

## **ÍNDICE**

<b>1. INTRODUCCIÓN .....</b>	<b>2</b>
1.1 <i>Procesos de formación y de aniquilación de positrones .....</i>	2
1.2 <i>Fuentes y muestras en PAS.....</i>	6
<b>2. TÉCNICAS DE MEDIDA DE ANIQUILACIÓN DE POSITRONES .....</b>	<b>8</b>
2.1 <i>Medida de tiempos de vida .....</i>	8
2.2 <i>Medidas de correlación angular .....</i>	9
2.3 <i>Medida del ensanchamiento Doppler de la línea de aniquilación.....</i>	11
<b>3. DISPOSITIVO EXPERIMENTAL EMPLEADO .....</b>	<b>16</b>
3.1 <i>Detectores.....</i>	16
3.1.1. <i>Detectores semiconductores de Ge.....</i>	17
3.1.2 <i>Detectores de CZT.....</i>	20
3.2 <i>Amplificadores y ‘Timing SCA’ .....</i>	21
<b>4. RESULTADOS EXPERIMENTALES .....</b>	<b>27</b>
4.1 <i>Características de los espectros obtenidos .....</i>	28
4.2 <i>Influencia de la geometría.....</i>	34
4.3 <i>Influencia del apilamiento de pulsos (‘Pile-up’).....</i>	40
4.4 <i>Estudio de diferentes muestras.....</i>	43
<b>5. CONCLUSIONES .....</b>	<b>48</b>
<b>APÉNDICE .....</b>	<b>49</b>
<b>BIBLIOGRAFÍA .....</b>	<b>50</b>

## 1. INTRODUCCIÓN

El estudio de defectos cristalinos es una de las principales ramas de investigación en la Física del Estado Sólido. Esto es debido a la gran cantidad de propiedades de los sólidos que dependen de la existencia de tales defectos. Es por ello que a lo largo de estos años, se han desarrollado un gran número de técnicas capaces de aportar información acerca de los mismos. Entre ellas podemos destacar, ya que será la que nos ocupe a lo largo de este trabajo, la técnica de aniquilación de positrones.

La *Espectroscopía por Aniquilación de Positrones (PAS)* es un método no destructivo de análisis que permite estudiar la estructura electrónica y defectos en sólidos. Son muchos los experimentos de aniquilación de positrones que han demostrado la relación entre la estructura de defectos cristalinos y los parámetros de aniquilación. La función de onda de un positrón ‘atrapado’ en defectos del material está localizada hasta el momento de su aniquilación con un electrón del entorno. Debido a que tanto la densidad electrónica local como la distribución de momentos de un cristal con defectos difieren de las de un cristal homogéneo y libre de defectos, el estudio de los fotones gamma producidos durante la aniquilación del positrón proporcionará valiosa información acerca de las propiedades físico-químicas del sólido en el lugar en el que se produce la aniquilación.

Las técnicas de estudio del comportamiento de los positrones en materiales se pueden clasificar principalmente en dos grupos, según se basen en el principio de conservación del momento en el proceso de aniquilación (**Espectroscopía de Ensanchamiento Doppler y Correlación Angular de la Radiación de Aniquilación**) [1,2] o en la sensibilidad de los positrones a la densidad electrónica (**Medida de Tiempos de Vida**) [1,2].

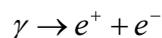
Así, la Espectroscopía por Aniquilación de Positrones utiliza técnicas experimentales de Física Nuclear y, por tanto, hace uso importante de las técnicas de espectroscopía nuclear. Esto es por lo que el progreso en PAS está estrechamente relacionado con los avances conseguidos en los métodos experimentales en Física Nuclear.

### *1.1 Procesos de formación y de aniquilación de positrones*

El positrón es la antipartícula del electrón, tiene la misma masa que éste y la mayoría de sus propiedades, salvo su momento magnético y su carga, cuya magnitud es exactamente igual pero con signo positivo.

El positrón fue observado por primera vez en los rayos cósmicos en 1932 por C.D. Anderson, aunque su existencia fue predicha varios años antes por Dirac.

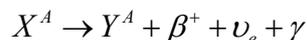
Los positrones pueden ser creados al incidir e interactuar radiación gamma de suficiente energía con la materia. Experimentalmente se ha encontrado que cuando esto ocurre se da la reacción:



Este proceso recibe el nombre de *creación de pares* y sólo tiene lugar en un medio material, nunca en el vacío, dado que es necesario la conservación de energía y momento. En

general, se necesitan fotones con una energía superior a 1.02MeV (dos veces la energía en reposo del electrón) para que pueda darse este proceso de creación de pares ( $e^- , e^+$ ). La probabilidad de producción de un par aumenta con la energía del fotón y con el número atómico del núcleo con el que interactúa.

Otra forma de obtener positrones es mediante la desintegración  $\beta^+$  de isótopos radiactivos:



Se producen positrones y neutrinos procedentes de la transformación de un protón en un neutrón dentro del núcleo. El positrón y el neutrino son expulsados con una energía variable. Como resultado, tenemos un núcleo con el mismo número másico y número atómico disminuido en la unidad.

No obstante, la vida del positrón es muy corta, por lo que no es fácil de observar en la naturaleza.

Tanto los positrones resultantes de la creación de pares como los que provienen de la desintegración  $\beta^+$  se aniquilan al combinarse con electrones en el medio de interacción.

Al difundirse por la materia, los positrones interactúan electromagnéticamente con los electrones del medio, se aniquila el par y su energía se transfiere al campo electromagnético (se producen fotones). Es decir, cuando un positrón atraviesa la materia experimenta distintos procesos de interacción con el medio, los cuales influyen en el estado a partir del cual el positrón se aniquila con el electrón. En primer lugar, cuando un positrón penetra en un medio condensado, va perdiendo su energía cinética rápidamente debido a colisiones atómicas (proceso de termalización). Cuando el positrón tiene alta energía, el mecanismo principal de pérdida de energía es el de ionización: el positrón excita electrones al colisionar con los átomos. Cuando la energía del positrón ha disminuido hasta una fracción de eV, lo que domina en la pérdida de energía es la dispersión de fonones. La variación de energía durante el proceso de termalización ocurre en un periodo de unos cuantos *ps*, muy breve comparado con la vida media del positrón. El positrón puede viajar durante la termalización una distancia del orden de los milímetros desde el punto en el que fue emitido.

Una vez que los positrones han alcanzado el equilibrio térmico con el medio (que, una vez alcanzado se mantiene gracias a la emisión y absorción de fonones) tiene lugar el proceso de difusión, durante el cual el positrón interactúa con los alrededores y se aniquila con un electrón. (Figura 1).

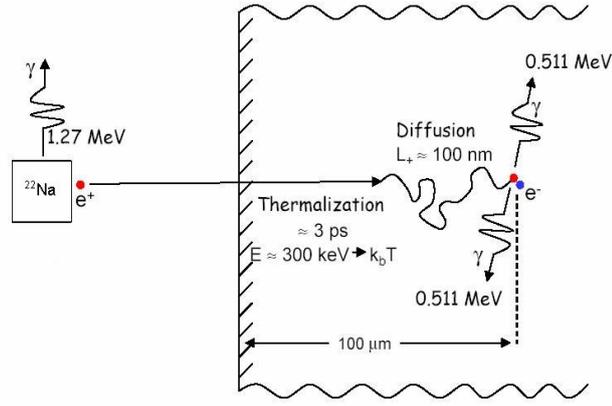


Figura 1. El positrón procedente de la fuente penetra en la muestra donde experimenta los procesos de termalización y difusión para acabar aniquilándose con el electrón.

Antes de la aniquilación y debido a las colisiones anteriormente mencionadas, el positrón se va frenando y experimenta interacción Coulombiana con algún electrón del medio. Es entonces cuando el par, antes de aniquilarse, forma una configuración llamada **Positronium (Ps)**, en la que el electrón y el positrón giran uno alrededor del otro hasta que eventualmente terminan aniquilándose.

Dependiendo de la orientación relativa entre los espines del electrón y el positrón podemos distinguir dos configuraciones distintas para el positronio: el estado singlete  $^1S_0$  (*Parapositronium* p-Ps) cuando los espines del electrón y el positrón son antiparalelos (el espín total es cero) o el estado triplete  $^3S_1$  (*Orthopositronium*, o-Ps), cuando los espines de ambas partículas son paralelos (espín total uno).

