por lo menos, entender los siguientes cuatro conceptos básicos<sup>4</sup> [44]:

1. Factor cinemático de dispersión. Se puede considerar a la colisión entre el proyectil y el núcleo del átomo blanco como una colisión elástica. El factor cinemático  $K$  es el cociente de la energía inicial del proyectil  $E_0$  y su energía final  $E_1$ . Para los iones que son dispersados por la superficie de la muestra se tiene la siguiente relación:

---

<sup>2</sup>RBS por sus siglas en inglés de *Rutherford BackScattering*.

<sup>3</sup>En particular en la determinación de las secciones de producción de rayos X y en la medición de espesores.

<sup>4</sup>Por cuestiones prácticas, en el presente trabajo sólo se mencionarán ligeramente cada uno de estos conceptos.

$$K = \frac{E_1}{E_0}. \quad (3.3)$$

Se puede demostrar [44] que el factor cinemático en el sistema de laboratorio es:

$$K = \left[ \frac{m_1 \cos \theta + \sqrt{m_2^2 - m_1^2 \sin^2 \theta}}{m_2 + m_1} \right]^2. \quad (3.4)$$

En general, las características del proyectil (masa  $m_1$ , energía, carga, etc.) se conocen bien, por lo que si se mide la energía de los iones retrodispersados es posible identificar la masa  $m_2$  del elemento blanco<sup>5</sup>.

2. Sección eficaz de dispersión. La probabilidad de que una partícula, al incidir en el blanco, sea dispersada en cierto ángulo  $\theta$ , está dada por la sección eficaz diferencial de dispersión  $d\sigma/d\Omega$ . En el sistema de laboratorio la sección eficaz diferencial se puede escribir como:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left( \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E_0 \sin^2 \theta} \right)^2 \frac{\left\{ \cos \theta + \left[ 1 - \left( \left( \frac{m_1}{m_2} \right) \sin \theta \right)^2 \right]^{1/2} \right\}^2}{\left( 1 - \left[ \left( \frac{m_1}{m_2} \right) \sin \theta \right]^2 \right)^{1/2}}. \quad (3.5)$$

donde  $Z_1$  es el número atómico del proyectil,  $Z_2$  es el número atómico del blanco,  $e$  es la carga del electrón,  $\theta$  es el ángulo de dispersión,  $E_0$  es la energía del proyectil antes de la dispersión, y  $m_1$  y  $m_2$  la masa del proyectil y del blanco, respectivamente.

Se puede definir la sección eficaz de dispersión promedio<sup>6</sup>  $\sigma$  como:

$$\sigma \equiv \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega, \quad (3.6)$$

donde  $\Omega$  es el ángulo sólido que presenta el detector<sup>7</sup>.

Luego, para un arreglo experimental como el de la figura 3.3, se tiene la siguiente relación:

$$A = \sigma \Omega \cdot Q \cdot Nt. \quad (3.7)$$

<sup>5</sup>Debido a esto RBS tiene el carácter de técnica analítica.

<sup>6</sup>La sección eficaz de dispersión promedio es la que se usa ordinariamente en la técnica de RBS y es llamada simplemente sección eficaz de dispersión; en esta tesis se seguirá esta convención.

<sup>7</sup>Para ángulos muy pequeños  $\Omega$ ,  $\sigma \rightarrow d\sigma/d\Omega$ .

esto es

$$\left( \begin{array}{c} \text{Número de} \\ \text{partículas} \\ \text{detectadas} \end{array} \right) = \sigma \Omega \cdot \left( \begin{array}{c} \text{Número total} \\ \text{de partículas} \\ \text{incidentes} \end{array} \right) \cdot \left( \begin{array}{c} \text{Número de átomos} \\ \text{blanco por} \\ \text{unidad de área} \end{array} \right)$$

Esta ecuación es muy importante para los experimentos realizados en la presente tesis; es importante recalcar que esta expresión sólo es válida para blancos delgados.

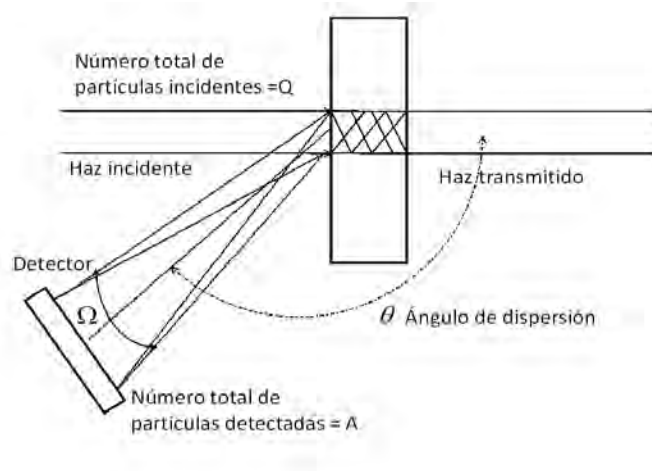


Figura 3.3: Arreglo del experimento de retrodispersión.

3. Sección eficaz de frenado. Cuando un ion atraviesa el blanco pierde energía debido, principalmente, a la interacción del ion con los electrones que se encuentran en el blanco. Entonces, al atravesar cierta capa de espesor  $\Delta x$  del material, el ion pierde una energía  $\Delta E$ . Entonces, en el límite se define el llamado poder de frenado, de la forma

$$\lim_{x \rightarrow 0} \frac{\Delta E}{\Delta x} \equiv \frac{dE}{dx}. \quad (3.8)$$

Además, se puede definir otra cantidad llamada sección eficaz de frenado  $\epsilon$ :

$$\epsilon \equiv \frac{1}{N} \left( \frac{dE}{dx} \right), \quad (3.9)$$

donde  $N$  es la densidad de átomos blanco.

De esta manera, debido a la pérdida de energía del ion, la energía de los iones retrodispersados dentro del material será menor. Existe una relación entre la diferencia de energía  $\Delta E$  y entre la del ion retrodispersado en la superficie del blanco y la del ion retrodispersado a cierta profundidad  $t$ , ver figura 3.4:

$$\Delta E = K E_0 - E_1 \implies \Delta E = [S]t, \quad (3.10)$$

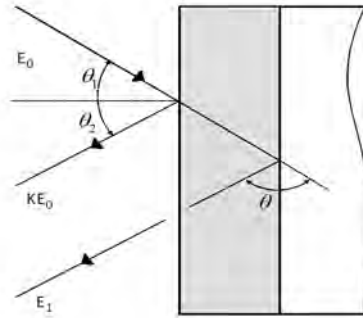


Figura 3.4: Esquema para determinar la diferencia de energías entre un ion retrodisperso en la superficie y otro retrodisperso en el interior del material, a una profundidad  $t$  [28].

donde  $[S]$  es llamado factor de pérdida de energía de retrodispersión y está definido como:

$$[S] \equiv \frac{K}{|\cos \theta_1|} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_0} + \frac{1}{|\cos \theta_2|} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{KE} . \quad (3.11)$$

Este resultado es una aproximación para espesores  $t$  muy pequeños.

4. Fluctuaciones de energía (*Energy straggling*). Como ya se dijo, un ion pierde energía al atravesar la materia. Esta pérdida se debe a una gran cantidad de colisiones; por lo que se presentan fluctuaciones estadísticas. De esta forma, la energía de los iones que atraviesan el material tiene una cierta dispersión. Las fluctuaciones de energía son muy importantes ya que establecen límites a la técnica de retrodispersión; a saber, restringe la precisión en la determinación de espesores y en la identificación de masas.

Una vez que se ha dado la explicación de algunas de las técnicas que se utilizaron en los experimentos realizados, se puede seguir con la explicación detallada del proceso experimental que se llevó a cabo.

### 3.3 Procedimiento Experimental

Para efectuar los experimentos, se utilizó el dispositivo que muestra la figura 3.5. A continuación se dará una descripción de los componentes principales.

Como fuente del haz primario de partículas se utilizó el acelerador de iones ubicado en el laboratorio Marcos Mazari del Instituto de Física de la UNAM. Se trata de un acelerador Pelletron de 3 MV 9SDH-2, con una estructura mostrada esquemáticamente en la figura 3.6.

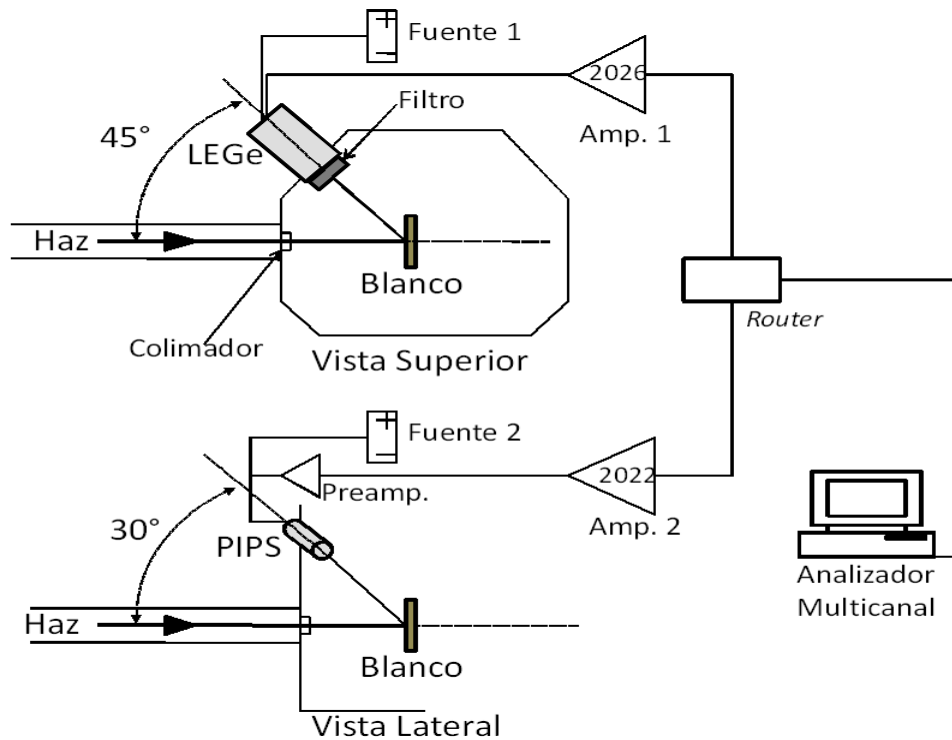


Figura 3.5: Esquema del arreglo general de los experimentos realizados para medir probabilidades de transferencia radiativa de vacantes y secciones de producción de rayos X.

En cada uno de los experimentos se colocó un colimador de haz hecho de tantalio (Ta) con una apertura de 3 mm. Los experimentos se realizaron con dos diferentes haces de partículas:

- Protones. Se bombardearon los blancos con protones  $^1\text{H}^{1+}$  de energías entre 3 MeV y 4 MeV con pasos de 0.1 MeV; por lo tanto con 11 energías diferentes.
- Iones de carbono. Se utilizó un haz de iones de carbono  $^{12}\text{C}^{4+}$  para irradiar los blancos, con energías entre los 12 MeV y 15 MeV con pasos de 0.5 MeV; esto es con 7 energías.

Tomando en cuenta que el objetivo principal es estudiar la emisión de elementos de tierras raras, el primer paso fue usar blancos delgados que contuvieran dichos elementos; por ejemplo, fluoruro de lantano ( $\text{LaF}_3$ ) depositado en MYLAR<sup>®</sup>. Después de bombardearlos por un tiempo típico, la producción de fotones de Rayos X K que se detectaba era muy baja, por lo que no se tenía un conteo apropiado para tener una estadística adecuada.

Debido a lo anterior, se optó por usar blancos gruesos para obtener una producción de Rayos X K mayor que con los blancos delgados, así que se utilizaron pequeñas láminas de espesores entre los 100  $\mu\text{m}$  y 250  $\mu\text{m}$ , con una pureza<sup>8</sup> del 99.9%. Al usar

<sup>8</sup>Según el fabricante.

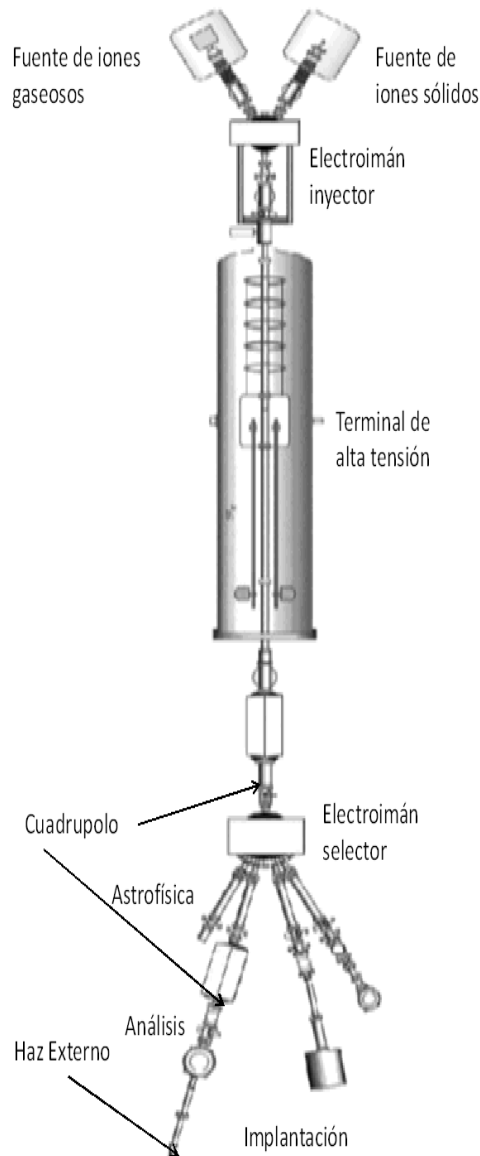


Figura 3.6: Diagrama del acelerador Pelletron 9SDH-2. Los experimentos se llevaron a cabo en la cámara de análisis.

láminas de elementos de tierras raras se presentan un par de inconvenientes; se trata de blancos gruesos, por lo que los iones no atraviesan el blanco y no se puede integrar la carga por detrás de ellos, como en un blanco delgado; además la mayoría de estos elementos son malos conductores, por lo que no se puede integrar la carga neta sobre ellos y, por consiguiente, no se puede obtener el número total de iones incidentes directamente.

