



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTÓNOMA DE MÉXICO  
POSGRADO EN CIENCIA E INGENIERIA DE MATERIALES  
INSTITUTO DE INVESTIGACIÓN EN MATERIALES

“Estudio de la formación de defectos en materiales por la interacción con iones por medio de la técnica de espectroscopía de ensanchamiento Doppler de la radiación de aniquilación de positrones”

# TESIS

QUE PARA OPTAR POR EL GRADO DE:  
MAESTRO EN CIENCIA E INGENIERÍA DE MATERIALES

PRESENTA:

Fís. Miguel Pérez Flores

TUTOR PRINCIPAL:

Dr. Oscar Genaro de Lucio Morales  
Instituto de Física

MIEMBROS DEL COMITÉ TUTOR:

Dra. Sandra Elizabeth Rodil Posada  
Instituto de Investigación en Materiales

Dr. Luis Rodríguez Fernández  
Instituto de Física

Ciudad Universitaria, Ciudad de México, junio 2017



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

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

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

# Dedicatoria

*Dedicado a  
mi familia*

# Agradecimientos

En primer lugar quiero agradecer a mi familia, a mis padres y hermanos.

Quiero agradecer por todo el apoyo y enseñanzas a mi asesor el Dr. Oscar G. de Lucio y a los miembros de mi comité tutor la Dra. Sandra Elizabeth Rodil Posada y al Dr. Luis Rodríguez Fernández

Al personal del laboratorio del Acelerador Van de Graaff de 5.5 MV del IFUNAM, al Técnico laboratorista Carlos Valencia Morales por su asesoría y apoyo técnico.

Al Dr. Miguel Ángel Martínez Carrillo por permitirnos trabajar con material del taller de física de radiaciones.

Al Dr. Héctor Alva Sánchez por su ayuda con la preparación de las fuentes de flúor-18.

Al Fís. Arcadio Hernández Huerta y al M. en C Tirso Murrieta Rodríguez por su asesoría y apoyo con el manejo de los detectores y los programas de adquisición.

A los miembros del jurado por su paciente revisión, comentarios, correcciones en este trabajo.

Quiero agradecer a mis profesores de licenciatura y maestría.

A los miembros de mi jurado, por su paciente y enriquecedora revisión:

Dr. Epifanio Cruz Zaragoza

Dr. Roberto Yssac Sato Berrú

Dra. María Isabel Gamboa de Buen

Dr. Héctor Alva Sánchez

A CONACYT por el apoyo económico que me brindó durante el estudio de mi maestría.

A los proyectos DGAPA-PAPIIT TA100213 e IN116916 por el financiamiento de este proyecto.

A todos muchas gracias.

# Lista de contenidos

|  |           |
|--|-----------|
| Agradecimientos  | II        |
| Lista de figuras   | IV        |
| Lista de tablas  | VIII      |
| <b>1. Resumen</b>  | <b>1</b>  |
| <b>2. Introducción</b>   | <b>3</b>  |
| 2.1. Interacción iones-materia . . . . .   | 3         |
| 2.1.1. Defectos provocados por irradiación con iones . . . . .                     | 4         |
| 2.2. Positrones . . . . .  | 7         |
| 2.2.1. Interacción de los positrones con los sólidos . . . . .                     | 8         |
| 2.2.1.1. Interacción con la superficie . . . . .                                   | 9         |
| 2.2.1.2. Termalización . . . . .   | 10        |
| 2.2.1.3. Difusión . . . . .  | 11        |
| 2.2.1.4. Captura por defectos . . . . .  | 12        |
| 2.2.2. Fuentes de positrones . . . . .   | 14        |
| 2.2.3. Técnicas de análisis con positrones . . . . .                               | 18        |
| 2.2.3.1. Ensanchamiento Doppler . . . . .  | 18        |
| 2.2.3.2. Espectroscopía de tiempo de vida . . . . .                                | 24        |
| <b>3. Desarrollo experimental</b>  | <b>26</b> |
| 3.1. Muestras irradiadas con iones y fuentes de positrones . . . . .               | 26        |
| 3.2. Dispositivo experimental . . . . .  | 27        |
| 3.2.1. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler con coincidencia (C-DBS) . . . . . | 27        |
| 3.2.1.1. Detectores de germanio . . . . .  | 29        |
| 3.2.1.2. Amplificadores . . . . .  | 35        |
| 3.2.1.3. Discriminador de fracción constante . . . . .                             | 35        |
| 3.2.1.4. Módulo de coincidencia . . . . .  | 37        |
| 3.2.1.5. Digitalizadores . . . . .   | 38        |
| 3.2.1.6. Programa de adquisición de datos . . . . .                                | 39        |

|           |   |           |
|-----------|---|-----------|
| 3.2.1.7.  | Procedimiento . . . . .   | 40        |
| 3.2.1.8.  | Análisis de los espectros . . . . .                                     | 42        |
| 3.2.2.    | Espectroscopía de tiempo de vida (PLS) . . . . .                        | 42        |
| 3.2.2.1.  | Detectores de centelleo y foto-multiplicadores . . . . .                | 43        |
| 3.2.2.2.  | Discriminadores de fracción constante (II) . . . . .                    | 46        |
| 3.2.2.3.  | Módulo de coincidencias . . . . .                                       | 47        |
| 3.2.2.4.  | Caja de retraso . . . . .   | 47        |
| 3.2.2.5.  | Convertidor de tiempo a amplitud . . . . .                              | 47        |
| 3.2.2.6.  | Digitalizador . . . . .   | 48        |
| 3.2.2.7.  | Procedimiento . . . . .   | 48        |
| <b>4.</b> | <b>Resultados y Discusión</b>   | <b>49</b> |
| 4.1.      | Alcance de iones, formación de vacancias e implantación de positrones . | 49        |
| 4.2.      | Espectroscopía de ensanchamiento Doppler . . . . .                      | 52        |
| 4.3.      | Tiempos de vida . . . . .   | 64        |
| <b>5.</b> | <b>Conclusiones</b>   | <b>67</b> |

# Índice de figuras

|      |   |    |
|------|---|----|
| 2.1. | Representación bidimensional de los tipos de defectos puntuales [8]. . .  | 5  |
| 2.2. | Defectos puntuales balanceados en un cristal iónico binario del tipo MX.<br>(a) Defectos Schottky y (b) defectos Frenkel [8] . . . . .  | 6  |
| 2.3. | Diagramas de Feynman con diferentes procesos de aniquilación con la menor cantidad de fotones emitidos. $A^{2+}$ y $A^+$ representan átomos con diferentes estados de ionización. Reproducido de [1]. . . . .   | 8  |
| 2.4. | (a) Ilustración de las interacciones de positrones en un metal a nivel superficial. El diagrama representa una sección superficial del orden de $10^3$ Å de profundidad lo que corresponde al alcance promedio de positrones con energía del orden de varios keV. (b) Esquema de los potenciales superficiales para un positrón en la superficie de un metal. el potencial químico tiene una contribución del potencial de correlación $V_{corr}$ con los electrones de conducción y la contribución de repulsión con los núcleos que se representan con discos negros. El potencial $\phi_+$ representa la función de trabajo positiva con la que los positrones son re-emitidos. Diagrama reproducido de [9]. . . . . | 9  |
| 2.5. | Esquema que representa el modelo de captura por vacancias en un material con solo un tipo de defectos. $\lambda_b$ representa la tasa de aniquilación en el material libre de defectos, $\kappa_d$ y $\lambda_d$ representan la tasa de captura y la tasa de aniquilación de positrones en los defectos. Reproducido de [1].  | 14 |
| 2.6. | Distribuciones de energía teóricas para distintas fuentes de positrones calculadas a partir del modelo propuesto y mencionado en los trabajos de C. Wu y S. Moszkowski (1966), C. Levin y E. Hoffman (1999) y C. Champion y C. Le Loirec (2007) [15–17]. . . . .  | 15 |
| 2.7. | Esquema del decaimiento de los isotopos (a) nitrógeno-13, (b) sodio-22 y (c) flúor-18. Información tomada de la referencia [20]. . . . .  | 17 |
| 2.8. | Esquema del sistema de espectroscopía de ensanchamiento Doppler en coincidencia con un segundo detector centellador. . . . .  | 20 |

|  |    |
|--|----|
| 2.9. (a) Histograma bidimensional de los eventos registrados en coincidencia de la aniquilación de positrones en una muestra de zinc-dopada con galio.(b) Demostración de la reducción del fondo en los picos de aniquilación utilizando un segundo detector. Primero se muestra el pico completo, luego el pico utilizando solo los eventos en coincidencia, proyectados en dirección paralela al eje horizontal, y finalmente el pico utilizando los eventos en coincidencia sobre la diagonal. Ambas figuras fueron tomadas de [1]. . . . . | 21 |
| 2.10. a) Representación de las contribuciones de los electrones de conducción al pico de aniquilación, b) contribución de los electrones internos y c) total de ambas contribuciones. Reproducido de [9]. . . . .  | 22 |
| 2.11. Representación de los espectros de energías alrededor de 511 keV para dos muestras de arseniuro de galio. Se representan las áreas $A_S$ y $A_W$ . Reproducido de [1]. . . . .   | 23 |
| 2.12. Esquema del sistema usado en la espectroscopía de tiempos de vida . . . . .  | 25 |
| 3.1. Descripción en bloques del sistema DBS utilizando el detector de germanio junto con el centellador de NaI(Tl). . . . .  | 28 |
| 3.2. Descripción en bloques del sistema DBS utilizando dos detectores de germanio. . . . .   | 29 |
| 3.3. a) y b) Espectros para la fuente de bario-133 registrados en el detector de germanio 1, en función del canal y de la energía, respectivamente. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. c) Gráfica de energía vs. canal para los puntos que se usaron para hacer la calibración. . . . .   | 31 |
| 3.4. Gráfica de energía para la fuente de bario-133 registrado en el detector de germanio 1. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. . . . .   | 32 |
| 3.5. a) y b) Espectros para la fuente de bario-133 registrados en el detector de germanio 2. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. c) Gráfica de energía vs. canal para los puntos que se usaron para hacer la calibración. . . . .  | 33 |
| 3.6. Gráfica de energía para la fuente de bario-133 registrado en el detector de germanio 2. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. . . . .   | 34 |
| 3.7. Esquema de la sección lateral del detector de germanio coaxial, detector de germanio de alta pureza o detector de germanio hiper-puro. . . . .  | 34 |
| 3.8. Proceso para generar la señal de fracción constante. El momento en que esta señal cruza el zero indica el momento en se produce la señal de salida. . . . .   | 36 |
| 3.9. Comparación entre discriminadores SCA (a) convencionales y de (b) fracción constante. Se puede observar que el sistema de fracción constante elimina la diferencia en tiempo de las salidas [28]. . . . .   | 37 |



|  |    |
|--|----|
| 3.10. Esquema que representa la suma de los pulsos para cumplir la condición de coincidencia. . . . .  | 38 |
| 3.11. Izquierda, representación del archivo lista resultado del ADC, donde cada columna representa la energía que cada detector registra de manera simultánea. Derecha, representación de un archivo con datos en forma de matriz. En este caso se muestra que hubo 200 eventos donde el detector 1 registró un fotón con energía correspondiente al canal 1022 y simultáneamente el detector 2 registró un fotón con energía correspondiente al canal 1022. . . . . | 39 |
| 3.12. Diagrama en que se muestran las señales de cada una de las etapas en función del tiempo. . . . .   | 41 |
| 3.13. Sistema de espectroscopía de tiempo de vida con detectores centelladores NaI(Tl). TFM se refiere a tubo foto-multiplicador. CFDD se refiere a <i>constant fraction differential discriminator</i> o discriminador de fracción constante . . . . .  | 43 |
| 3.14. Representación de los niveles de energía para un centellador cristalino activado [12]. . . . .   | 44 |
| 3.15. Esquema del tubo foto-multiplicador acoplado con el cristal centellador. Basado en la figura y la información de los trabajos de las referencias [32, 33]. . . . .   | 45 |
| 3.16. Diagrama que representa la respuesta temporal de un tubo foto-multiplicador  | 46 |
|  |    |
| 4.1. a)Distribución del alcance de los iones de oro dentro de la muestra de silicio. b)Resultado de la simulación con SRIM de las vacancias inducidas con un haz de oro con energía de 2.0 MeV sobre un blanco de silicio policristalino. . . . .  | 50 |
| 4.2. Alcance para electrones/positrones dentro de silicio en la gráfica se señala el alcance para las energías máximas y promedio para diferentes fuentes.   | 51 |
| 4.3. Gráfica en 2D que representa el histograma de coincidencia para la muestra de silicio con daño, medido con los dos detectores de germanio en coincidencia. . . . .  | 53 |
| 4.4. Gráfica en 2D donde se representa la región de interés que se utiliza para hacer el filtrado de los datos. . . . .  | 54 |
| 4.5. Espectros de energía obtenidos con las proyecciones de los resultados hacia el detector de germanio 1 (eje horizontal) el detector de germanio 2 (eje vertical) y la diagonal (región de interés). . . . .  | 55 |
| 4.6. Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en el detector 1 . . . . .  | 57 |
| 4.7. Gráficas de los factores S en función de W para silicio y para tungsteno.   | 58 |

|   |    |
|---|----|
| 4.8. Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en el detector 2 . . . . . | 59 |
| 4.9. Gráficas de los factores S en función de W para silicio y para tungsteno, medidos en el detector de germanio 2. . . . .  | 60 |
| 4.10. Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en la diagonal. . . . .   | 61 |
| 4.11. Gráficas de los factores S en función de W para silicio y para tungsteno, obtenidos a través de la proyección en la diagonal. . . . .                               | 62 |
| 4.12. Gráficas de los factores S en función de W para silicio medidos con el sistema de coincidencia del detector NaI y el detector de germanio. . .                      | 62 |
| 4.13. Espectros de tiempo de vida para la fuente de sodio-22 y la muestra de silice irradiada con Au 2 MeV. Medidos con los detectores centelladores NaI(Tl). . . . .     | 64 |
| 4.14. Ajuste exponencial del espectro de tiempo de vida para la fuente más la muestra de silice irradiada con iones de oro de 2 MeV. . . . .                              | 65 |
| 4.15. Espectros de tiempo de vida para la muestra de silicio policristalino y la muestra de silicio irradiada con iones de oro de 2 MeV de energía. . . .                 | 66 |

# Índice de tablas

|  |    |
|--|----|
| 2.1. Camino libre medio y longitud de difusión a 300 K para algunos semiconductores sin trampas de positrones y usando una masa efectiva $m^* = 1,5 m_0$ . Reproducido de la referencia [1]. . . . . | 12 |
| 3.1. Características de las muestras que se usaron en este trabajo . . . . .   | 26 |
| 4.1. Alcance de positrones dentro de la muestra de silicio obtenido con la simulación <i>CASINO</i> . . . . .  | 52 |
| 4.2. Valores FWHM para los espectros proyectados en el detector 1, el detector 2 y la proyección diagonal. . . . .   | 56 |
| 4.3. Parámetros S y W para las muestras de silicio y tungsteno en el detector 2  | 58 |
| 4.4. Parámetros S y W para las muestras de silicio y tungsteno en el detector 2  | 60 |
| 4.5. Valores de la relación $R=S/W$ para los diferentes experimentos en las muestras de silicio con daño. . . . .  | 63 |

# Capítulo 1

## Resumen

El propósito principal de este trabajo fue el desarrollar un sistema de análisis de defectos que funcione por medio de la aniquilación de positrones. Este tipo de técnicas comenzó a desarrollarse desde la segunda mitad del siglo XX. Previo a este trabajo no se contaba con un sistema de análisis de este tipo en el Instituto de Física de la UNAM. Aprovechando la infraestructura del laboratorio del acelerador van de Graaff y considerando las aplicaciones de esta técnica fue que se propuso montar este sistema.

El sistema funciona con la técnica de espectroscopía de ensanchamiento Doppler de la radiación de aniquilación y aunque el trabajo se enfoca en esta técnica, paralelamente se desarrolló también otro sistema que funciona con la técnica de espectroscopía de tiempo de vida de positrones.

Es importante aclarar que desde el principio el trabajo se enfocó en montar el sistema y hacer pruebas básicas del funcionamiento para demostrar la viabilidad del proyecto. Es por esto que de manera preliminar y por razones de disposición se utilizaron muestras de silicio policristalino en las que se formaron defectos por medio de irradiación con iones de oro acelerados a una energía de 2 MeV.

Dentro de la ciencia de materiales se han desarrollado todo un conjunto de técnicas de análisis que utilizan la radiación que se produce en la aniquilación de positrones dentro del material de interés para obtener información diversa. Por ejemplo, algunas de estas técnicas se basan en medir el tiempo de vida de los positrones, la distribución angular o la distribución de energía de los fotones de aniquilación producidos [1].

Cuando los positrones de cierta energía entran en un material comienzan a perder energía a través de distintos procesos y cuando llegan a una energía térmica de unos cuantos electrón volt éstos se difunden. Debido a que tienen carga positiva éstos son atraídos a zonas con deficiencia de carga positiva, como pueden ser aglomerados de vacancias y dislocaciones donde finalmente son aniquilados. Es por esto que las técnicas de análisis con positrones pueden usarse para obtener información acerca del tipo y concentración de defectos, además de que algunas han sido utilizadas para caracterizar químicamente diversos materiales [2].

En teoría la aniquilación de un positrón con un electrón produce generalmente dos

---

fotones de 511 keV de energía. La espectroscopía del ensanchamiento Doppler de la radiación de aniquilación (en inglés *Doppler Broadening Spectroscopy* o DBS) es una técnica que consiste en medir el cambio en la energía debido a la aniquilación del positrón-electrón dentro del material.

El estudio de defectos en materiales sólidos es actualmente relevante, ya que estos defectos tienen un efecto importante en muchas de las propiedades mecánicas, eléctricas, magnéticas y ópticas.

Se utilizó el software SRIM (*Stopping and Range of Ions in Matter*) para hacer simulaciones sobre la distribución de defectos dentro de la muestra.

El trabajo se realizó en el laboratorio del acelerador Van de Graaff 5.5 MeV del Instituto de Física de la UNAM ya que cuenta con la infraestructura, los detectores y el sistema de adquisición suficientes para implementar esta técnica lo cual fue una de las motivaciones del trabajo.

Además se utilizó el modelo de parámetros S y W para caracterizar el tipo de defectos que se formaron a partir de la irradiación con iones. Esto se explica en el capítulo 2 en la sección *Técnicas de análisis con positrones*, S quiere decir *Sharp* y W a *Wing*.

En la primer parte se explica el marco teórico, como el efecto que tiene en materiales sólidos la irradiación con iones, como la formación de diferentes defectos. Se describen las interacciones de los positrones con materia sólida y se da una explicación sobre algunas de las técnicas de análisis que utilizan positrones.

En la sección de desarrollo experimental se describen las características y partes del sistema de detección y análisis de señales. Se explica el proceso con el que se irradiaron las muestras. Además se incluye información detallada sobre cada una de las pruebas que se realizaron y cada una de las partes que conforman el sistema.

# Capítulo 2

## Introducción

En este capítulo se introducen los conceptos fundamentales y las características más importantes de la interacción de iones pesados con un material sólido y la manera en que éstos inducen la formación de defectos. Además se describen las interacciones entre positrones y materiales sólidos, el proceso de producción y emisión de positrones, y las características y los fundamentos físicos de las técnicas de análisis basadas en la detección de la radiación de aniquilación.

### 2.1. Interacción iones-materia

En el presente trabajo se usaron muestras de silicio y dióxido de silicio irradiados con iones de oro, además de láminas de tungsteno calentadas. En este capítulo se describen los efectos de estos procesos en la estructura de estos materiales.

La implantación de iones consiste en introducir átomos de un elemento dentro de un material con la intención de inducir cambios en su estructura.

La primera parte del proceso de irradiación consiste en producir los iones que se van a hacer incidir a partir de evaporar el material y arrancar electrones de los átomos neutros. Posteriormente estas partículas se aceleran por medio de campos electrostáticos en un acelerador de partículas. La energía de las partículas está descrita por la ecuación  $E_k = qV$  donde la energía  $E_k$  es proporcional al producto de la carga del ion  $q$  por el potencial electrostático  $V$ . El sistema de irradiación está formado por tres etapas; la fuente de iones, la sección de aceleración y la cámara de irradiación. En la última etapa el haz de iones puede ser barrido sobre la muestra por medio de campos eléctricos [3]. La energía de irradiación se puede controlar por medio de un electro-imán deflector selector de energía, donde el ángulo de desviación es función de la carga y de la masa del ion, la intensidad del campo magnético y la energía del ion. El proceso de irradiación se describe con mayor detalle en otros trabajos [3, 4].

Cuando un ion pesado penetra dentro de un material, comienza a perder energía principalmente a través de ionizaciones y excitaciones de los átomos. La pérdida de

energía y la desviación del ion durante cada una de las colisiones son pequeñas, lo que hace que sea casi de manera continua [5].

La manera de describir la transferencia de energía de una partícula dentro de un material es a través del *poder de frenado* y éste se define como el cambio de energía por unidad de longitud. Tiene una contribución debida a la interacción con los electrones y otra debida a la interacción con los núcleos, como se indica en la ecuación 2.1.

$$\frac{dE}{dx} = \left(\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(\frac{dE}{dx}\right)_n = -N [S_n(E) + S_e(E)] \quad (2.1)$$

En esta ecuación  $N$  representa la densidad de átomos en la muestra y  $S_n(E)$  y  $S_e(E)$  son la sección eficaz de frenado nuclear y electrónica, respectivamente. El poder de frenado también incluye una contribución por procesos radiativos, el cual es relativamente pequeño y puede ser ignorado en este caso. La sección eficaz de frenado nuclear se define con la ecuación 2.2.

$$S_n(E) = \int_0^{T_{\max}} T d\sigma(E, T) \quad (2.2)$$

$d\sigma$  es la sección eficaz de interacción,  $T$  es la energía trasferida,  $T_{\max}$  es la energía máxima trasferida en cada colisión.

Por otro lado las interacciones con los electrones del material se representan con la ecuación de Bethe.

$$S_e = \frac{4\pi e^4 z^4}{m_0 v^2} Z \left[ \ln \frac{2m_0 v^2}{I} - \ln \left( 1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right] \quad (2.3)$$

En esta ecuación  $v$  y  $z$  son la velocidad y el número atómico de la partícula incidente, respectivamente,  $Z$  es el número atómico de los átomos del material,  $m_0$  y  $e$  son la masa en reposo y la carga del electrón, respectivamente.  $I$  representa la energía media de excitación y potencial de ionización del material.

Además se debe considerar que los iones incidentes tienen un alcance finito dentro del material y se relaciona directamente con el poder de frenado. El alcance promedio puede definirse con la ecuación 2.4 [6].

$$R(E) = \frac{1}{N} \int_0^{E_0} \frac{dE}{|S_n(E) + S_e(E)|} \quad (2.4)$$

En general la irradiación con iones tiene diversos efectos en los materiales, que dependen del material y de la especie y la energía de los iones.

### 2.1.1. Defectos provocados por irradiación con iones

Un defecto se define como un cambio en la periodicidad dentro de un sólido [4, 7]. Existen diferentes clases de defectos y cada uno tiene efectos diversos en las propiedades

## 2.1. Interacción iones-materia

---

del material. Como se menciona en [7]; “*hay una sola forma de ser perfecto, pero hay numerosas maneras de ser imperfecto*”.

Los defectos se pueden clasificar con relación a la dimension que ocupan [8].

1. Dimension cero - defectos puntuales
2. Una dimension - dislocaciones
3. Tres dimensiones - superficies internas y externas
4. Cuatro dimensiones - cúmulos de defectos puntuales, vacios, precipitados

La presencia de defectos en un material tiene consecuencias en sus propiedades eléctricas, magnéticas, ópticas y mecánicas.