El positronio tiene una vida media del orden de  $10^{-10}$  s. Transcurrido este tiempo las dos partículas se aniquilan emitiendo radiación electromagnética. Como las masas del electrón y del positrón son de 0.51 MeV cada uno, hay 1.02 MeV disponibles al aniquilarse. Normalmente se emiten dos fotones antiparalelos, cada uno de 0.51 MeV, lo que se conoce con el nombre de **radiación de aniquilación**.

La sección eficaz de aniquilación de positrones con emisión de dos fotones fue calculada por Dirac. En aproximación no relativista, esta sección eficaz aumenta al disminuir la velocidad relativa,  $v$ , entre las partículas involucradas:

$$\sigma_{2\gamma} = \sigma_D = \pi r_0^2 \frac{c}{v} \quad (1)$$

donde  $r_0$  es el radio clásico del electrón y  $c$  la velocidad de la luz.

Y la probabilidad de aniquilación por unidad de tiempo viene dada por:

$$\lambda = \sigma_D v n_0 = \pi r_0^2 c n_0 \quad (2)$$

donde  $n_0$  es la densidad electrónica.

La aniquilación del par ( $e^- , e^+$ ) sólo es posible si se cumplen las leyes de conservación del momento y la energía, que para el caso de dos fotones de aniquilación tienen la forma:

$$k_1 + k_2 = p = 2mv \quad (3)$$

$$k_1c + k_2c = E = 2mc^2 \quad (4)$$

En estas expresiones,  $m = m_0 / \sqrt{1 - v^2 / c^2}$ , donde  $m_0$  es la masa en reposo del electrón,  $k_1$  y  $k_2$  los momentos de ambos fotones,  $E$  la energía del par electrón- positrón y  $v$  la velocidad del centro de masas del par en el sistema de referencia de laboratorio.

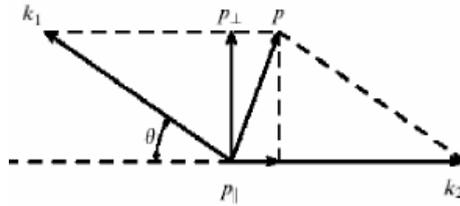


Figura 2. Esquema de los momentos en el proceso de la aniquilación con emisión de dos rayos  $\gamma$ .  $p$  es el momento del par electrón-positrón.

Según las ecuaciones (3) y (4), si el centro de masas del par en el sistema de laboratorio, está fijo ( $v = 0$ ), los dos fotones de aniquilación salen en direcciones opuestas (el ángulo  $\theta = 0$ , en la Figura 2) y con la misma energía, igual a la mitad de la energía total del sistema:

$$k_1c = k_2c = m_0c^2 = 0.511MeV .$$

En el sistema de laboratorio, debido al movimiento del par electrón-positrón ( $v \neq 0$ ) los dos fotones se desvían ligeramente de la colinealidad y sus energías difieren de 0.51 MeV.

Si, como suele ser el caso, el momento del par en el momento de la aniquilación es tal que  $p \ll m_0c$ , el ángulo de desviación viene dado por:

$$\sin \theta \approx \frac{p_{\perp}}{m_0c} \quad (5)$$

donde  $p_{\perp}$  es la componente del momento del par electrón-positrón transversal a la dirección de emisión de los fotones.

De igual forma, el movimiento del par causa un ensanchamiento Doppler en la energía de los fotones de aniquilación dado por:

$$\Delta E_{\gamma} \approx \frac{p_{\parallel}c}{2} \quad (6)$$

donde  $p_{\parallel}$  es la componente del momento del par electrón-positrón en la dirección de emisión de los fotones.

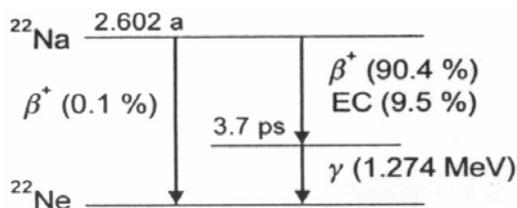
Dado que la energía de los positrones termalizados es muy pequeña ( $\sim k_B T$ ), los valores de  $\theta$  y  $\Delta E_\gamma$  están relacionados con los momentos de los electrones del sólido. Como consecuencia, la anchura y la forma de la línea de aniquilación contienen información sobre los electrones con los que el positrón se aniquila.

En un medio homogéneo, libre de defectos, todos los positrones se aniquilan con la misma tasa de aniquilación (se define la tasa de aniquilación como la inversa del tiempo de vida del positrón), lo que se traduce en un patrón de aniquilación homogéneo, característico de cada material. En cambio, en un material con defectos, tales como dislocaciones, vacantes, aglomerado de vacantes etc., los positrones ocupan preferentemente el espacio interatómico debido a la repulsión coulombiana que experimentan con los iones positivos. Dentro de estas zonas defectuosas, el potencial experimentado por el positrón disminuye debido a que la repulsión también lo hace. La energía de un positrón en un estado deslocalizado (libre) es, por tanto, mayor que en estado localizado ('atrapado' en el defecto). La energía de ligadura de los positrones en estos defectos es típicamente de unos cuantos eV, por lo que lograr que un positrón escape de un defecto es casi imposible y la partícula permanece ahí 'atrapada' hasta el momento de aniquilarse. Sólo en el caso de que esta energía de ligadura sea pequeña (menor que 0.1 eV) puede el positrón llegar a escapar si gana esta energía tras la interacción con algún fonón.

### 1.2 Fuentes y muestras en PAS

Las fuentes convencionales de positrones para la Espectroscopía de Aniquilación de Positrones son los radioisótopos artificiales emisores de radiación  $\beta^+$ . Los espectros de los positrones emitidos por dichos radioisótopos son continuos y abarcan desde prácticamente 0 hasta el orden de 1 MeV, dependiendo del emisor.

El radioisótopo más frecuentemente utilizado en PAS es el  $^{22}\text{Na}$  cuya vida media es de unos 2.6 años. Su principal característica es la emisión de un fotón  $\gamma$  de 1.27 MeV casi simultáneamente con la emisión del positrón (Figura 3). Se puede determinar la vida del positrón a partir del tiempo transcurrido entre la emisión del fotón de 1.27 MeV y el fotón de aniquilación de 0.511 MeV, mediante un sistema de coincidencias. Además, su precio razonable y su fácil obtención en laboratorio a partir de diferentes sales de sodio en disolución acuosa, tales como el cloruro sódico o acetato sódico, hacen de este radioisótopo uno de los más utilizados en la investigación con positrones.



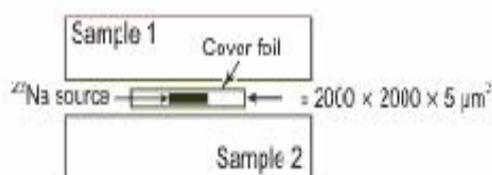
**Figura 3.** Esquema de desintegración del isótopo radiactivo de  $^{22}\text{Na}$

Aunque son menos comunes, también se utilizan otros isótopos como  $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{58}\text{Co}$ , etc.

Por otra parte, es necesario que la actividad de las fuentes sea débil en el caso de las medidas de tiempos de vida del positrón y del Ensanchamiento Doppler, para asegurar que los fotones detectados procedan de un mismo evento de aniquilación. Incluso actividades tan bajas como  $8 \cdot 10^5 \text{ Bq}$  ( $2.16 \cdot 10^{-2} \text{ mCi}$ ) son suficientes.

Normalmente, estas fuentes se preparan por evaporación de una solución acuosa de una sal de  $^{22}\text{Na}$  sobre una lámina metálica delgada o un polímero. Los materiales más comunes son Al, Ni y Kapton. Este último ha sido el empleado durante nuestro trabajo.

Para asegurar que la mayor parte de los positrones emitidos por la fuente penetre en la muestra y garantizar así un mejor rendimiento, la fuente se sitúa entre dos muestras idénticas, en una disposición tipo “sándwich” (Figura 4). De esta forma, sólo una pequeña fracción de positrones escapa sin penetrar en la muestra.



**Figura 4.** Esquema fuente-muestra con una disposición en sándwich.

Las muestras deben ser idénticas en cuanto a naturaleza y tratamiento, no importando tanto la forma o el tamaño de las mismas, aunque deben de tener un espesor mínimo ( $<0.1\text{mm}$ ) para garantizar así que una fracción importante de positrones se aniquila dentro de ambas.