Para superar el problema se le depositó al blanco, mediante erosión iónica, una delgada capa de  $\text{Au}^9$  (figura 3.7). Así, es posible hacer uso de la técnica de Retrodispersión de Rutherford (RBS) y, de esta manera, medir indirectamente el número total de iones

<sup>9</sup>Se usó el equipo de revestimiento *EffaCoater* de Ernest F. Fullam, Inc.

incidentes, detectando el número de iones retrodispersados por la capa de Au, como se vió en la sección de RBS, haciendo uso de la ecuación 3.7. El uso específico de Au tiene la ventaja de que su  $Z$  es mayor que la de las tierras raras, por lo cual la sección de Rutherford es mayor para el Au; por la diferencia de masas se espera poder identificar el número de iones retrodispersados por la capa de Au.

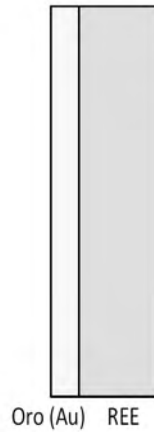


Figura 3.7: Blancos. Elementos de REE con una delgada capa de Oro depositada.

También se irradió otro blanco diferente, el cual se trata de una capa de Au de  $42.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2 \pm 5\%$  depositado sobre  $3.5 \mu\text{m}$  de MYLAR<sup>®</sup>, con el fin de ser usado como un patrón de referencia.

Para que la capa de oro depositada en los blancos tuviera utilidad en la medición de la cantidad de iones incidentes, ec. 3.7, es necesario conocer su espesor. Para medirlo, las muestras se bombardearon con protones de baja energía a  $0.5 \text{ MeV}$  en el laboratorio del acelerador Van de Graaff  $0.7 \text{ MeV}^{10}$ ; los blancos se montaron en una cámara de dispersión como se muestra en la figura 3.8.

Los espectros que se obtuvieron fueron tratados con el software SIMNRA [45, 46]. La tarea que este software realiza es la de manejar diferentes variables; como el tipo de ion, energía del ion y número de partículas incidentes; así como la composición de la matriz del blanco. Una vez que se le da el valor de las variables el software simula un espectro de RBS, hasta ajustar el espectro experimental. Los resultados para los espesores utilizados se muestran en la tabla 3.3.

Como se muestra en la figura 3.5, durante los experimentos se utilizaron simultáneamente dos tipos de detectores. Los parámetros específicos de la configuración experimental se muestran al final de este capítulo, en las tablas 3.4 y 3.5:

- Detector de partículas. Para el conteo de partículas retrodispersadas se utilizó

<sup>10</sup>Ubicado en el Instituto de Física, UNAM.



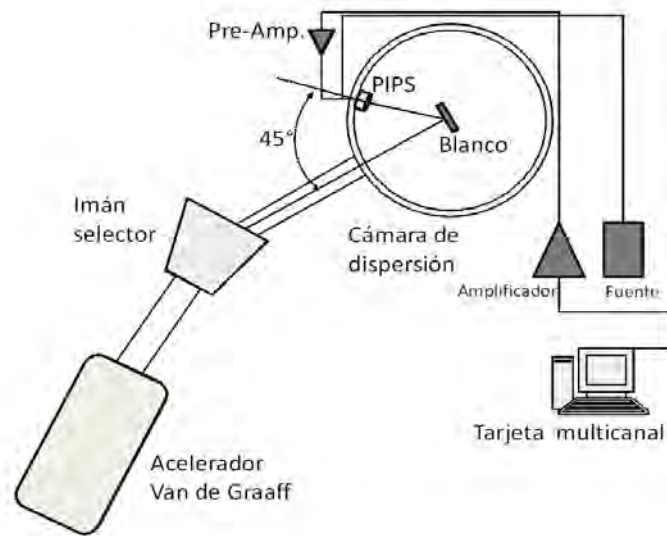


Figura 3.8: Cámara de Dispersión del acelerador Van de Graaff de 0.7 MeV, los parámetros específicos de la configuración del experimento se muestran en la tabla 3.3.

Tabla 3.2:  
Espesores de la capa de Oro (Au). La incertidumbre es de 5%.

Blanco	Grosor(átomos/cm <sup>2</sup> )	Grosor ( $\mu\text{m}$ )
Ce(Au)	$2.20 \times 10^{17}$	$3.725 \times 10^{-02}$
Nd(Au)	$8.00 \times 10^{16}$	$1.355 \times 10^{-02}$
Gd(Au)	$2.25 \times 10^{17}$	$3.810 \times 10^{-02}$
Dy(Au)	$1.85 \times 10^{15}$	$3.133 \times 10^{-04}$
Ho(Au)	$1.55 \times 10^{15}$	$2.625 \times 10^{-04}$
Er(Au)	$2.00 \times 10^{17}$	$3.387 \times 10^{-02}$

un detector tipo PIPS<sup>11</sup> con su correspondiente equipo electrónico; es así como se adquirieron los espectros de RBS, de los cuales se obtuvo el número de partículas dispersadas por la capa delgada de Oro.

- Detector de Rayos X. Para la adquisición de los rayos X se usó un detector de estado sólido tipo LE(Ge) al que se le vinculó un amplificador con ganancia tal que la detección de rayos X K de los REE fuera óptima.

Además, frente a la ventana del detector se colocó un filtro de Al. Es bien sabido que la producción de fotones X L es mucho mayor a la de rayos X K pero, debido al interés por los rayos X K de los REE y al hecho de querer evitar un apilamiento de cuentas provenientes de los rayos X L, se utilizó un filtro de Al; ya que este elemento tiene una mayor atenuación a los rayos X L tanto de los REE como de la capa de Au

<sup>11</sup>Por sus siglas en inglés de *Passivated Implanted Planar Silicon*.

en comparación con los rayos X K de los REE, figura 3.9.

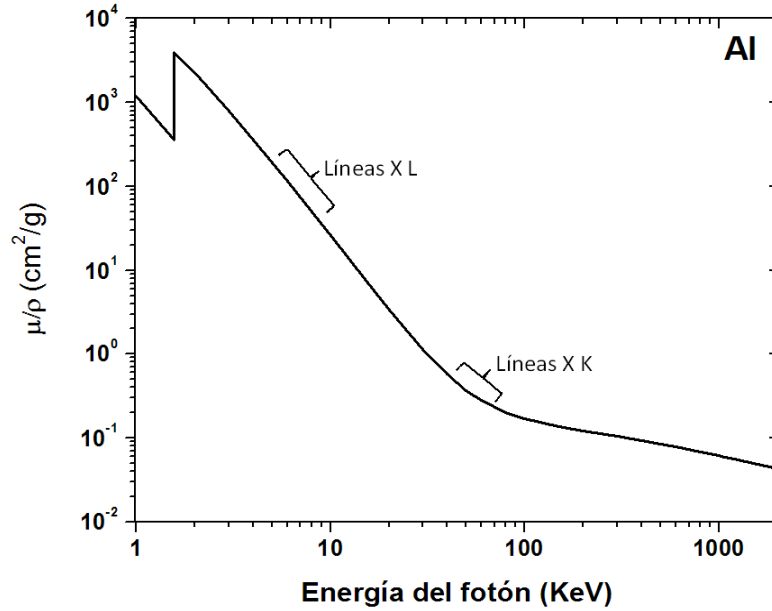


Figura 3.9: Coeficiente de atenuación másica del Al [47]. De la figura, es claro que el filtro de Al tiene una mayor atenuación de rayos X L de Au y de REE que los rayos X K de los REE.

Para la calibración y la determinación de la eficiencia del detector se colocó, justo en la posición de los blancos, una fuente calibrada  $^{241}\text{Am}$  (Amersham, England) y se analizó su espectro de emisión. La razón por la que se usó este radioisótopo es que las energías de algunos de sus rayos gamma son del orden de las energías de los rayos X K de los REE (ver gráfica de emisión de la figura 3.10 y la tabla 3.1 de emisiones X K de los REE en la sección 3.1). Debido a las propiedades del detector es posible utilizar rayos gama para calibrar y medir le eficiencia de rayos X, siempre y cuando tengan los mismos ordenes de energía.

Una vez que se obtuvo el espectro del  $^{241}\text{Am}$ , se determinó el área de los picos de emisión mediante el código QXAS [48], es decir, se obtuvo el número de fotones de cada línea de rayos  $\gamma$  en particular. A partir de aquí es posible calcular la eficiencia absoluta, que se define de la forma:

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{Número de pulsos registrados}}{\text{Número de pulsos emitidos por la fuente}}, \quad (3.12)$$

se puede determinar de la forma [49]:

$$\epsilon = \left( \frac{N_m}{A_0 I F t} \right) \exp \left( \ln 2 \frac{T}{\tau} \right), \quad (3.13)$$

donde  $N_m$  es el número de fotones de un pico,  $A_0$  es la actividad de la fuente,  $I$  es la emisión relativa por decaimiento (datos del trabajo [50]),  $F$  es un factor de corrección

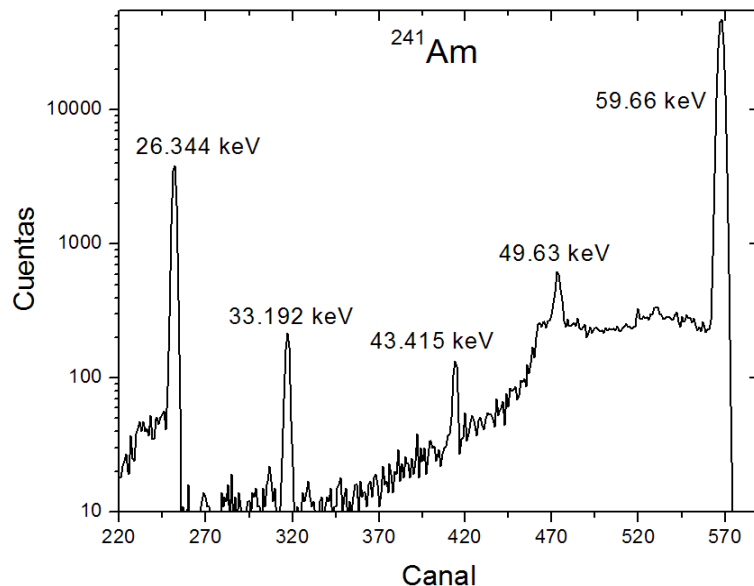


Figura 3.10: Espectro de emisión de rayos gamma del  $^{241}\text{Am}$ . En particular se muestran los picos que tienen una energía del orden de los rayos X K de los REE, que están en el intervalo de 30 keV a 60 keV.

que está relacionado con la absorción de la cubierta de la fuente,  $t$  es el tiempo de adquisición del espectro,  $T$  es el tiempo transcurrido entre la calibración de la fuente y la adquisición del espectro y, por último,  $\tau$  es tiempo de vida media de la fuente.

Ahora, como se verá más adelante, para obtener las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes no es necesario conocer el número de iones incidentes sobre los blancos durante los experimentos realizados. Sin embargo, para el cálculo de las secciones de producción es primordial conocer dicho número, por lo que se realizó el siguiente procedimiento.

El número de fotones producidos por un blanco grueso en un ángulo sólido  $\Omega$  por  $N$  protones incidentes de energía  $E$  y alcance  $x_0$  está dado por:

$$CJ = \frac{\Omega}{4\pi} N n \rho \int_0^{x_0} e^{-\mu(x_0-x)} \sigma[E(x)] dx, \quad (3.14)$$

donde  $\sigma[E(x)]$  es la sección para la capa K,  $\mu$  es el coeficiente de absorción promedio de los rayos X característicos,  $n$  es el número de átomos blanco por unidad de masa, y  $\rho$  es la densidad del blanco. Por lo que podemos definir la cantidad (llamada producción de fotones por ion incidente):

$$I_\mu(x_0) = \frac{4\pi CJ}{\Omega N} = n \rho \int_0^{x_0} e^{-\mu(x_0-x)} \sigma[E(x)] dx, \quad (3.15)$$

en la que tenemos a la eficiencia absoluta como  $4\pi C/\Omega$ . Luego, al proceder según Bothe

y Fränz, se obtiene la expresión para calcular las secciones [51]:

$$\sigma[E(x_0)] = \frac{1}{n\rho} \frac{dI_\mu(x)}{dx} + \frac{\mu}{n\rho} I_\mu(x) = \frac{1}{n} \frac{dI_\mu(x)}{dE} \frac{dE}{d(\rho x)} + \frac{\mu}{n\rho} I_\mu. \quad (3.16)$$

Para calcular la producción de fotones por protón incidente  $I_\mu$  se realizó lo siguiente: de los espectros se puede obtener el número de fotones de rayos X,  $J$ , y ya se obtuvo la eficiencia,  $4\pi C/\Omega$ ; pero, como se ha mencionado antes, al tratarse de blancos gruesos de REE no es posible integrar directamente el flujo de iones sobre el blanco,  $N$ . Para esto fue que se depositó la capa de Au sobre los blancos y además se utilizó un blanco de Au como referencia.