Uno de los efectos más importantes de la irradiación con iones es la formación de defectos. Cuando los iones inciden dentro del material parte de su energía se transfiere a los átomos de la red, algunos de estos átomos son desplazados. Los átomos golpeados primarios (*primary knock-on atoms*) pueden a su vez desplazar otros átomos secundarios, que a su vez desplazan otros átomos terciarios y así consecutivamente generando una cascada de colisiones. Esta cascada de colisiones y desplazamientos generan una región de defectos a lo largo de la trayectoria de los iones, que depende de las características y energía de los iones incidentes [3].

En el presente trabajo los defectos más importantes son los defectos puntuales. Éstos pueden ser substitutiones, átomos intersticiales y vacancias, éstas se representan en la figura 2.1.

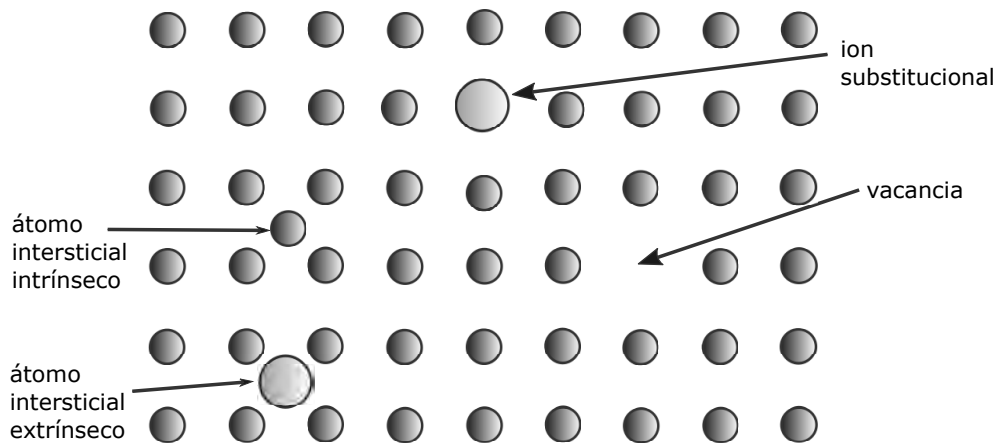


Figura 2.1: Representación bidimensional de los tipos de defectos puntuales [8].

Los átomos intersticiales y las substitutiones pueden ser del mismo material, conocidos como defectos intrínsecos, o ser átomos externos, conocidos a su vez como defectos



## 2.1. Interacción iones-materia

---

extrínsecos. En general, estos defectos pueden ser ocasionados por efectos térmicos o inducidos por radiación.

Para que los átomos en la red puedan ser desplazados es necesario que reciban una cantidad mínima de energía en cada colisión. A esta energía se le conoce como energía de desplazamiento  $E_d$ . Si la energía transferida del ion es menor que  $E_d$  lo que ocurre es una vibración que se disipa a través de los átomos vecinos.  $E_d$  puede ser diferente para distintas direcciones, por lo que generalmente estos valores son promediados. Por ejemplo,  $E_d$  es del orden de 16 eV para Si [3].

La irradiación con iones es muy eficiente en la formación de pares vacancias-átomos intersticiales, defectos conocidos como pares de *Frenkel*.

Los del tipo Schottky y Frenkel, son defectos en que la población de defectos puntuales está de cierta manera balanceada. Los defectos del tipo Schottky ocurren cuando en el cristal hay una vacancia de un catión junto a una vacancia de un anión, de tal manera que haya un equilibrio electrostático, figura 2.2(a). En un defecto de tipo Frenkel un átomo o ion se desplaza de una posición normal de la red a un sitio intersticial dejando una vacancia, figura 2.2(b) [8].

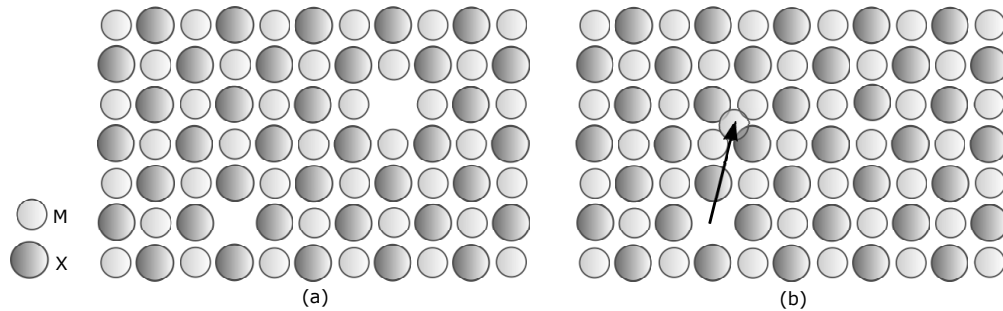


Figura 2.2: Defectos puntuales balanceados en un cristal iónico binario del tipo MX. (a) Defectos Schottky y (b) defectos Frenkel [8]

Las vacancias pueden tener estados de carga efectiva, que puede ser positiva, neutra o negativa.

Además, los defectos puntuales pueden difundirse a través del material. Ésta difusión puede representarse a través de la primera ley de Fick (ecuación 2.5), que relaciona el flujo de defectos  $J$ , con el cambio de la concentración de defectos  $C$  a lo largo de una dimensión.

$$J = -D \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2.5)$$

Donde  $D$  es la constante de difusión y generalmente tiene la siguiente dependencia

con la temperatura  $T$ :

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_0}{kT}\right) \quad (2.6)$$

donde  $E_0$  es la energía de activación que depende del proceso de difusión.

## 2.2. Positrones

En esta sección se describen algunas de las propiedades del positrón, de las fuentes de positrones y de algunas de las técnicas de análisis basadas en la aniquilación de éstos con electrones de materiales sólidos.

El positrón es una partícula elemental que tiene las mismas propiedades físicas que el electrón excepto por su carga, que aunque es de la misma magnitud es de signo opuesto [9]. Su existencia fue propuesta inicialmente por Paul Dirac en 1930 al desarrollar un modelo de la mecánica cuántica que incluyera la relatividad especial y posteriormente se confirmó por Carl David Anderson en 1932, cuando observó el fenómeno de producción de pares en una cámara de niebla [10]. El positrón en el vacío es una partícula prácticamente estable, los modelos teóricos actuales predicen que su tiempo de vida en el vacío es mayor que  $4 \times 10^{23}$  años [1]. A pesar de esto, cuando un positrón se encuentra en un medio eventualmente se aniquila con un electrón del material. La probabilidad de que esto ocurra es función de la energía del positrón, así como de la densidad electrónica del material. La forma de aniquilación entre un positrón y un electrón más probable es la que produce dos fotones de aniquilación, aunque existen otros procesos donde se produce diferente cantidad de fotones. Algunos de estos procesos se representan con los diagramas de Feynman de la figura 2.3.

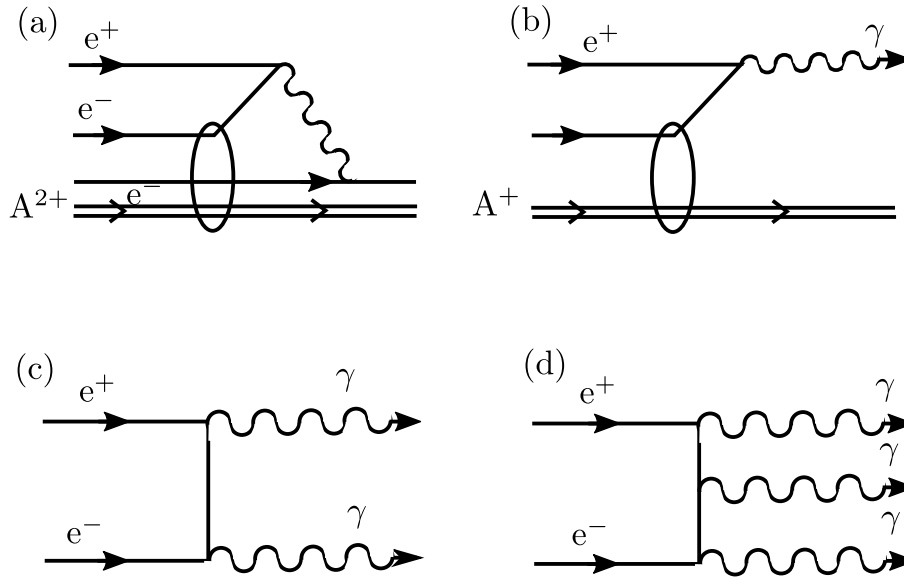


Figura 2.3: Diagramas de Feynman con diferentes procesos de aniquilación con la menor cantidad de fotones emitidos.  $A^{2+}$  y  $A^+$  representan átomos con diferentes estados de ionización. Reproducido de [1].

La sección eficaz de la aniquilación que produce dos fotones fue calculada por Paul Dirac y en la aproximación no relativista se describe con la ecuación 2.7 [9, 11].

$$\sigma_{2\gamma} = \pi r_0^2 \frac{c}{v} \quad (2.7)$$

Donde  $r_0$  es el radio clásico del electrón<sup>1</sup>,  $c$  es la velocidad de la luz en el vacío y  $v$  es la velocidad de las partículas que se aniquilan. A pesar de que este valor se vuelve infinito cuando  $v \rightarrow 0$  la tasa de aniquilación (que se define como la cantidad de aniquilaciones por unidad de tiempo) y dada por  $\lambda = \sigma_{2\gamma} v n_e$ , donde  $n_e$  es la densidad electrónica, se vuelve finita.

### 2.2.1. Interacción de los positrones con los sólidos

La principal interacción entre positrones y materia es la coulombiana, como pasa con otras partículas cargadas como electrones, partículas alfa e iones. Usualmente las interacciones entre positrones y sólidos se describen como una serie de etapas. Éstas son descritas claramente y con mayor profundidad en las referencias [1, 2, 9]. En la figura 2.4 (a) se representan cada uno de los pasos, desde que los positrones inciden sobre la superficie, son termalizados, se difunden y finalmente son aniquilados.

<sup>1</sup>El radio clásico del electrón se describe con la ecuación  $r_0 = e^2/(4\pi\epsilon_0 mc^2)$  donde  $e$  y  $m$  son la carga y masa en reposo del electrón, respectivamente, y  $c$  la velocidad de la luz en el vacío.

## 2.2. Positrones

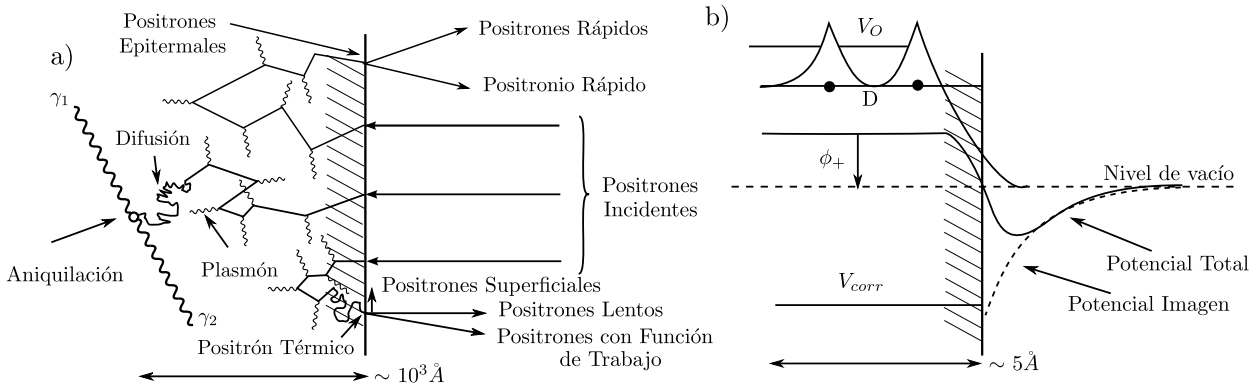


Figura 2.4: (a) Ilustración de las interacciones de positrones en un metal a nivel superficial. El diagrama representa una sección superficial del orden de  $10^3 \text{ \AA}$  de profundidad lo que corresponde al alcance promedio de positrones con energía del orden de varios keV. (b) Esquema de los potenciales superficiales para un positrón en la superficie de un metal. el potencial químico tiene una contribución del potencial de correlación  $V_{corr}$  con los electrones de conducción y la contribución de repulsión con los núcleos que se representan con discos negros. El potencial  $\phi_+$  representa la función de trabajo positiva con la que los positrones son re-emitidos. Diagrama reproducido de [9].

### 2.2.1.1. Interacción con la superficie

Cuando un positrón llega a la superficie de un material puede introducirse dentro de él o con una cierta probabilidad ser retrodispersado. La probabilidad de retrodispersión es proporcional a la energía con la que incide el positrón y al número atómico del blanco. Para positrones de baja energía, del orden de varios keV, éstos pueden comenzar perder energía y difundirse nuevamente hasta la superficie. Los positrones en la superficie pueden quedar atrapados por el potencial imagen o por un defecto superficial donde se aniquilan. Otro fenómeno que puede ocurrir es la formación del positronio (Ps), que puede ser emitido fuera del material. El positronio es un sistema análogo al átomo de hidrógeno que en lugar de un protón en su núcleo tiene un positrón.

Debido a que la función de trabajo para positrones generalmente tiene valores negativos, provoca que los positrones en la superficie sean emitidos con una energía característica. Un comportamiento análogo al de los electrones, donde se debe suministrar una cantidad de energía para poder ser emitidos. Esta característica de algunos materiales permite utilizar ciertos materiales como moderadores de energía. Los positrones emitidos desde una fuente radiactiva tienen una distribución de energía amplia lo que es inconveniente si se quieren hacer estudios a una profundidad específica. Entonces existen sistemas en donde se hacen incidir positrones en un material moderador donde son termalizados y re-emitidos con una energía característica y una distribución menos dispersa. Posteriormente se utiliza una etapa con campos eléctricos para acelerar y au-

mentar la energía de estos positrones y hacerlos incidir sobre la muestra que se quiere utilizar.

### 2.2.1.2. Termalización

Cuando el positrón penetra dentro de un material sólido comienza a perder energía por colisiones inelásticas hasta llegar a una energía térmica del orden de unos cuantos electrón volt. Esta termalización ocurre en unos cuantos pico segundos y corresponde a un intervalo de tiempo mucho más corto que el tiempo de vida total.

El poder de frenado describe esta pérdida de energía por unidad de longitud; la descripción del poder de frenado es casi la misma para positrones y electrones. A diferencia de lo que ocurre con iones, el camino que siguen los positrones dentro de un material sólido es más accidentado debido a que sus masas son iguales a la de los electrones del material con los que interactúan. Además, la pérdida de energía también tiene una contribución debida a procesos radiativos. Esta componente se debe principalmente a la radiación de frenado o *bremssstrahlung*<sup>2</sup>. Debemos de considerar que cualquier partícula cargada al acelerarse emite radiación, entonces la deflexión de los positrones (o electrones) al interactuar con los átomos del material provoca la emisión de radiación. La deflexión es mucho mayor para positrones (electrones) comparada con la que experimentan los iones pesados, ya que estos últimos tienen una mayor masa y casi no son desviados en cada colisión. Para partículas cargadas ligeras la pérdida de energía por radiación de frenado es más importante para altas energías que para bajas [12].

La contribución por colisiones provoca principalmente ionizaciones y excitaciones de los átomos del material.

La ecuación 2.8 es una expresión para describir la pérdida de energía por ionizaciones y excitaciones (éstas son las pérdidas por colisiones) para positrones (+) y electrones (-).

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{col}^{\pm} = \frac{4\pi k_0^2 e^4 n}{mc^2 \beta^2} \left[ \ln \frac{mc^2 \tau \sqrt{\tau + 2}}{\sqrt{2}I} + F^{\pm}(\beta) \right] \quad (2.8)$$

donde el término  $F^-$  es para electrones

$$F^-(\beta) = \frac{1 - \beta^2}{2} \left[ 1 + \frac{\tau^2}{8} - (2\tau + 1)\ln 2 \right] \quad (2.9)$$

y el término  $F^+$  es para positrones.

$$F^+(\beta) = \ln 2 - \frac{\beta^2}{24} \left[ 23 + \frac{14}{\tau + 2} + \frac{10}{(\tau + 2)^2} + \frac{4}{(\tau + 2)^3} \right] \quad (2.10)$$

En estas ecuaciones  $\tau = E/mc^2$  y  $mc^2$  es la energía en reposo del positrón (electrón),  $k_0 = 8,99 \times 10^9 \text{ N m}^2 \text{ C}^{-2}$ ,  $e$  y  $m$  son la carga y masa en reposo del electrón, respec-

---

<sup>2</sup>La palabra *bremssstrahlung* viene del alemán *breme* = frenar y *strahlung* = radiación.

tivamente,  $n$  es el número de electrones por unidad de volumen en el medio,  $c$  es la velocidad de la luz en el vacío,  $\beta = v/c$  es la velocidad de la partícula relativa a la velocidad de la luz e  $I$  es la energía media de excitación del medio [5].

La relación entre la contribución por colisiones y la contribución radiativa se describe aproximadamente por la ecuación 2.11.

$$\frac{(dE/dx)_r}{(dE/dx)_c} \simeq \frac{Ez}{700} \quad (2.11)$$

Con  $z$  el número atómico de los átomos del material y  $E$  la energía de los positrones expresada en MeV [12].

En algunos semiconductores la transferencia de energía se debe principalmente a la excitación de electrones de la banda de valencia a la banda de conducción.

Los positrones al incidir en un material tienen un alcance finito, que corresponde a la proyección de la trayectoria completa y es función de la energía. Una manera de estudiar el alcance de los positrones en materiales es a partir del perfil de implantación. Debemos de considerar además que este perfil de implantación es continuo y que tiene un valor máximo y otro de mayor probabilidad. Un ejemplo de estos modelos se menciona en [13], aunque aparentemente solo es válido para energías del orden de algunos keV.

Durante este proceso de termalización es posible que el positrón se aniquile, este es un tipo de aniquilación “*on-flight*” y representa menos del 1% de los procesos de aniquilación. A bajas energías estas partículas también pueden ser dispersadas elásticamente, lo que es importante en otros procesos como la difusión [5].

### 2.2.1.3. Difusión

Cuando el positrón se ha termalizado tiende a moverse por difusión. Durante esta etapa los positrones se localizan en los sitios intersticiales del material debido a la repulsión con los núcleos de los átomos. El camino libre medio de éstos, que corresponde a la distancia media entre colisiones y que es función de la temperatura, se representa con la ecuación 2.12.

$$\langle l \rangle = \frac{3D_+}{\sqrt{\langle v^2 \rangle}} \quad \text{con} \quad \langle v^2 \rangle = \frac{3k_B T}{m^*} \quad (2.12)$$

Donde  $v$  es la velocidad térmica del positrón,  $k_B$  es la constante de Boltzmann,  $T$  es la temperatura y  $m^*$  es la masa efectiva del positrón.  $D_+$  es la constante de difusión, que para un material sin defectos tiene la siguiente dependencia:

$$D_+ = \tau_r \frac{k_B T}{m^*} \quad (2.13)$$

Donde  $\tau_r$  es el tiempo de relajación del mecanismo de dispersión. Además la masa efectiva tiene un valor mayor que la masa en reposo del positrón libre.

El proceso de difusión puede describirse con la ecuación 2.14 [1].

$$\frac{\partial}{\partial t} n_+(\mathbf{r}, t) = D_+ \nabla^2 n_+(\mathbf{r}, t) - \nabla [v_d n_+(\mathbf{r}, t)] - \lambda_{\text{eff}} n_+(\mathbf{r}, t) \quad (2.14)$$

Donde  $n_+(\mathbf{r}, t)$  es la densidad de positrones en el punto  $\mathbf{r}$  al tiempo  $t$ , y  $v_d$  es la velocidad de deriva del positrón que depende de la intensidad del campo eléctrico.  $\lambda_{\text{eff}}$  representa la tasa de aniquilación que considera el tiempo de vida del positrón en un medio sin defectos  $\tau_b$ <sup>3</sup> y la tasa de captura  $\kappa(\mathbf{r})$  de positrones en defectos.

$$\lambda_{\text{eff}} = 1/\tau_b + \kappa(\mathbf{r}) \quad (2.15)$$

Entonces la longitud de difusión puede representarse con la siguiente relación:

$$L_+ = \sqrt{D_+/\lambda_{\text{eff}}} \quad (2.16)$$

En la tabla 2.1 se muestran los valores de camino libre medio y de la longitud de difusión para algunos semiconductores.

*Tabla 2.1: Camino libre medio y longitud de difusión a 300 K para algunos semiconductores sin trampas de positrones y usando una masa efectiva  $m^* = 1,5 m_0$ . Reproducido de la referencia [1].*

| Material | $\langle l \rangle$ [nm] | $L_+$ [nm]    |
|----------|--------------------------|---------------|
| Si       | 6.9, 6.6, 8.5            | 219, 214, 243 |
| GaAs     | 5.3                      | 198           |
| Ge       | 5.3                      | 200           |

#### 2.2.1.4. Captura por defectos

Durante la etapa de difusión los positrones pueden quedar atrapados en los defectos del material. La tasa de captura  $\kappa$  es dependiente de la concentración de defectos  $C$ .

$$\kappa = \mu C \quad (2.17)$$

Donde  $\mu$  es el coeficiente de captura de positrones en el defecto específico.

Debemos de considerar que las vacancias y aglomeraciones de vacancias son las trampas de positrones más importantes, aunque también pueden ser atrapados en superficies o la interfase.

Cuando un positrón es atrapado existe cierta probabilidad de que sea liberado debido a las vibraciones térmicas de la red, pero la probabilidad de esto es unos órdenes de magnitud menores que la probabilidad de que sea atrapado lo que hace a las técnicas

---

<sup>3</sup> $\tau_b$  representa el tiempo de vida del positrón en el material sin defectos,  $b$  por *bulk*.

PAS (siglas de Positron Annihilation Spectroscopy o Espectroscopía de Aniquilación de Positrones) altamente sensibles a la detección de defectos.

Existen modelos para describir el proceso de captura de positrones en defectos. Uno de los más sencillos supone un material con solo un tipo de trampas de positrones, como podría ser un material con solo vacancias. Para hacer más sencillo el modelo se puede suponer que los positrones no pueden escapar de las vacancias. Este modelo se representa con las ecuaciones 2.18 y con la figura 2.5.

$$\begin{aligned}\frac{dn_b(t)}{dt} &= -(\lambda_b + \kappa_d)n_b(t) \\ \frac{dn_d(t)}{dt} &= -\lambda_d n_d(t) + \kappa_d n_b(t)\end{aligned}\tag{2.18}$$

donde  $n_b$  y  $n_d$  son el número de positrones en el material sin defectos (*bulk*) y el número de positrones en los defectos respectivamente.  $\lambda_b$  y  $\lambda_d$  son la tasa de aniquilación en el material sin defectos y la tasa de aniquilación en los defectos, respectivamente. Finalmente  $\kappa_d$  es la tasa de captura, las condiciones iniciales son  $n_b(t = 0) = N_0$  y  $n_d = 0$ , donde  $N_0$  es el número de positrones iniciales. La ecuación 2.19 representa el espectro de decaimiento, que brinda la solución a estas ecuaciones:

$$D(t) = I_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + I_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right)\tag{2.19}$$

con las siguientes relaciones de coeficientes y factores:

$$\begin{aligned}\tau_1 &= \frac{1}{\lambda_b + \kappa_d} & \tau_2 &= \frac{1}{\lambda_d} \\ I_1 &= 1 - I_2 & I_2 &= \frac{\kappa_d}{\lambda_b - \lambda_d + \kappa_d}\end{aligned}\tag{2.20}$$



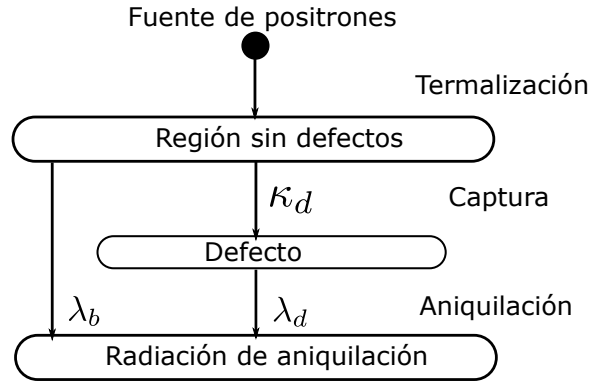


Figura 2.5: Esquema que representa el modelo de captura por vacancias en un material con solo un tipo de defectos.  $\lambda_b$  representa la tasa de aniquilación en el material libre de defectos,  $\kappa_d$  y  $\lambda_d$  representan la tasa de captura y la tasa de aniquilación de positrones en los defectos. Reproducido de [1].