## 2. TÉCNICAS DE MEDIDA DE ANIQUILACIÓN DE POSITRONES

El análisis del comportamiento de los positrones al difundirse en la materia proporcionará información acerca de las propiedades de la misma. La *Espectroscopía por Aniquilación de Positrones (PAS)* es una técnica importante en la investigación de materiales que permite estudiar la estructura electrónica y defectos en sólidos. Se trata, como ya hemos dicho, de una prueba no destructiva, en la que se hace incidir positrones en una muestra para obtener patrones gamma producidos por la aniquilación de dichas partículas con los electrones presentes en dicha muestra.

En PAS se puede recabar información sobre el material a través, principalmente, de dos vías:

- 1.- El estado del electrón participante en la reacción de aniquilación que establece la dependencia en la densidad electrónica local, la estructura electrónica, etc, en el lugar en el que se produce la aniquilación.
- 2.- El estado del positrón en el momento de la aniquilación: positrón libre, capturado en una cavidad, formación de Ps y sus diferentes estados en el medio. Dicho estado es un resultado de las interacciones del positrón previas a la aniquilación.

A continuación se describen las principales técnicas de medidas empleadas en PAS, haciendo especial énfasis en la técnica de Ensanchamiento Doppler de los fotones de aniquilación, por ser la empleada en nuestro trabajo.

### 2.1 Medida de tiempos de vida

Esta técnica se basa en la medida del intervalo de tiempo comprendido entre la emisión de los positrones desde la fuente radiactiva y su aniquilación.

La realización de estos experimentos precisa, por tanto, de la utilización de fuentes de positrones que emitan simultáneamente con la emisión del positrón, un fotón gamma que llamaremos de nacimiento. A continuación, se muestra una tabla de varios radioisótopos adecuados para la realización de experimentos de vidas medias:

Isótopo	Vida media
<sup>64</sup> Cu	13 horas
<sup>22</sup> Na	2.6 años
<sup>58</sup> Co	71 días
<sup>68</sup> Ge	270 días

*Tabla 1. Vidas medias.*

No obstante, como ya se ha comentado anteriormente, el radioisótopo más utilizado es

el  $^{22}\text{Na}$ , que emite un fotón gamma de 1.275 MeV, casi simultáneamente con un positrón (Figura 3).

Se trata de medir el intervalo de tiempo entre la emisión de este fotón de 1.275 MeV (señal de start) y uno los dos fotones gamma de 511 keV debidos a la aniquilación con los electrones de la muestra (señal de stop). Un sistema típico de medida de tiempos de vida se muestra en la figura 5.

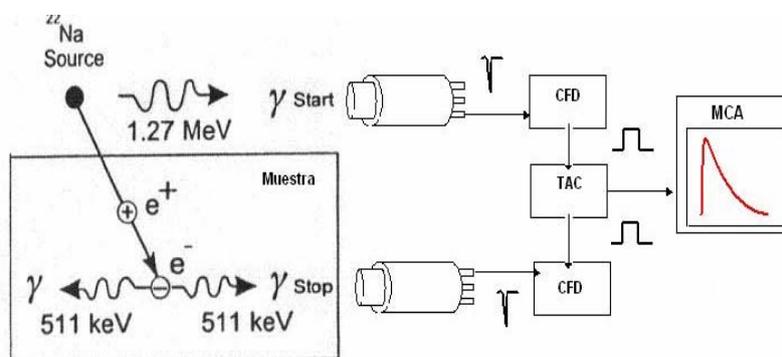


Figura 5. Esquema de un sistema de medida de tiempos de vida de positrones en sólidos. El tiempo de vida se mide como el intervalo de tiempo entre la aparición de los fotones de START y de STOP. En el TAC (time to amplitude converter) el intervalo de tiempo es convertido en amplitud de un pico. La amplitud de la señal de salida es proporcional a esta diferencia de tiempo. El análisis de los tiempos se puede hacer por tanto, con procedimientos de espectrometría de altura de pulsos, con un analizador multicanal, por ejemplo.

Todos los fotones emitidos son recogidos por los detectores. De entre estos fotones es necesario seleccionar los correspondientes al intervalo de energía deseado.

Así, la señal debida a los fotones detectados se hace pasar a través de Discriminadores de Fracción Constante (CFD) que generarán un pulso lógico cuando la energía de la señal esté comprendida en un intervalo previamente determinado. Para la señal de 'start' el intervalo debe estar centrado en 1275 keV y para la señal de 'stop', ha de estar alrededor de 511 keV. Los pulsos de salida pasarán a un Convertidor Tiempo-Amplitud (TAC), de tal manera que la amplitud del pulso resultante es proporcional a la diferencia temporal entre el pulso de 'start' y 'stop'. Para el posible tratamiento posterior es necesario el almacenamiento de los datos en un tarjeta multicanal conectada a un PC que permitirá obtener el espectro de tiempos completo de la muestra en estudio (figura 5).

## 2.2 Medidas de correlación angular

Como ya se ha comentado anteriormente, la conservación del momento en el proceso de la aniquilación y el que ésta no se produzca con electrones y positrones completamente en reposo, conduce a que los fotones de aniquilación se emitan en direcciones que se alejan de la colinealidad en un ángulo  $\theta$  (Figura 6), el cual, dado que la energía de los positrones termalizados es muy pequeña, está íntimamente relacionado con el momento de los electrones del sólido.

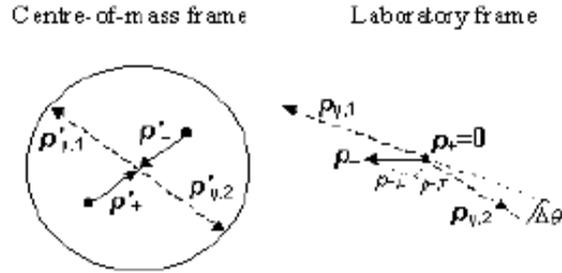


Figura 6. Diagrama cinético del proceso de aniquilación del para  $e^-e^+$ . En el sistema del laboratorio,  $p_-$  es el momento del electrón,  $p_+$  es el momento del positrón y  $p_{\nu,i}$  ( $i=1,2$ ) son los momentos e los fotones de la aniquilación. Los subíndices  $L, T$  se refieren a las componentes longitudinal y transversal, respectivamente. Análogamente, en el sistema del centro de masas nos encontramos con la misma notación.

Las componentes del momento perpendiculares a la dirección de propagación de la radiación de aniquilación,  $p_{x,y}$ , están relacionadas con la desviación,  $\theta_{x,y}$ , respecto de la colinealidad de la radiación de aniquilación según:

$$\theta_{x,y} = \frac{p_{x,y}}{m_0 c}.$$

La medida del ángulo  $\theta$  se lleva a cabo mediante un sistema experimental como el que se muestra a continuación (Figura 7):

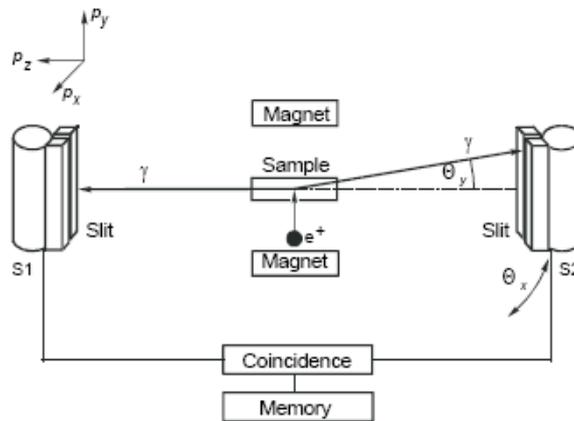


Figura 7. Dispositivo experimental para la medida de la correlación angular en una dimensión.

Los positrones procedentes de la fuente radioactiva, la cual se sitúa fuera del campo de visión de los detectores, penetran en la muestra donde se aniquilan emitiendo dos fotones  $\gamma$  que son detectados en coincidencias por los dos detectores. Delante de estos, se sitúan dos colimadores que definen la resolución del sistema ( $0.2 \sim 0.5$  mrad). Debido al elevado momento de los fotones  $\gamma$  ( $\sim m_0 c$ ), que produce una no colinearidad más bien pequeña los detectores se sitúan a una gran distancia de la muestra, típicamente unos 5 o 10 metros, de forma que únicamente los fotones de aniquilación dentro de un ángulo sólido muy pequeño serán detectados y además se conseguirá así una gran resolución angular. Debido a ello, son necesarias fuentes de positrones más activas en comparación con las utilizadas tradicionalmente

en la espectroscopia de tiempos de vida o en la medida del ensanchamiento Doppler de la línea de aniquilación. Además, para minimizar la reducción de la tasa de cuentas debido a la distancia entre fuente y muestra (de varios mm), un campo magnético fuerte (alrededor de 1 Tesla) se utiliza normalmente para guiar los positrones hasta la muestra.