Ahora, para obtener el número de protones que incidieron sobre el blanco ( $N$ ) se consideró el siguiente procedimiento. En cada uno de los experimentos sobre el patrón se obtuvieron los espectros de emisión de rayos X y el espectro de RBS. Para el número de partículas retrodispersadas por el patrón de Au,  $N_{R,P}$ , se tiene la ecuación (ec. 3.7):

$$N_{R,P} = N_{P,P}(\rho t)_{Au,P} \sigma_R \Omega_R, \quad (3.17)$$

donde  $N_{P,P}$  es el número de protones incidentes,  $(\rho t)_{Au,P}$  es la densidad del Au multiplicada por el espesor del patrón<sup>12</sup>,  $\sigma_R$  es la sección de Rutherford y  $\Omega_R$  es el ángulo sólido del detector de partículas.

Por otro lado, de la técnica de análisis PIXE se tiene que el número de fotones de rayos X correspondiente a cierta línea de emisión  $L_i$  (ec. 3.2), tratándose del patrón de Au,  $Y_{L_i,P}(Au)$ , tiene la siguiente expresión:

$$Y_{L_i,P}(Au) = \epsilon_{L_i,Au} N_{P,P}(\rho t)_{Au,P} \sigma_{x,L_i}, \quad (3.18)$$

en la cual  $\epsilon_{L_i,Au}$  es la eficiencia para la línea  $L_i$  del Au,  $N_{P,P}$  es el número de protones incidentes sobre el patrón,  $\sigma_{x,L_i}$  es la sección de producción de rayos X de la línea  $L_i$  del Au y  $(\rho t)_{Au,P}$  es la densidad de área del patrón de Au.

Ahora, para la capa delgada de Au depositada sobre las muestras de REE se tiene una expresión similar en cuanto al número de fotones de la línea  $L_i$ ,  $Y_{L_i,M}(Au)$ ; es decir

$$Y_{L_i,M}(Au) = \epsilon_{L_i,Au} N_{P,M}(\rho t)_{Au,M} \sigma_{x,L_i}, \quad (3.19)$$

con  $\epsilon_{L_i,Au}$  y  $\sigma_{x,L_i}$  igual a la ecuación 3.18; pero ahora  $N_{P,M}$  corresponde al número de protones incidentes sobre la muestra de REE y  $(\rho t)_{Au,M}$  es la densidad de área de la capa de Au depositada en la lámina de tierra rara.

Si se divide la ecuación 3.19 sobre la ecuación 3.18 se obtiene

$$\frac{Y_{L_i,M}(Au)}{Y_{L_i,P}(Au)} = \frac{N_{P,M}(\rho t)_{Au,M}}{N_{P,P}(\rho t)_{Au,P}}, \quad (3.20)$$

---

<sup>12</sup>También es conocida como densidad de área.

ya que las eficiencias y secciones son las mismas. Mientras tanto, de la ecuación 3.17 resulta que el número de protones incidentes sobre el patrón es:

$$N_{P,P} = \frac{N_{R,P}}{(\rho t)_{Au,P} \sigma_R \Omega_R}. \quad (3.21)$$

Entonces, al sustituir el número de protones incidentes en la muestra ( $N_{P,P}$ ) en la ecuación 3.20 y despejando, podemos obtener el número de protones incidentes sobre las muestras; es decir, sobre los blancos de REE. Así se obtiene:

$$N_{P,M} = \frac{N_{R,P} Y_{L_i,M}(Au)}{\sigma_R \Omega_R (\rho t)_{Au,M} Y_{L_i,P}(Au)}. \quad (3.22)$$

Tabla 3.3:

Detalle de los parámetros utilizados para medir las películas mediante el bombardeo con protones de 0.7 MeV-0.5 MeV, en el acelerador Van de Graaff 0.7 MeV del IFUNAM. Donde  $r$  es la distancia del blanco al detector,  $A$  el área del detector y  $\Omega$  su ángulo sólido.

Detector	Fuente	Amplificador	Colimador
$r=8.8$ (0.1) cm $A=25$ mm <sup>2</sup>  $\Omega=3.23 \times 10^{-3}$ $(7 \times 10^{-5})$ esterradian	Ortec 710 Pol. (+)100.0 V	Ortec C.G.=200 F.G.=0.68 <i>Shaping Time</i> =1 $\mu$ s	tantalio (Ta) d=1.6 mm

Tabla 3.4:

Detalle de los parámetros utilizados en la primera serie de experimentos protones de 3.0 MeV-4.0 MeV, en el acelerador Pelletron del IFUNAM.

Tipo de Detector	Fuente	Amplificador	
PIPS Canberra <sup>®</sup> r=12.6 (0.1) cm diámetro=5 mm $\Omega=1.23E \times 10^{-3}$ ( $2 \times 10^{-5}$ ) esterradianes	Ortec 710 Pol. (+)60.0 V	2022 C.G.=300 F.G.=0.453 <i>Shaping Time=0.5<math>\mu</math>s</i>	Colimador de Haz tantalio (Ta) d=3 mm
LE(Ge) Canberra <sup>®</sup> Resolución 5.9 keV - 145 eV FWHM 22 keV - 500 eV FWHM	Canberra <sup>®</sup> 31020 Pol. (-)0.5 kV	2026 C.G.=500 F.G.=0.5 <i>Shaping Time=4<math>\mu</math>s</i>	Filtro Aluminio 63 $\mu$ m

Tabla 3.5:

Detalle de los parámetros utilizados en la segunda serie de experimentos iones  $^{12}\text{C}^{4+}$  de 12.0 MeV-15.0 MeV, en el acelerador Pelletron del IFUNAM.

Tipo de Detector	Fuente	Amplificador	
PIPS Canberra <sup>®</sup> r=12.6 (0.1) cm diámetro=5 mm $\Omega=1.23 \times 10^{-3}$ ( $2 \times 10^{-5}$ ) esteradianes	Ortec 710 Pol. (+)60.0 V	2022 C.G.=200 F.G.=0.3 <i>Shaping Time=0.5<math>\mu</math>s</i>	Colimador de Haz tantalio (Ta) d=3 mm
LE(Ge) Canberra <sup>®</sup> Resolución 5.9 keV - 145 eV FWHM 122 keV - 500 eV FWHM	Canberra <sup>®</sup> 31020 Pol. (-)0.5 kV	2026 C.G.=200 F.G.=0.77 <i>Shaping Time =4<math>\mu</math>s</i>	Filtro Aluminio 63 $\mu$ m

# Capítulo 4

## Resultados

### 4.1 Probabilidades de Transferencia Radiativa de Vacantes

Como vimos en la sección 2.1, las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes se calculan de la siguiente forma (ecuaciones 2.35 y 2.36):

$$\eta_{KL_2} = \omega_K \left[ \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left\{ \left[ 1 + \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left[ 1 + \frac{I(K_{\beta})}{I(K_{\alpha})} \right] \right\}^{-1}, \quad (4.1)$$

$$\eta_{KL_3} = \omega_K \left\{ \left[ 1 + \frac{I(K_{\alpha_2})}{I(K_{\alpha_1})} \right] \left[ 1 + \frac{I(K_{\beta})}{I(K_{\alpha})} \right] \right\}^{-1}. \quad (4.2)$$

Experimentalmente, es posible medir las tasas de emisión de los rayos X, es decir las cantidades  $I(K_{\alpha_2})/I(K_{\alpha_1})$  e  $I(K_{\beta})/I(K_{\alpha})$ . Para las líneas  $K_i$  y  $K_j$ , se obtienen de la expresión [52]:

$$\frac{K_i}{K_j} = \frac{\epsilon(K_j)N_X(K_i)\beta(K_j)}{\epsilon(K_i)N_X(K_j)\beta(K_i)}, \quad (4.3)$$

donde  $\epsilon(K_j)$  es la eficiencia de detección para la línea  $K_j$ ,  $N_X(K_j)$  es el número de rayos X de la línea  $K_j$  y  $\beta(K_j)$  es el factor de atenuación de los rayos X, que incluye la absorción por la capa de Au y por la capa de la lámina del sustrato de tierra rara (como veremos más adelante).

La determinación de cada uno de los factores involucrados en las intensidades relativas se hizo de la siguiente manera:

1. La eficiencia del detector se midió a partir de su exposición ante la fuente de  $^{241}\text{Am}$  (como se explicó en el capítulo anterior) figura 4.1. Así, se realizó una interpolación para obtener la eficiencia para cada una de las líneas de emisión de rayos X K de los REE, las cuales corresponden a los coeficientes  $\epsilon(K_i)$ .

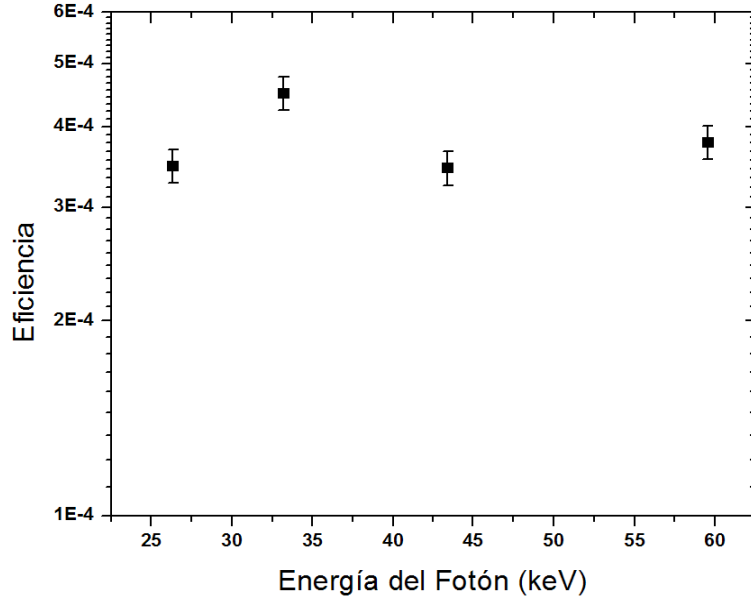


Figura 4.1: Eficiencia del detector de rayos X, LE(Ge). Las energías corresponden a las emisiones de la fuente  $^{241}\text{Am}$ ; la incertidumbre resultó entre 5% y 6%.

- Los factores de atenuación,  $\beta(K_i)$ , tienen que ver con la atenuación<sup>1</sup> de fotones de rayos X debida al blanco. Conforme el ion penetra en la materia, éste pierde energía por lo que habrá un punto en el que el ion se detendrá por completo, a su paso dejó átomos ionizados algunos de los cuales emitirán rayos X K. Entonces, existe una emisión de rayos X a diferentes profundidades dentro del blanco, los cuales se verán atenuados al atravesar las capas del material. El factor de atenuación está dado por [16]:

$$\beta(K_i) = \exp \left[ -\frac{\mu_{K_i}}{\cos \phi} \int_{E_0}^E \frac{dE}{S(E)} \right], \quad (4.4)$$

donde  $\mu_{K_i}$  es el coeficiente másico de atenuación para la línea de emisión  $K_i$ ,  $E_0$  es la energía inicial del ion,  $\phi$  es el ángulo entre el detector y la normal de la superficie del blanco y  $S(E)$  es el poder de frenado de la matriz del blanco. Por sencillez, en vez de calcular la integral de la ecuación 4.4 se realizó una aproximación; se utilizó el alcance medio del ion sobre el blanco como el espesor total en el que los rayos X sufrirían absorción. Por lo que el factor de atenuación (ec. 4.4) se redujo a:

$$\beta(K_i) = \exp \left[ -\frac{\mu_{K_i}}{\cos \phi} (\rho t_m) \right]. \quad (4.5)$$

Ahora, tomando en cuenta la capa delgada de Au depositada sobre las muestras (figura 4.2), el factor de atenuación se puede expresar de la siguiente forma:

<sup>1</sup>Ya sea mediante la dispersión de Rayleigh, efecto Compton, efecto fotoeléctrico y/o por producción de pares.



$$\beta = \beta_1 \beta_2, \quad (4.6)$$

en la que se tiene

$$\beta_1 = \exp \left[ -(\mu_{Au})_{K_i} \frac{(\rho t)_{Au}}{\cos \phi} \right], \quad (4.7)$$

$$\beta_2 = \exp \left[ -(\mu_{REE})_{K_i} \frac{(\rho t_m)_{REE}}{\cos \phi} \right], \quad (4.8)$$

donde  $\beta_1$  es la corrección por la atenuación de los rayos X K en la capa de Au, así  $(\mu_{Au})_{K_i}$  es el coeficiente másico de atenuación de la línea  $K_i$  del REE en el Au,  $(\rho t)_{Au}$  es la densidad por área de la capa de Au;  $\beta_2$  es la corrección de atenuación por la capa de elemento de tierra rara, en el que  $(\mu_{REE})_{K_i}$  es el coeficiente de atenuación másico de los rayos  $K_i$  del REE en el elemento de tierra rara correspondiente,  $(\rho t_m)_{REE}$  es la densidad del REE por el alcance medio de los iones dentro del material de REE y, por último,  $\phi$  es el ángulo del detector con respecto a la normal del blanco. Los coeficientes másicos de atenuación se calcularon usando el código XCOM [47] y los alcances del haz de iones sobre los blancos de REE se evaluaron con el programa SRIM [53, 54].