Al derivar la ecuación 2.19 se obtiene la función que describe la distribución de tiempos de vida, esto se explica con más detalle adelante.

Por otro lado podemos definir un nuevo parámetro  $\eta$ , conocido como fracción de aniquilación y definido con la ecuación 2.21, en función de la tasa de aniquilación en la región sin defectos y la tasa de captura en defectos.

$$\eta = \frac{\kappa_d}{\lambda_b + \kappa_d} \quad (2.21)$$

Esta cantidad se utiliza más adelante para relacionar la concentración de defectos con los resultados de la espectroscopía Doppler.

### 2.2.2. Fuentes de positrones

Existen diversas fuentes de positrones y para determinar qué tipo de fuente es la más adecuada para un experimento se debe de considerar un conjunto de factores que incluyen: el costo, la vida media de la fuente, la actividad radiactiva, el espectro de energía con la que se emiten los positrones, entre otros. Esencialmente existen dos fenómenos a través de los cuales se producen positrones, éstos son el decaimiento  $\beta^+$  y la producción de pares.

En el decaimiento- $\beta^+$  ( $\beta^-$ ) se emiten positrones (o electrones) de núcleos inestables con exceso de protones (neutrones). Para un núcleo rico en neutrones la ecuación 2.22 describe el decaimiento  $\beta^-$ .



En este proceso el número atómico aumenta en 1. Para un núcleo rico en protones

## 2.2. Positrones

el proceso de decaimiento  $\beta^+$  se describe con la ecuación 2.23.



En este proceso el número atómico disminuye en 1. En el primer caso un neutrón se transforma en un protón con la emisión de un electrón y un anti-neutrino. En el segundo caso un protón se transforma en un neutrón pero con la emisión de un positrón y un neutrino electrónico [14].

Los electrones y positrones en el decaimiento beta tienen un espectro de energías continuo, ya que la energía disponible se divide entre la partícula- $\beta$  y el neutrino (o antineutrino). Esta distribución de energías está caracterizada por una energía promedio y una energía máxima, de hecho esta continuidad fue lo que llevó a proponer la existencia del neutrino en 1930-1933. En la figura 2.6 se muestran las distribuciones de energía de los positrones emitidos para diferentes fuentes [15].

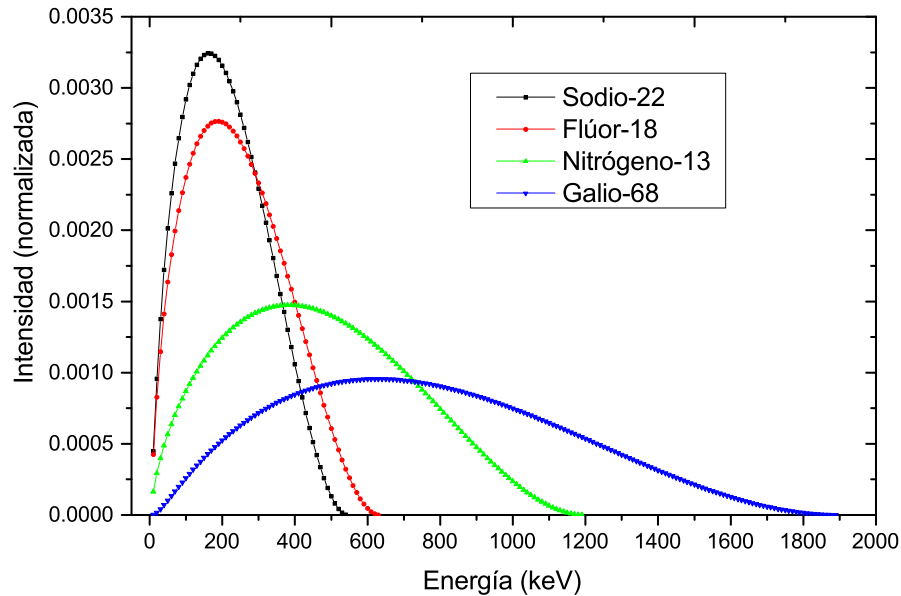


Figura 2.6: Distribuciones de energía teóricas para distintas fuentes de positrones calculadas a partir del modelo propuesto y mencionado en los trabajos de C. Wu y S. Moszkowski (1966), C. Levin y E. Hoffman (1999) y C. Champion y C. Le Loirec (2007) [15–17].

Los diferentes procesos de decaimiento de las fuentes de nitrógeno-13, sodio-22 y flúor-18 se muestran en la figura 2.7, junto con los valores de energía máxima y promedio con las que son emitidos los positrones. El hecho de que los positrones sean emitidos

con diferentes espectros de energía para distintas fuentes provoca que el alcance de los positrones dentro de un material dependa de la fuente que se está utilizando.

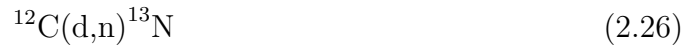
Como se describe en los trabajos de R Krause-Rehberg y H Leipner (1999) y W. Brandt y R. Paulin (1977), referencias [1, 18], el perfil de implantación de los positrones dentro de un material sólido para una fuente convencional, como las que se mencionan antes y que tienen un espectro continuo de energías, tiene el siguiente comportamiento:

$$P(z) = \exp(-\alpha z) \quad (2.24)$$

Donde  $\alpha$  representa el coeficiente de absorción para positrones que puede ser aproximado con la siguiente expresión:

$$\alpha[\text{cm}^{-1}] = 17 \frac{\rho[\text{gcm}^{-3}]}{E_{\text{max}}^{1,43}[\text{MeV}]} \quad (2.25)$$

Desde hace tiempo existen trabajos donde se habla sobre el uso de fuentes de positrones generadas por irradiación con iones de deuterio con una energía del orden de 1.8 MeV. Este tipo de fuentes se describen en el trabajo de K. Lynn y F. Jacobsen (1994) [19], y básicamente consiste en producir la siguiente reacción nuclear:



Con lo que se produce una fuente de positrones lo suficientemente intensa y con un espectro de energías adecuado para ser utilizado en algunas de estas técnicas de análisis. Cuando se cuenta con la infraestructura para producir este tipo de fuente existen ventajas al utilizarla como el tiempo de vida relativamente corto y la posibilidad de producirla de manera continua y controlada.

Al comienzo de este trabajo se consideró utilizar las instalaciones del laboratorio del acelerador Van der Graaff 5.5 MV del Instituto de Física de la UNAM para generar esta fuente, desafortunadamente esta parte se tuvo que posponer a una etapa posterior del proyecto.

## 2.2. Positrones

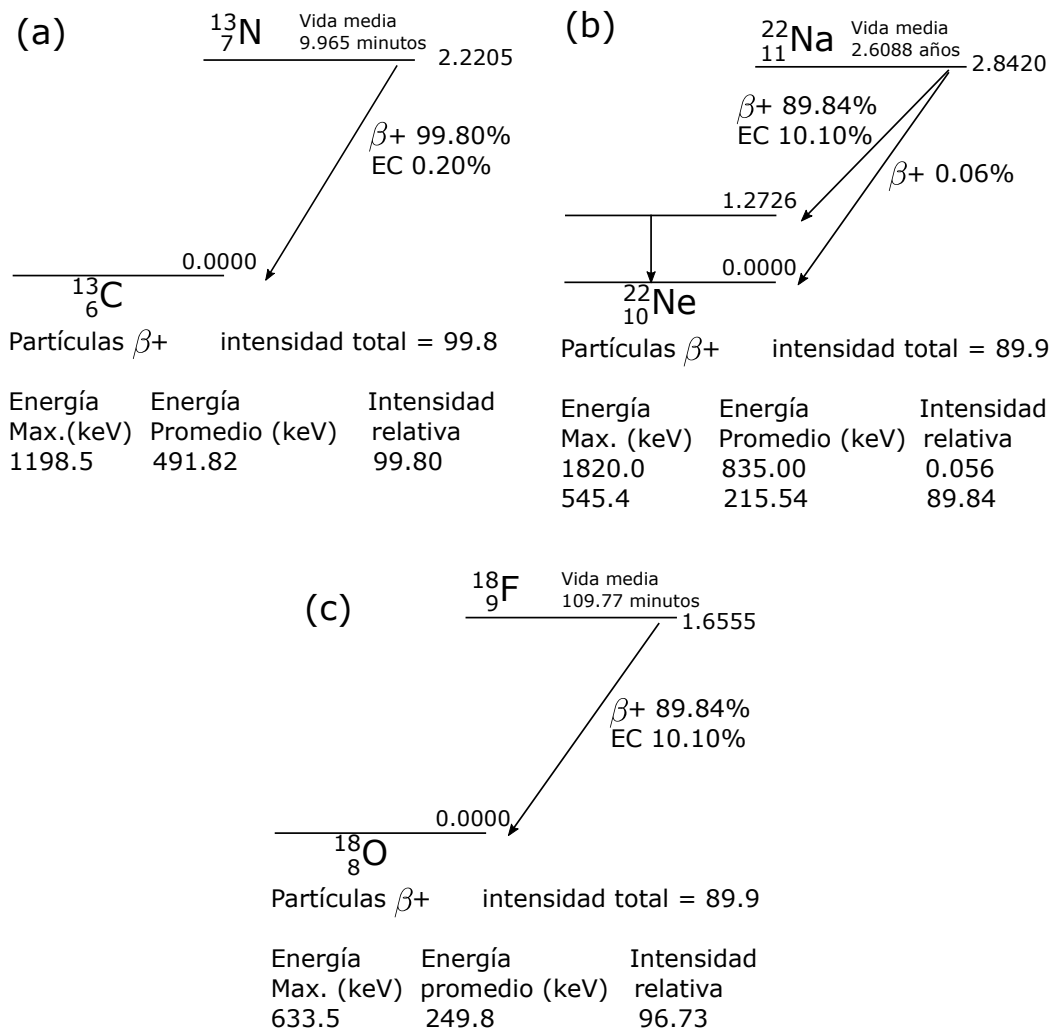


Figura 2.7: Esquema del decaimiento de los isotopos (a) nitrógeno-13, (b) sodio-22 y (c) flúor-18. Información tomada de la referencia [20].

El sodio-22 es una de las fuentes de positrones más utilizadas en sistemas de análisis de positrones, especialmente en los sistemas de espectroscopía de tiempo de vida. El decaimiento- $\beta^+$  más probable del sodio-22 produce un estado excitado de neón-22 el cual decae emitiendo un rayo gamma de 1.274 MeV de energía de manera prácticamente simultánea (3.7 ps) con la emisión del positrón [1]. De esta manera se utiliza este fotón como señal de inicio para marcar el momento en que el positrón se emite de la fuente, mientras que la señal de paro es el fotón generado por la aniquilación del mismo positrón con un electrón del material.

Finalmente hace falta mencionar que en los sistemas de análisis actuales y más equipados se utiliza una etapa de moderación de positrones. Éste se encarga de generar un haz de positrones de energía bien definida y controlable, lo que permite finalmente

determinar el alcance dentro de la muestra. Este tipo de sistemas tienen la capacidad de obtener información de la muestra en función del alcance de los positrones dentro del material que se está estudiando. Una desventaja del uso de moderadores es la disminución de la cantidad de positrones que finalmente llegan a la muestra, debido a que el proceso de moderación consiste en hacerlos incidir dentro de un material adecuado y no todos los positrones son reemitidos hacia la superficie. Es por esto que en el presente trabajo se ha decidido prescindir de esta parte. En mi tesis de licenciatura se exploró la fabricación de moderadores en forma de películas delgadas basadas en tungsteno a partir de la técnica de pulverización catódica. El buscar nuevos materiales que funcionen como moderadores es importante para el desarrollo de estas técnicas, aunque actualmente existen alternativas suficientemente eficientes, algunas son difíciles y caras de mantener.

### 2.2.3. Técnicas de análisis con positrones

En la actualidad los sistemas de análisis con positrones se utilizan en diversas ramas de la ciencia y la tecnología.

Existe una amplia variedad de técnicas de análisis que se basan en la aniquilación de positrones en la materia PAS (*Positron Annihilation Spectroscopy*). Algunas de ellas se basan en medir el tiempo desde que el positron se emite desde la fuente hasta que se aniquila en el material. En algunas otras se miden las distribuciones angular y de energía de los fotones producidos por la aniquilación.

#### 2.2.3.1. Ensanchamiento Doppler

En la época en que se desarrollaron detectores gamma con mayores resoluciones en energía, como por ejemplo el detector de germanio de alta pureza (HpGe o *High Purity Germanium detector*), se observó que en los espectros de energía el pico debido a la aniquilación de positrones con materia tenía una desviación mayor que el asociado a la resolución en energía del sistema. Este efecto se explica por conservación de momento, debido a que el centro de masa del par electrón y positrón no está en reposo existe un cambio en la energía  $\Delta E$  de los fotones emitidos en la aniquilación. Antes debemos recordar que la energía  $E$  de cada fotón está relacionada con su frecuencia  $\nu$  por la ecuación 2.27, donde  $h = 6,626 \times 10^{-34}$  [J s] es la constante de Planck.

$$E = h\nu \tag{2.27}$$

El movimiento del centro de masa electrón positrón con respecto al sistema de referencia del laboratorio provoca un cambio en la frecuencia de los fotones de aniquilación medidos en estos dos sistemas de referencia. Este cambio se expresa con la ecuación 2.28, que representa el cambio de la frecuencia de la radiación debido al efecto Doppler tomando en cuenta la contribución relativista [21].

$$\nu' = \gamma\nu(1 - \beta\cos\theta) = \frac{(1 - \beta\cos\theta)}{\sqrt{1 - \beta^2}}\nu \quad (2.28)$$

Donde  $\nu'$  y  $\nu$  son la frecuencia en el sistema del laboratorio y en el sistema centro de masa, respectivamente,  $\gamma$  es la constante de Lorentz,  $\beta = v/c$  con  $v$  la velocidad del centro de masa del par electrón-positrón con respecto al sistema del laboratorio y  $\theta$  es el ángulo entre la velocidad  $v$  y la dirección de emisión de los fotones.

Considerando solo la contribución longitudinal de la velocidad  $v$ , con lo que se cumple  $\cos(\theta) = \pm 1$ , la energía de los fotones en el sistema del laboratorio es:

$$E'_{1,2} = E_{1,2}\gamma(1 \pm \beta) = E_{1,2}\gamma\left(1 \pm \frac{2m_0v_l c}{2m_0c^2}\right) \quad (2.29)$$

Donde  $E_{1,2}$  corresponde a la energía de los fotones en el sistema del centro de masa del electrón-positrón.

$$E_{1,2} = \frac{1}{2}E_{\text{tot}} = \frac{1}{2}(2m_0c^2 + E_b) \quad (2.30)$$

En este sistema de referencia la energía de los fotones debe de ser igual por conservación de momento. Considerando que la energía de los electrones dentro del átomo es relativamente pequeña para considerar efectos relativistas, la constante de Lorentz  $\gamma \sim 1$  y la energía de ligadura del electrón positrón  $E_b \sim 0$ , entonces sustituyendo en la ecuación 2.29

$$E'_{1,2} = m_0c^2\left(1 \pm \frac{2m_0v_l c}{2m_0c^2}\right) = m_0c^2 \pm \frac{p_l c}{2} \quad (2.31)$$

Entonces la energía total en el sistema del laboratorio se expresa con la ecuación 2.32 que concuerda con la conservación de energía en el proceso de aniquilación.

$$E'_{\text{tot}} = E_1 + E_2 = (511 \text{ keV} \pm \Delta E) + (511 \text{ keV} \mp \Delta E) \quad (2.32)$$

Donde la ecuación 2.33 representa el valor de esta diferencia en función de la componente longitudinal del momento del electrón.

$$\Delta E = \frac{p_l c}{2} = \frac{\sqrt{2m_0 E_{k,l} c}}{2} = \sqrt{\frac{1}{2}m_0 c^2 E_{k,l}} \quad (2.33)$$

Entonces la técnica consiste en medir el cambio en energía de los fotones de aniquilación debido a la componente en la dirección de emisión del momento  $p$  del electrón con el que se aniquila el positrón. Por ejemplo, un electrón con energía cinética de 10 eV produce una desviación en energía  $\Delta E$  de 1.6 keV, lo que es del orden de la resolución del sistema de detección.

El sistema consiste en el arreglo de fuente más muestra, en un detector de germanio conectado a un pre-amplificador y amplificador de espectroscopía, que a su vez se

## 2.2. Positrones

conectan a un analizador multicanal. Sin embargo, los sistemas modernos utilizan un segundo detector conectado en coincidencia de tal manera que se registren únicamente los fotones producto de la aniquilación. Inicialmente se comenzaron a utilizar detectores de centelleo formados por un cristal de yoduro de sodio dopado con talio (NaI(Tl)), este segundo detector permite que solo se detecten los positrones provenientes de una aniquilación en el detector de germanio. El esquema de este tipo de sistema se muestra en la figura 2.8.

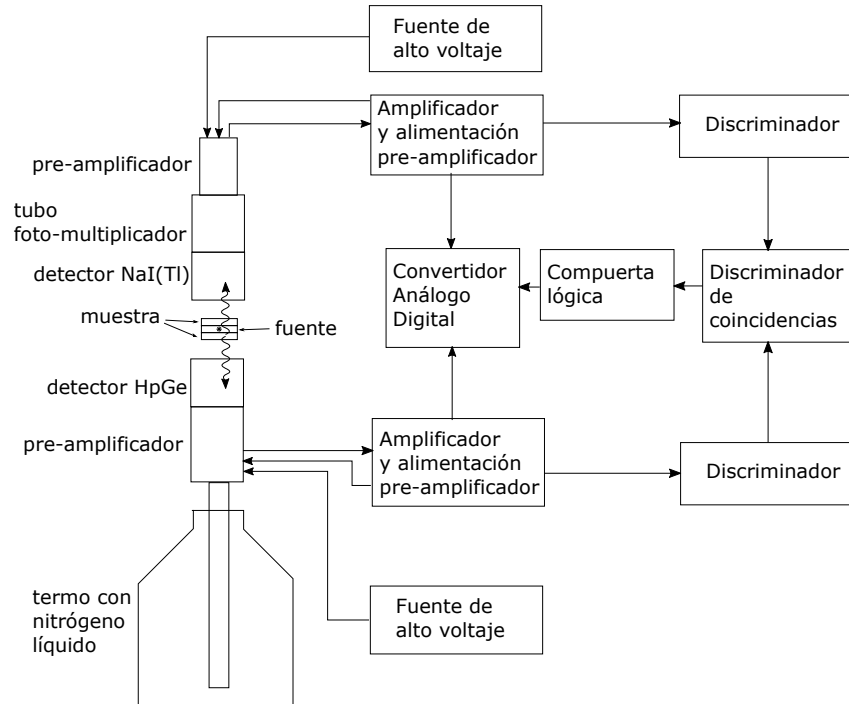


Figura 2.8: Esquema del sistema de espectroscopía de ensanchamiento Doppler en coincidencia con un segundo detector centellador.

Otro tipo de configuración consiste en utilizar un segundo detector de germanio, lo que permite adquirir de manera simultánea la energía de ambos fotones de la aniquilación. A partir de esta información se puede obtener un histograma de dos dimensiones del número de eventos, donde cada evento corresponde a la detección de ambos fotones producidos en la aniquilación con el valor de su energía medida en cada uno de los detectores. Debido a la conservación de energía representada en la ecuación 2.32, se observa una región sobre la recta  $E_2 = 1022 \text{ [keV]} - E_1$  como se observa en la figura 2.9.

## 2.2. Positrones

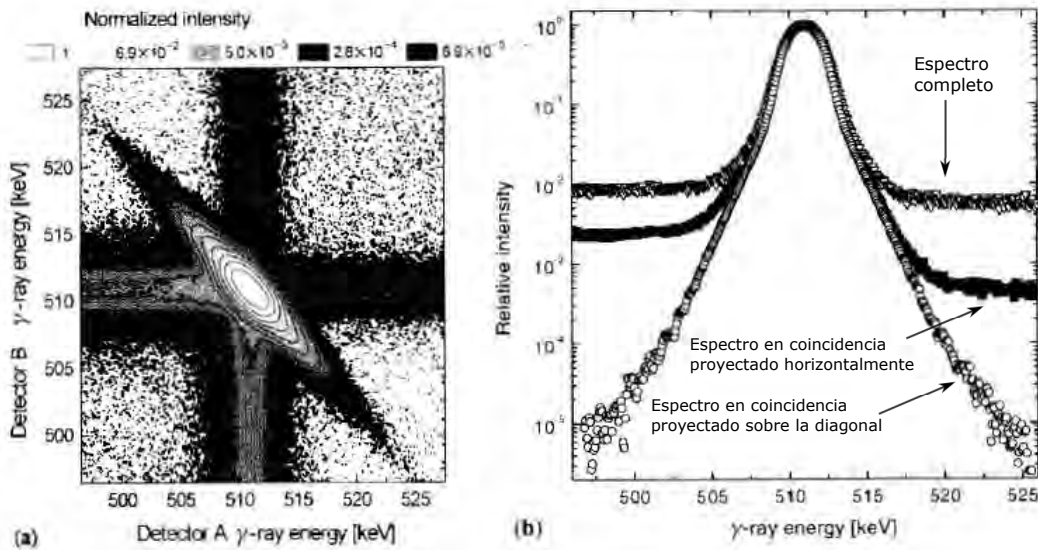


Figura 2.9: (a) Histograma bidimensional de los eventos registrados en coincidencia de la aniquilación de positrones en una muestra de zinc-dopada con galio. (b) Demostración de la reducción del fondo en los picos de aniquilación utilizando un segundo detector. Primero se muestra el pico completo, luego el pico utilizando solo los eventos en coincidencia, proyectados en dirección paralela al eje horizontal, y finalmente el pico utilizando los eventos en coincidencia sobre la diagonal. Ambas figuras fueron tomadas de [1].

En la sección de desarrollo experimental se describe con detalle cada una de las partes del sistema que se utilizó en los experimentos.

El pico de aniquilación está formado por contribuciones con diferentes momentos, podemos distinguir dos contribuciones principales; los electrones de conducción y de valencia y los electrones de capas internas. Este modelo se representa en la figura 2.10, donde cada valor de momento  $p$  produce una distribución gaussiana, tomado de la referencia [22].



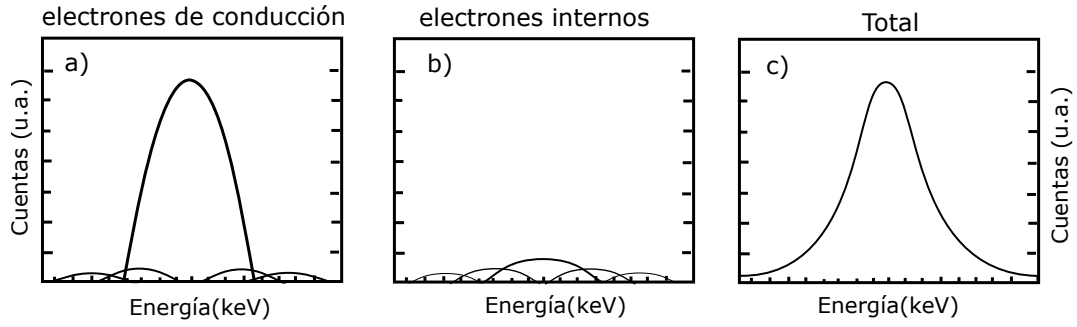


Figura 2.10: a) Representación de las contribuciones de los electrones de conducción al pico de aniquilación, b) contribución de los electrones internos y c) total de ambas contribuciones. Reproducido de [9].

El método estándar para la descripción de los resultados es por medio de los parámetros S (sharp) y W (wing).