Esta técnica proporciona la misma clase de información que la espectroscopia por ensanchamiento Doppler, que será descrita a continuación, sin embargo la resolución en los momentos de los electrones en el material proporcionada por las medidas de correlación angular es mucho mejor.

### ***2.3 Medida del ensanchamiento Doppler de la línea de aniquilación.***

Se trata de un método preciso para la caracterización de defectos mediante la medida de la distribución de momento de los electrones. Está basado en la medida y análisis de la forma y anchura de la línea de aniquilación del positrón, que corresponde directamente a la distribución de momento del par electrón-positrón. De esta forma, se obtiene información acerca de los electrones con los que el positrón se aniquila.

Los electrones de las capas internas, próximas a los núcleos atómicos, están caracterizados por un momento alto y dan lugar a un mayor ensanchamiento del espectro Doppler, mientras que aquellos de las capas externas contribuyen con un menor momento. Por tanto, los espectros Doppler están formados por una parte central parabólica (contribución de las aniquilaciones con los electrones de conducción y valencia) y por una componente gaussiana (contribución de las aniquilaciones con los electrones más internos). Es decir, el espectro de energías consistirá en un pico centrado en 511 keV con cierta forma gaussiana debido a aquellos fotones cuya energía difiere de dicha cantidad según la energía transmitida por el par ( $e^-$ ,  $e^+$ ). Los fotones con energía más cercana a 511 keV son los procedentes de la interacción con los electrones libres de la banda de valencia, que tienen menor energía cinética, mientras que los fotones de la cola del pico son los debidos a la interacción con los electrones del núcleo del átomo (Figura 8). De esta manera, la variación de la densidad electrónica debida, por ejemplo, a la existencia de vacantes, supondría una disminución del número de los electrones del core y, por lo tanto, un estrechamiento de la base del pico y aumento de la amplitud.

Así, la medida de la distribución de energía y momento de los dos fotones gamma emitidos como resultado de la aniquilación en un medio material proporciona información muy valiosa sobre entorno químico y físico de la región donde se ha producido la aniquilación.

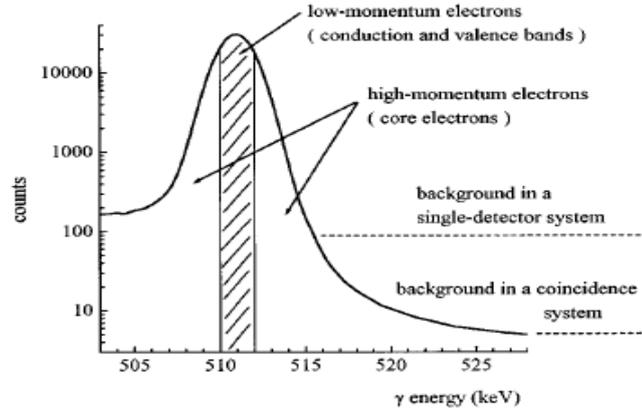


Figura 8. Forma típica de la línea de aniquilación.

Este ensanchamiento de la línea de aniquilación es explicado por el principio de conservación Energía-Momento:

El par electrón-positrón transfiere su energía y momento  $\mathbf{p}$  (Figura 2), a la nueva pareja de fotones creados. Como los positrones están termalizados, la energía total de los fotones gamma viene dada por  $(2m_0c^2 - E_B)$ , donde  $m_0c^2$  es la energía en reposo del electrón y  $E_B$  es la energía de enlace. Cuando el par electrón-positrón no están en reposo relativo, esto es, la velocidad del centro de masas no es cero, la energía total no se reparte por igual entre los dos fotones. Los fotones estarán desplazados en energías respecto del centro del pico,  $(m_0c^2 - E_B / 2)$ , en una cantidad dada por

$$\Delta E = \frac{p_{\parallel} c}{2}.$$

donde  $p_{\parallel}$  es la componente longitudinal del momento del par en la dirección de propagación de la radiación gamma emitida. Dado que la dirección de emisión de los fotones  $\gamma$  es aleatoria, un detector localizado en una determinada dirección recogerá tanto los fotones desplazados una cantidad  $+\Delta E$ , como los desplazados  $-\Delta E$ , lo que producirá un espectro de energía completo, con el correspondiente ensanchamiento del pico de aniquilación. Este ensanchamiento de energía puede ser medido utilizando un sistema formado por un único detector de alta resolución. Normalmente se utilizan detectores de Germanio de alta eficiencia refrigerados con nitrógeno líquido. Los fotones de aniquilación producen en el detector de Germanio una separación de carga que es convertida por un preamplificador, integrado en el detector, en un pulso eléctrico. La amplitud de este pulso es una medida de la energía del fotón y puede registrarse, después de ser amplificada, en un analizador multi-canal (MCA) (Figura 9).

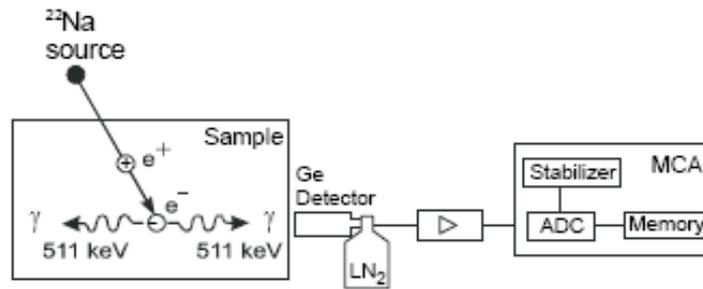


Figura 9. Dispositivo experimental de Espectroscopía de Ensanchamiento Doppler . La distribución de energías de la línea de aniquilación se mide con un detector de germanio de gran pureza. La señal del detector es procesada por un pre-amplificador integrado en el detector . Una etapa amplificadora adicional proporciona a los pulsos la amplitud suficiente para ser registrados y almacenados por el analizador multicanal.

En un sólido, los positrones se aniquilan predominantemente con los electrones más externos de la banda de conducción y de valencia, debido al potencial repulsivo creado por el núcleo. No obstante, una pequeña fracción de positrones puede pasar, por efecto túnel, a través de este potencial y aniquilarse con los electrones internos del núcleo. El análisis de estos eventos de baja probabilidad no es factible mediante un dispositivo con un único detector debido al gran número de eventos aleatorios y, por tanto, al elevado nivel de fondo ya que la relación pico-fondo es pobre en estos experimentos, del orden de  $10^3$ . Este problema puede solucionarse utilizando un sistema de dos detectores que seleccionen y recojan sólo los eventos que han ocurrido simultáneamente, eliminándose así gran parte de las cuentas aleatorias que contribuyen al fondo (Figura 8). Fue Lynn, en 1977, quien consiguió desarrollar por primera vez un dispositivo experimental para detectar ambos fotones de aniquilación simultáneamente, lo que aumentaba la relación pico-fondo hasta el orden de  $10^5$  y mejoraba la resolución relativa de energía en un factor de  $\sqrt{2}$ . Así, este método permite observar los electrones del core del átomo, los cuales contienen información acerca de los diferentes elementos.

El sistema experimental para esta técnica se muestra en la figura 10:

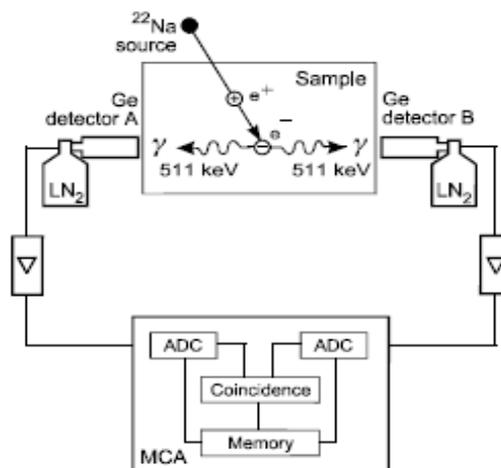


Figura 10. Sistema de Coincidencias para la medida de reducción de fondo en el espectro de Ensanchamiento Doppler . Para registrar ambos fotones colineales en coincidencia se utilizan dos detectores de Ge refrigerados con nitrógeno líquido. Como alternativa a los detectores de Ge, se puede utilizar detectores centelleadores (en uno de los brazos de coincidencia) que resultan menos costosos, aunque se disminuya así la resolución en energía.