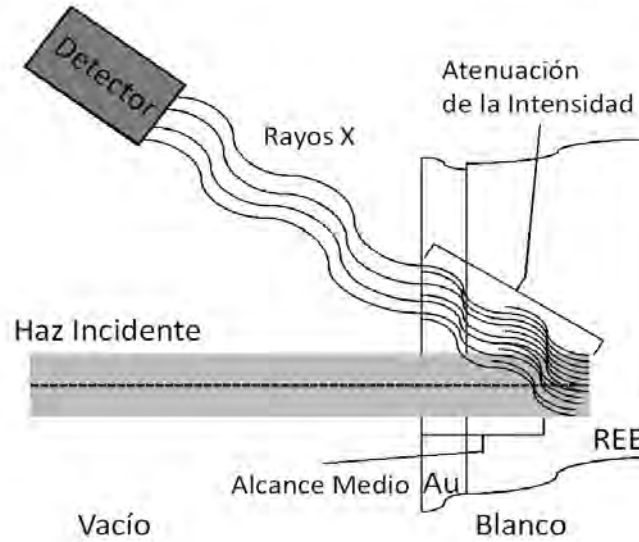


Figura 4.2: Representación esquemática de la atenuación de los rayos X por el blanco. Las ondas representan la radiación electromagnética de rayos X y su cantidad es la intensidad; ésta se ve disminuida por la atenuación en la capa de Au y el REE.

3. Los espectros de rayos X se analizaron con el código QXAS [48], usando la corrección en la forma de la línea para considerar los picos apropiados de la forma explicada por Papp [55]. Así, se obtuvo el número de fotones de cada una de las líneas de emisión, es decir  $N_X(K_i)$ . En las figuras 4.3 y 4.4 se muestran algunos de los espectros de rayos X obtenidos.

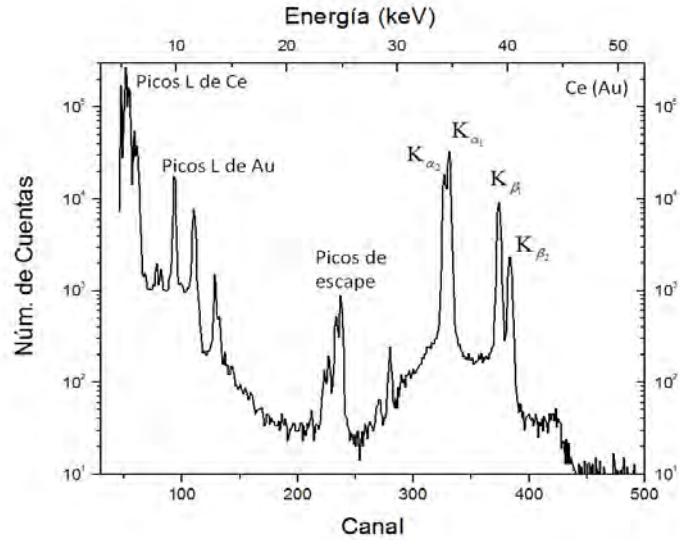


Figura 4.3: Espectro de emisión de rayos X de Ce(Au) inducido por el bombardeo con protones de 3.4 MeV.

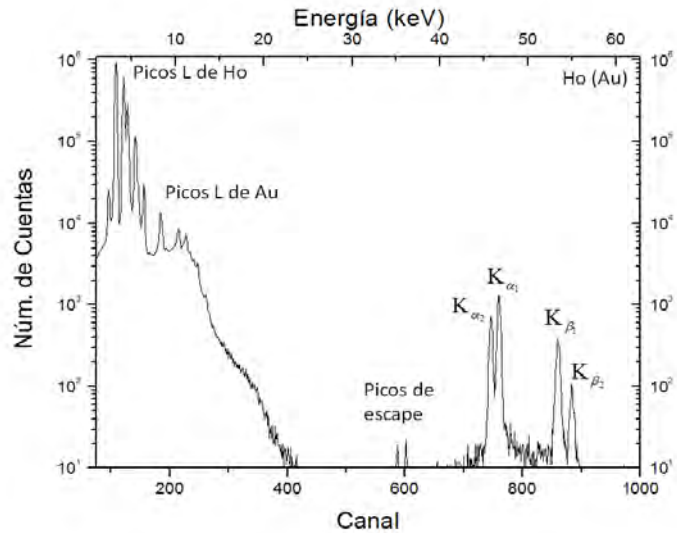


Figura 4.4: Espectro de emisión de rayos X inducido por la incidencia de iones de  $^{12}\text{C}^{4+}$  de 13 MeV sobre Ho(Au).

Para determinar las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes obtenidas al irradiar con protones, el valor de  $\omega_K$  se tomó de [43], pero además se hicieron los cálculos respectivos para tomar en cuenta efectos de ionización múltiple, ec. 2.100. Se encontró que los efectos de ionización múltiple son despreciables en el caso de protones. Los resultados, en el caso de protones, se muestran en las tablas 4.1 y 4.2, y en las figuras 4.5, 4.6 y 4.7.

Tabla 4.1:

Probabilidades de transferencia radiativa de vacantes mediante el bombardeo de protones. La incertidumbre de  $\eta_{KL_2}$  es del orden del 7% mientras que de  $\eta_{KL_3}$  es del 9.2%.  $E_1$  representa la energía del protón.

$E_1$ (MeV)	Ce		Nd		Gd		Dy		Ho	
	$\eta_{KL_2}$	$\eta_{KL_3}$	$\eta_{KL_2}$	$\eta_{KL_3}$	$\eta_{KL_2}$	$\eta_{KL_3}$	$\eta_{KL_2}$	$\eta_{KL_3}$	$\eta_{KL_2}$	$\eta_{KL_3}$
3.0	0.262	0.472	0.266	0.480	0.268	0.487	0.268	0.492	-	-
3.1	0.261	0.484	0.284	0.504	0.270	0.487	0.271	0.481	0.276	0.491
3.2	0.257	0.486	0.267	0.480	0.271	0.487	0.273	0.487	0.270	0.492
3.3	0.263	0.477	0.266	0.481	0.274	0.490	0.274	0.489	0.277	0.490
3.4	0.261	0.482	0.269	0.481	0.276	0.492	0.274	0.492	0.272	0.487
3.5	0.265	0.474	0.267	0.481	0.271	0.492	0.273	0.493	0.274	0.497
3.6	0.265	0.474	0.266	0.483	0.275	0.488	0.273	0.492	0.274	0.498
3.7	0.264	0.475	0.269	0.481	0.274	0.490	0.271	0.492	0.278	0.496
3.8	0.265	0.480	0.270	0.482	0.275	0.490	0.274	0.490	0.273	0.497
3.9	0.264	0.485	0.270	0.483	0.277	0.491	0.278	0.486	0.273	0.499
4.0	0.264	0.476	0.270	0.483	0.276	0.493	0.278	0.489	0.273	0.494

Tabla 4.2:

Comparación entre las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes experimentales y teóricas [23, 26](tabla 2.1). Los datos experimentales son el promedio de los datos de la tabla 4.1; prácticamente no hay cambio en las incertidumbres.

Elemento	Z	$\eta_{KL_2}$		$\eta_{KL_3}$	
		Teoría	Experimento	Teoría	Experimento
Ce	58	0.258	0.263	0.472	0.479
Nd	60	0.261	0.269	0.475	0.483
Gd	64	0.266	0.273	0.478	0.490
Dy	66	0.268	0.273	0.479	0.489
Ho	67	0.270	0.274	0.480	0.494

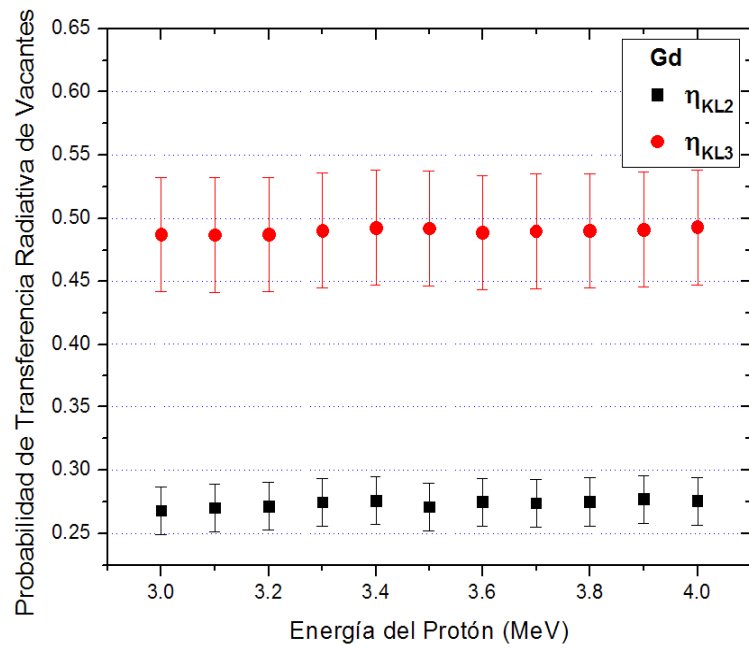


Figura 4.5: Probabilidades de transferencia radiativa de vacantes  $\eta_{KL2}$  y  $\eta_{KL3}$  para el Gd obtenidas experimentalmente como función de la energía del protón incidente.

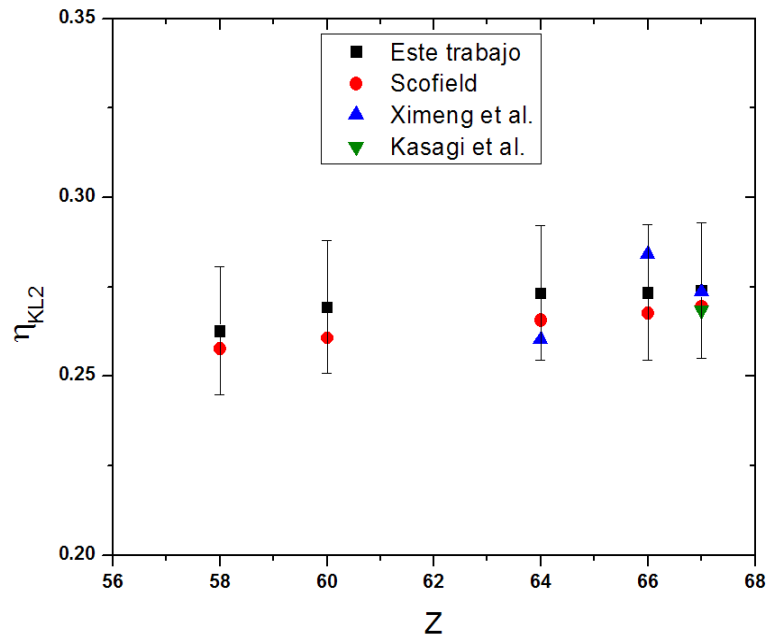


Figura 4.6: Comparación de las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes  $\eta_{KL2}$ , para protones. Los datos experimentales fueron tomados de los trabajos de Ximeng et al. [56], y Kasagi et al. [57], mientras que las predicciones teóricas se obtuvieron de las tablas publicadas por Scofield [23, 26] (tabla 2.1).

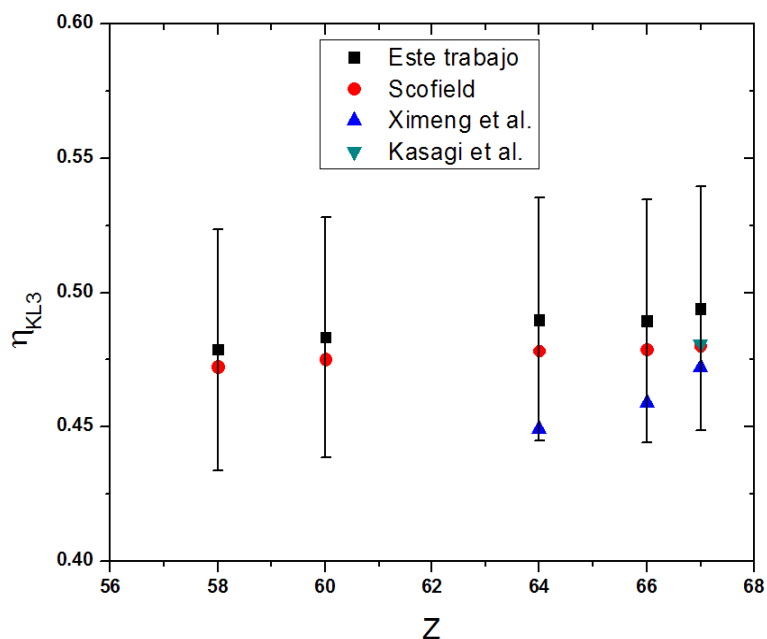


Figura 4.7: Véase la Fig. 4.6 pero, en este caso, para las probabilidades de transferencia radiativa  $\eta_{KL3}$ .

Para la irradiación con iones de C, el valor de  $\omega_K$  se tomó de [43], pero además se hicieron los respectivos cálculos para tomar en cuenta efectos de ionización múltiple, ec. 2.100 y se encontró que, en el caso de iones  $^{12}\text{C}^{4+}$  de 12 MeV a 14 MeV sobre REE, la producción de fluorescencia aumentó entre un 4% y 7%; por lo que también aumentaron las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes. Estos resultados se muestran en las tablas 4.3 y 4.4, y en las figuras 4.8, 4.9 y 4.10.

Tabla 4.3:

Probabilidades de transferencia radiativa de vacantes en función de la energía del ion  $^{12}\text{C}^{4+}(E_1)$ ; la incertidumbre de  $\eta_{KL2}$  es del orden del 7% mientras que de  $\eta_{KL3}$  es del 9.2%.