Éstos están definidos a partir de las siguientes ecuaciones.

$$S = \frac{A_s}{A_0} \quad (2.34)$$

Donde  $A_s$  representa el área debajo del pico de aniquilación definida entre la energía  $511 \text{ keV} - E_s$  y  $511 \text{ keV} + E_s$ .

De manera análoga se define el parámetro W.

$$W = \frac{A_w}{A_0} \quad (2.35)$$

Donde  $A_w$  es el área debajo del pico de aniquilación definida por las energías  $511 \text{ keV} + E_1$  y  $511 \text{ keV} + E_2$ , como se muestra en la figura 2.11. En ambos casos  $A_0$  representa el área bajo la curva dentro del intervalo de energía de  $511 \text{ keV} - E_2$  y  $511 \text{ keV} + E_2$ . Este último intervalo define la región de interés.

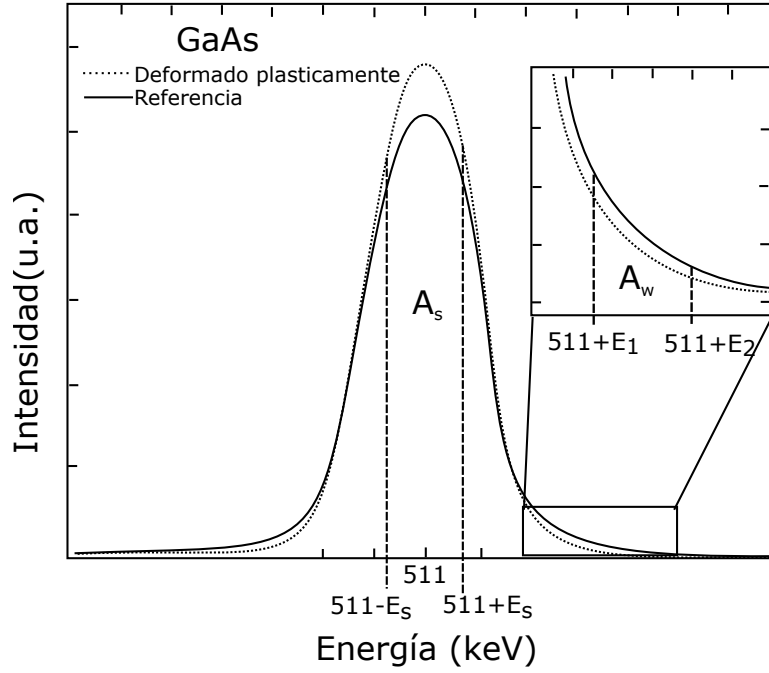


Figura 2.11: Representación de los espectros de energías alrededor de 511 keV para dos muestras de arseniuro de galio. Se representan las áreas  $A_S$  y  $A_W$ . Reproducido de [1].

La región de interés y los valores de  $E_S$ ,  $E_1$  y  $E_2$  se definen primero para las muestras de referencia de tal manera que el valor de los parámetros sea  $S = 0,5$  y  $W = 0,125$ . Posteriormente se utilizan estos intervalos para calcular el valor de  $S$  y  $W$  para las muestras con daños.

Para materiales con un solo tipo de defectos estos parámetros se relacionan con la fracción de aniquilación  $\eta$  a través de la ecuación 2.36.

$$S = (1 - \eta)S_b + \eta S_d \quad (2.36)$$

Donde  $S_b$  es la contribución debida a las aniquilaciones en la región sin defectos, mientras  $S_d$  es la debida a la aniquilación en defectos.

De manera análoga el parámetro  $W$  tiene dos contribuciones  $W_b$  y  $W_d$ , lo que se representa en la ecuación 2.37

$$W = (1 - \eta)W_b + \eta W_d \quad (2.37)$$

Entonces  $S_b$  y  $W_b$  representan los parámetros para las muestras sin defectos. A partir de las ecuaciones anteriores y de la definición de la fracción de aniquilación  $\eta$  se pueden obtener las siguientes relaciones:

$$\begin{aligned} \eta &= \frac{S - S_b}{S_d - S_b} \\ \kappa_d = \mu C &= \frac{1}{\tau_1} \frac{S - S_b}{S_d - S_b} \end{aligned} \quad (2.38)$$

A partir de las ecuaciones 2.38 se puede obtener la concentración de defectos  $C$  en función de los valores de  $S$ ,  $S_b$ ,  $S_d$  y los valores de  $\tau_1$  y  $\mu$ .

Considerando que la dependencia de la concentración de defectos es lineal con respecto a  $S$ , otra alternativa es la de utilizar patrones de la misma muestra que se quiere estudiar en donde la densidad de defectos es determinada a través de otra técnica.

Por otro lado, a partir de lo anterior se puede obtener un parámetro adicional  $R$  que no depende de la concentración de defectos y que se ha usado para la identificación del tipo de defectos. Éste se define con la siguiente relación:

$$R = \frac{S - S_b}{W - W_b} \quad (2.39)$$

Recordando nuevamente que  $S_b$  y  $W_b$  se refieren a los valores correspondientes para las muestras sin defectos.

En resumen, a través de este estudio se puede obtener información sobre la cantidad de defectos que se generan y el tipo de defectos que hay en la muestra.

### 2.2.3.2. Espectroscopía de tiempo de vida

Este método de análisis consiste en medir la distribución de tiempos de vida de los positrones que penetran en un material y analizar la dependencia con el tipo de material o tipo y cantidad de defectos que tiene. El tiempo de vida se define como el intervalo en que el positrón es emitido desde la fuente hasta que se aniquila en el material que se está estudiando. Este tiempo de vida depende del ambiente electrónico del material. Por ejemplo, el tiempo de vida es más largo en materiales aislantes que en conductores, en el segundo hay electrones de valencia débilmente enlazados con los cuales es más fácil que el positrón se aniquile. El diagrama esquemático del sistema que se usó en la espectroscopía de tiempos de vida se muestran en la figura 2.12.

Para esta técnica de análisis se utiliza generalmente una fuente de sodio-22, ya que como se mencionó antes y como se muestra en la figura 2.7, el decaimiento de este isótopo produce un rayo gamma de 1274 keV que prácticamente indica el momento en que el positrón fue emitido desde la fuente.

Como se mencionó en el marco teórico, cuando el positrón incide dentro de un material sólido le toma del orden de 1 picosegundo termalizarse, aunque en el caso de gases puede llegar hasta cientos de nanosegundos [22].

La distribución de tiempos de vida se puede describir con la ecuación 2.40.

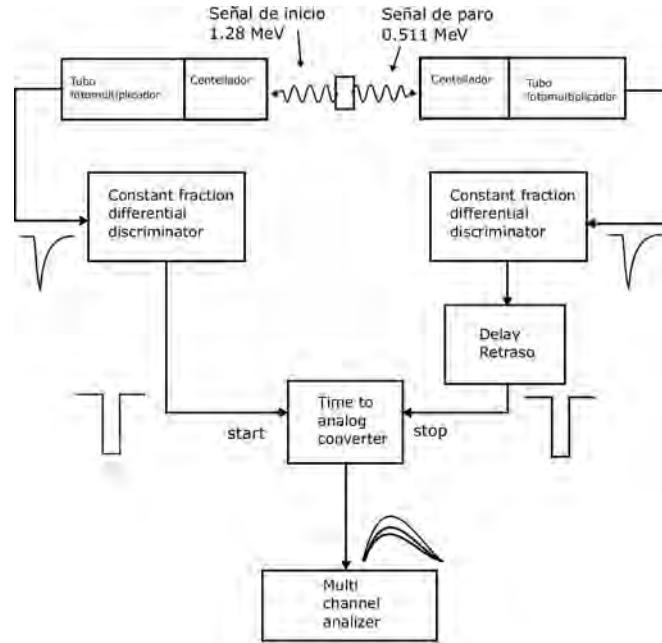


Figura 2.12: Esquema del sistema usado en la espectroscopía de tiempos de vida

$$N_0(t) = \sum_{i=1}^{k+1} \frac{I_i}{\tau_i} \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (2.40)$$

A partir de esta expresión  $N_0(t)$  se representa como la combinación de  $k + 1$  componentes. Este modelo considera que el material tiene  $k$  diferentes tipos de defectos que capturan positrones y donde se aniquilan.  $I_i$ ,  $\tau$  representan la intensidad de la contribución  $i$  y el tiempo de vida en este defecto, respectivamente [1].

La expresión anterior considera un sistema con resolución infinita sin embargo el espectro real debe de considerar la respuesta temporal del sistema. Generalmente se utiliza una función gaussiana para describir esta distribución en tiempo.

$$G(t) = \frac{1}{\sigma\sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{t-t_0}{\sigma}\right)^2\right] \quad (2.41)$$

$\sigma$  representa la desviación estándar de la distribución y  $t_0$  la posición del centro del pico. El valor de  $t_0$  se controla en el sistema añadiendo un retraso adicional entre la señal de inicio y la señal de paro.

Entonces, el espectro de tiempos de vida real debe ser una convolución de la función que describe la resolución del sistema  $G(t)$  junto con la función que describe la distribución de tiempos de vida  $N_0(t)$ .

$$N(t) = \int_{-\infty}^{\infty} N_0(t-t')G(t')dt' \quad (2.42)$$

# Capítulo 3

## Desarrollo experimental

En este capítulo se describen las características del equipo, la preparación de las muestras y la metodología aplicada en cada uno de los experimentos. El trabajo se enfocó en el desarrollo de la técnica de espectroscopía de ensanchamiento Doppler pero paralelamente se exploró el desarrollo de la técnica de espectroscopía de tiempos de vida.

### 3.1. Muestras irradiadas con iones y fuentes de positrones

El proceso de irradiación, como se describió en el marco teórico, consiste en hacer incidir un haz de iones seleccionados con una energía definida. Se controló la afluencia de iones, es decir la cantidad de iones que inciden por unidad de tiempo y la energía con la que los iones incidieron sobre la muestra.

En la tabla 3.1 se resumen las características de cada una de las muestras con las que se trabajó.

*Tabla 3.1: Características de las muestras que se usaron en este trabajo*

| <b>Identificador de la muestra</b> | <b>Descripción</b>   |
|------------------------------------|--|
| Testigo                            | Silicio policristalino testigo sin tratamiento             |
| Silicio c/daño                     | Silicio policristalino irradiado con iones de oro de 2 MeV |
| Lámina                             | Lámina de tungsteno testigo sin tratamiento                |
| Lámina tratada                     | Lámina de tungsteno calentada                              |

## 3.2. Dispositivo experimental

---

Para la espectroscopía de tiempos de vida se utilizaron dos fuentes radiactivas, una fuente de sodio-22 encapsulada en lucita (polimetilmetacrilato) y otra fuente de sodio-22 encapsulada depositada entre dos hojas de mylar.

El arreglo de fuente y muestras se colocó entre dos colimadores de plomo con una apertura de 2 mm de diámetro. La función de los colimadores es atenuar la cantidad de fotones que llega a los detectores.

La atenuación de los rayos gamma en los colimadores de plomo se calcula con la siguiente relación:

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (3.1)$$

Donde  $I$  e  $I_0$  representan la intensidad de la radiación al pasar un espesor  $t$  del material y la intensidad incidente, respectivamente.  $\mu$  es el coeficiente lineal de atenuación que es una cantidad que depende del material sobre el que incide y de la energía de la radiación incidente. Por ejemplo, el colimador de plomo de 1 cm de espesor atenúa los fotones de aniquilación de 511 keV a 16% [23].

## 3.2. Dispositivo experimental

La estructura general de este tipo de sistemas se describió en el marco teórico, pero en esta sección se describe de manera más completa y con aspectos técnicos.

### 3.2.1. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler con coincidencia (C-DBS)

En la figura 3.1 se puede observar el diagrama esquemático del sistema de coincidencia utilizado para la espectroscopía Doppler, cuando se utilizó el detector de germanio en coincidencia con el detector centellador de NaI(Tl).

### 3.2. Dispositivo experimental

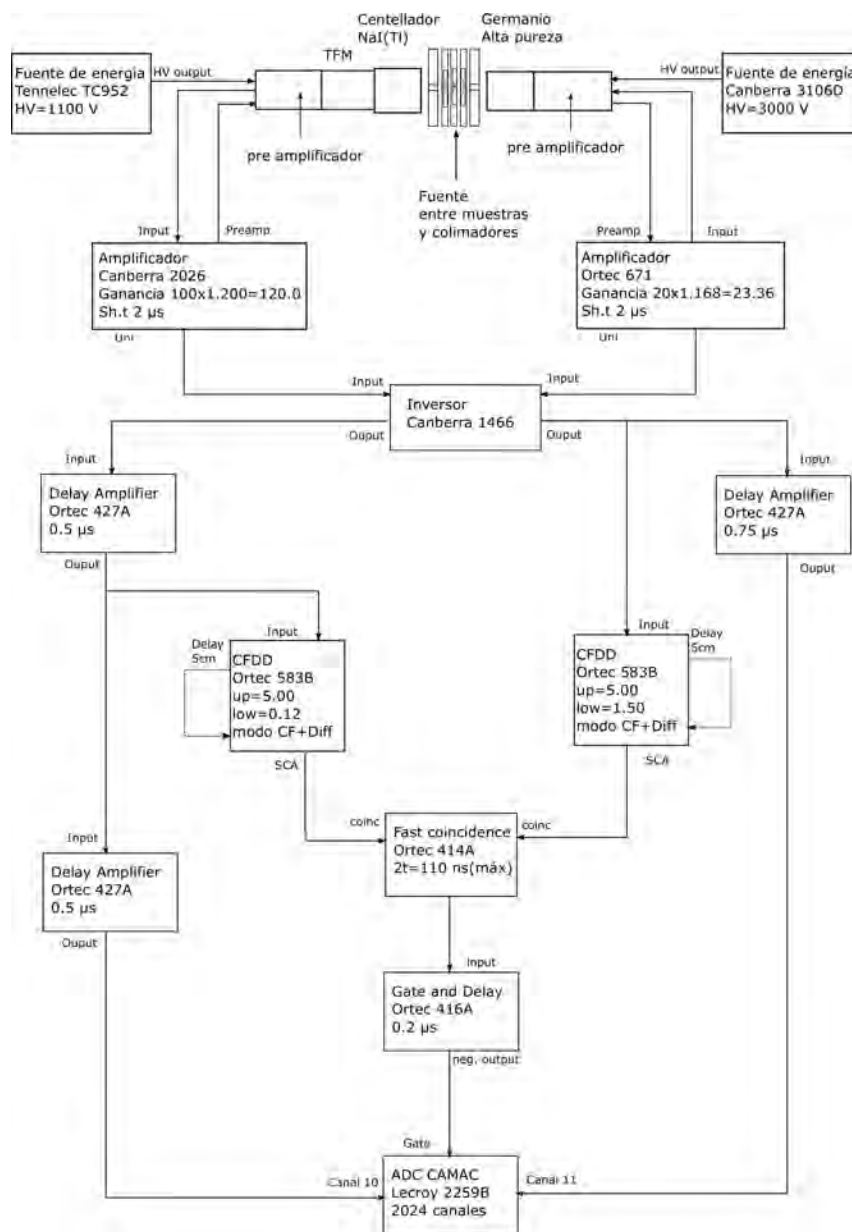


Figura 3.1: Descripción en bloques del sistema DBS utilizando el detector de germanio junto con el centellador de NaI(Tl).

En la figura 3.2 se muestra el diagrama esquemático del sistema utilizado para la espectroscopía de ensanchamiento Doppler de la radiación de aniquilación cuando se utilizaron dos detectores de germanio.

## 3.2. Dispositivo experimental

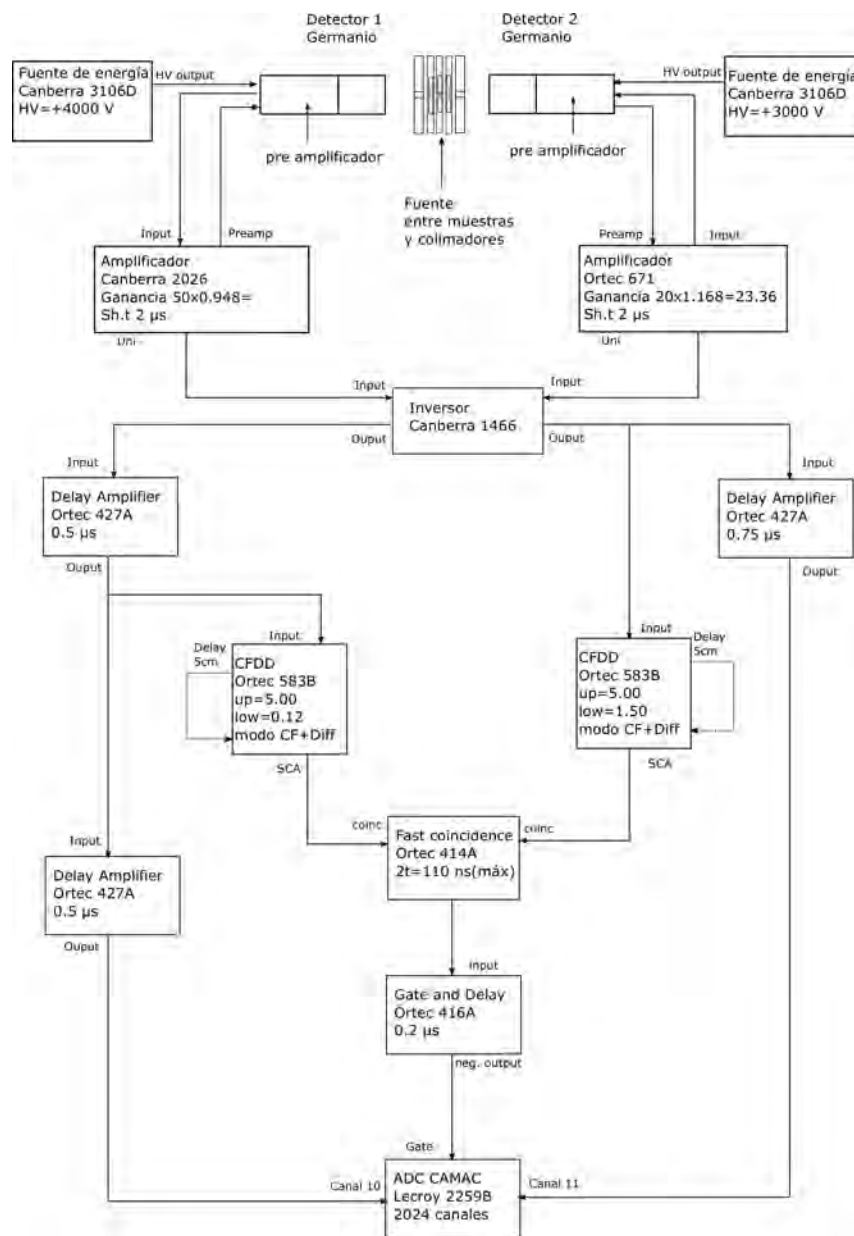


Figura 3.2: Descripción en bloques del sistema DBS utilizando dos detectores de germanio.

Arreglos similares a éste se han utilizado en diversos trabajos como en los trabajos de las referencias [24, 25].

### 3.2.1.1. Detectores de germanio

En general existe una gran variedad de detectores de radiación, cada uno con diferentes cualidades que deben de ser consideradas al momento de diseñar un experimento.



### 3.2. Dispositivo experimental

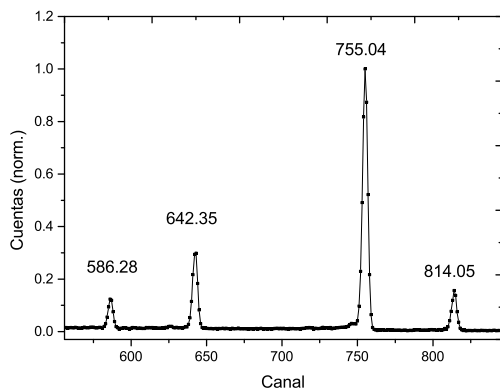
---

En el caso de este trabajo se utilizaron dos clases de detectores, todos sensibles a la radiación gamma, dos detectores de germanio de alta pureza del tipo coaxial y diversos tipos de detectores de centelleo.

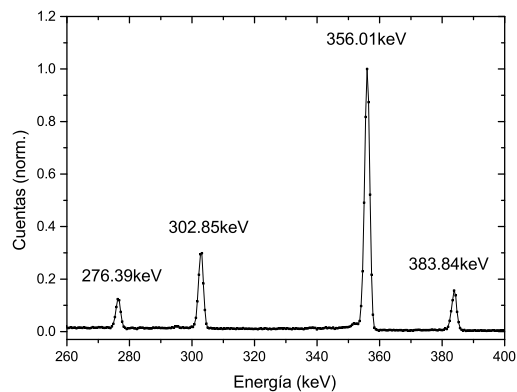
La resolución del detector de germanio del orden de 2-4 keV es la principal característica que lo hace adecuado para la espectroscopía de ensanchamiento Doppler. Como se mencionó en el marco teórico los cambios en energía debidos a este efecto son del orden de algunos keV. En los experimentos se utilizó una fuente de bario-133 para hacer la calibración en energía y a su vez para obtener una estimación de la resolución de los detectores por medio del valor FWHM ("Full Width Half Maximum.<sup>en</sup> inglés o ancho a la mitad de la altura).

Por ejemplo, para el detector de germanio al que identificamos con el número 1 la figura 3.3 muestra los picos de energía que se usaron para hacer las calibraciones.

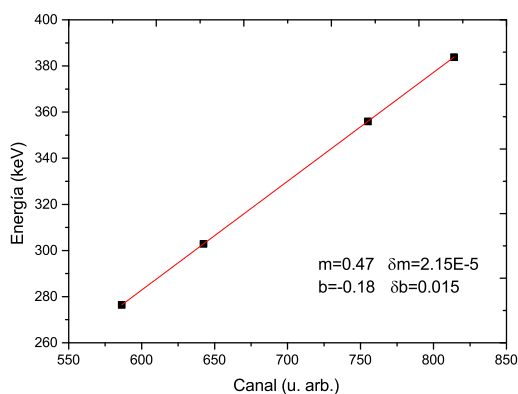
### 3.2. Dispositivo experimental



a) Espectro en función del canal



b) Espectro de energía ya calibrado



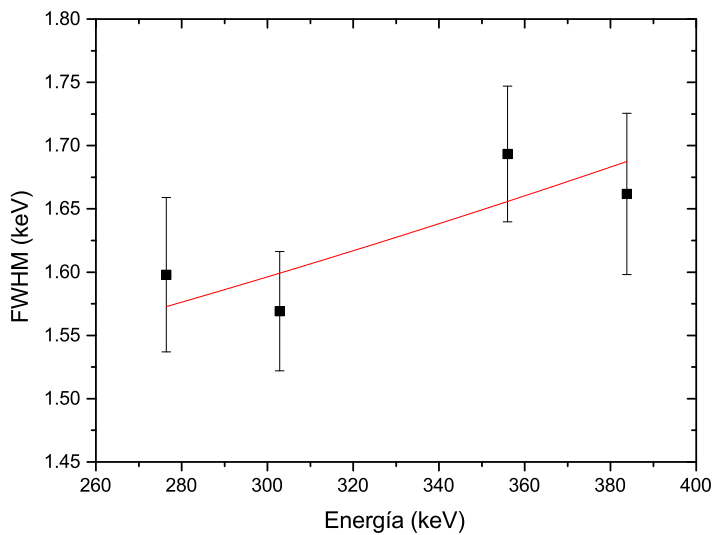
c) Calibración energía vs canal para el detector 1

Figura 3.3: a) y b) Espectros para la fuente de bario-133 registrados en el detector de germanio 1, en función del canal y de la energía, respectivamente. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. c) Gráfica de energía vs. canal para los puntos que se usaron para hacer la calibración.

A partir de esta información se obtuvo el valor FWHM para cada uno de los picos, representado en la figura 3.4, lo que permitió obtener una estimación de la resolución en energía del detector 1 de 1.85 keV en el canal de 511 keV.