El espectro de coincidencias de ambos detectores de Ge puede representarse como un perfil de intensidades (Figura 11 (a)), en donde los ejes de ordenadas y abscisas representan la energía del detector A y B, respectivamente. Con este diagrama se puede explicar con claridad el resultado de esta técnica.

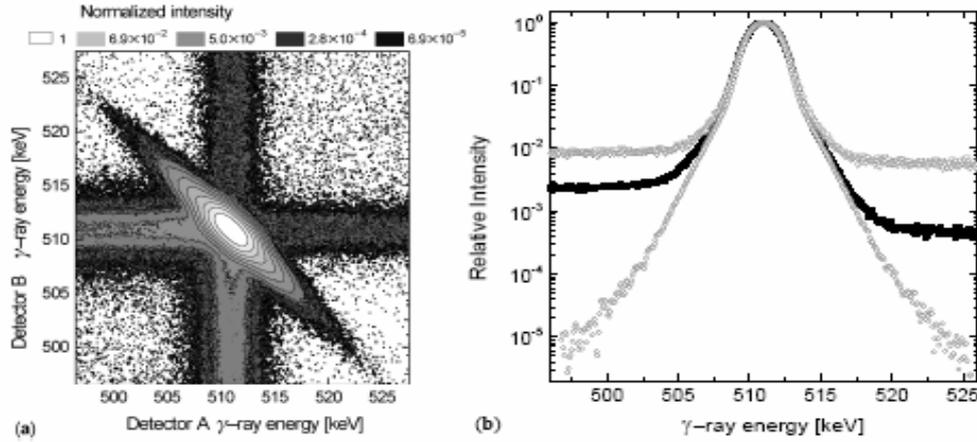


Figura 11. (a) Diagrama de intensidad bidimensional. Los ejes horizontales y verticales son las energías de los rayos gamma registrados por los detectores según el esquema de la figura 9. (b) Representación del número de cuentas en uno de los detectores en coincidencia con el otro. Refleja una reducción drástica del fondo con el dispositivo experimental de la figura 9.

Para cada evento en coincidencia, las energías de ambos fotones gamma (denotadas por  $E_0$  y  $E_1$ ) son registradas en dos detectores de Germanio de alta pureza situados a  $180^\circ$  uno del otro y a ambos lados de la muestra. Estas energías se representan en los ejes horizontal y vertical y el número de cuentas queda reflejado por el color. El pico central, de gran intensidad, está centrado en  $E_0 = E_1 = 511$  keV y corresponde a la aniquilación del positrón con los electrones de valencia.

A cada lado de este pico central el espectro muestra bandas horizontales y verticales. Las bandas de baja energía (la horizontal con energía  $E_0 < 511$  keV y la vertical con  $E_1 < 511$  keV) son debidas sobre todo a eventos en los que un detector registra un fotopico mientras que el otro detecta la energía del segundo fotón (procedente del mismo proceso de aniquilación) con un valor menor debido a una recolección incompleta de carga. Por otro lado, las bandas de alta energía ( $E_0$  y  $E_1 > 511$  keV) están asociadas a eventos en los que un detector registra un fotón del fotopico mientras que el otro detecta varios eventos apilados.

La región elíptica, que se extiende diagonalmente con una energía  $E_0 + E_1 \approx m_0c^2 = 1022$  keV, corresponde a la aniquilación con los electrones del núcleo. Este perfil diagonal puede explicarse por la conservación del momento durante el proceso de aniquilación. El aumento de la energía en un detector (debido a los fotones de aniquilación con una energía  $E + \Delta E$ ) conduce a una reducción simultánea de la energía en el segundo detector, de forma que la suma de las energías de los fotones de aniquilación permanece constante y aproximadamente igual a 1022 keV. Por tanto, esta diagonal del espectro puede analizarse y observar las variaciones de forma debidas a las contribuciones de los electrones del 'core'. Debido a posibles diferencias de eficiencia entre los dos detectores, el eje de coincidencias no es exactamente la diagonal.

Aunque las medidas de ensanchamiento Doppler proporcionan menor resolución que las de correlación angular, presentan otro tipo de ventajas frente a estas últimas: por un lado, su eficiencia es mucho mayor ya que la muestra puede colocarse muy cerca del detector. Así se pueden obtener medidas con una estadística suficientemente buena en periodos de tiempo cortos y con fuentes de moderada actividad.

### 3. DISPOSITIVO EXPERIMENTAL EMPLEADO

El principal objetivo de nuestro trabajo ha sido diseñar un dispositivo experimental capaz de restar fondo al espectro de Ensanchamiento Doppler producido por una muestra patrón (aleación Fe-Al con presencia de vacantes), para posteriormente ser utilizado en el estudio de defectos de distintos materiales.

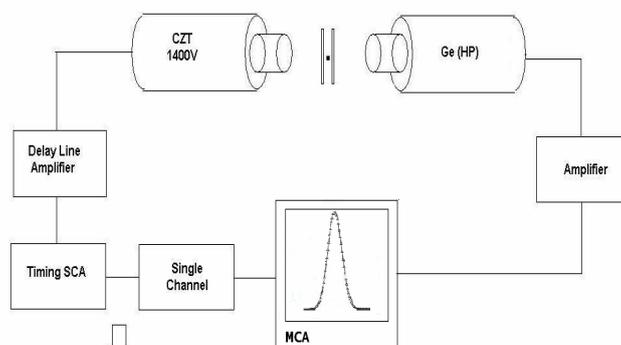


Figura 12. Esquema del dispositivo experimental del Doppler en Coincidencias empleado en el laboratorio.

#### 3.1 Detectores

Como se ha discutido en la sección anterior, para el análisis de los eventos de aniquilación de los positrones con los electrones del núcleo es necesario utilizar un sistema de dos detectores que recojan los dos fotones producto de la aniquilación y seleccionen aquellos eventos que se han producido simultáneamente.

La mayoría de los detectores de radiación presentan un comportamiento similar: la radiación penetra en el detector e interacciona con los átomos de éste. Fruto de esta interacción, la radiación cede toda o parte de su energía a los electrones ligados de estos átomos. Se libera así, un gran número de electrones de relativamente baja energía que son recogidos y analizados mediante un circuito electrónico.

Los dos detectores utilizados en nuestro trabajo han sido un **detector CZT** (de  $15 \times 15 \times 7.5 \text{ mm}^3$  de tamaño de detección y 1400 V de bias) y otro de **Germanio de alta pureza** (57.1 mm de diámetro x 45.9 mm de longitud) (Figura 13), cuyas características serán descritas a continuación.

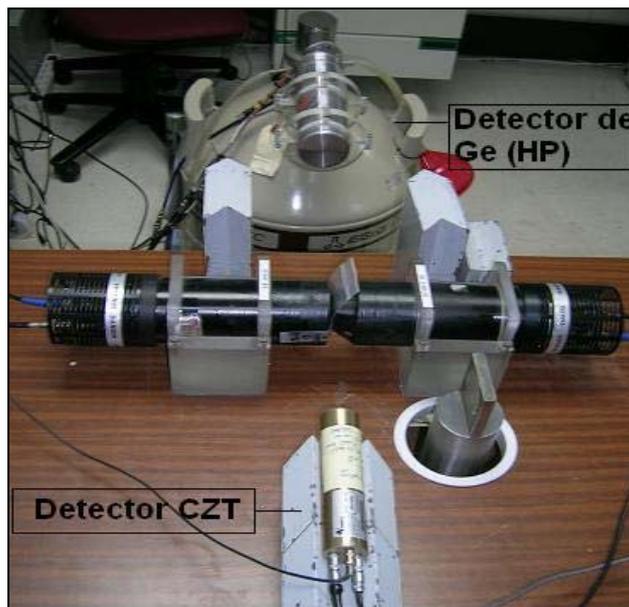


Figura 13. Detectores de HPGe y CZT alineados para la medida del Ensanchamiento Doppler de la línea de aniquilación en coincidencia. Son los detectores que aparecen en la parte superior e inferior de la fotografía.

### 3.1.1. Detectores semiconductores de Ge

El principio de funcionamiento puede asemejarse al de una cámara de ionización, donde el medio ionizable, en vez de un gas, consiste en un semiconductor (Ge o Si) de alta resistividad. La alta resistividad se alcanza mediante la formación de zonas del material exentas de portadores libres (zonas de carga espacial).