$E_1(\text{MeV})$	Ce		Gd		Dy		Ho		Er	
	$\eta_{KL2}$	$\eta_{KL3}$	$\eta_{KL2}$	$\eta_{KL3}$	$\eta_{KL2}$	$\eta_{KL3}$	$\eta_{KL2}$	$\eta_{KL3}$	$\eta_{KL2}$	$\eta_{KL3}$
12.0	0.268	0.522	0.282	0.504	0.280	0.469	0.277	0.515	0.277	0.505
12.5	0.266	0.518	0.285	0.508	0.292	0.559	0.276	0.515	0.276	0.516
13.0	0.259	0.539	0.280	0.505	0.284	0.515	0.278	0.511	0.280	0.506
13.5	0.266	0.518	0.285	0.512	0.273	0.518	0.275	0.503	0.287	0.503
14.0	0.277	0.511	0.289	0.512	0.275	0.522	0.272	0.513	0.269	0.516

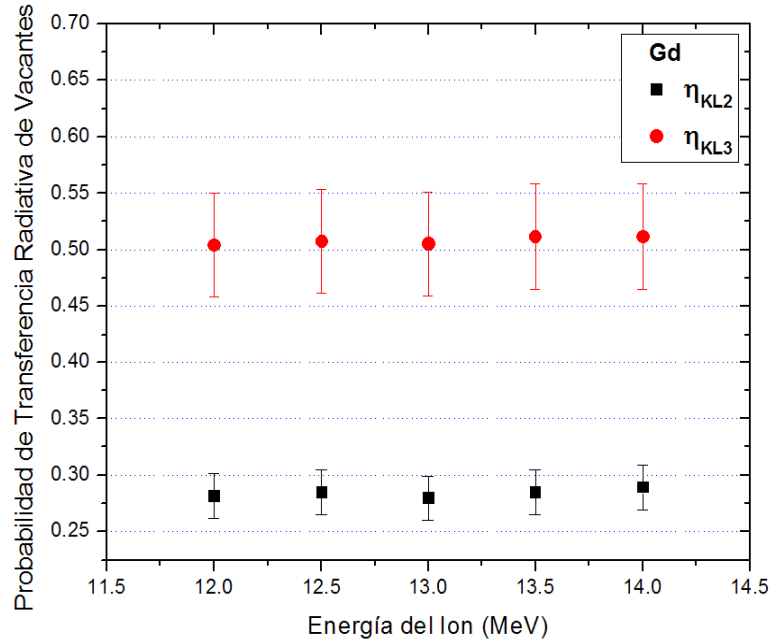


Figura 4.8: Probabilidades de transferencia radiativa de vacantes  $\eta_{KL2}$  y  $\eta_{KL3}$  para el Gd obtenidas experimentalmente como función de la energía del ion incidente  $^{12}\text{C}^{4+}$ .

Tabla 4.4:

Comparación entre las probabilidades de transferencias radiativas de vacantes experimentales y teóricas para  $^{12}\text{C}^{4+}$ . Los datos experimentales son el promedio de los datos de la tabla 4.3, no hay cambio en las incertidumbres.

Elemento	Z	$\eta_{KL2}$		$\eta_{KL3}$	
		Teoría	Experimento	Teoría	Experimento
Ce	58	0.279	0.276	0.512	0.531
Gd	64	0.282	0.293	0.507	0.516
Dy	66	0.283	0.287	0.505	0.528
Ho	67	0.283	0.278	0.504	0.524
Er	68	0.283	0.286	0.503	0.516

En las figuras 4.6 y 4.7 se observa que los resultados mediante el uso de protones concuerdan, dentro de las incertidumbres, con los cálculos teóricos basados en el procedimiento de Hartree-Fock Relativista realizados por Scofield [23, 26] y otros resultados experimentales mediante el uso de protones, Kasagi et al. [57] y Ximeng et al. [56]. En los resultados de Kasagi et al. [57] sólo se usan protones de 3.5 MeV y en los de Ximeng et al. [56] sólo emplean protones de 3.0 MeV; mientras que, en este trabajo, se realizó un barrido completo de energías con pasos de 0.1 MeV, de 3 MeV a 4 MeV, por lo que se tiene un trabajo experimental más completo.

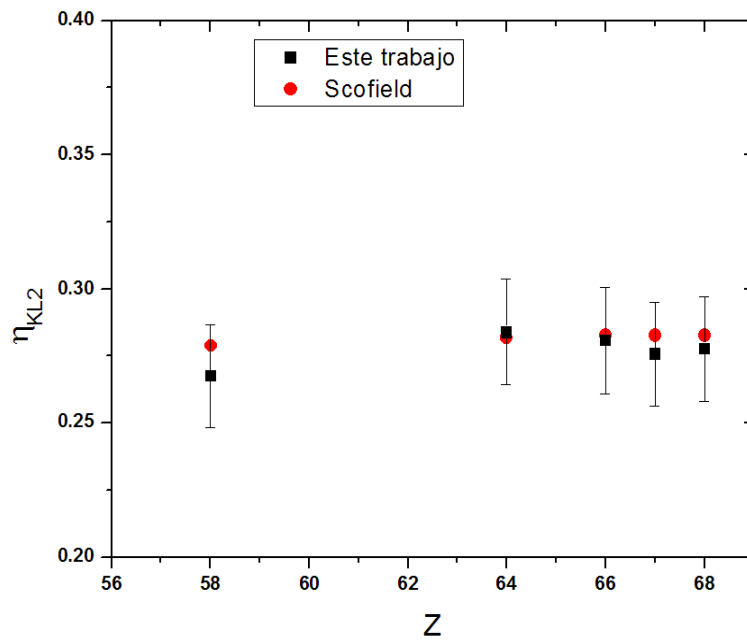


Figura 4.9: Comparación de las probabilidades de transición radiativa de vacantes  $\eta_{KL2}$ , producidas por iones de  $^{12}\text{C}^{4+}$ . Las predicciones teóricas se obtuvieron de las tablas publicadas por Scofield [23, 26], tabla 2.1.

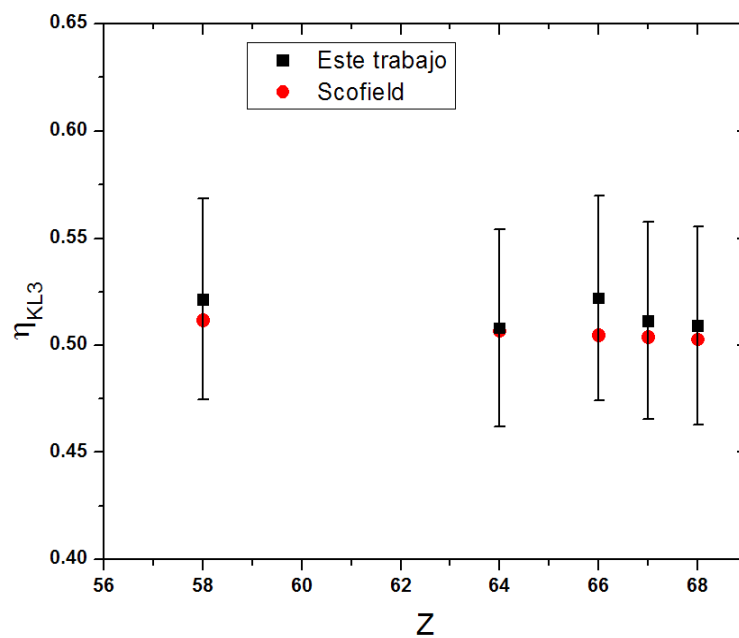


Figura 4.10: Véase la Fig. 4.9 pero, en esta ocasión, para las probabilidades de transferencia radiativas  $\eta_{KL3}$ .

Los cálculos de Scofield [23, 26] suponen que el estado inicial atómico consiste de una sola vacante en la capa interna; no obstante, en muchos trabajos experimentales, en los cuales se usa como radiación primaria fotones o electrones, se han obtenido resultados que concuerdan con dichos cálculos. Al usar iones como radiación primaria, se podría esperar que los resultados difieran de aquéllos en los que se usan fotones o electrones. Una manera en que se puede apreciar esta diferencia es calculando el número de vacantes creadas en los niveles electrónicos involucrados cuando los átomos se irradian con fotones o con iones. Por ejemplo, cuando los átomos se ionizan mediante fotones de 59 keV, las secciones de ionización en los REE usados son más grandes para la capa K que para la capa L. Por ejemplo, a partir del trabajo de M. Ertugrul [58], las tasas de las secciones fotoeléctricas  $\sigma_{I,f}$  para las subcapas involucradas ( $L_2$ ,  $L_3$ , y K) en el elemento Gd son de 0.0850 ( $\sigma_{I,fL_3}/\sigma_{I,fK}$ ) y de 0.0056 ( $\sigma_{I,fL_2}/\sigma_{I,fK}$ ). En cambio, cuando se usan protones para ionizar el mismo elemento, se producen mucho más vacantes en las subcapas  $L_2$  y  $L_3$  que en la capa K. En la Fig. 4.11 se muestran las curvas de los cocientes (para el Gd) entre las tasas de producción de vacantes de las subcapas L y la capa K inducidas por protones, ( $\sigma_{I,iL_2}/\sigma_{I,iK}$ ) y ( $\sigma_{I,iL_3}/\sigma_{I,iK}$ ), y las susodichas tasas de las secciones fotoeléctricas. Las secciones de ionización inducidas por protones fueron calculadas mediante el software ISICS [43].

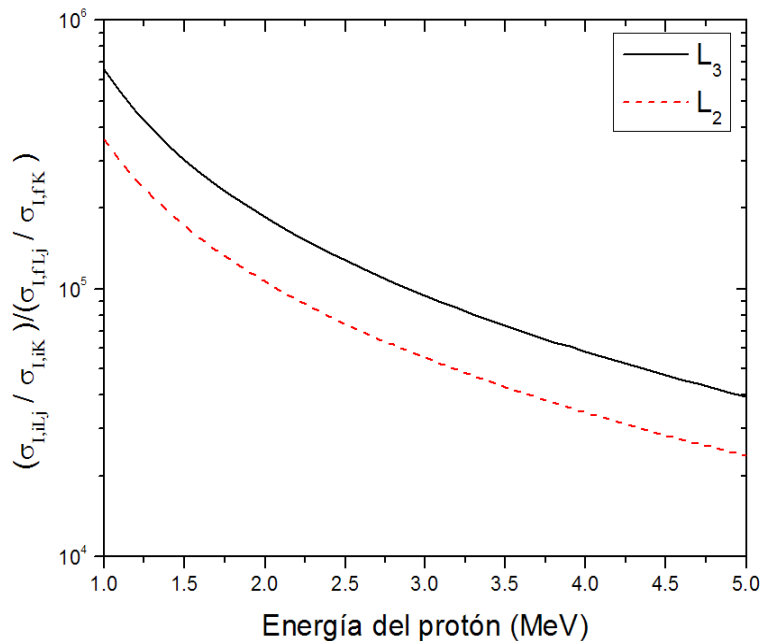


Figura 4.11: Cocientes entre las tasas de producción de vacantes entre la ionización mediante iones y fotones para el Gd. Los datos del uso de iones se obtuvieron de ISICS [43], mientras que las secciones de producción mediante fotones del trabajo de Ertugrul [58].

Se debe de notar que, cuando las vacantes se producen con protones, la probabilidad que se ionicen las subcapas  $L_2$  y  $L_3$  en vez de la capa K es entre 4 y 5 órdenes de magnitud mayor que en el caso de que las vacantes se produzcan mediante fotones. Esto indica que el número de electrones en la capa L disponibles para llenar las vacantes de la capa K debería, cuando se utilizan protones, debe ser diferente cuando la ionización



se hace mediante fotones; por lo tanto, las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes  $\eta_{KL_2}$  y  $\eta_{KL_3}$  también deberían ser diferentes entre uno y otro caso. Además, se esperaría que éstas mostraran alguna dependencia respecto de la energía del protón incidente; sin embargo, nuestros resultados demuestran lo contrario como se puede apreciar en las figuras 4.5 y 4.8.

Existen diversos resultados experimentales en los que se han determinado que las tasas de emisión de la capa K, mediante el bombardeo con protones de diferentes energías sobre varios elementos, no dependen de la energía del protón incidente. Por mencionar algunos, la independencia de  $K_{\alpha_1}/K_{\alpha_2}$  y  $K_{\beta}/K_{\alpha}$  respecto de la energía del protón con energías entre 1 MeV y 4 MeV, con blancos de W, Au y U (Castro et al. [59]); el caso de la invariancia de  $K_{\beta}/K_{\alpha}$  respecto de la energía del protón de 23.6 MeV, 32.1 MeV y 43.6 MeV, para los elementos Cu, Rb, Ag, Eu y Au (Kamal et al. [60]); y el trabajo en el que el Ho, que es más de nuestro interés, mostró independencia de  $K_{\alpha_1}/K_{\alpha_2}$  y  $K_{\beta}/K_{\alpha}$  con respecto a la energía de protones de 1 MeV a 4 MeV (Kamiya et al. [61]).

No se encontraron trabajos en los cuales se midieran las tasas de emisión de la capa K de elementos de tierras raras en los que se usaran iones más pesados como los usados en el presente trabajo, iones de  $^{12}\text{C}^{4+}$ .

## 4.2 Secciones de producción de rayos X K

En esta sección se muestran las secciones de producción de rayos X K medidas para los elementos de tierras raras por el bombardeo de protones de 3 MeV a 4 MeV. Se hace una comparación con los datos teóricos provenientes de la teoría ECPSSR-UA y la PWBA [43].