## 3.2. Dispositivo experimental

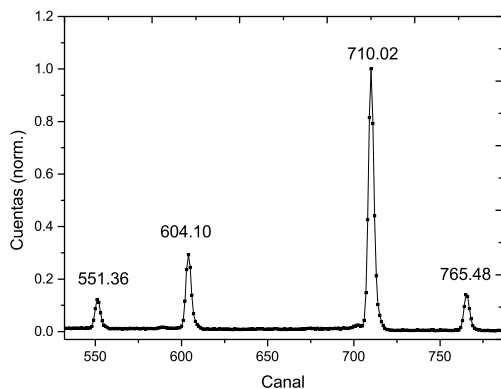
---



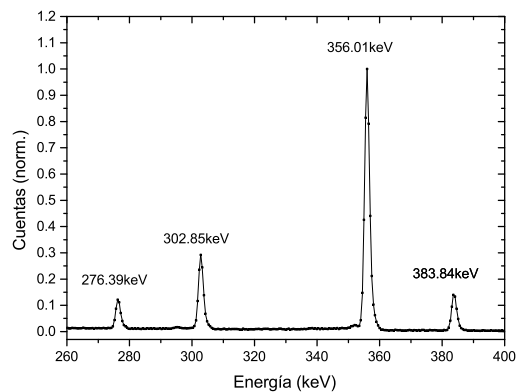
*Figura 3.4: Gráfica de energía para la fuente de bario-133 registrado en el detector de germanio 1. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración.*

Análogamente se obtuvo el espectro de energía para la misma fuente de bario-133 en el detector de germanio 2.

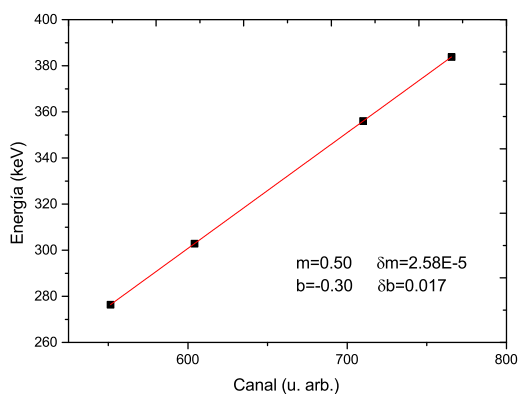
### 3.2. Dispositivo experimental



a) Espectro en función del canal



b) Espectro de energía ya calibrado



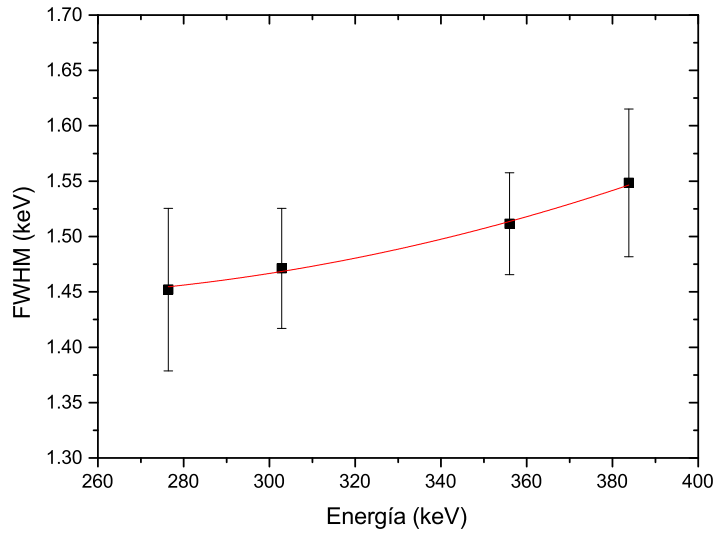
c) Calibración energía vs canal para el detector 2

Figura 3.5: a) y b) Espectros para la fuente de bario-133 registrados en el detector de germanio 2. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración. c) Gráfica de energía vs. canal para los puntos que se usaron para hacer la calibración.

Entonces el valor FWHM para estos picos se muestra en la figura 3.6, con el que se obtuvo una extrapolación del FWHM de 1.78 keV para el canal de 511 keV para el detector 2.

### 3.2. Dispositivo experimental

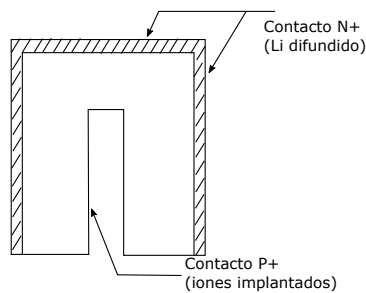
---



*Figura 3.6: Gráfica de energía para la fuente de bario-133 registrado en el detector de germanio 2. Se muestran los picos de energía que se usaron para hacer la calibración.*

A partir de esto se puede observar la dependencia creciente del valor FWHM en función de la energía, como se describe en la referencia [26].

El detector de germanio coaxial está compuesto por un cristal de germanio de alta pureza, tiene una estructura de diodo P-I-N (positivo-intrínseco-negativo), se representa esquemáticamente en la figura 3.7, donde la región sensible es la sección intrínseca. Debido a que el germanio tiene una brecha prohibida relativamente pequeña debe ser enfriado a temperatura de nitrógeno líquido (77 K) para reducir el ruido electrónico debido a excitaciones térmicas [27].



*Figura 3.7: Esquema de la sección lateral del detector de germanio coaxial, detector de germanio de alta pureza o detector de germanio hiper-puro.*

## 3.2. Dispositivo experimental

---

Cuando un rayo gamma incide dentro de la región sensible del detector de germanio se generan cargas libres que son barridas a los electrodos por el potencial de polarización. Esta carga se colecta y se convierte en un pulso de voltaje por medio de un pre-amplificador, que se envía a un amplificador de espectroscopía.

Además, se decidió utilizar una configuración de coincidencia con una ventana de 110 ns, la cual requiere el uso de dos detectores colocados colinealmente. Al principio se utilizó un detector de germanio junto a un detector del tipo centellador, formado por un cristal de NaI(Tl) acoplado a un tubo foto-multiplicador. En la sección de espectroscopía de tiempos de vida se describen con mayor detalle las características de los detectores de centelleo.

La segunda configuración que se utilizó consistió en dos detectores de germanio colocados colinealmente junto con el sándwich muestra-fuente-muestra. El sistema que utiliza dos detectores de germanio en coincidencia tiene ventajas considerables en la resolución de los espectros de energía.

### 3.2.1.2. Amplificadores

La salida de cada pre-amplificador se conectó a un amplificador de espectroscopía, éste tiene la función de aumentar la amplitud de los pulsos de voltaje a un valor adecuado para ser procesados por el analizador multicanal o el sistema digitalizador.

Los amplificadores también tienen la función de generar pulsos con una forma más adecuada que permita hacer la medida de la amplitud de manera directa [23]. Otro parámetro importante del amplificador es el tiempo de formación de pulso. Debido a que le toma un tiempo finito a la carga ser colectada, un tiempo de "integración" demasiado corto da paso a una colección de carga incompleta haciendo que algunos pulsos tengan una amplitud menor que la que deberían tener. Esto provoca que el pico en el espectro de energía sea más ancho y disminuya la resolución del sistema.

El primer detector de germanio se utilizó junto con un amplificador Ortec modelo 671, la ganancia que se utilizó fue de  $50 \times 0.948$  y un tiempo de formación de pulso de 2  $\mu$ s con forma gaussiana. El detector centellador de NaI(Tl) se utilizó con el amplificador marca canberra modelo 2026, la ganancia que se utilizó fue de 500 y el tiempo de formación de pico de 2  $\mu$ s.

El segundo detector de germanio se utilizó con el amplificador marca Canberra modelo 2026, la ganancia que se utilizó fue de  $20 \times 1.168$  y el tiempo de formación de pico de 2  $\mu$ s.

Para estos amplificadores los pulsos de entrada pueden ser positivos o negativos, esto se selecciona con un interruptor en la parte delantera. La salida de estos amplificadores es una señal análoga positiva proporcional al pulso de entrada.

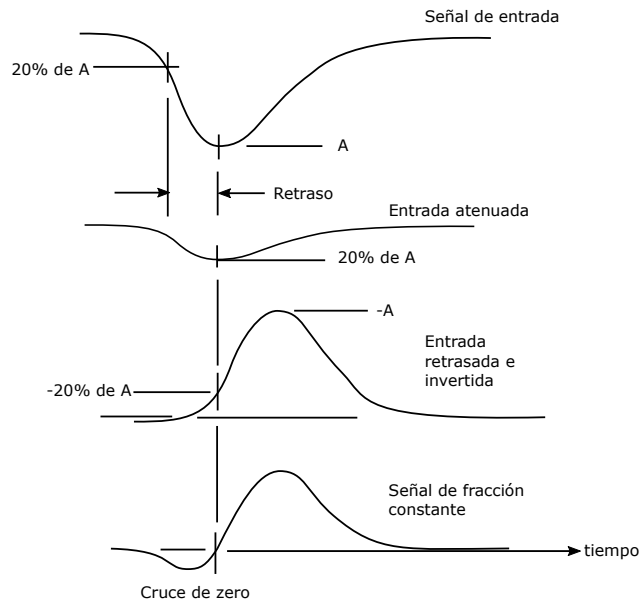
### 3.2.1.3. Discriminador de fracción constante

La salida de cada uno de los amplificadores se conectó a un módulo discriminador diferencial de fracción constante. Éste tiene la función de generar una señal de salida

### 3.2. Dispositivo experimental

---

solo cuando la amplitud del pulso de entrada se encuentra por arriba de un umbral inferior y por debajo de otro umbral superior. Ambos valores se pueden seleccionar por medio de perillas en la parte frontal del módulo para definir una ventana de voltaje. El discriminador de fracción constante funciona de tal manera que cada vez que hay una señal de entrada, ésta es retrasada y una fracción de la señal original es restada. Esta resta genera una señal bipolar que cruza el valor cero cuando la señal retrasada tiene un valor de 20%. Este proceso se representa en la figura 3.8.



*Figura 3.8: Proceso para generar la señal de fracción constante. El momento en que esta señal cruza el zero indica el momento en se produce la señal de salida.*

Este proceso tiene la ventaja de generar los pulsos de salida con mayor precision en tiempo evitando que esto dependa de la amplitud del pulso original. Esto se muestra en la figura 3.9.

### 3.2. Dispositivo experimental

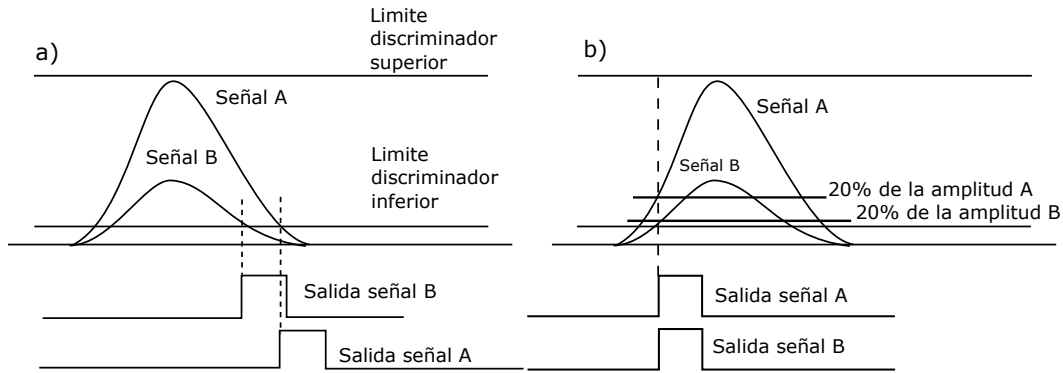


Figura 3.9: Comparación entre discriminadores SCA (a) convencionales y de (b) fracción constante. Se puede observar que el sistema de fracción constante elimina la diferencia en tiempo de las salidas [28].

El módulo que se utilizó fue el Ortec 583B, funcionando en el modo diferencial y en el modo *constant fraction*. En este módulo se utiliza un cable externo para generar el retraso entre señales. El discriminador inferior tiene un valor mínimo de 30 mV y el superior un valor máximo de 5 V. Los discriminadores superiores se colocaron en su valor máximo, mientras que los discriminadores inferiores se colocaron en 50 mV, ligeramente arriba del mínimo para filtrar las señales de ruido. Cada módulo tiene dos salidas que producen pulsos con el estándar para medir tiempo (pulsos de duración de nano-segundos) y una salida lógica positiva del tipo “*single channel analyzer* o SCA”.

Generalmente en sistemas de detección las señales pueden transmitirse en forma de dos tipos de pulsos. Pulsos lógicos rápidos negativos de 700 mV, en sistemas con impedancias de 50  $\Omega$  y de 20 ns de duración. Éstos son usados principalmente para medir tiempos de vida. Pulsos lógicos lentos positivos de 5 V y 500 ns de duración, usados para análisis de energía, señales de compuerta y otros procesos lógicos.

#### 3.2.1.4. Módulo de coincidencia

El sistema de coincidencia temporal permite reducir la señal de fondo haciendo que solo se registren los fotones generados simultáneamente en la aniquilación. La parte principal del sistema de coincidencia es el módulo 414A Fast coincidence, éste tiene tres entradas para coincidencia y una para anti-coincidencia, el valor mínimo para estas entradas es 2 V y el máximo es 50 V. Cada una de las salidas SCA del discriminador se conectó a una entrada de coincidencia de este módulo. Cuando dos pulsos entran en el módulo de coincidencias se generan pulsos con nuevas formas y duración  $\tau$ , la condición de coincidencia se cumple si al sumarse se sobreponen. Este proceso se representa en el diagrama de la figura 3.10. El valor de  $2\tau$  corresponde a la ventana de coincidencia, en el módulo que se utilizó puede seleccionarse un valor entre 10 ns y 110 ns. Durante los experimentos se utilizó un tiempo de coincidencia de  $2\tau = 110$  ns.



## 3.2. Dispositivo experimental

---

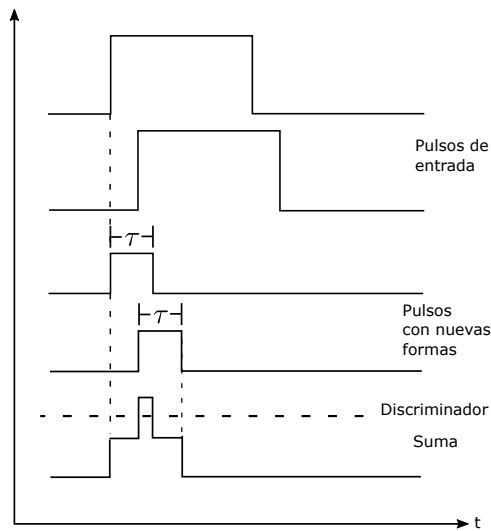


Figura 3.10: Esquema que representa la suma de los pulsos para cumplir la condición de coincidencia.

Cuando dos señales llegan en coincidencia se genera un pulso lógico de 5 V de amplitud y 500 ns de duración.

Cuando se utiliza el sistema de coincidencia se pueden reducir las señales de fondo. A pesar de esto en la sección de baja energía del pico de aniquilación hay contribuciones de otros efectos como fotones compton, pulsos de colección de carga incompleta, etc.

La salida del módulo de coincidencias se conectó a un módulo generador de compuertas o *gate and delay generator* marca Ortec modelo 416A. Ese permite generar un pulso lógico cuadrado de amplitud y duración adecuados.

### 3.2.1.5. Digitalizadores

A lo largo de todo el trabajo se utilizaron tres sistemas de adquisición distintos. Se utilizaron el analizador multi-canal de la marca *Spechttech* modelo UCS30, el analizador multi-canal *ORTEC* modelo 927 y el módulo ADC<sup>1</sup> marca *LeCroy* modelo 2250A, este último funciona con el estándar CAMAC<sup>2</sup>, para mayor información revisar la referencia [28].

En general los sistemas de digitalización de señales pueden ser sensibles a la carga o al voltaje [14]. En este trabajo se utilizaron únicamente los del segundo tipo.

Existen algunos efectos que deben de considerarse con la adquisición de datos. Por ejemplo, cuando dos pulsos están muy cerca temporalmente para ser identificados de manera separada se llama apilamiento o *pile-up*, e impide que se conozca la energía de los pulsos separados.

---

<sup>1</sup>Acrónimo de *Analog to Digital Converter* o convertidor de señales análogas a digitales.

<sup>2</sup>Acrónimo de *Computer Automated Measurement And Control*.

**3.2.1.6. Programa de adquisición de datos**

Para la adquisición de datos con el ADC CAMAC se construyeron programas en la plataforma LabView 7. Cada programa funciona como un instrumento virtual donde se introduce el nombre del archivo en que se almacena la información. El programa funciona de la siguiente manera: cuando una señal llega a la entrada *gate* del ADC el programa indica que se debe de almacenar el valor de las señales en las entradas analógicas correspondientes a los detectores que se están utilizando. La señal *gate* se genera por el módulo de coincidencias como se mencionó antes.

Posteriormente estos números son almacenados en forma de una lista de dos columnas, donde los números de cada columna representan la energía de los fotones que llegan a cada detector en coincidencia. Debemos de recordar que, como se observa en la figura 3.1, la señal *gate* se genera a partir del módulo de coincidencias.

Además de este programa para manejar el ADC, se desarrollaron otros programas en LabView para procesar y graficar las listas de resultados.

Se construyó otro programa con la interfaz LabView para obtener la suma de estas listas proyectadas para cada detector, de esta manera se obtiene el espectro de energía para cada detector.

Además, se construyó un programa para organizar los datos de las listas en nuevos archivos donde los datos tienen forma de matriz, representado en la figura 3.11. En estas matrices el número en cada entrada representa la cantidad de eventos en la lista original, que tienen el mismo par de números. Para estos elementos la primera coordenada corresponde al canal/energía del detector 1, mientras que la segunda coordenada representa la energía del detector 2.

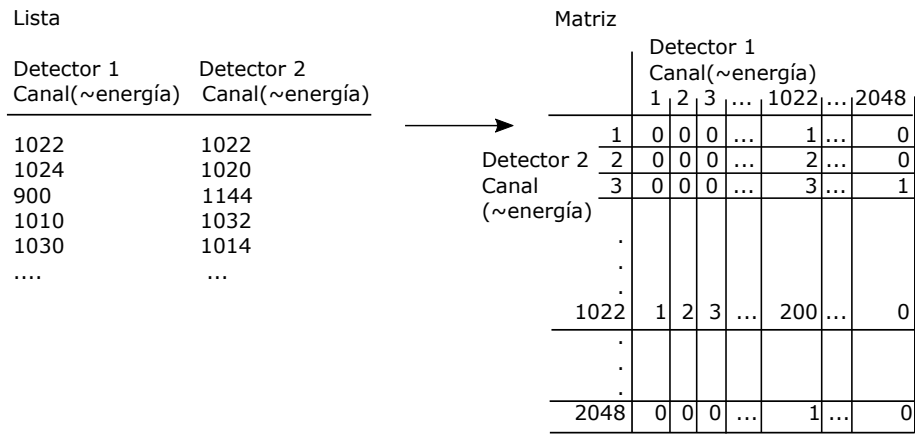


Figura 3.11: Izquierda, representación del archivo lista resultado del ADC, donde cada columna representa la energía que cada detector registra de manera simultánea. Derecha, representación de un archivo con datos en forma de matriz. En este caso se muestra que hubo 200 eventos donde el detector 1 registró un fotón con energía correspondiente al canal 1022 y simultáneamente el detector 2 registró un fotón con energía correspondiente al canal 1022.

## 3.2. Dispositivo experimental

---

Estas matrices se graficaron como histogramas de dos dimensiones en el programa de análisis de datos OriginLab, a partir de éstos se puede determinar la región de interés. Finalmente se construyó un programa en lenguaje Python para hacer la calibración, sumar los datos de la región de interés y obtener el espectro de energía proyectado sobre la diagonal  $E_1 + E_2 = 1022$  keV

### 3.2.1.7. Procedimiento

En esta sección se describen los pasos que se siguieron al realizar cada uno de los experimentos.

El primer paso consistió en hacer las conexiones y fijar los parámetros como se muestra en las figuras 3.1 y 3.2.

La siguiente parte fue polarizar los detectores. El voltaje en la fuente de poder del detector de germanio puede variarse continuamente y se debe de tener cuidado de aumentarlo lentamente (10 V/s), la razón de esto es que el transistor de efecto de campo (FET) del pre-amplificador puede ser dañado por cambios de voltaje repentinos[29]. También debe de polarizarse el segundo detector, ya sea el detector centellador de NaI(Tl) o el segundo detector de germanio.

Para determinar el valor de la amplificación se adquirió cada espectro de manera independiente en el analizador multicanal y de esta manera se determinó la posición más adecuada para medir el espectro de energías.

Durante este proceso de ajuste se utilizó un osciloscopio para observar la salida de las señales a través de cada módulo de manera independiente. Cada una de estas señales se representan en la figura 3.12.

### 3.2. Dispositivo experimental

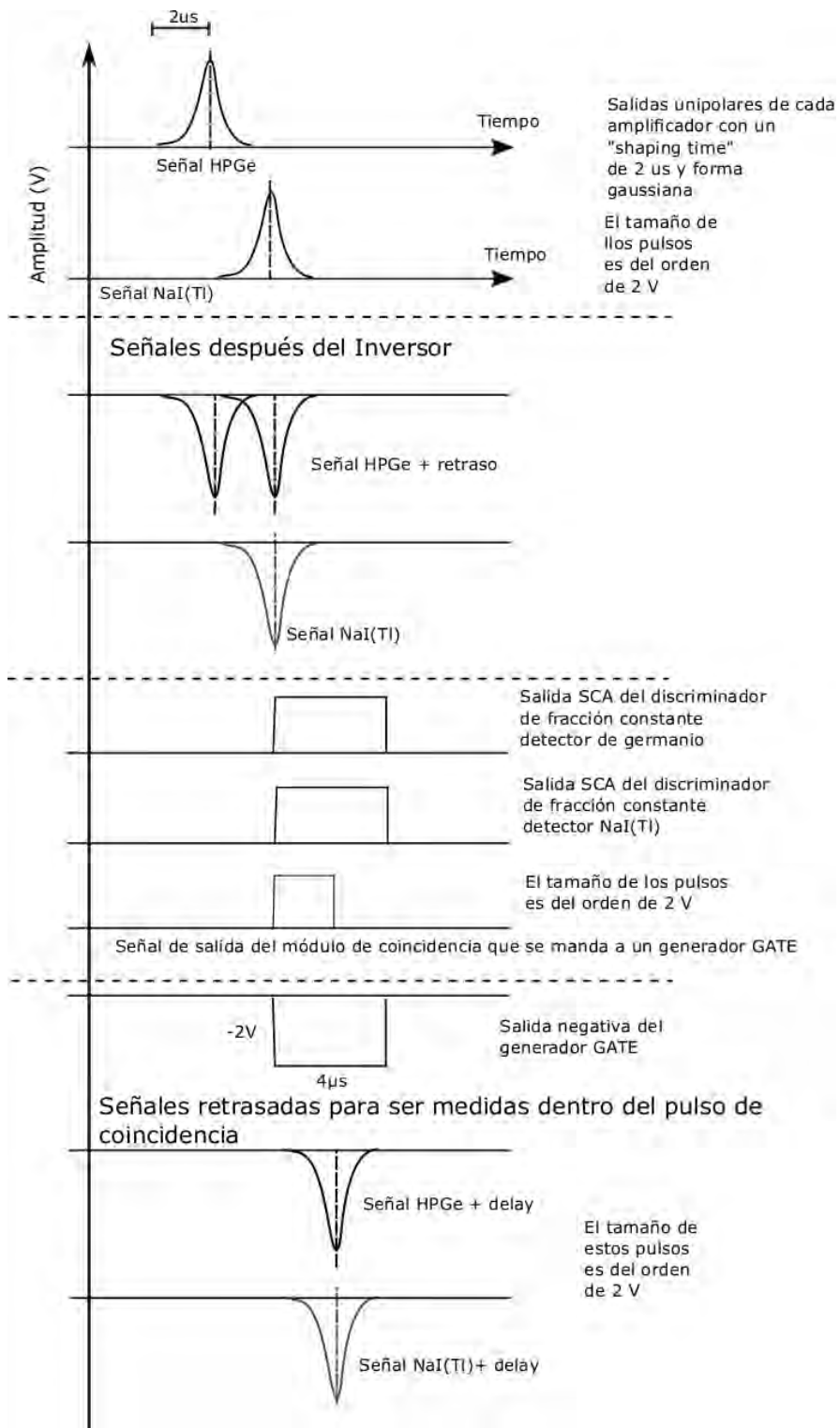


Figura 3.12: Diagrama en que se muestran las señales de cada una de las etapas en función del tiempo.