Los materiales sólidos semiconductores (Germanio y Silicio) son alternativas a los centelleadores para construir detectores de radiación. Ambos, el Ge y el Si, forman cristales sólidos en los cuales los átomos de valencia IV forman cuatro enlaces covalentes con los átomos vecinos. Todos los electrones de valencia, participan por tanto, en los enlaces y la estructura de bandas muestra una banda de valencia llena y una banda de conducción vacía (a 0 K), comportándose, por tanto, el material como un aislante. Pero a temperatura ambiente, un pequeño número de electrones (en torno a 1 de cada  $10^9$ ) se encuentran térmicamente excitados en la banda de conducción, dejando así una vacante en la banda de valencia. Los electrones de los átomos cercanos llenan esa vacante, creando a su vez en el proceso otra nueva.. El cristal tiene así sus bandas parcialmente llenas y es capaz de conducir la corriente eléctrica.

Para controlar la conducción eléctrica de los semiconductores se añaden pequeñas cantidades de materiales llamados dopantes. En el proceso de dopado, se introducen átomos con valencia III o V en la red cristalina. En el caso de átomos de valencia V (P, As, Sb), cuatro de los electrones forman enlaces covalentes con los átomos vecinos de Si o Ge mientras que el quinto electrón puede moverse libremente a través de la red cristalina, formando un conjunto de estados discretos “donadores” justo bajo la banda de conducción. Debido a que existe un exceso de portadores de carga negativa, este material se denomina semiconductor tipo-n.

Por otro lado, se pueden utilizar átomos de valencia III, los cuales intentan formar cuatro enlaces covalentes, produciendo un exceso de vacantes. Estos forman estados

“aceptores” justo sobre la banda de valencia y el material recibe el nombre de semiconductor tipo-p debido a que los conductores dominantes de carga son las vacantes cargadas positivamente.

Cuando se ponen en contacto un material tipo-n con uno de tipo-p, los electrones del semiconductor tipo-n pueden difundirse a través de la unión en el semiconductor de tipo-p y combinarse con las vacantes. En las proximidades de la unión p-n, los conductores de carga son neutralizados, creando una región denominada zona de depleción o vaciamiento, donde no hay cargas libres, sólo impurezas ionizadas fijas. Es decir, la difusión de electrones de la región tipo-n deja atrás estados ionizados donadores fijos, mientras que en la región tipo-p quedan estados aceptores fijos cargados negativamente. Se crea por tanto un campo eléctrico que finalmente impide que la difusión continúe.

Si alguna radiación penetra en la zona de vaciamiento, se crea un par electrón-hueco de tal manera que los electrones fluyen en una dirección y los huecos en sentido contrario debido a la presencia del campo de la zona de carga espacial o de vaciamiento, es decir, se crea una corriente. El número final de electrones recogidos pueden crear un pulso electrónico cuya amplitud es proporcional a la energía de la radiación, pues será esta la que determinará el número de pares electrón-hueco creados.

En la práctica estos detectores operan con grandes voltajes inversos (1000-3000V) que aumentan la magnitud del campo eléctrico en la región de vaciamiento (haciendo más eficiente la recogida de la carga) y aumentando la zona de carga espacial (y, por tanto, el volumen de sensibilidad del detector).

Las principales ventajas de los detectores semiconductores son:

- La alta densidad del medio ionizado. Esto implica una considerable eficiencia de detección por unidad de volumen efectivo del detector.
- La energía necesaria para producir un par de portadores de carga en los semiconductores es aproximadamente 10 veces menor que en los gases y 100 veces menor que en un centelleador.
- Por lo tanto, para una misma energía impartida, la cantidad de portadores de carga es mucho mayor en los semiconductores que en gases o centelleadores, lo que se traduce en menores fluctuaciones estadísticas, por lo que se tiene una mejor resolución.
- La movilidad de los electrones y huecos es elevada y por otra parte, es reducido el volumen efectivo del medio detector. Esto implica un tiempo de recolección de cargas muy breve (del orden del nanosegundo) y en consecuencia la resolución en tiempo es elevada.

A su vez, el inconveniente tecnológico que presentan es:

- Los defectos en su estructura cristalina (vacantes y dislocaciones) producen recombinación de portadores y, por lo tanto, pérdida de algunos de ellos, lo que resta eficiencia de detección y de resolución en energía, ya que puede no recogerse toda la carga creada por la partícula ionizante.

Si se pretendiera utilizar Ge o Si del nivel de pureza que se emplea para la construcción de componentes electrónicos en la detección de detectores semiconductores, sería imposible lograr zonas de carga espacial de espesor mayor que unos pocos milímetros. En consecuencia, se recurrió a la compensación con Litio, que permite alcanzar zonas de carga espacial cuyo espesor puede llegar a unos 10 ó 15 mm, lo que hace posible construir detectores que permiten realizar espectroscopia gamma de alta energía.

Para fabricar estos detectores se puede partir de un semiconductor de tipo-p en el que se difunden átomos de Litio en su superficie. Los átomos de Li tienden a formar estados donadores y, de este modo, crear una fina capa tipo-n. Bajo la acción de un potencial inverso y a temperatura ligeramente elevada, el Li se difunde en la región tipo-p, produciendo un región de vaciamiento grande. Estos detectores se conocen como detectores de Ge(Li).

La principal desventaja de este tipo de detectores reside en que la distribución de Li a temperatura ambiente resulta muy inestable, por lo que los detectores deben almacenar y operar a bajas temperaturas (normalmente la que corresponde a la evaporación de nitrógeno líquido a presión atmosférica, 77 °K). De no ser así, los átomos de Li migrarían fuera de sus posiciones de la red en la región de vaciamiento y se destruiría la efectividad del detector. Además manteniendo el detector frío se reduce la excitación térmica de los electrones a través del gap de energía prohibida, reduciéndose así el ruido de fondo de la señal producida por el detector.

La capa de tipo-n creada al producir detectores como Ge(Li) es del orden de 1 mm de grosor, el cual es fácilmente penetrable por rayos gamma de energía media (el rango de un fotón de 100 keV en Ge es de unos 4 mm).

A partir del logro de semiconductores de muy alto grado de pureza ( $10^{10}$  átomos de impureza/cm<sup>3</sup>), se puede obtener Ge de resistividad específica sumamente elevada, que posibilita la obtención de zonas de carga espacial de aproximadamente 10 mm de espesor, con tensiones de polarización no demasiado elevadas.

Así, se pueden obtener detectores con volúmenes activos de detección comparables a los logrados mediante la difusión de Li en la red cristalina. Estos detectores reciben el nombre de “**hiperpuros**”, ya sea de Ge o Si y han comenzado a ser ampliamente utilizados en espectrometría de radiación fotónica de alta resolución.

Para la obtención de semiconductores de muy alto grado de pureza debe recurrirse a técnicas sofisticadas de purificación. Aunque los costos son actualmente elevados la principal ventaja, frente a los compensados con Li, reside en que si bien deben ser operados a bajas temperaturas (a efectos de no permitir la elevación de corriente a través de los mismos) no se requiere su almacenamiento en esas condiciones ya que no existe el peligro de la redifusión del Li por efectos térmicos.

El espectro proporcionado por el detector HPGe (High Purity Ge) empleado en el laboratorio, con la fuente de <sup>22</sup>Na y muestra patrón (aleación Fe-Al) se puede observar en la figura 14.