En el capítulo anterior se mostró parte del procedimiento que se llevó a cabo para obtener experimentalmente las secciones de producción de rayos X; en particular, se vio cómo se obtuvo el número total de protones que incidieron en los blancos. Ahora, para obtener una medición óptima del total de protones incidentes sobre los blancos de tierras raras, se tomaron tres picos de emisión del Au. Es decir, en la ecuación 3.22 se usaron las líneas  $L_{\beta_1}$ ,  $L_{\beta_2}$  y  $L_{\gamma_1}$  del Au, y al final se utilizó un promedio para obtener el número total de protones,  $N_{P,M}$ . Entonces, ya se tiene lo necesario para calcular la llamada producción de fotones por protón incidente,  $I_{\mu}$ , (ec. 3.15). Haciendo los cálculos respectivos, se produjo la tabla 4.5.

A partir de los valores obtenidos  $I_{\mu}$  es necesario realizar un ajuste, como se muestra en la Fig. 4.12, para el caso del Ho.

Las funciones del tipo polinomio de segundo grado fueron las que mejor se ajustaron a los puntos experimentales. Una vez obtenida la función ajustada para cada elemento, éstas se derivaron (y se evaluaron respecto a la energía) para obtener  $dI_{\mu}(x)/dE$ . Estos valores se muestran en la tabla 4.6.

Tabla 4.5:

Valores de la producción de fotones por protón incidente,  $I_\mu$ , para los diferentes elementos de tierras raras. Las incertidumbres son del orden del 10%.

$E_1$ (MeV)	$I_\mu(x)$				
	Ce	Nd	Gd	Dy	Ho
3.0	$1.16 \times 10^{-05}$	$5.76 \times 10^{-06}$	$4.23 \times 10^{-06}$	$3.84 \times 10^{-06}$	-
3.1	$1.51 \times 10^{-05}$	$5.85 \times 10^{-06}$	$4.49 \times 10^{-06}$	$2.37 \times 10^{-06}$	$2.98 \times 10^{-06}$
3.2	$1.61 \times 10^{-05}$	$6.88 \times 10^{-06}$	$5.24 \times 10^{-06}$	$3.65 \times 10^{-06}$	$3.52 \times 10^{-06}$
3.3	$1.46 \times 10^{-05}$	$8.46 \times 10^{-06}$	$7.30 \times 10^{-06}$	$6.95 \times 10^{-06}$	$3.79 \times 10^{-06}$
3.4	$1.91 \times 10^{-05}$	$1.33 \times 10^{-05}$	$8.24 \times 10^{-06}$	$6.42 \times 10^{-06}$	$4.89 \times 10^{-06}$
3.5	$2.05 \times 10^{-05}$	$1.39 \times 10^{-05}$	$9.34 \times 10^{-06}$	$4.51 \times 10^{-06}$	$4.63 \times 10^{-06}$
3.6	$2.13 \times 10^{-05}$	$1.54 \times 10^{-05}$	$9.66 \times 10^{-06}$	$5.44 \times 10^{-06}$	$5.11 \times 10^{-06}$
3.7	$2.39 \times 10^{-05}$	$1.99 \times 10^{-05}$	$9.68 \times 10^{-06}$	$3.32 \times 10^{-06}$	$5.67 \times 10^{-06}$
3.8	$3.13 \times 10^{-05}$	$1.98 \times 10^{-05}$	$1.28 \times 10^{-05}$	$8.67 \times 10^{-06}$	$6.96 \times 10^{-06}$
3.9	$3.75 \times 10^{-05}$	$2.96 \times 10^{-05}$	$1.41 \times 10^{-05}$	$6.04 \times 10^{-06}$	$7.96 \times 10^{-06}$
4.0	$3.79 \times 10^{-05}$	$2.64 \times 10^{-05}$	$1.54 \times 10^{-05}$	$1.20 \times 10^{-05}$	$8.73 \times 10^{-06}$

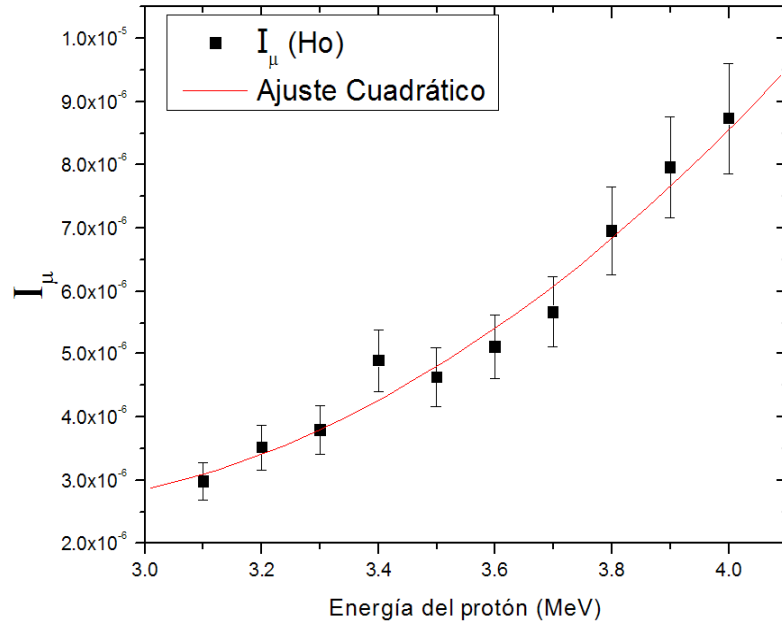


Figura 4.12: Producción de fotones por protón en función de la energía del protón incidente. Las incertidumbres son del orden del 10%.

Reescribiendo la ecuación 3.16, tenemos:

$$\sigma[E(x_0)] = \frac{1}{n} \frac{dI_\mu(x)}{dE} \frac{dE}{d(\rho x)} + \frac{\mu}{n\rho} I_\mu. \quad (4.9)$$

Por lo que una vez obtenidos  $I_\mu(x)$  y  $dI_\mu(x)/dE$ , el poder de frenado  $dE/d(\rho x)$  se

Tabla 4.6:

Valores de la derivada de la función ajustada a la producción de fotones por protón incidente,  $dI_\mu(x)/dE$ , evaluada para cada energía del proyectil. Resultados para los diferentes elementos de tierras raras. Las incertidumbres son del orden del 15%.

$E_1$ (MeV)	$dI_\mu(x)/dE$				
	Ce	Nd	Gd	Dy	Ho
3.0	$5.15 \times 10^{-06}$	$7.39 \times 10^{-06}$	$7.53 \times 10^{-06}$	$2.25 \times 10^{-06}$	-
3.1	$9.23 \times 10^{-06}$	$1.07 \times 10^{-05}$	$8.26 \times 10^{-06}$	$2.87 \times 10^{-06}$	$2.81 \times 10^{-06}$
3.2	$1.33 \times 10^{-05}$	$1.40 \times 10^{-05}$	$8.99 \times 10^{-06}$	$3.49 \times 10^{-06}$	$3.53 \times 10^{-06}$
3.3	$1.74 \times 10^{-05}$	$1.73 \times 10^{-05}$	$9.72 \times 10^{-06}$	$4.11 \times 10^{-06}$	$4.26 \times 10^{-06}$
3.4	$2.15 \times 10^{-05}$	$2.06 \times 10^{-05}$	$1.04 \times 10^{-05}$	$4.73 \times 10^{-06}$	$4.98 \times 10^{-06}$
3.5	$2.56 \times 10^{-05}$	$2.39 \times 10^{-05}$	$1.12 \times 10^{-05}$	$5.35 \times 10^{-06}$	$5.71 \times 10^{-06}$
3.6	$2.97 \times 10^{-05}$	$2.72 \times 10^{-05}$	$1.19 \times 10^{-05}$	$5.97 \times 10^{-06}$	$6.43 \times 10^{-06}$
3.7	$3.37 \times 10^{-05}$	$3.05 \times 10^{-05}$	$1.26 \times 10^{-05}$	$6.59 \times 10^{-06}$	$7.15 \times 10^{-06}$
3.8	$3.78 \times 10^{-05}$	$3.38 \times 10^{-05}$	$1.34 \times 10^{-05}$	$7.21 \times 10^{-06}$	$7.88 \times 10^{-06}$
3.9	$4.19 \times 10^{-05}$	$3.71 \times 10^{-05}$	$1.41 \times 10^{-05}$	$7.83 \times 10^{-06}$	$8.60 \times 10^{-06}$
4.0	$4.60 \times 10^{-05}$	$4.04 \times 10^{-05}$	$1.48 \times 10^{-05}$	$8.45 \times 10^{-06}$	$9.33 \times 10^{-06}$

obtiene del SRIM [53, 54], y los coeficientes másicos de atenuación  $\mu/\rho$  del XCOM [47]. Debido a que se utilizó el número de fotones de la línea  $K_{\alpha_1}$ , ya que ésta cuenta con una mejor estadística, las secciones de producción que se obtuvieron fueron las respectivas a la línea  $K_{\alpha_1}$ .

Las secciones de producción de rayos X de la línea  $K_{\alpha_1}$  obtenidas para el Ce se comparan con predicciones teóricas y otros resultados experimentales en la Fig. 4.13 y en la 4.14 para el caso del Ho. Todos los resultados obtenidos se muestran en la tabla 4.7, junto con los valores teóricos correspondientes al modelo ECPSSR-UA y PWBA [43]. Debido a que el software ISICS proporciona las secciones de ionización, fue necesario hacer uso de la ecuación 2.37 para obtener las secciones de producción de la capa  $K_{\alpha_1}$ ; la producción de fluorescencia se obtuvo del mismo código computacional ISICS y las intensidades relativas se tomaron del trabajo de Scofield [23, 26].

Se puede ver que las predicciones que más se acercan a los resultados obtenidos son las que se obtienen del modelo teórico ECPSSR-UA, la ECPSSR fue desarrollada por Brandt y Lapicki [31]. Este modelo ha mostrado ser el más adecuado para describir el proceso de ionización de las capas internas del átomo, debido a que toma en cuenta diversos efectos que ocurren durante la interacción entre el proyectil y el blanco, que no son tomadas en cuenta por otros modelos y teorías como la PWBA, ver la sección 2.2.2. Aunque entre dicho modelo y nuestros resultados existen algunas discrepancias, en la Fig 4.15 se muestra el cociente entre las secciones medidas en el presente trabajo y las teóricas del ECPSSR-UA.

Es difícil llegar a una conclusión definitiva, ya que existen diversas dificultades que el

uso de blancos gruesos conlleva; el obstáculo más importante es el de obtener el número total de protones que incidieron en la muestra durante la adquisición de los datos. Si bien se realizó tanto el procedimiento experimental como el análisis de datos necesario para obtener dicho número, no es un procedimiento que sea totalmente preciso. Una de las razones por las que los resultados del método puedan carecer de precisión es la incertidumbre en los grosores de las capas depositadas de Au, debido a que éstos se obtuvieron mediante una simulación con el código SIMNRA [45, 46]; ya que es bien sabido que al hacer uso de este software los espectros simulados no son únicos. Otro factor importante es la dificultad con que se obtuvieron las áreas bajo los picos de las emisiones  $L_{\beta_1}$ ,  $L_{\beta_2}$  y  $L_{\gamma_1}$  del Au, debido a la enorme cantidad de cuentas acumuladas como radiación de fondo.

Un detalle importante es la dificultad al momento de obtener la curva que mejor se ajuste a los puntos de la producción de fotones por ion incidente de un blanco grueso,  $I_{\mu}(x)$ . Esta dificultad se puede notar al revisar algunos trabajos realizados por otros autores. En dichos trabajos la función varía desde una recta (Lewis et al. [51]), un polinomio de grado 6 (Rashiduzzaman et al. [62]), incluso hasta un ajuste que tiene la siguiente forma  $I_{\mu}(x) = aE^2(1 + bE^{\alpha}) \exp(-\beta E^{-3/2})$ , con  $a$ ,  $b$ ,  $\alpha$  y  $\beta$  como parámetros de ajuste (Castro et al. [59]). Cabe mencionar que en la gran mayoría de los trabajos encontrados, en los que se miden secciones de producción de la capa K y se bombardearon blancos gruesos, se usan elementos que son buenos conductores (metales como Au, Ag, Cu, Fe, Mo, W, etc.), por lo que el número de protones se obtiene directamente al integrar la carga en los blancos mismos.

Los resultados experimentales de Divoux et al. [63] que se muestran en la Fig. 4.13 concuerdan, en mejor medida, con la teoría (ECPSSR-UA) que nuestros resultados. Divoux et al. usaron un blanco delgado de Ce (del orden por debajo de los  $5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), el cual es más delgado que el usado en nuestro trabajo ( $72 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), y al ser atravesado totalmente por los protones incidentes, no se enfrentaron a las dificultades de las que se habla anteriormente. En cambio, los resultados experimentales de Kamiya et al. [61] presentan una mayor desviación de las predicciones teóricas que los nuestros, Fig. 4.14. Estos autores utilizaron un blanco de Ho más grueso ( $520 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) que el que se usó en el presente trabajo ( $81.8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ).