## 3.2. Dispositivo experimental

---

Se utilizaron fuentes de cesio-137 y bario-133 para hacer la calibración en energía. Antes de adquirir el espectro de cada muestra se adquirió el espectro de energía de alguna de estas fuentes de referencia.

Finalmente se colocó la fuente de positrones entre el par de muestras equivalente y todo esto a su vez se colocó entre los detectores. El espectro de aniquilación se adquirió hasta que se registraran del orden de  $10^3$  cuentas en el pico de aniquilación de 511 keV

### 3.2.1.8. Análisis de los espectros

A partir del espectro de dos dimensiones se define la región de interés en función de la energía. Esta región se describe con la siguiente ecuación:

$$|E_1 + E_2 - 1022 \text{ keV}| < \text{FWHM} \quad (3.2)$$

Después de seleccionar esta región se hace la proyección del histograma sobre la diagonal. Este proceso está basado en lo descrito en [30].

Finalmente se obtuvieron los valores de los parámetros S y W para estas proyecciones, para esto se utilizó el software “SW Calculator”[31], que hace el cálculo con base en lo que se describió en la sección 2.2.3.1.

### 3.2.2. Espectroscopía de tiempo de vida (PLS)

En la figura 3.13 se muestra el arreglo de los detectores y la conexión de los módulos del sistema de espectroscopía de tiempos de vida. Algunos de los módulos de este sistema se usaron también para el sistema de espectroscopía Doppler por lo que solo se describirá el modo en que se usaron para este sistema sin repetir cuestiones de funcionamiento.

### 3.2. Dispositivo experimental

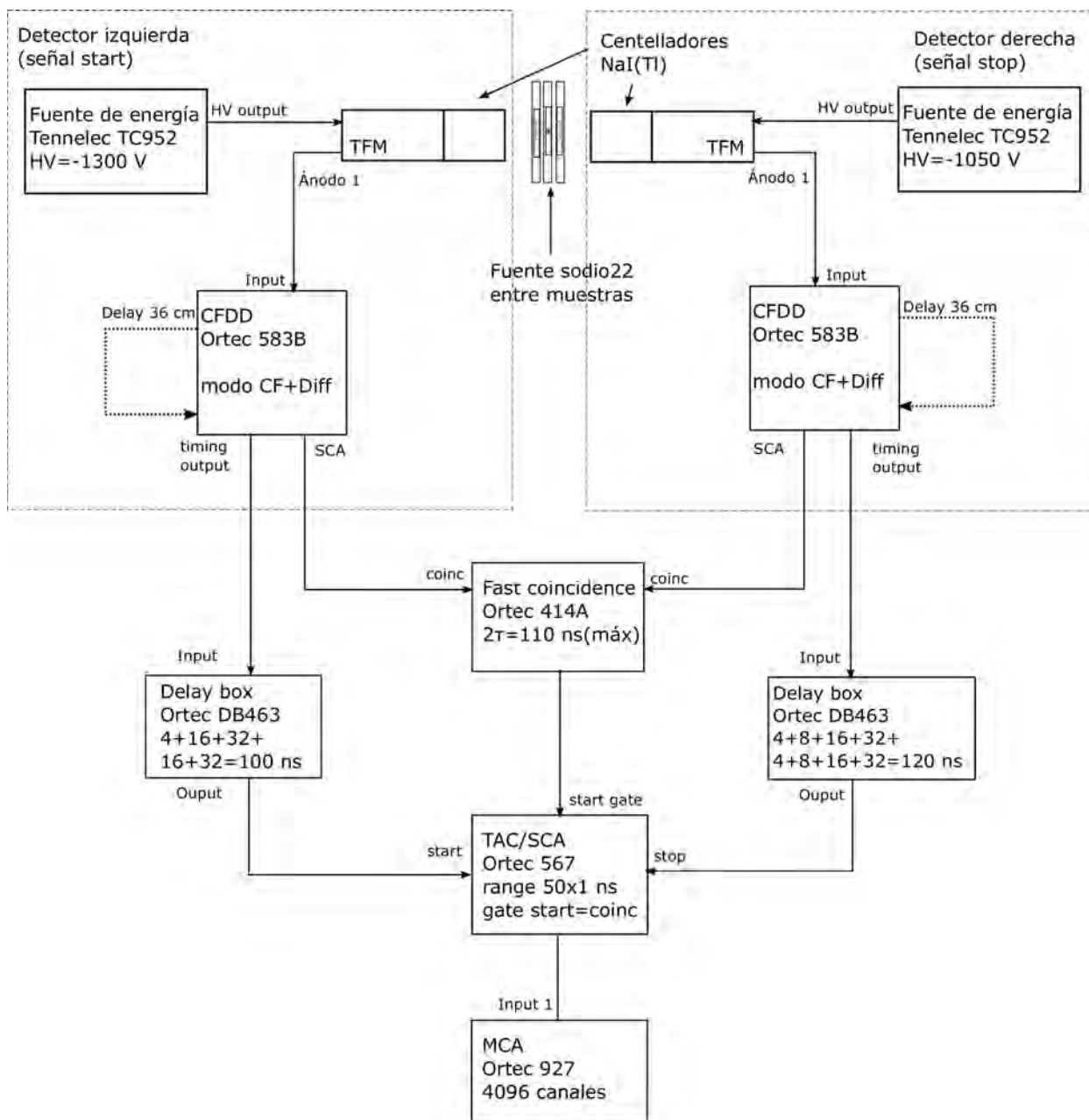


Figura 3.13: Sistema de espectroscopía de tiempo de vida con detectores centelladores NaI(Tl). TFM se refiere a tubo foto-multiplicador. CFDD se refiere a constant fraction differential discriminator o discriminador de fracción constante

#### 3.2.2.1. Detectores de centelleo y foto-multiplicadores

Los detectores del tipo centellador funcionan con el fenómeno de luminiscencia. Cuando la radiación ionizante, como un rayo gamma, llega a la región sensible, parte

### 3.2. Dispositivo experimental

---

de la energía provoca excitaciones que producen la emisión de luz visible. Otra parte de esta energía se disipa en forma de vibraciones de la red o calor [12].

Existen diversos tipos de materiales centelladores, pueden ser orgánicos e inorgánicos. El proceso de luminiscencia es distinto para estas dos clases de materiales, en el caso de los centelladores orgánicos la emisión se debe a transiciones en niveles de energía de moléculas individuales. Esto permite que el mismo centellador pueda funcionar como sólido, gas o hasta en solución. En los centelladores inorgánicos cristalinos la luminiscencia también es producida por transiciones de electrones entre niveles de energía, pero estos niveles de energía están determinados por la estructura del material. Debido a que la diferencia de energía entre la banda de valencia y la banda de conducción generalmente es grande comparada con la energía de la luz visible en muchos tipos de centelladores se agregan pequeñas cantidades de impurezas (llamados activadores) que producen estados de energía dentro de la banda prohibida. Las transiciones entre estos nuevos estados producen luminiscencia en el espectro visible. Esto se representa en la figura 3.14.

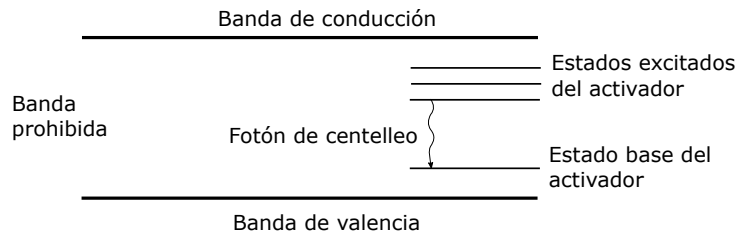


Figura 3.14: Representación de los niveles de energía para un centellador cristalino activado [12].

Para que un material centellador funcione eficientemente es preferible que tenga un índice de refracción cercano al del vidrio ( $\sim 1.5$ ), debe ser suficientemente transparente a la luz que emite y la conversión de energía a luz casi lineal [12].

Los centelladores tienen una respuesta temporal caracterizada por un pulso que crece rápidamente y decae lentamente. Por ejemplo, para un centellador plástico el tiempo de subida del pulso de luz es  $\sim 0.4$  ns y decae lentamente ( $\sim 1.6$  ns)

En este caso se utilizó un cristal de yoduro de sodio dopado con talio, que está rodeado por una capa de material difusor. Ya que el NaI(Tl) es un material higroscópico debe estar encapsulado con una capa de aluminio excepto por una cara que tiene una ventana transparente. Por medio de esta ventana transparente el centellador se acopla a un tubo foto-multiplicador que se encarga de convertir la señal luminosa en una señal eléctrica.

Los tubos foto-multiplicadores son dispositivos construidos para convertir señales luminosas en señales eléctricas. Cuando llega luz al foto-cátodo libera electrones a través

### 3.2. Dispositivo experimental

del efecto foto-eléctrico, posteriormente estos electrones son enfocados y acelerados al primer dínodo, que forma parte de un sistema de multiplicación de electrones, cada electrón incidente genera una gran cantidad de electrones secundarios. Estos electrones secundarios a su vez son acelerados y enfocados a un segundo dínodo. Los electrones liberados en el ultimo dínodo son colectados en el ánodo. La cantidad de electrones secundarios que se liberan en cada dínodo depende de la energía del electrón incidente. Esta energía se controla con el potencial de polarización en cada dínodo que se suministra a través de la fuente de poder y un divisor de voltaje.

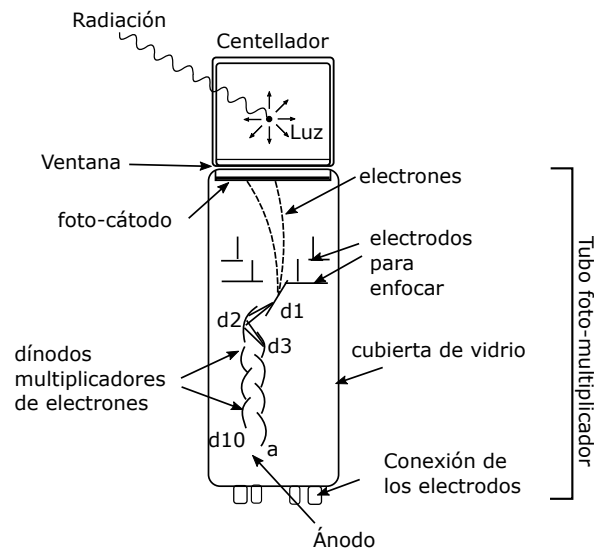


Figura 3.15: Esquema del tubo foto-multiplicador acoplado con el cristal centellador. Basado en la figura y la información de los trabajos de las referencias [32, 33].

La respuesta temporal de los foto-multiplicadores está caracterizada por tres parámetros principales; el tiempo de tránsito ( $t_t$ ), el ancho del pulso a la mitad de amplitud (FWHM) y el tiempo que le toma al pulso tener 90% de la amplitud ( $t_r$ ). Esto se representa en la figura 3.16.



### 3.2. Dispositivo experimental

---

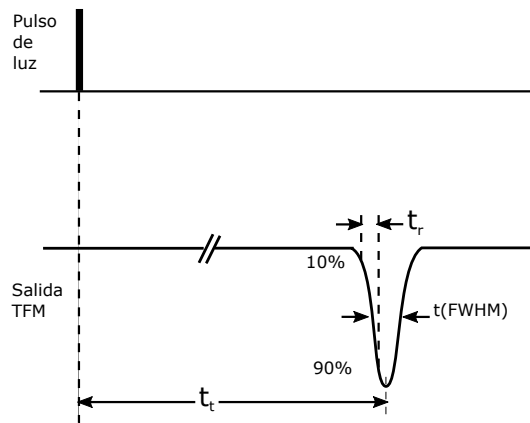


Figura 3.16: Diagrama que representa la respuesta temporal de un tubo foto-multiplicador

Se utilizaron dos configuraciones con distinto par de detectores. Al principio se utilizó un par de centelladores NaI(Tl) acoplado cada uno a un tubo foto-multiplicador modelo THORN EMI 9903KA.

Además se utilizaron otros dos centelladores plásticos (BC-408) de forma de prisma hexagonal con 30 cm de largo y 5 cm de apotema. Se acoplaron igualmente a tubos foto-multiplicadores modelo THORN EMI 9903KA por medio de guías de onda y grasa óptica.

#### 3.2.2.2. Discriminadores de fracción constante (II)

En ambos experimentos DBS y PLS se utilizaron discriminadores de fracción constante. Los discriminadores de fracción constante usados, marca Ortec modelo 583B, tienen la capacidad de poder recibir las señales directamente del ánodo de los foto-multiplicadores sin pasarlos por un amplificador. Se debe tener en cuenta que el valor mínimo que puede tener la señal entrada es de 30 mV.

En los experimentos de espectroscopía de tiempo de vida las señales de uno de los detectores se utiliza como señal de inicio (“start”), mientras que las señales del otro detector se utiliza como paro (“stop”).

En la fuente de sodio-22 el fotón de 1274 keV indica el momento en que un positrón es emitido desde la fuente. Entonces los límites del discriminador conectado al detector “start” se ajustaron de tal manera que solo se incluyan los eventos de 1274 keV de energía. En el caso del detector de “stop” la ventana del discriminador se ajustó de tal manera que se incluyeran solo los eventos de 511 keV de energía, que corresponden a los fotones de aniquilación.

### 3.2.2.3. Módulo de coincidencias

Si la tasa de eventos es alta y hay señales *start* sin señales *stop* puede llegar a aumentar el *tiempo muerto*. Entonces la salida del módulo de coincidencias se conecta a la entrada *gate* de la señal *start* para indicar que solo las señales que llegan dentro de la ventana temporal de coincidencias de 110 ns se van a medir.

En los experimentos de espectroscopía de tiempo de vida se conectaron las salidas SCA de los discriminadores de fracción constante de la misma manera que se hizo en los experimentos de espectroscopía de ensanchamiento doppler en coincidencia.

### 3.2.2.4. Caja de retraso

Es un hecho que una señal eléctrica se transmite a una velocidad finita a través de un conductor. Por ejemplo, para hacer las conexiones entre los módulos se utilizaron cables coaxiales clase RG-58 que tienen una impedancia de  $50 \Omega$  y una velocidad del orden de  $2 \times 10^8$  m/s [34].

En los experimentos de espectroscopía de tiempo de vida los módulos para las señales de *start* y *stop* se conectaron con cables de la misma longitud, como se muestra en la figura 3.13, de tal manera que el recorrido de las señales sea prácticamente el mismo y el retraso entre ambas sea controlado con la caja de retraso.

Para estos retrasos se utilizó la caja de retraso marca Ortec modelo DB463. Esta cuenta con cuatro secciones donde cada sección tiene un retraso de 0 a 63.5 ns con incrementos de 0.5 ns. Este módulo tiene básicamente dos funciones, poder hacer un *offset* y una calibración del espectro de tiempos de vida.

Ambas señales de los detectores se retrasan, la señal de *start* se retrasa lo suficiente para llegar después de la señal *gate* del módulo de coincidencias. Este tiempo se ajustó a 100 ns. La señal de *stop* se retrasa lo suficiente para llegar después de la señal *start* y se localice a la mitad del espectro del multicanal, este tiempo se ajustó a 120 ns.

### 3.2.2.5. Convertidor de tiempo a amplitud

Para obtener los intervalos de tiempo se utilizó un convertidor de tiempo a amplitud (TAC) marca Ortec modelo 567. Cuando este módulo recibe una señal de *start* y posteriormente una señal de *stop* genera una salida análoga con amplitud proporcional al intervalo de tiempo entre ambas señales de entrada. Los intervalos de tiempo que se pueden medir van desde los 50 ns a los 2 ms.

Como se muestra en la figura 3.13, se utilizaron las salidas *timing* de los discriminadores de fracción constante para indicar el *start* y el *stop* en el convertidor de tiempo a amplitud. Como se mencionó antes, la salida del módulo de coincidencias se hace pasar por un generador de señales lógicas y la salida de este se conecta a la entrada del *gate start* para indicar que solo se midan los intervalos menores que 110 ns.

### 3.2.2.6. Digitalizador

Finalmente la salida del TAC se conectó a la entrada del digitalizador multicanal. En los experimentos de tiempo de vida el sistema de adquisición que se utilizó fue el analizador multicanal Ortec modelo A-SPEC 927 configurado para trabajar con 1024 canales.

### 3.2.2.7. Procedimiento

La primera parte consiste en realizar las conexiones y ajustar los parámetros de los módulos como se muestra en la figura 3.13.

Se debe tener cuidado de colocar los detectores y las fuentes radiactivas alejadas del lugar desde donde se operan los módulos y la computadora.

Con el sistema listo se debe de realizar la calibración en la escala de tiempo. Para esto se utilizó un generador de pulsos de la marca ORTEC modelo 419.

Se ajustó el valor de la salida atenuada del generador de pulsos y se dividió en dos señales iguales con un adaptador. Cada una de estas señales se enviaron a las entradas de los discriminadores.

El retraso de la caja de retrasos se ajusta a 100 ns y 120 ns para la señal de *start* y la señal de *stop*, respectivamente. Con esta configuración se registró el espectro a través del TAC y en el analizador multicanal. El espectro presenta eventos en un solo canal. Para hacer la calibración de tiempo se hace otra medida aumentando el retraso en la señal de *stop* por 4 ns y luego otra medida con 8 ns. Finalmente se hace un ajuste lineal del tiempo de retraso en función de la diferencia de canales. Además, se debe de sustituir la salida del generador de pulsos por las salidas de los foto-multiplicadores.

Para medir la resolución temporal del sistema se utilizó una fuente de cobalto-60 colocada entre los detectores. Esta fuente es adecuada ya que emite dos rayos gamma relativamente intensos con energías de 1332.49 keV y 1173.23 keV de manera prácticamente simultánea. A partir de este espectro de tiempo de vida se obtiene el ancho a la mitad de la altura (FWHM).

Para cada experimento se colocaron dos muestras equivalentes encerrando la fuente de sodio-22. Posteriormente este arreglo de muestras más fuente se colocó entre los detectores.

# Capítulo 4

## Resultados y Discusión

### 4.1. Alcance de iones, formación de vacancias e implantación de positrones

La primer parte consiste en analizar el efecto de la irradiación sobre las muestras de silicio. Como se mencionó en la sección 2.1, para describir la energía depositada en la muestra se utiliza el poder de frenado, éste está definido en la ecuación 2.1.

Como se muestra en la ecuación 2.4, el alcance de los iones de Au dentro de la muestra está estrechamente relacionado con el poder de frenado. En la sección 2.1 se describe la dependencia del alcance de los iones con la sección eficaz de interacciones con electrones y núcleos del material.

Por medio del código SRIM se obtuvo una estimación de la distribución de los iones dentro de la muestra como se muestra en la figura 4.1(a). La simulación se realizó para iones de oro con una energía de 2.0 MeV incidiendo de manera normal sobre un blanco de silicio, podemos observar que la distribución del alcance de los iones es continua con un máximo en 4673 Å, el valor del coeficiente de asimetría (*skewness*) es cercano a cero lo que representa que es una distribución bastante simétrica. Por otro lado en la figura 4.1(b) se muestra la distribución de vacancias generadas en el blanco de silicio. Se observa que igualmente es una distribución continua, con valor máximo en 400 nm y la mayor parte de estas vacancias está completamente contenida en una capa de 1  $\mu\text{m}$ . A partir de estas simulaciones tenemos una estimación de la distribución del daño en forma de vacancias generadas por la irradiación con iones de oro. Esta información se debe de relacionar con el alcance de los positrones dentro de la muestra y con la distribución de vacancias dentro de la misma. De esta manera nos aseguramos de que los positrones se termalizan y aniquilan en la región modificada.

#### 4.1. Alcance de iones, formación de vacancias e implantación de positrones

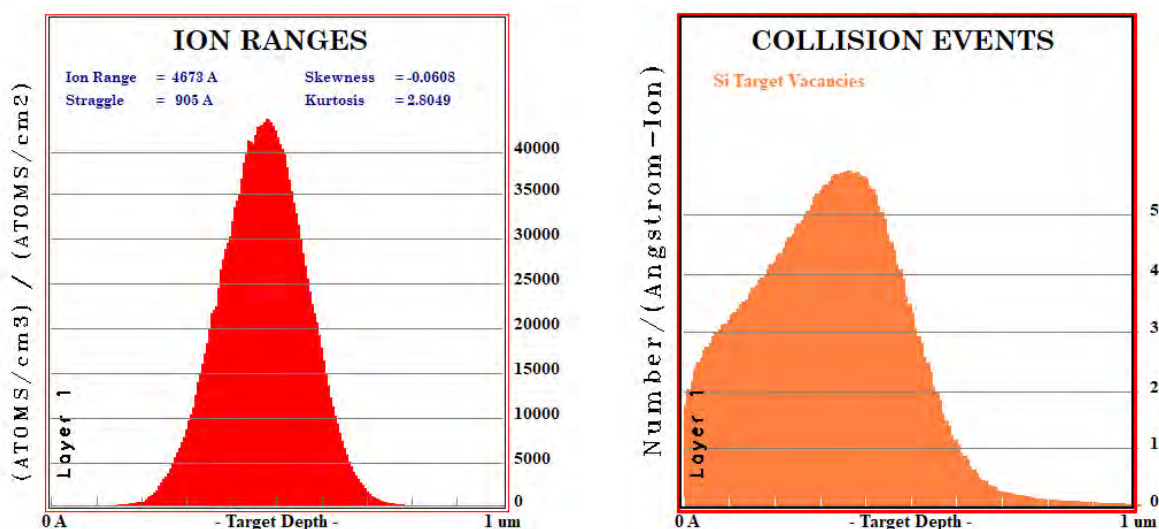


Figura 4.1: a) Distribución del alcance de los iones de oro dentro de la muestra de silicio. b) Resultado de la simulación con SRIM de las vacancias inducidas con un haz de oro con energía de 2.0 MeV sobre un blanco de silicio policristalino.

Una primera aproximación del alcance de los positrones se hizo con las tablas de la base de datos *ESTAR* disponibles en la web del *NIST* [35] sobre el poder de frenado y alcance *CSDA* (*continuous-slowing-down approximation* o aproximación de frenado continua) para electrones. Para esta aproximación se supone que el poder de frenado para este intervalo de energías entre electrones y positrones es prácticamente el mismo. En la figura 4.2 se muestra la gráfica del alcance para en silicio electrones/positrones monoenergéticos en función de la energía en un intervalo de 0-1500 keV. A partir de esta gráfica se calculó el alcance de positrones para diferentes energías. Sin embargo, para obtener una representación más precisa del alcance de los positrones emitidos por una fuente dentro del material es necesario hacer la convolución de la distribución de energías para la fuente mostrada en la figura 2.6 junto con la función de la figura 4.2.