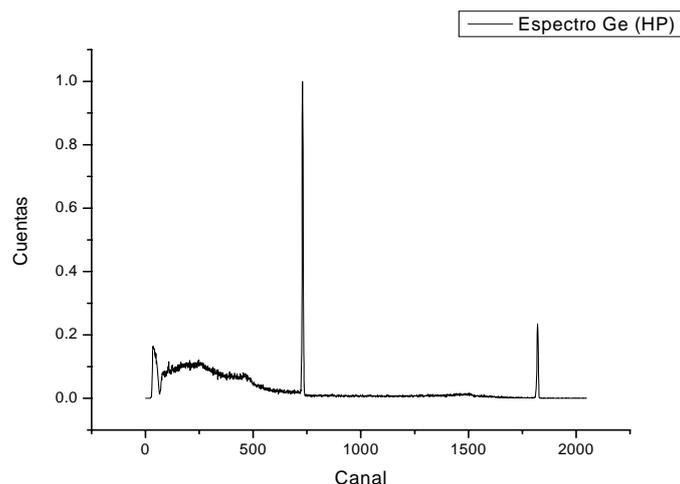


Figura 14. Espectro de Ge

### 3.1.2 Detectores de CZT

Los *detectores de CZT* están formados por un cristal de Teluro de Cadmio Zinc. Se trata de un semiconductor de gap ancho y elevado número atómico (alrededor de 50). Estas dos cualidades dan lugar a importantes ventajas. Debido a su alto número atómico presentan una gran sensibilidad a los rayos X duros y a los rayos gamma así como una relación entre sección eficaz Compton/Fotoabsorción cercana a la unidad para energías alrededor de 100 keV. Así, la alta densidad del cristal proporciona un excelente poder de frenado en un ancho intervalo de energías. Por otra parte, la capacidad de operar a temperatura ambiente sin necesidad de nitrógeno líquido permite construir dispositivos más compactos, aunque a cambio los cristales de CZT no tienen la misma eficiencia en la recolección de la carga que los de Ge o Si. En consecuencia, los detectores de CZT presentan un espectro cuya forma está degradada (tiene menos resolución) respecto del teórico. Esta degradación es más acusada a energías elevadas (>50 keV) donde la absorción tiene lugar más en profundidad, debajo de la superficie del detector, de tal manera que los huecos, cuya movilidad es menor, son recogidos de manera ineficiente. Estos detectores pueden ser fabricados con una amplia variedad de formas y tamaños de tal manera que puedan ser capaces de afrontar aplicaciones que otros no pueden, pero incluso los mejores cristales de CZT presentan una cola ancha, que se hace más pronunciada a energías elevadas. No obstante, este inconveniente se resuelve hoy en día mediante técnicas de pulse-shaping o bien segmentando el detector en varios volúmenes y recogiendo la suma de intensidades en cada subvolumen del detector.

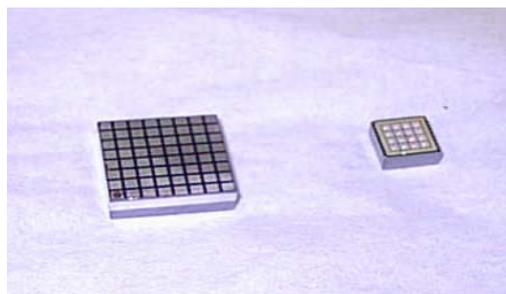
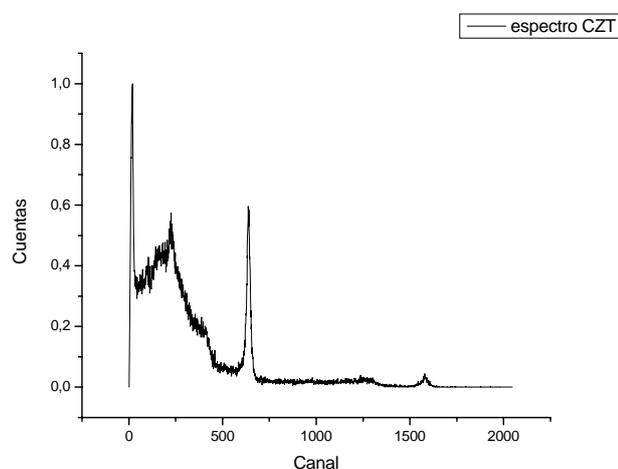


Figura 15. Cristal de Teluro de Cadmio y Zinc.

La resolución de estos detectores de CZT se encuentra entre la de los centelleadores y la de los detectores de Germanio. A continuación, observamos el espectro recogido por el detector CZT (1400 V Bias) utilizado durante nuestro trabajo:



*Figura 16. Espectro proporcionado por el detector CZT.*

Si comparamos este espectro con el proporcionado por el detector de Ge (Figura 14), observamos que la FWHM es mayor para el caso del detector CZT, lo que implica una peor resolución en energía (Tabla 3.1).

		<b>HPGe</b>	<b>CZT</b>
<b>Tamaño del Cristal</b>		<i>Diámetro = 57.1mm</i> <i>Longitud = 57.1 mm</i>	15X15X7.5 mm <sup>3</sup>
<b>FWHM</b>	<b>Pico 511 keV</b>	4.2	19.8
	<b>Pico 1.28 MeV</b>	5.5	18.9
<b>Relación Pico-Fondo</b>		102.3	30.5

*Tabla 2. Características de los detectores utilizados.*

### **3.2 Amplificadores y ‘Timing SCA’**

Las señales procedentes de ambos detectores necesitan ser amplificadas y procesadas convenientemente. De esta forma, son convertidas en pulsos lineales cuya amplitud y forma proporciona información útil. Estos pulsos lineales son sometidos a varios procesos antes de ser recogidos en un monitor, o incluso pueden ser convertidos en pulsos lógicos con el fin de alimentar una unidad de coincidencias o un TCA. Por tanto, de las diferentes unidades electrónicas empleadas en el tratamiento de la señal, algunas son dispositivos lineales diseñados para interpretar y proporcionar pulsos lineales, mientras que otros módulos, o parte de estos, son unidades lógicas que analizan la señal de entrada y basándose en ciertos criterios de selección determinan si debe producirse un pulso lógico como salida.

En primer lugar, ambas señales son amplificadas por unos pre-amplificadores que se encuentran integrados en los respectivos detectores. Estos pre-amplificadores convierten los pulsos de carga en pequeños pulsos de voltaje, del orden de los milivoltios, por lo que es necesario someterlos a una segunda amplificación.

Los amplificadores utilizados en el laboratorio pueden observarse en la figura 17. La señal procedente del HPGe se hace pasar por el amplificador situado a la izquierda de la fotografía (amplificador ‘spectroscopy amplifier’ ORTEC 572 [3]), mientras que la del CZT se pasa por el ‘Delay Line Amplifier’ (modelo ORTEC 460 [3]).

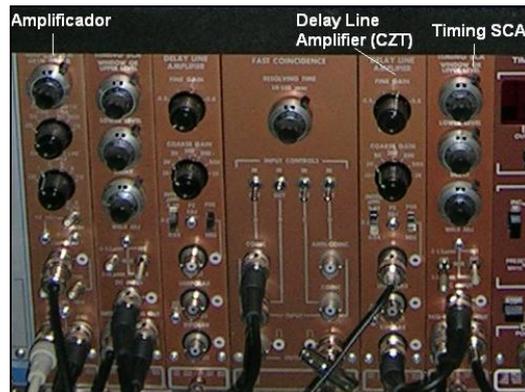


Figura 17. Amplificadores y ‘Timing SCA’ empleados en nuestro trabajo.

El papel de estos amplificadores es tomar la señal del detector y generar un pulso de amplitud y forma adecuada para el analizador multicanal. Se diferencian en la forma del pulso de salida, en cada caso adecuado a una aplicación distinta. El factor de amplificación o ganancia requerida varía según la aplicación pero típicamente se encuentra en un factor entre 100 y 5000. Esta ganancia se puede ajustar, normalmente, en un amplio intervalo mediante una combinación de controles (‘Fine Gain’ y ‘Coarse Gain’), que permiten modificar la altura de los pulsos. Mediante el control ‘Shaping Time’ se modifica la anchura temporal de los pulsos para ajustar la ventana de coincidencia de la unidad de coincidencias utilizada y las características del analizador MCA utilizado.

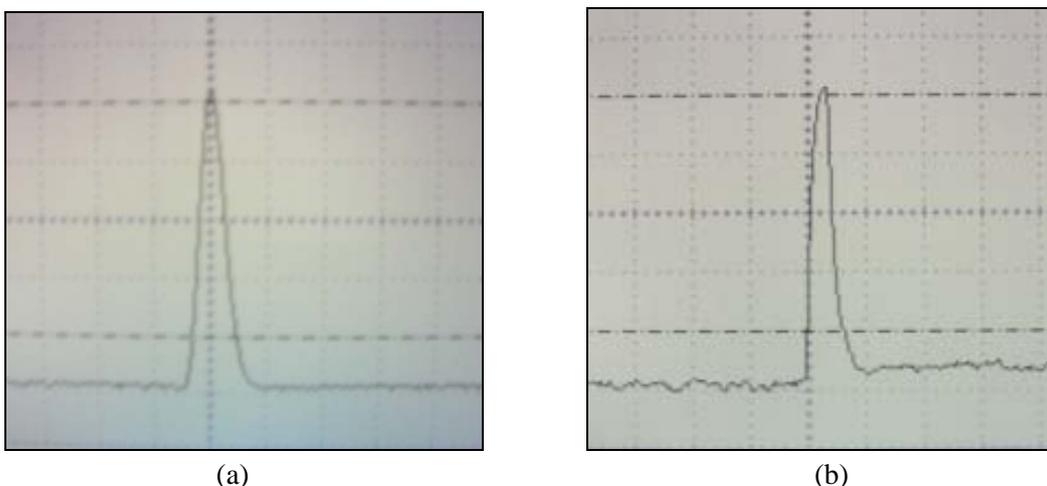


Figura 18. (a) Pulso del HPGe amplificado por el Spectroscopy amplifier. (b) Pulso del CZT amplificado.