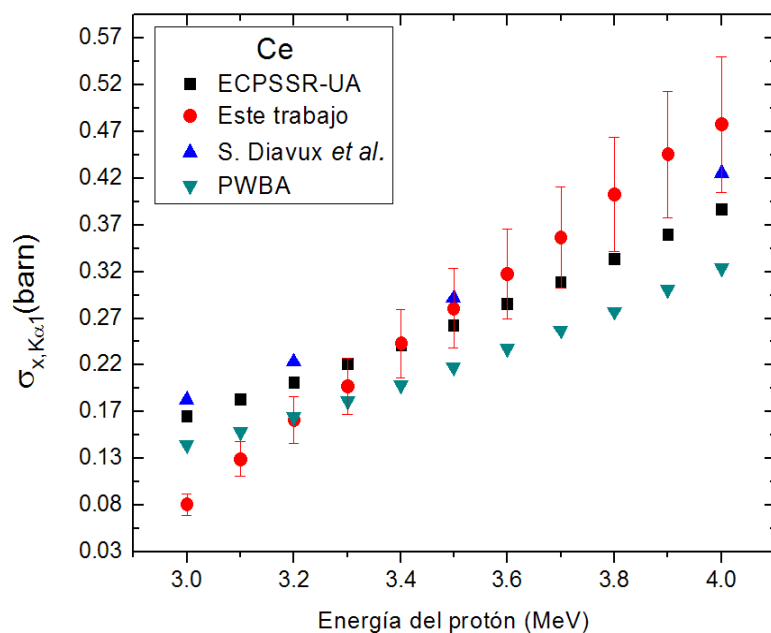


Figura 4.13: Comparación de las secciones de producción de rayos X para protones sobre Ce (incertidumbres del 15%). Las predicciones teóricas se obtuvieron del software ISICS [43], mientras que los datos experimentales se tomaron de los trabajos de Diavux et al. [63].

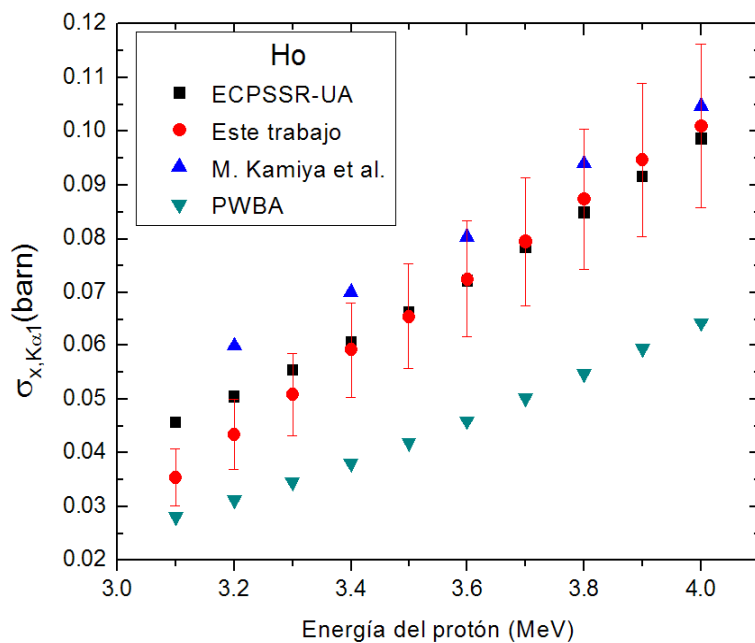


Figura 4.14: Comparación de las secciones de producción de rayos X para protones sobre Ho (incertidumbres del 15%). Las predicciones teóricas se obtuvieron igual que la figura 4.13 pero, en este caso, los datos experimentales se tomaron de los trabajos de Kamiya et al. [61].

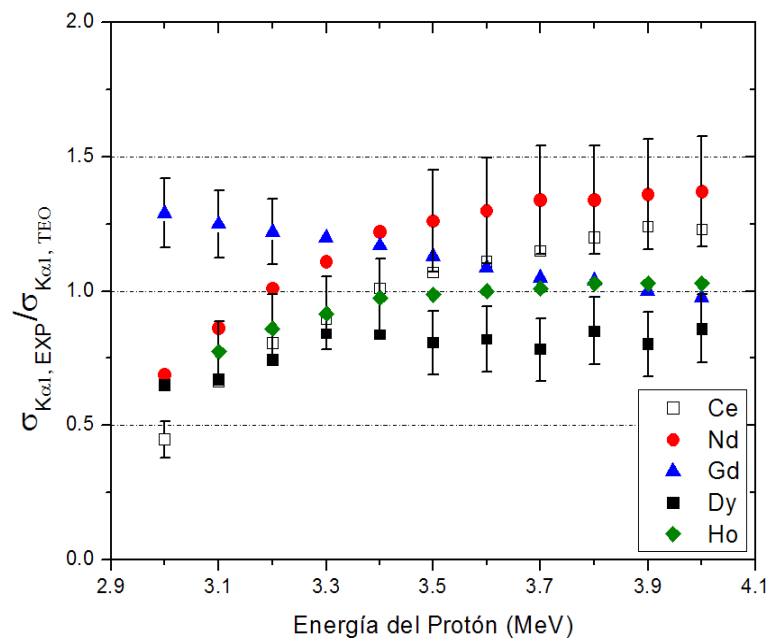


Figura 4.15: Cocientes de las secciones de producción de rayos X medidas en este trabajo con las predicciones obtenidas mediante la teoría ECPSSR-UA, en función de la energía del protón incidente. Para evitar confusiones entre las barras de incertidumbre, sólo se muestran algunas de éstas.

Tabla 4.7:

Secciones de producción de rayos X  $K_{\alpha_1}$  medidos experimentalmente para los REE y las secciones teóricas correspondientes [43], todos los datos se encuentran en barns. Las incertidumbres experimentales se encuentran dentro del 15%.

$E_1$ (MeV)	$\sigma_{x,K_{\alpha_1}}$ (Ce)			$\sigma_{x,K_{\alpha_1}}$ (Nd)		
	Exp	ECPSSR-UA	PWBA	Exp	ECPSSR-UA	PWBA
3.0	$7.56 \times 10^{-2}$	$1.70 \times 10^{-1}$	$1.39 \times 10^{-1}$	$8.47 \times 10^{-2}$	$1.22 \times 10^{-1}$	$9.40 \times 10^{-2}$
3.1	$1.24 \times 10^{-1}$	$1.88 \times 10^{-1}$	$1.53 \times 10^{-1}$	$1.18 \times 10^{-1}$	$1.35 \times 10^{-1}$	$1.04 \times 10^{-1}$
3.2	$1.66 \times 10^{-1}$	$2.06 \times 10^{-1}$	$1.69 \times 10^{-1}$	$1.52 \times 10^{-1}$	$1.48 \times 10^{-1}$	$1.15 \times 10^{-1}$
3.3	$2.02 \times 10^{-1}$	$2.26 \times 10^{-1}$	$1.86 \times 10^{-1}$	$1.82 \times 10^{-1}$	$1.62 \times 10^{-1}$	$1.27 \times 10^{-1}$
3.4	$2.48 \times 10^{-1}$	$2.46 \times 10^{-1}$	$2.03 \times 10^{-1}$	$2.18 \times 10^{-1}$	$1.77 \times 10^{-1}$	$1.39 \times 10^{-1}$
3.5	$2.86 \times 10^{-1}$	$2.68 \times 10^{-1}$	$2.22 \times 10^{-1}$	$2.47 \times 10^{-1}$	$1.93 \times 10^{-1}$	$1.52 \times 10^{-1}$
3.6	$3.23 \times 10^{-1}$	$2.91 \times 10^{-1}$	$2.42 \times 10^{-1}$	$2.76 \times 10^{-1}$	$2.10 \times 10^{-1}$	$1.66 \times 10^{-1}$
3.7	$3.62 \times 10^{-1}$	$3.14 \times 10^{-1}$	$2.62 \times 10^{-1}$	$3.09 \times 10^{-1}$	$2.27 \times 10^{-1}$	$1.80 \times 10^{-1}$
3.8	$4.08 \times 10^{-1}$	$3.39 \times 10^{-1}$	$2.83 \times 10^{-1}$	$3.34 \times 10^{-1}$	$2.45 \times 10^{-1}$	$1.95 \times 10^{-1}$
3.9	$4.51 \times 10^{-1}$	$3.65 \times 10^{-1}$	$3.06 \times 10^{-1}$	$3.64 \times 10^{-1}$	$2.64 \times 10^{-1}$	$2.11 \times 10^{-1}$
4.0	$4.83 \times 10^{-1}$	$3.92 \times 10^{-1}$	$3.29 \times 10^{-1}$	$3.93 \times 10^{-1}$	$2.84 \times 10^{-1}$	$2.27 \times 10^{-1}$

$E_1$ (MeV)	$\sigma_{x,K_{\alpha_1}}$ (Gd)			$\sigma_{x,K_{\alpha_1}}$ (Dy)		
	Exp	ECPSSR-UA	PWBA	Exp	ECPSSR-UA	PWBA
3.0	$8.41 \times 10^{-2}$	$6.46 \times 10^{-2}$	$4.39 \times 10^{-2}$	$3.13 \times 10^{-2}$	$4.78 \times 10^{-2}$	$3.02 \times 10^{-2}$
3.1	$9.03 \times 10^{-2}$	$7.14 \times 10^{-2}$	$4.89 \times 10^{-2}$	$3.57 \times 10^{-2}$	$5.29 \times 10^{-2}$	$3.37 \times 10^{-2}$
3.2	$9.70 \times 10^{-2}$	$7.88 \times 10^{-2}$	$5.42 \times 10^{-2}$	$4.38 \times 10^{-2}$	$5.84 \times 10^{-2}$	$3.75 \times 10^{-2}$
3.3	$1.05 \times 10^{-1}$	$8.65 \times 10^{-2}$	$5.98 \times 10^{-2}$	$5.45 \times 10^{-2}$	$6.42 \times 10^{-2}$	$4.14 \times 10^{-2}$
3.4	$1.12 \times 10^{-1}$	$9.47 \times 10^{-2}$	$6.59 \times 10^{-2}$	$5.95 \times 10^{-2}$	$7.03 \times 10^{-2}$	$4.57 \times 10^{-2}$
3.5	$1.19 \times 10^{-1}$	$1.03 \times 10^{-1}$	$7.22 \times 10^{-2}$	$6.24 \times 10^{-2}$	$7.67 \times 10^{-2}$	$5.02 \times 10^{-2}$
3.6	$1.24 \times 10^{-1}$	$1.12 \times 10^{-1}$	$7.90 \times 10^{-2}$	$6.92 \times 10^{-2}$	$8.35 \times 10^{-2}$	$5.50 \times 10^{-2}$
3.7	$1.29 \times 10^{-1}$	$1.22 \times 10^{-1}$	$8.61 \times 10^{-2}$	$7.15 \times 10^{-2}$	$9.06 \times 10^{-2}$	$6.00 \times 10^{-2}$
3.8	$1.38 \times 10^{-1}$	$1.32 \times 10^{-1}$	$9.36 \times 10^{-2}$	$8.42 \times 10^{-2}$	$9.80 \times 10^{-2}$	$6.53 \times 10^{-2}$
3.9	$1.44 \times 10^{-1}$	$1.42 \times 10^{-1}$	$1.01 \times 10^{-1}$	$8.55 \times 10^{-2}$	$1.06 \times 10^{-1}$	$7.09 \times 10^{-2}$
4.0	$1.51 \times 10^{-1}$	$1.53 \times 10^{-1}$	$1.10 \times 10^{-1}$	$9.88 \times 10^{-2}$	$1.14 \times 10^{-1}$	$7.68 \times 10^{-2}$

$E_1$ (MeV)	$\sigma_{x,K_{\alpha_1}}$ (Ho)		
	Exp	ECPSSR-UA	PWBA
3.0	-	$4.13 \times 10^{-2}$	$2.52 \times 10^{-2}$
3.1	$3.54 \times 10^{-2}$	$4.57 \times 10^{-2}$	$2.81 \times 10^{-2}$
3.2	$4.34 \times 10^{-2}$	$5.05 \times 10^{-2}$	$3.12 \times 10^{-2}$
3.3	$5.09 \times 10^{-2}$	$5.55 \times 10^{-2}$	$3.46 \times 10^{-2}$
3.4	$5.92 \times 10^{-2}$	$6.08 \times 10^{-2}$	$3.81 \times 10^{-2}$
3.5	$6.55 \times 10^{-2}$	$6.64 \times 10^{-2}$	$4.19 \times 10^{-2}$
3.6	$7.25 \times 10^{-2}$	$7.22 \times 10^{-2}$	$4.59 \times 10^{-2}$
3.7	$7.95 \times 10^{-2}$	$7.84 \times 10^{-2}$	$5.02 \times 10^{-2}$
3.8	$8.74 \times 10^{-2}$	$8.49 \times 10^{-2}$	$5.47 \times 10^{-2}$
3.9	$9.47 \times 10^{-2}$	$9.16 \times 10^{-2}$	$5.94 \times 10^{-2}$
4.0	$1.01 \times 10^{-1}$	$9.87 \times 10^{-2}$	$6.44 \times 10^{-2}$

# Capítulo 5

## Conclusiones

En el presente trabajo se obtuvieron experimentalmente las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes (PRTV) de los elementos de tierras raras Ce, Nd, Gd, Dy, Ho, y Er, utilizando blancos gruesos de los elementos puros. En la medición de las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes se usaron dos tipos de haces de iones como radiación primaria. Se usaron protones con energías entre 3 MeV y 4 MeV, e iones de  $^{12}\text{C}^{4+}$  de energías entre 12 MeV y 14 MeV.

En todos los casos fue posible comparar con cálculos teóricos, los cuales fueron publicados en 1974 por Scofield mediante el método aproximado de Hartree-Fock, usando funciones de onda relativistas que consideran el espín del electrón, es decir, bajo el formalismo de la ecuación de Dirac. Para calcular las PRTV, el método supone al estado inicial del átomo con una sola vacante en las capas internas. Sin embargo, en el caso de protones, los resultados concuerdan, dentro de la incertidumbre, con las predicciones teóricas, así como con los resultados experimentales de otros autores.