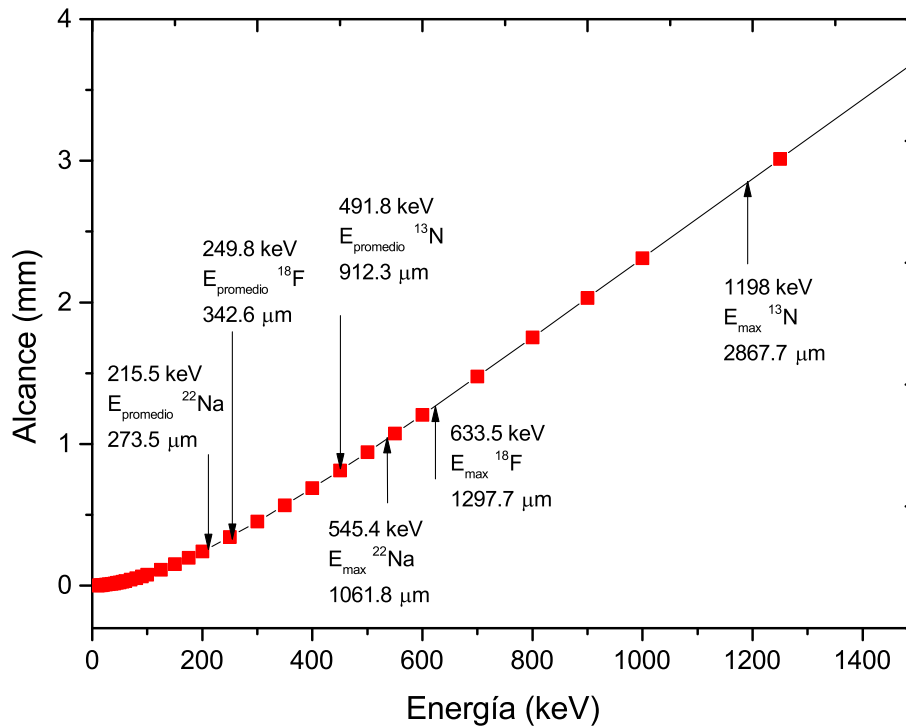


Figura 4.2: Alcance para electrones/positrones dentro de silicio en la gráfica se señala el alcance para las energías máximas y promedio para diferentes fuentes.

Paralelamente se utilizó el código CASINO (*monte CARlo SIMulation of electroN trajectory in sOLids* o simulación Monte Carlo de la trayectoria de electrones en sólidos) para hacer simulaciones del alcance de electrones de diferentes energías, correspondientes a cada una de las fuentes, dentro de un blanco de silicio. En la tabla 4.1 se resumen los resultados de estos cálculos, se muestra el alcance obtenido con la simulación CASINO para la energía promedio de la distribución de cada fuente de positrones. Además, se compara el alcance promedio obtenido con el perfil de implantación que se describió en la sección 2.2.2 y que corresponde a  $1/\alpha$  (el inverso del coeficiente de absorción para positrones en silicio.)

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

---

Tabla 4.1: Alcance de positrones dentro de la muestra de silicio obtenido con la simulación CASINO.

|              | Energía promedio positrones (keV) | Alcance energía promedio CASINO ( $\mu\text{m}$ ) | Alcance promedio perfil de implantación ( $\mu\text{m}$ ) |
|--------------|-----------------------------------|---|---|
| Sodio-22     | 215.5                             | 140.3   | 106.1   |
| Flúor-18     | 249.8                             | 177.9   | 131.4   |
| Nitrógeno-13 | 491.8                             | 509.0   | 327.1   |

A partir de esta información se observa que el alcance de los positrones es mayor que la profundidad media en que se espera que se hayan generado las vacancias. Sin embargo, el alcance de los positrones puede resultar ser mucho mayor que la profundidad de las vacancias lo que puede provocar que la tasa de positrones que se aniquilan en las vacancias sea bajo comparado con lo que podría ser si se usara un sistema con energía controlada.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

La siguiente parte describe el proceso para hacer el análisis de los espectros para obtener los parámetros S y W.

En la figura 4.4 se muestra el histograma en dos dimensiones para el experimento con la muestra de silicio con daño obtenido durante 80 horas, medido con los dos detectores de germanio y utilizando una fuente de flúor-18.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

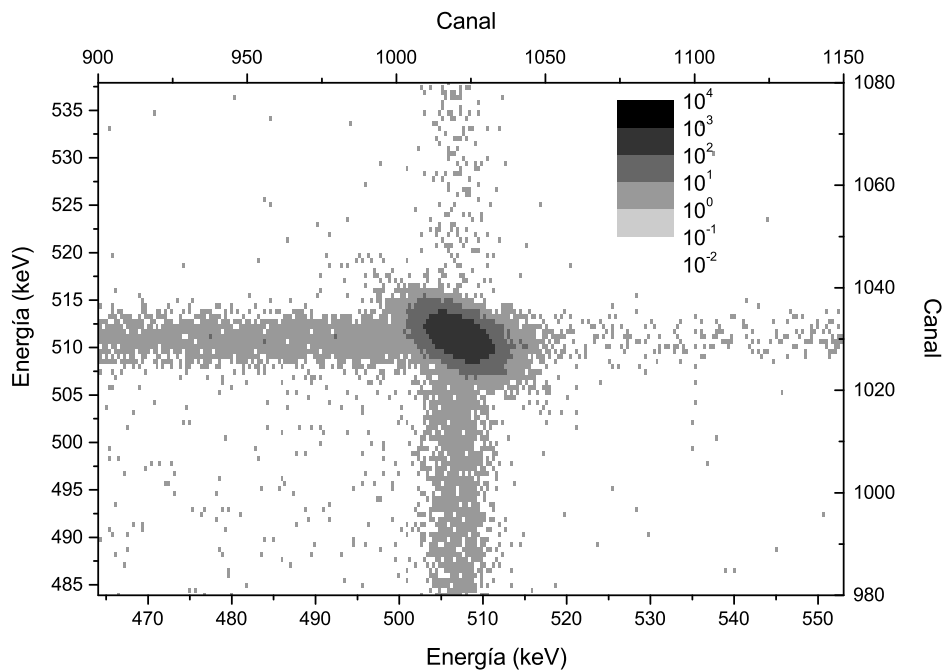


Figura 4.3: Gráfica en 2D que representa el histograma de coincidencia para la muestra de silicio con daño, medido con los dos detectores de germanio en coincidencia.

A partir de esta figura se observa la “región de interés” que se define a partir de la ecuación 3.2, se utilizó el valor del FWHM del espectro proyectado en el primer detector para definir el ancho como se muestra en la figura 4.3. Cuando se procesa la información de esta manera se eliminan los eventos que no corresponden a dos fotones de aniquilación que se hayan detectado en coincidencia. Por ejemplo, las franjas oscuras en la región de baja energía que corresponden a la coincidencia de un fotón de aniquilación con eventos Compton.



## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

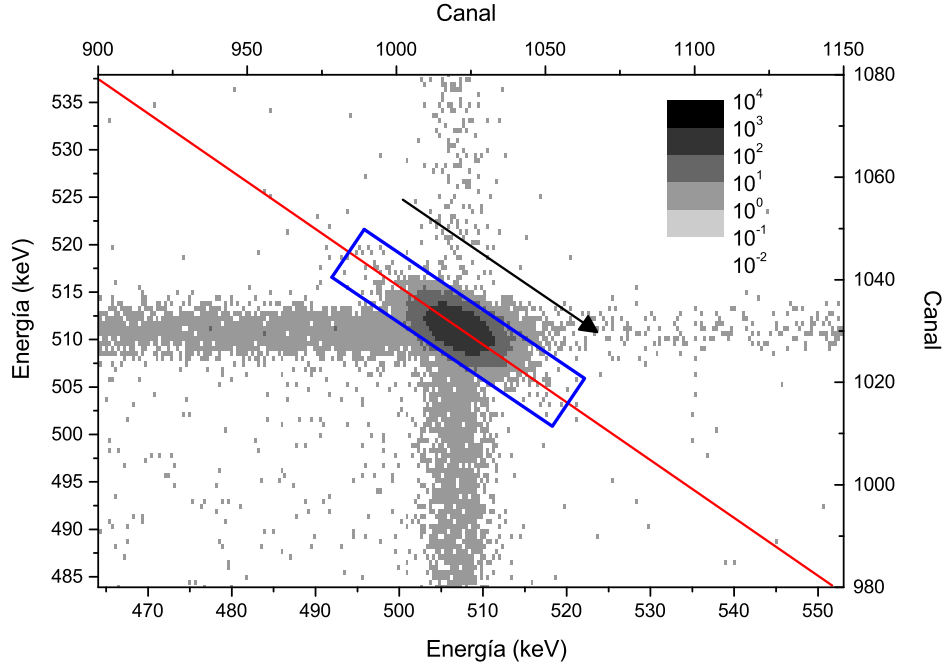


Figura 4.4: Gráfica en 2D donde se representa la región de interés que se utiliza para hacer el filtrado de los datos.

La región de interés define los datos que corresponden solo a las coincidencias y son los puntos que se van a proyectar y sumar para generar un espectro de energías. La proyección se hace en la dirección de la flecha que se muestra en la figura 4.4.

Finalmente se obtuvieron las proyecciones de este histograma, dos proyecciones paralelas a los ejes y la proyección sobre la diagonal que representa la conservación de energía  $E_1 + E_2 = 1022$  keV. Estas proyecciones se muestran en la figura 4.5.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

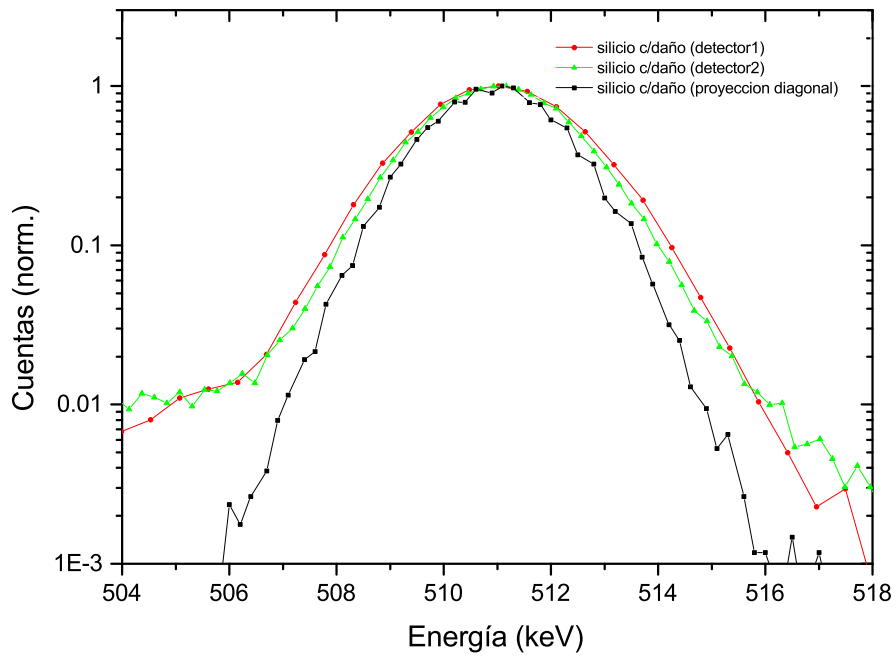


Figura 4.5: Espectros de energía obtenidos con las proyecciones de los resultados hacia el detector de germanio 1 (eje horizontal) el detector de germanio 2 (eje vertical) y la diagonal (región de interés).

Como se observa en la figura 4.5 el fondo se reduce para la proyección diagonal comparada con las proyecciones en cada uno de los detectores. Se puede observar que los espectros en el detector 1 y en el detector 2 son equivalentes, comparten el mismo comportamiento en la región de baja y alta energía. Por otro lado el espectro de la proyección diagonal se vuelve simétrico comparado con los espectros anteriores.

El ancho del pico FWHM mejora al realizar la proyección sobre la diagonal, como se muestra en la tabla 4.2.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

---

*Tabla 4.2: Valores FWHM para los espectros proyectados en el detector 1, el detector 2 y la proyección diagonal.*

| Muestra             | FWHM (keV) | $\pm\delta$ FWHM (keV) |
|---------------------|------------|------------------------|
| detector 1          | 3.39       | 0.04                   |
| detector 2          | 3.13       | 0.02                   |
| proyección diagonal | 2.81       | 0.07                   |

El siguiente grupo de resultados consiste en el cálculo de los factores S y W para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno medidos con dos detectores de germanio y utilizando una fuente de flúor-18. Primero muestro los espectros de energía para las muestras de silicio medidos sobre la proyección en el detector de germanio 1.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

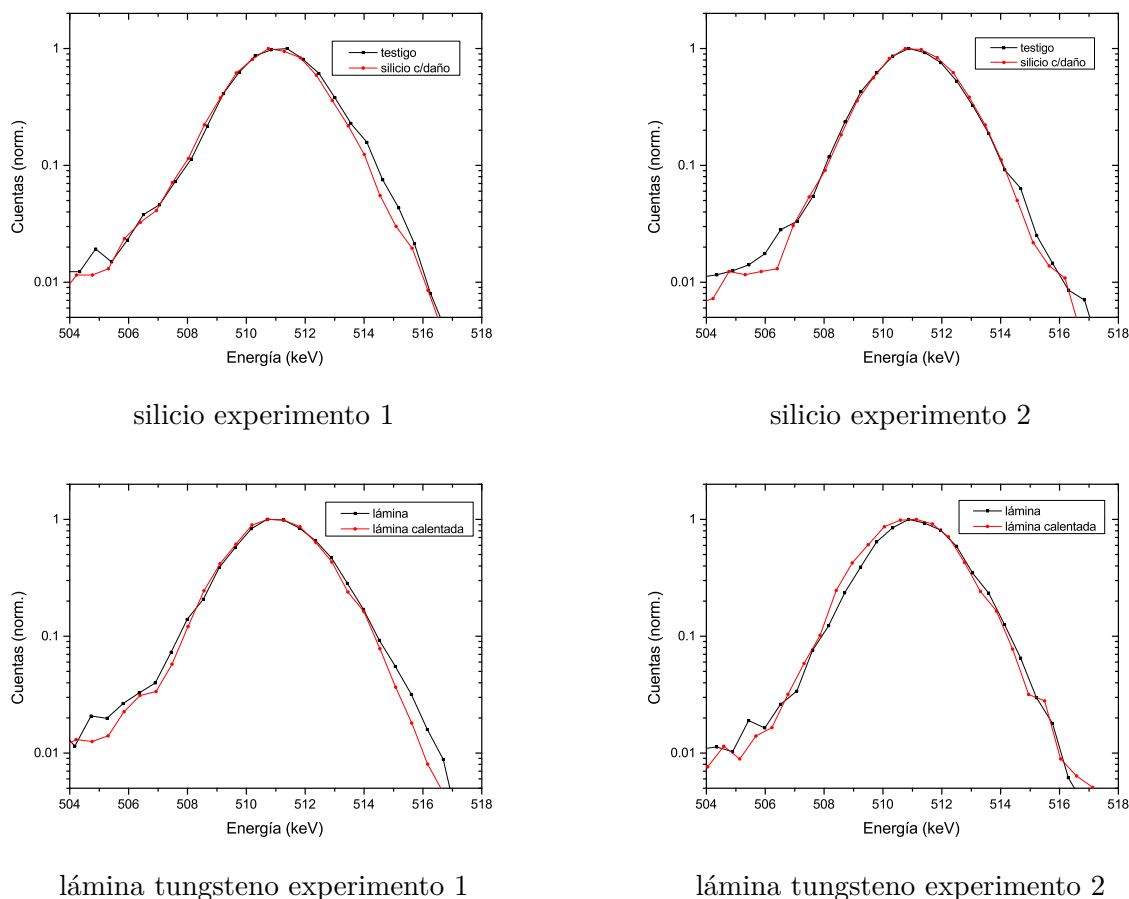
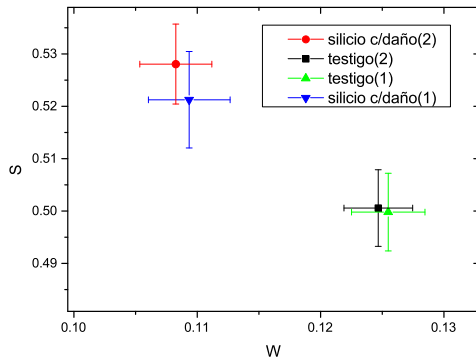


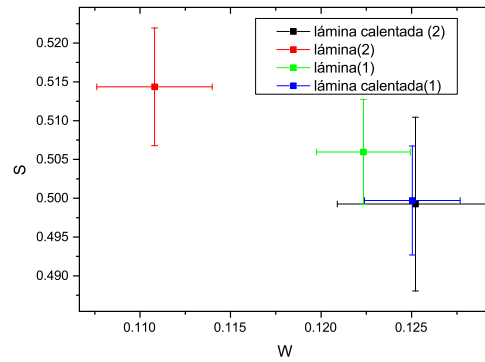
Figura 4.6: Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en el detector 1

Lo que se observa en la figura 4.6 son las ligeras tendencias cualitativas entre cada par de muestras. Como se mencionó en el desarrollo experimental el primer paso consiste en hacer la calibración en energía y normalización de cada espectro. Como se mencionó antes, se utilizó el programa “SWCalculator” para obtener los factores S y W a partir de estos espectros. Los intervalos con los que se calcularon los parámetros S y W se determinaron de tal manera que el valor de S sea 0.5 y W sea 0.125 para el espectro normalizado correspondiente a la muestra testigo. Se debe de recordar que estos parámetros se definen como se muestra en la figura 2.11

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler



factores  $S(W)$  para las  
muestras de silicio



factores  $S(W)$  para las  
láminas de tungsteno

Figura 4.7: Gráficas de los factores  $S$  en función de  $W$  para silicio y para tungsteno.

En las figura 4.12 se puede observar que hay una agrupación de los valores  $S(W)$  para las muestras de silicio con daño. Los números (1) y (2) representan dos medidas independientes. Se observa un aumento del parámetro  $S$ , que representa un aumento en la aniquilación con electrones de valencia. Esto a su vez es un efecto del aumento de vacancias.

Los puntos correspondientes a las láminas de tungsteno no presentan una tendencia clara.

Tabla 4.3: Parámetros  $S$  y  $W$  para las muestras de silicio y tungsteno en el detector 2

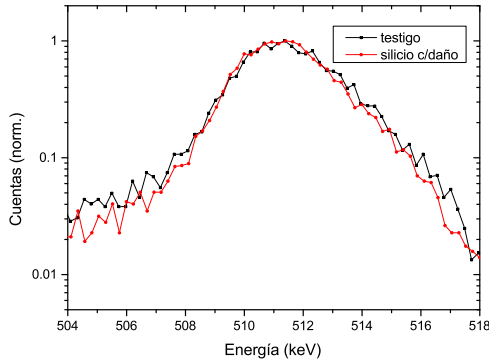
| Muestra              | $S$   | $\pm\delta S$ | $W$   | $\pm\delta W$ |
|----------------------|-------|---------------|-------|---------------|
| testigo(2)           | 0.500 | 0.008         | 0.125 | 0.003         |
| silicio c/daño(2)    | 0.521 | 0.010         | 0.109 | 0.004         |
| testigo(1)           | 0.501 | 0.008         | 0.125 | 0.003         |
| silicio c/daño(1)    | 0.528 | 0.008         | 0.108 | 0.003         |
| lámina calentada (2) | 0.500 | 0.011         | 0.125 | 0.005         |
| lámina(2)            | 0.514 | 0.008         | 0.111 | 0.004         |
| lámina calentada(1)  | 0.500 | 0.007         | 0.125 | 0.003         |
| lámina(1)            | 0.505 | 0.007         | 0.122 | 0.003         |

Entonces, a partir de lo que se observa en la figura y la tabla 4.3 podemos observar

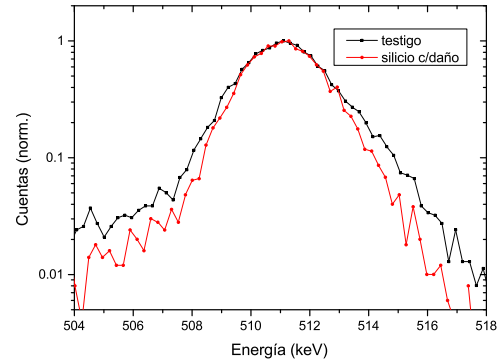
## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

una tendencia clara de los resultados para las muestras de silicio.

El siguiente grupo de resultados corresponde a las mismas muestras pero proyectado en el detector de germanio 2. Primero se muestran las gráficas para el detector 2.



silicio experimento 1



silicio experimento 2

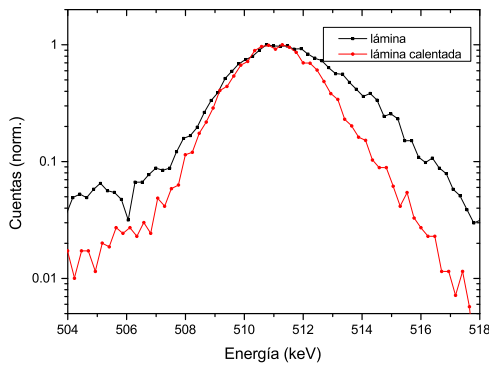


lámina tungsteno experimento 1

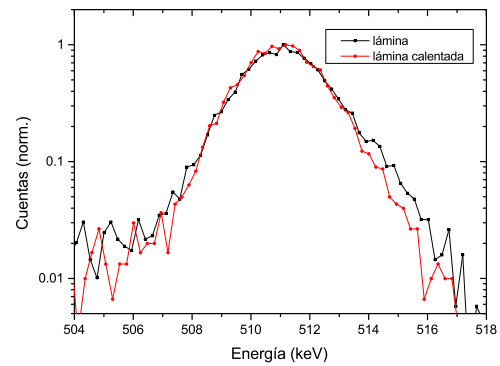


lámina tungsteno experimento 2

Figura 4.8: Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en el detector 2

Se observa una tendencia similar a la que se midió con el detector de germanio 1, el espectro para las muestras de silicio con daño tienen un menor ancho comparado con los espectros correspondientes a las muestras testigo.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

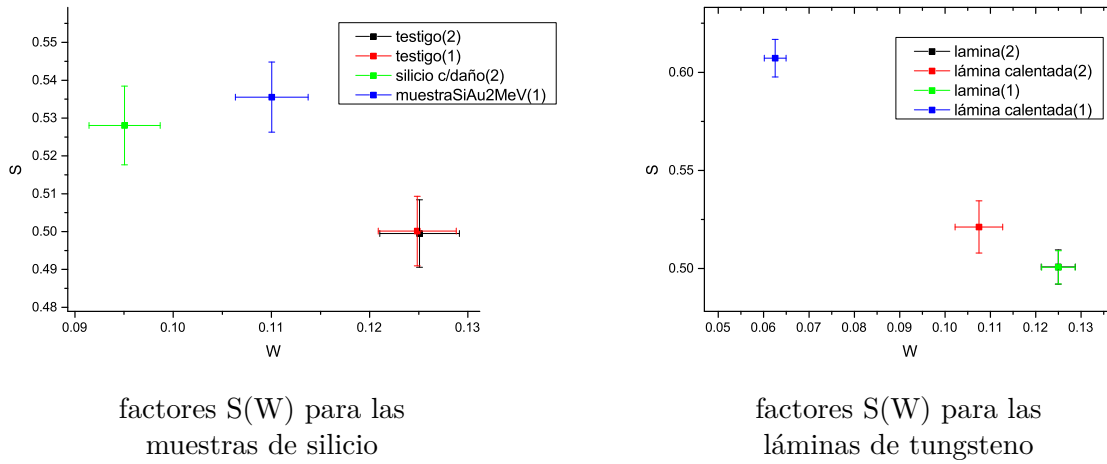


Figura 4.9: Gráficas de los factores  $S$  en función de  $W$  para silicio y para tungsteno, medidos en el detector de germanio 2.

En la figura 4.9 se observa que el valor del parámetro  $S$  reproduce el mismo comportamiento que se observó en el detector 1, el valor de  $S$  aumenta, que es lo que se esperaría si la aniquilación con electrones de valencia aumenta. Debido a que los valores  $S$  y  $W$  se calculan con relación al área completa del pico de aniquilación, como se representa en la figura 2.11, si el valor de  $S$  aumenta, entonces el valor aparente de  $W$  debe de disminuir proporcionalmente, como se observa en los casos anteriores. En la siguiente tabla se presentan los valores  $S$  y  $W$ , para estas muestras.

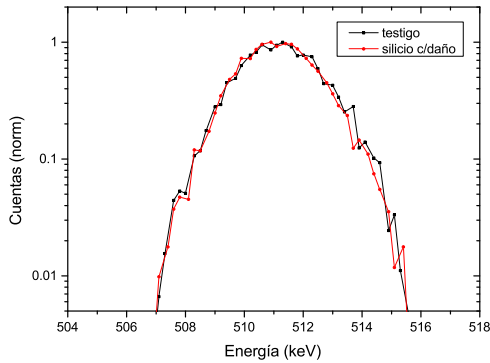
Tabla 4.4: Parámetros  $S$  y  $W$  para las muestras de silicio y tungsteno en el detector 2

| Muestra              | $S$   | $\pm\delta S$ | $W$   | $\pm\delta W$ |
|----------------------|-------|---------------|-------|---------------|
| testigo(2)           | 0.500 | 0.009         | 0.125 | 0.005         |
| silicio c/daño(2)    | 0.528 | 0.010         | 0.095 | 0.004         |
| testigo(1)           | 0.500 | 0.010         | 0.125 | 0.004         |
| silicio c/daño(1)    | 0.536 | 0.010         | 0.110 | 0.004         |
| lámina calentada (2) | 0.521 | 0.013         | 0.107 | 0.006         |
| lámina(2)            | 0.500 | 0.009         | 0.125 | 0.004         |
| lámina calentada(1)  | 0.607 | 0.010         | 0.063 | 0.003         |
| lámina(1)            | 0.500 | 0.009         | 0.125 | 0.004         |

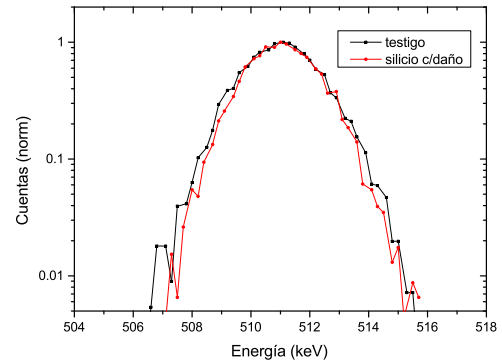
## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

Estos dos grupos de datos corresponden a los valores para las proyecciones hacia cada uno de los detectores de manera individual.

El siguiente grupo de valores corresponde a la proyección sobre la diagonal  $E_1 + E_2 = 1022$  [keV].



silicio experimento 1



silicio experimento 2

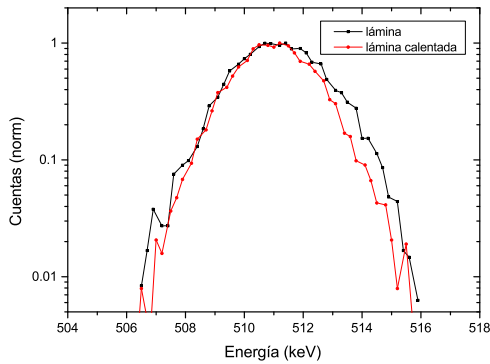


lámina tungsteno experimento 1

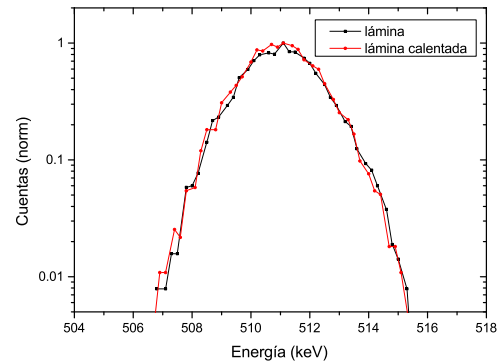


lámina tungsteno experimento 2

Figura 4.10: Comparación de los espectros de aniquilación para las muestras de silicio y las láminas de tungsteno, medidas en coincidencia proyectados en la diagonal.

Las gráficas de la figura 4.10 muestran la principal característica del sistema de coincidencia, la reducción del fondo. A pesar de que las diferencias siguen siendo pequeñas es posible calcular los factores S y W.



## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

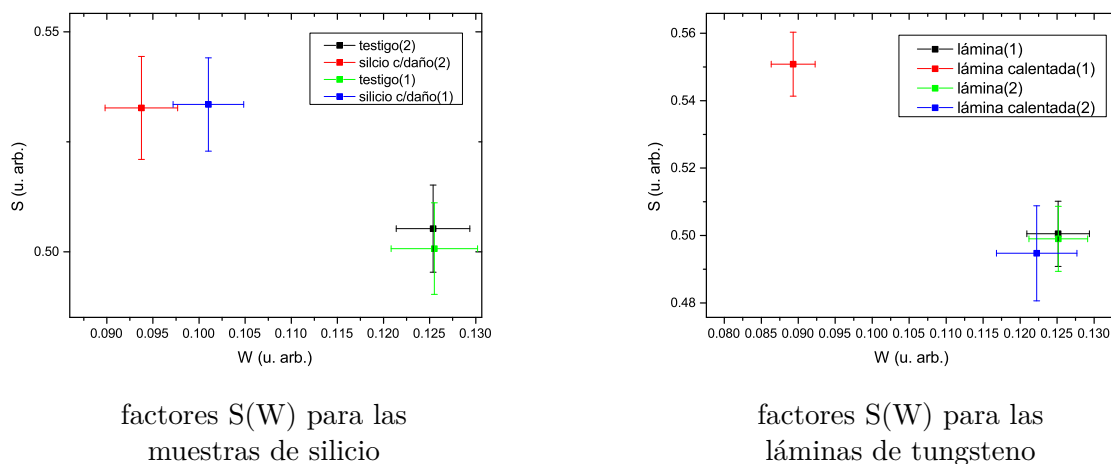


Figura 4.11: Gráficas de los factores  $S$  en función de  $W$  para silicio y para tungsteno, obtenidos a través de la proyección en la diagonal.

En la figura 4.11 se vuelve a observar la misma tendencia que en los detectores anteriores, un aumento en el valor  $S$  para la muestra con daño y una Disminución del valor  $W$  correspondiente.

Finalmente se presentan los factores  $S$  y  $W$  calculados para las muestras de silicio y silicio con daño, medidos con la fuente de sodio 22 en el detector de NaI y el detector de germanio.

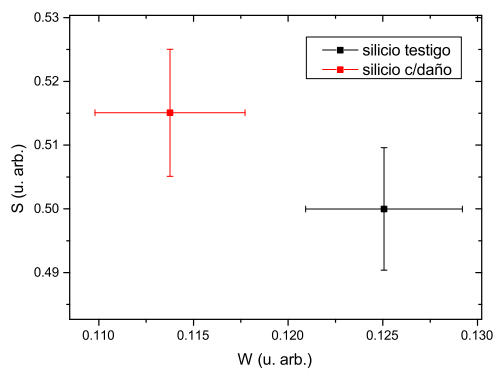


Figura 4.12: Gráficas de los factores  $S$  en función de  $W$  para silicio medidos con el sistema de coincidencia del detector NaI y el detector de germanio.

## 4.2. Espectroscopía de ensanchamiento Doppler

---

De acuerdo a los resultados, éstos coinciden en que para las muestras de silicio en que las que se ha inducido daño el valor del parámetro S es mayor que el correspondiente a las muestras sin irradiar. Se observa que para las muestras de silicio se forman dos regiones en la gráfica de valores S contra W, una correspondiente a las muestras con daño y otra correspondiente a las muestras testigo.

En el caso de las láminas de tungsteno se esperaba que se formaran de igual manera dos regiones una para las láminas calentadas y otra para las muestras sin tratar. Esto esperando que el calentamiento modificara la cantidad de defectos dentro del material. Sin embargo, es posible que esto no suceda debido a que este calentamiento no provoco una diferencia en la densidad de defectos considerable que se pudiera a distinguir en los espectros. Además, es posible que la misma lámina no sea lo suficientemente uniforme como para reproducir la tendencia.

Finalmente los factores S y W están relacionados con la densidad de defectos a través de las ecuaciones 2.38 de la sección 2.2.3.

$$\kappa_d = \mu C = \frac{1}{\tau_1} \frac{S - S_b}{S_d - S_b} \quad (4.1)$$

Donde  $\kappa_d$  es la tasa de captura,  $\mu$  es la constante de captura,  $\tau_1$  es el tiempo de vida del positrón en el defecto.  $S_d$  y  $S_b$  son los parámetros para la muestra con muchos defectos y la muestra sin defectos, respectivamente.

A partir de esta relación se observa que la dependencia del factor S con la concentración de defectos es lineal. Entonces si combinamos los resultados de la espectroscopía Doppler con los resultados correspondientes de la espectroscopía de tiempo de vida, además de hacerlo para muestras con diferentes densidades de defectos podemos obtener una estimación de la concentración de defectos.

Otra alternativa es la de utilizar una técnica independiente para determinar la concentración de defectos, por ejemplo estudio de efecto Hall o resonancia paramagnética electrónica (EPR). No se profundizó en estas técnicas debido al limitado tiempo que se tenía para este trabajo pero es algo que se planea hacer en trabajos posteriores.

Como se mencionó antes la relación entre el valor del factor S y el factor W es un indicador del tipo de defecto, que se refleja a través del factor  $R=S/W$ . En la tabla 4.5 se muestra la relación de estos valores para los experimentos en las muestras de silicio.

*Tabla 4.5: Valores de la relación  $R=S/W$  para los diferentes experimentos en las muestras de silicio con daño.*

| Experimento | $R=S/W$ | $\pm\delta R(\%)$ |
|-------------|---------|-------------------|
| 1           | 4.8     | 5                 |
| 2           | 4.9     | 4                 |
| 3           | 5.6     | 6                 |
| 4           | 4.9     | 5                 |

### 4.3. Tiempos de vida

---

El valor promedio de R resultó ser de  $5.02 \pm 0.36$ , esto junto con los los resultados de R mostrados en la tabla indican que hay consistencia entre los experimentos con relación a las muestras de silicio irradiadas con iones de oro.

### 4.3. Tiempos de vida

El primer paso fue hacer la calibración de tiempo con lo que se obtuvo que un intervalo de 4 ns representan 322 canales que corresponde a una relación de 0.012 ns por canal.

El siguiente paso consistió en obtener la resolución temporal de todo el sistema, para esto se obtuvo el espectro de tiempo de solo la fuente de cobalto-60. La fuente de cobalto-60 decae por emisión beta a níquel-60, esta fuente emite dos fotones de energía 1.17 MeV y 1.33 MeV El ancho de este pico medido con el FWHM fue de 145.12 canales lo que corresponde a 1.80 ns.

Se obtuvo el espectro de tiempos de vida para la fuente de sodio-22 sola y para la fuente de sodio junto con las muestras de silica irradiadas con iones de oro con 2 MeV de energía. Estos se muestran en la figura 4.13.

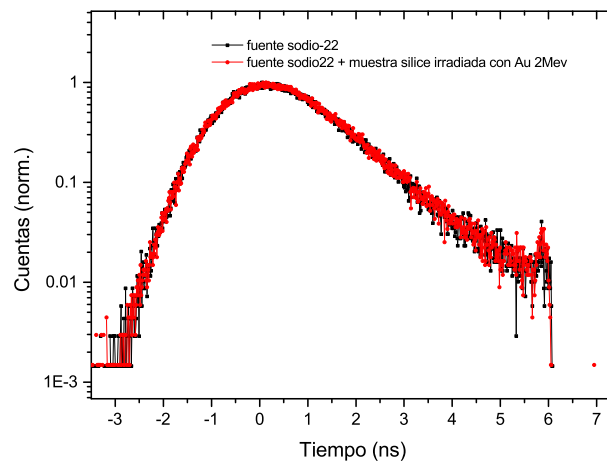


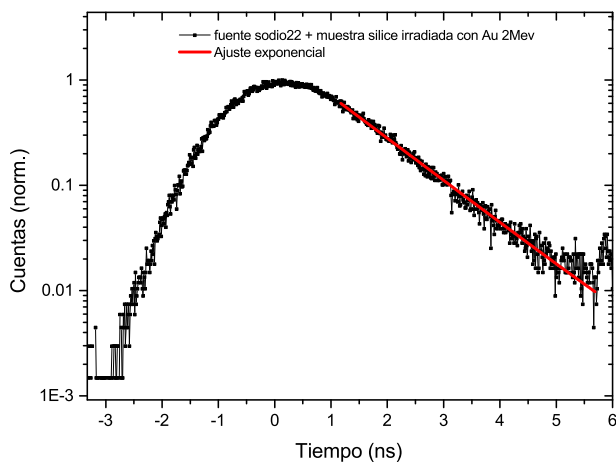
Figura 4.13: Espectros de tiempo de vida para la fuente de sodio-22 y la muestra de silice irradiada con Au 2 MeV. Medidos con los detectores centelladores NaI(Tl).

La distribución completa contiene la contribución temporal del sistema, es por esto que el tiempo que el espectro tarda en crecer del lado izquierdo, cercano a 3 ns, es diferente de cero. La pendiente del lado derecho de los espectros corresponde a las

### 4.3. Tiempos de vida

---

componentes de los tiempos de vida de los positrones en la muestra y en la fuente.



*Figura 4.14: Ajuste exponencial del espectro de tiempo de vida para la fuente más la muestra de silice irradiada con iones de oro de 2 MeV.*

Al hacer un ajuste exponencial, del tipo  $f(t) = A \exp(-t/\tau)$ , de la parte derecha del espectro para el espectro de la fuente más la muestra de silice irradiada con iones de oro de 2 MeV se obtiene una componente de tiempo de vida  $\tau = 1.081 \pm 0.0148$  ns, como se ve en la figura 4.14.

### 4.3. Tiempos de vida

---

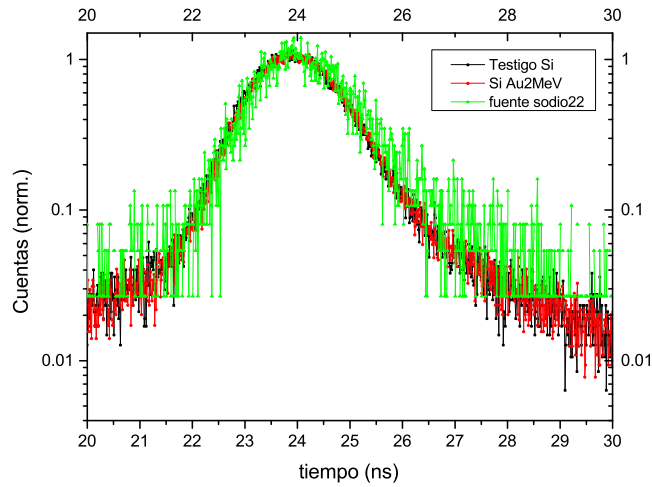


Figura 4.15: Espectros de tiempo de vida para la muestra de silicio policristalino y la muestra de silicio irradiada con iones de oro de 2 MeV de energía.

En [1] se menciona que el silicio tiene al menos tres componentes de tiempo de vida del orden de  $\tau_1 = 120$  ps,  $\tau_2 = 320$  ps, y  $\tau_3 = 520$  ps. Esto indica una relación del orden de 2.07 con relación al tiempo de vida más largo en silicio. Es posible que esta discrepancia entre los valores se deba a la resolución del sistema. Además, debemos de considerar que los experimentos se realizaron en aire, debido a que se tratan de experimentos preliminares y las fuentes radiactivas no son adecuadas para colocarlas en un ambiente de vacío. El tiempo de vida de positrones en aire puede llegar a ser muy alto debido a la baja densidad comparada con materia sólida. Como se mencionó antes los resultados de la espectroscopía Doppler y la espectroscopía de tiempos de vida pueden ser usados en conjunto para describir de una manera más completa los defectos en la muestra. Es por esto la importancia de continuar con el trabajo en el sistema de espectroscopía de tiempos de vida en paralelo con la espectroscopía Doppler.

# Capítulo 5

## Conclusiones

Este trabajo consistió en montar un sistema de análisis de defectos con la técnica de espectroscopía de ensanchamiento Doppler de la radiación de aniquilación de positrones en la materia. Se utilizaron dos configuraciones de detectores funcionando en coincidencia, un detector de germanio junto con un detector centellador y un detector de germanio junto con otro detector de germanio. Se desarrolló un programa en la plataforma LabView 7.0 que se utilizó con un sistema de adquisición digital CAMAC. Se utilizaron dos fuentes de positrones distintas: flúor-18 y sodio-22. Se realizaron pruebas con las que se determinaron los parámetros adecuados para los experimentos y el proceso de adquisición y procesamiento de los datos.

A partir de los espectros de aniquilación de las muestras testigo y de las muestras con daño se calcularon los valores de los parámetros S y W por medio del software “SWCalculator”. De esta manera se cuantificaron los cambios entre los espectros para las muestras de silicio testigo y las muestras de silicio con daño. Debido a que no se utilizó una técnica adicional para determinar la densidad de defectos, como la resonancia paramagnética electrónica, no se pudo realizar la calibración del sistema que permita determinar la densidad de defectos en las muestras.

En el caso de las muestras de silicio los valores mostraron ser consistentes a tal grado de obtener un factor promedio  $R=5.017\pm 0.36$ , este valor es el que caracteriza los defectos inducidos por la irradiación y que caracteriza el tipo de defecto inducido por la irradiación con iones.

En el caso de las láminas de tungsteno estos resultados no son completamente concluyentes, no se observó una tendencia clara de los parámetros de S y de W comparados entre las láminas calentadas y las láminas sin calentar.

Paralelamente se montó un sistema para realizar medidas con la técnica de espectroscopía de tiempos de vida. La resolución temporal no fue adecuada para poder distinguir entre la muestra testigo y la muestra con daños.

Sin embargo, los resultados que se obtuvieron muestran el avance en el desarrollo y el potencial de esta técnica en el laboratorio del acelerador Van de Graaff de 5.5 MeV del IFUNAM. Los resultados obtenidos de estas pruebas resultaran altamente útiles

---

para experimentos futuros en el desarrollo de este sistema.

Es importante mencionar que, aunque en un principio se planeaba utilizar el acelerador para producir la fuente de positrones de nitrógeno-13, solo se pudieron utilizar la fuente de flúor-18 y la fuente de sodio-22.

Se propone que en un futuro se hagan mediciones en otros cristales, de esta manera se podrá hacer una caracterización más amplia del sistema y se podrá extender el uso del sistema a identificación de elementos. Además, es importante combinar y comparar el uso de otras técnicas que permiten hacer el estudio de defectos de manera independiente como estudio de efecto Hall o resonancia paramagnética electrónica.

# Bibliografía

- [1] R Krause-Rehberg and H Leipner. *Positron annihilation in semiconductors*. Springer, Berlin, 1999.
- [2] R. Brusa, W. Deng, G. Karwasz, and A. Zecca. Doppler-broadening measurements of positron annihilation with high-momentum electrons in pure elements. *Nuclear Instruments And Methods In Physics Research Section B: Beam Interactions With Materials And Atoms*, 194(4):519–531, 2002.
- [3] M. Nastasi and J. Mayer. *Ion implantation and synthesis of materials*. Springer, Berlin, 1st edition, 2011.
- [4] J. Zárate. *Fabricación, caracterización y estimación de pérdidas de guías de onda planas en SiO<sub>2</sub> de alta pureza producidas por implantación de iones de silicio*. Universidad Nacional Autónoma de México, 2017. Tesis de Maestría.
- [5] J. Turner. *Atoms, radiation, and radiation protection*. Wiley-VCH, Weinheim, 1st edition, 2010.
- [6] H. Gnaser. *Low-energy ion irradiation of solid surfaces*. Springer, Berlin, 1st edition, 1999.
- [7] B. Bailey and J. Patterson. *Solid-State Physics: Introduction to the Theory*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 1st edition, 2007.
- [8] R. Tilley. *Defects in solids*. Wiley, Hoboken NJ, 1st edition, 2008.
- [9] M. Charlton and J. Humberston. *Positron physics*. Cambridge University Press, Cambridge England, 2001.
- [10] Carl Anderson. The positive electron. *Phys. Rev.*, 46(3):491–494, 1933.
- [11] V. Grafutin and E. Prokopev. Positron annihilation spectroscopy in materials structure studies. *Physics-Uspokhi*, 45(1):59–74, 2002.
- [12] G. Knoll. *Radiation detection and measurement*. Wiley, New York, 1st edition, 1979.



- [13] S. Valkealahti and R. Nieminen. Monte-Carlo calculations of keV electron and positron slowing down in solids. *Applied Physics A Solids and Surfaces*, 32(2): 95–106, 1983.
- [14] W. Leo. *Techniques for nuclear and particle physics experiments*. Springer-Verlag., Berlin, 1st edition, 1987.
- [15] C. Wu and S. Moszkowski. *Beta decay*. Wiley, New York, 1966.
- [16] C. Levin and E. Hoffman. Calculation of positron range and its effect on the fundamental limit of positron emission tomography system spatial resolution. *Physics in Medicine and Biology*, 44(3):781–799, 1999.
- [17] C. Champion and C. Le Loirec. Positron follow-up in liquid water: II. Spatial and energetic study for the most important radioisotopes used in PET. *Physics in Medicine and Biology*, 52(22):6605–6625, 2007.
- [18] W. Brandt and R. Paulin. Positron implantation-profile effects in solids. *Physical Review B*, 15(5):2511–2518, 1977.
- [19] K. Lynn and F. Jacobsen. Intense low energy positron beams. *Hyperfine Interactions*, 89(1):19–29, 1994.
- [20]  $^{22}\text{Na}$   $\beta^+$  decay. <http://atom.kaeri.re.kr:8080/cgi-bin/decay?Na-22%20EC>. Accessed 21 Feb. 2017.
- [21] J. Jackson. *Classical electrodynamics*. John Wiley and Sons, 1st edition, 1962.
- [22] Y. Jean, P. Mallon, and D. Schrader. *Principles and applications of positron & positronium chemistry*. World Scientific, New Jersey, 1st edition, 2003.
- [23] G. Gilmore. *Practical gamma-ray spectroscopy*. Wiley, West Sussex, England, 2nd edition, 2013.
- [24] A. A. Mehmandoost-Khajeh-Dad, M. Mahjour-Shafiei, and M. Khaghani. Development of a doppler broadening positron spectroscopy setup and relative positron-electron momentum distribution measurement for commercial al. *Journal of Theoretical and Applied Physics*, 4(4):9–12, 2011.
- [25] M. Petriska, V. Sabelova, V. Sluge, S. Sojak, M. Stacho, and J. Veterníková. Digital coincidence doppler broadening setup at fei stu. *Physics Procedia*, 35:117–121, 2012.
- [26] I. Hossain, N. Sharip, and K. K. Viswanathan. Efficiency and resolution of hpge and nai(tl) detectors using gamma-ray spectroscopy. *Scientific Research and Essays*, 7(1):86–89, 2012.

- [27] Mirion Technologies. Germanium detectors. <http://www.canberra.com/products/detectors/pdf/Germanium-Det-SS-C39606.pdf>. Consultado:2017-03-08.
- [28] Ortec single-channel pulse-height analyzers introduction. <http://www.ortec-online.com/-/media/ametekortec/other/sca-introduction.pdf?la=en>. Accessed: 2017-03-06.
- [29] D. Reilly, N. Ensslin, and H. Smith. *Passive nondestructive assay of nuclear materials*. The Commission, Washington DC, 1st edition, 1991.
- [30] W. Kong, C.Y. Xi, B.J. Ye, H.M. Weng, and X.Y. Zhou and R.D. Han. A digital measurement system of 2-detector doppler broadening. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 225(4):623–627, 2004.
- [31] Selimlab. Swcalculator. doppler s and w parameters software. <http://physics.bgsu.edu/selimlab/s-w-doppler-parameters-software>. Consultado:2017-04-05.
- [32] J. Rickards and R. Cameras. *Las radiaciones II. El manejo de las radiaciones nucleares*. Fondo de cultura económica, México, 1st edition, 2002.
- [33] ET Enterprises. Understanding photomultipliers. <https://my.et-enterprises.com/pdf/Understanding-pmts-2011.pdf>, 2011. Consultado:2017-03-08.
- [34] P. Fonseca, A. Santos, and E. Montenegro. A very simple way to measure coaxial cable impedance. *Revista Brasileira de Ensino de Física*, 29(3):373–375, 2007.
- [35] National Institute of Standards and Technology. Stopping-power and range tables for electrons. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ESTAR.html>. Consultado:2017-05-12.