Usando el ion de  $^{12}\text{C}^{4+}$  se encontró que la producción de fluorescencia aumentó entre un 4% y 7% al considerar efectos de ionización múltiple, por lo que también aumentaron los valores de las PRTV. No obstante, los resultados también coincidieron apropiadamente, dentro de la incertidumbre experimental, con las predicciones teóricas; en este caso no se encontraron trabajos experimentales con los cuales comparar los resultados.

Con base en los resultados obtenidos, se puede decir que no hay una influencia directa sobre las PTRV debida a la alta producción de vacantes en las subcapas L, M o N del átomo<sup>1</sup>, la cual se presenta cuando se usan iones como fuente de radiación primaria. Este resultado se puede deber a que las vacantes de las capas superiores a la K, como la capa L, se llenan rápidamente, con una pronta estabilización del átomo, por electrones de niveles más altos. También podemos afirmar que, por lo menos con los protones, las PTRV no dependen de la energía del ion incidente. Cuando se usaron iones  $^{12}\text{C}^{4+}$  se encontró que las probabilidades de transferencia radiativa de vacantes aumentaron debido a efectos de ionización múltiple en la producción de fluorescencia; sin embargo, las tasas de emisión de la capa K siguieron concordando con las predicciones teóricas,

---

<sup>1</sup>Es decir, la limitación de electrones que puedan ocupar vacantes en la capa K.



dentro de la incertidumbre experimental.

También, se obtuvieron las secciones de producción de rayos X para blancos gruesos de los elementos Ce, Nd, Gd, Dy, y Ho, para protones de energías entre los 3 MeV y 4 MeV. Los resultados fueron comparados con la teoría PWBA, desarrollada por Merzbacher y Lewis, y con la corrección a ésta, el modelo desarrollado por Brandt y Lapicki el ECPSSR. Se encontró una mejor concordancia de los resultados obtenidos con el modelo ECPSSR, con las variación de átomo unido UA.

Debido a la falta de datos experimentales, sólo algunos de los resultados se pudieron comparar con los trabajos de otros autores. Se encontró que los resultados experimentales de Diavux et al., obtenidos a partir de blancos delgados, se aproximan en mejor medida a los datos teóricos del ECPSSR-UA, que los que se obtuvieron en el presente trabajo. Por otra parte, nuestros resultados están más cerca de los valores teóricos que los que obtuvieron Kamiya et al.

Cabe mencionar que se hicieron los cálculos correspondientes para determinar la presencia de efectos como captura electrónica e ionización múltiple durante los experimentos realizados. Se obtuvo que, para protones con las energías aquí utilizadas, no existe influencia de dichos efectos sobre las secciones de ionización.

Al hacer uso de blancos gruesos de REE se obtiene una mayor intensidad de rayos X K, por lo que resulta una buena estadística asociada a las mediciones. Pero surgen dificultades para poder obtener el total de iones incidentes sobre las muestras. Si se quieren medir las PTRV no es necesario conocer el número de iones incidentes, así que el uso de blancos gruesos es recomendable. En caso de que se quiera medir las secciones de ionización, conocer el número de iones incidentes sobre los blancos es muy importante. Tomando en cuenta esto, se puede decir que los blancos gruesos de REE no son muy recomendables para medir sus secciones de ionización; se podrían usar blancos de grosor intermedio para que, sin grandes dificultades, se pueda medir el número de iones incidentes y se mantenga una intensidad apropiada de rayos X K.

Este trabajo demuestra el hecho de que existe muy poca información acerca de los procesos relacionados con la emisión de rayos X de los elementos de tierras raras bajo la irradiación de haces de iones. Debido a las diversas aplicaciones de los elementos de tierras raras, es conveniente incrementar la información necesaria para que la técnica PIXE se pueda utilizar con éxito en el análisis de dichos elementos.

Aparte de la aplicación directa de los resultados obtenidos en la técnica PIXE, es importante notar que los experimentos y el análisis realizados, así como los resultados obtenidos, nos pueden encaminar a una mejor comprensión de los procesos que se llevan a cabo en las capas internas de los átomos con una  $Z$  relativamente grande.

Cabe mencionar que, como resultado del trabajo experimental de la presente tesis, se cuenta con los datos para obtener las secciones de producción de rayos X mediante

el uso de  $^{12}\text{C}^{4+}$ , y los datos necesarios para obtener las PTRV de REE y secciones de producción de rayos X con iones de  $^{16}\text{O}^{5+}$  de energías entre los 12 MeV y 15 MeV. Pero, debido a cuestiones de tiempo, se dejó la obtención y análisis de resultados para una ocasión en el futuro. Estos experimentos podrían arrojar mayor información acerca de los efectos de la ionización de las capas superiores en las PTRV; además de efectos como ionización múltiple y captura electrónica en el caso de las secciones de ionización.

# Bibliografía

- [1] Johansson S. A. E., Campbell J. L. y Malmqvist K. G., *Particle-induced x-ray emission espcrometry* John Wiley & Sons, Inc., (1995).
- [2] Crasemann B., *Atomic inner-shell processes* Vol. I, Academic Press (1975).
- [3] Digonnet M. J. F., *Optical engineering*, Vol. 71.
- [4] Tanabe S., *Photonics Based on Wavelength Integration and Manipulation IPAP Books 2* (2005) 101.
- [5] Takenaka T., Ono T., Narazaki Y., Naka Y. y Kawakami M., *Electrochimica Acta* 53 (2007) 117.
- [6] Santiago C., Gama S., Coelho A.A., Ramirez E.J., Gomes A.M., Pavie L. y Cohen A., *Material Research* 7 (4) (2004) 535.
- [7] *International Conference on Rare Earth Development and Applications* <http://www.cs-re.org.cn/icre2007/> .
- [8] Seishiro H. y Kazuo T. S., *Environmental Health Perspectives* 104 (I) (1996) 85.
- [9] Yang X., Liu Y., Li C., Song Y., Zhu H. y Jin X., *Geomorphology* 87 (2007) 365.
- [10] Rolland Y., Cox S., Boullier A-M., Pennacchioni G. y Mancktelow N., *Earth and Planetary Science Letters* 214(2003) 203.
- [11] Braziewicz J., Semaniak J., Cziwzewski T., Glowacka L., Jaskola M., Haller M., Karschnik R., Kretschner W. y Trautmann D., *J. Phys. B* 27 (8) (1994) 1535.
- [12] Rodríguez-Fernández L., Miranda J., Oliver A., Cruz F. y Pegueros J.R., *Nucl. Instrum. Methods B* 75 (1) (1993) 49.
- [13] Yu Y.C., Wang C.W., Lin E.K., Liu T.Y., Sun H.L., Chiu J.W. y Lapicki G., *J. Phys. B* 30 (24) (1997) 5791.
- [14] Lugo Licona Marcelo F., *Secciones eficaces de producción de rayos X L por impacto de iones pesados sobre tierras raras*, Tesis de Doctorado en Ciencias (Física), Facultad de Ciencias, Universidad Autónoma del Estado de México (2004).
- [15] Calligaro T., Dran J.-C., Dubernet S., Poupeau G., Gendron F., Gonthier E., Meslay O. y Tenorio D., *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* 240 (2005) 576.

- [16] Maenhaut W. y Malmqvist K. en Van Griekin, R.E. Markowicz., *Handbook of X-ray Spectrometry* Segunda Edición. Marcel Dekker, Inc. (2002) 719.
- [17] Johansson SAE. *Int. J PIXE* 2 (1) (1992) 33.
- [18] Teesdale W.J., Maxwell JA., Perujo A., Campbell JL., Van Der Swan L. y Jackman TE., *Nucl. Instr. and Meth. B* 35 (1988) 57.
- [19] Peña Luis de la. *Introducción a la Mecánica Cuántica* FCE, UNAM. (2006).
- [20] Galindo A. y Pascual P. *Mecánica Cuántica* Alhambra, Barcelona. (1978).
- [21] Greiner W. *Quantum Mechanics (Introduction)* Springer-Verlag, Berlín y Nueva York. Tercera Edición. (1994).
- [22] Jackson J. D. *Classical Electrodynamics* Tercera Edición. John Wiley and Sons, Inc. (1998).
- [23] Scofield J. H. en Crasemann Bernd. *Atomic inner-shell processes* Vol. I, Academic Press. (1975) 265.
- [24] Greiner W. *Quantum Mechanics (Special Chapters)* Springer, Berlín y Nueva York. (1997).
- [25] Merzbacher E. *Quantum Mechanics* J. Wiley and Sons, Nueva York. (1970).
- [26] Scofield J. H., *Phys. Rev. A* 9 (1974) 1041.
- [27] Bennal A. S. y Badiger, N. M., *Nucl. Instr. and Meth. B* 247 (2006) 161.
- [28] Miranda, J., *Técnicas Analíticas de Origen Nuclear (Curso Introductorio)* Departamento de Física Experimental, Instituto de Física, UNAM. (1996).
- [29] De Lucio Morales Oscar G., *Emisión de Rayos X Característicos por Impacto de Iones de  $^{12}\text{C}$* , Tesis de Maestría en Ciencias (Física), Posgrado en Ciencias Físicas, UNAM (2000).
- [30] Madison D. H. y Merzbacher E., en Crasemann, Bernd., *Atomic inner-shell processes* Vol. I, Academic Press. (1975) 1.
- [31] Brandt W. y Lapicki G., *Phys. Rev. A* 23 (1981) 1717.
- [32] Brandt W. y Lapicki G., *Phys. Rev. A* 20 (1978) 465.
- [33] Brandt W. y Lapicki G., *Phys. Rev. A* 10 (1974) 474.
- [34] Basbas G., Brandt W. y Laubert R., *Phys. Rev. A* 7 (1973) 983.
- [35] Arfken G., *Mathematical Methods for Physicists*, Tercera Edición. Academic Press, Inc. (1985).
- [36] Andersen J.U., Laegsgaard E. y Lund M., *Nucl. Instr. and Meth.* 192 (1982) 79.

- [37] Benka O., Nucl. Instrum. Methods B 4 (1984) 279. Además las referencias incluidas en éste.
- [38] Lapicki G., Mehta R., Duggan J.L., Kocur P.M., Price J.L. y McDaniel F.D., Phys. Rev. A 34 (1986) 3813.
- [39] Miranda J., De Lucio O.G., Téllez, E.B. y Martínez J.N., Rad. Phys. Chem. 69 (2004) 257.
- [40] Lapicki G. y McDaniel F.D., Phys. Rev. A 22 (1980) 1896.
- [41] Oppenheimer J.R., Phys. Rev. 31 (1928) 349; Brinkman H.C. y Kramers H.A., Proc. K. Ned. Akad. Wet. 33 (1930) 973.
- [42] Nikolaev V.S., Zh. Eksp. Teor. Fiz. 51 (1966) 1263 [So. Phys.–JETP 24 (1967) 847.
- [43] Cipolla S.J., Comp. Phys. Comm. 177 (2007) 157.
- [44] Chu W. K., Mayer J. W. y Nicolet M. A. *Backscattering Spectrometry* Academic Press, Inc., New York, San Francisco, London (1978).
- [45] M. Mayer, Technical Report IPP9/113, Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, Germany, (1997).
- [46] SIMNRA, M. Mayer. En esta tesis se usó la versión SIMNRA 4.40 de <http://www.rzg.mpg.de/mam/>.
- [47] Berger M.J. y Hubbell J.H., National Bureau of Standards Internal Report NBSIR 87-3597, National Bureau of Standards, Gaithersurgh, MD, (1987).
- [48] IAEA, Manual for QXAS. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1995.
- [49] Gallagher W. J. y Cipolla S.J., Nucl. Instr. and Meth. 122 (1974) 405.
- [50] Campbell J.L. y McGhee P.L., Nucl. Instr. and Meth. A 248 (1986) 393.
- [51] Lewis H.W., Simmons B.E. y Merzbacher E., Phys. Rev. 91 (1953) 943.
- [52] Yalcin P., Nucl. Instr. and Meth. B 254 (2006) 182-186.
- [53] Ziegler J.F., Nucl. Instr. and Meth. B 219-220 (2004) 1027.
- [54] En esta tesis se usó la versión SRIM-2006.02 de [www.SRIM.org](http://www.SRIM.org).
- [55] Papp T., X-Ray Spectrom. 32 (2003) 458.
- [56] Ximeng C., Zhaoyuan L., Xiahong C., Shuxun M. y Hualin Z., J. Phys. B 34 (2001) 3563.
- [57] Kasagi J., Yoshida K., Murakami T. y Harada H., Phys. Rev. A 34 (1986) 2480.
- [58] Ertugrul M., Anal. Chim. Acta 491 (2003) 239.

- [59] Castro N. V. de, Freire F. L. Jr, Montenegro E. C., Pinho A. G. de y Silveira E. F. da, *J. Phys. B* 17 (1984) 2307.
- [60] Kamal Z., McKee J. S. C., Ramsay W. D., Al-Ghazi M.S.A.L., Birchall J., Durocher J.J.G. y Videla N., *Phys. Lett.* 75 (1980) 475.
- [61] Kamiya M., Ishii K., Sera K., Morita S. y Tawara H., *Phys. Rev. A* 16 (1977) 2295.
- [62] Rashiduzzaman K., Crumpton D. y Francois P. E., *J. Phys. B* 9 (1976) 455.
- [63] Divoux S., Raith B. y Gonsior B., *Nucl. Instr. Meth. B* 3 (1984) 27.