Cada amplificador tiene dos salidas. Se utiliza la salida ‘unipolar’ del amplificador por el que pasa la señal del HPGe para alimentar el analizador multicanal (MCA). En principio, la

salida unipolar del ‘Delay Line Amplifier’ (CZT) no se conecta a nada, pero podría introducirse en cualquier MCA para monitorizar el espectro.

La salida ‘bipolar’ de cada amplificador es introducida en un ‘**Timing SCA**’ (ver figura 17). Este módulo, que está configurado en el modo ventana, tiene como función seleccionar la ventana de energías en la que se pretende trabajar. Para ello disponemos de dos selectores que permiten fijar los umbrales superior e inferior de la ventana. Así, cada pulso de energía mayor que el umbral inferior y que no supere el umbral superior producirá un pulso en la salida lógica. Cada SCA tiene varias salidas lógicas. Las negativas (rápidas) son pulsos muy cortos, mientras que las positivas (lentas) son pulsos de 5 V y 0.5 microsegundos de duración. Estas salidas lógicas pueden producirse con un retardo que se puede elegir con el potenciómetro ‘delay’ incorporado en este módulo entre 0.1 y 11 microsegundos.

Esto es utilizado para ‘alinearse temporalmente’ los detectores, que pueden encontrarse demasiado desfasados en el tiempo como para dar coincidencias. De esta forma, una vez medido el retardo entre las señales producidas por ambos detectores, se sitúa el potenciómetro del SCA asociado al CZT en la posición adecuada. El pulso lógico resultante (retardado) se hace pasar por un segundo amplificador para atenuarlo y adecuarlo al rango de voltajes que acepta el MCA.

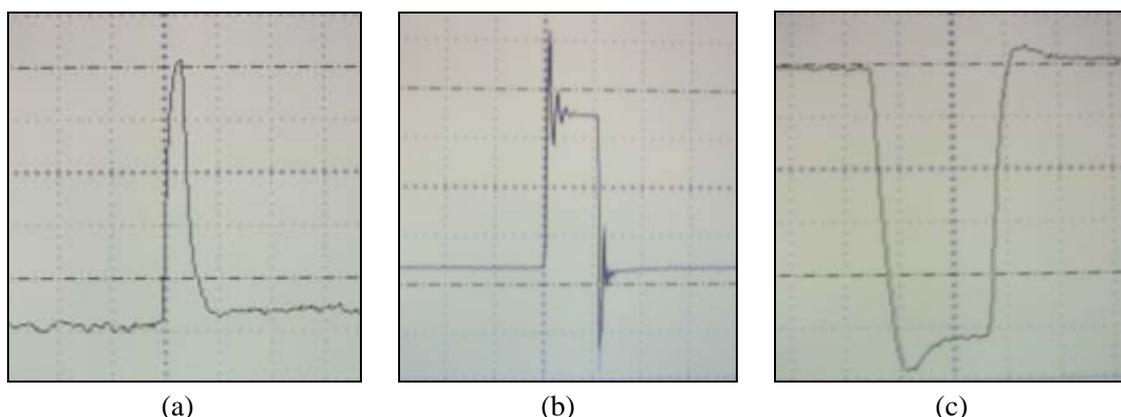


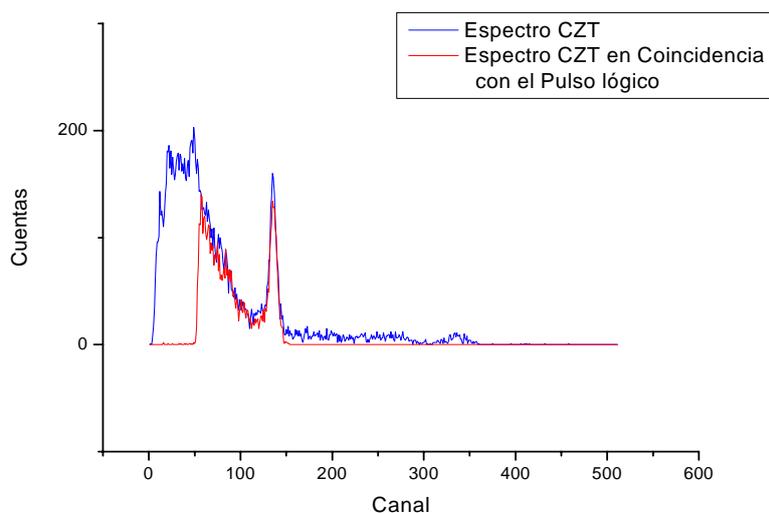
Figura 19. (a) Pulso amplificado detectado por el CZT. (b) Salida lógica producida por el SCA tras procesar pulsos del CZT, vista en el osciloscopio. La señal del detector pasa por el ‘Timing SCA’ y da lugar a un pulso lógico. La salida consiste en un pulso positivo de un ancho de alrededor de 1 microsegundo. La distorsión en la forma de onda se debe probablemente a la no adaptación de impedancias entre la línea coaxial y la entrada del osciloscopio. (c) Señal lógica atenuada e invertida. La escala de tiempos está en 0.5 microsegundos por división.

De esta forma, cada vez que una señal procedente del CZT tiene un amplitud comprendida entre los umbrales fijados con el ‘Timing SCA’, éste envía un pulso lógico más o menos retardado.

En primer lugar, es necesario determinar los umbrales de energía, que deberán fijarse en un entorno de 511 keV, correspondiente al pico de aniquilación. Para ello, se conecta en el MCA la señal lógica del CZT y la señal lineal amplificada. Para monitorizar los espectros utilizamos el programa de ordenador CassyLab. Gracias al modo ‘Coincidence’ que ofrece este programa, podemos registrar el espectro del CZT en coincidencia con los pulsos lógicos del SCA. Es decir, cuando llega al MCA un pulso lógico asociado a un intervalo de energía predeterminado, el programa CASSY selecciona en una ventana de 4 microsegundos las cuentas recibidas del detector de CZT. De esta forma, dado que ambas señales proceden del mismo detector, manipulando los umbrales superior e inferior del SCA se podrá elegir el

intervalo de energías adecuado, ya que sólo los pulsos que el SCA deje pasar se observarán en el espectro. Si los umbrales superior e inferior del SCA estuviesen en sus posiciones máxima y mínima respectivamente, se registraría el espectro completo del  $^{22}\text{Na}$  recogido por el detector CZT. Sin embargo, al cerrar gradualmente la ventana, se observa como se va reduciendo en ancho de energías monitorizado, hasta que aislamos el pico de 511 keV.

A continuación se muestra el espectro registrado. Se ha seleccionado un intervalo de energía alrededor de 511 keV, incluyendo también los fotones de 511 que han sufrido un Efecto Compton (gráfica roja figura 20), pero por encima de la energía del back-scattering (unos 100 KeV).



*Figura 20. Espectro registrado por el CZT en coincidencia con el pulso lógico.*

Por otro lado, es necesario también conocer el retardo existente entre el detector HPGe y el CZT para conseguir que las señales enviadas por ambos detectores lleguen en coincidencia al analizador multicanal. Para ello es necesario realizar unas pruebas de ‘alineamiento de tiempo de llegada’:

Trabajando en el modo de ‘coincidencias’ del programa Cassy y con el dispositivo experimental descrito anteriormente, es decir, la señal lógica del CZT en un canal del MCA y la del HPGe en el otro, se almacenan distintos espectros registrados por el detector HPGe para distintos valores del retardo del ‘Timing SCA’ del CZT y se calcula el número de cuentas en el pico. Así, se va moviendo el potenciómetro de ‘delay’ del SCA de 0.5 en 0.5 microsegundos y se adquiere un espectro cada vez. De esta forma, cuando se obtenga una alineación óptima, las coincidencias serán mayores, mientras que el número de cuentas disminuye notablemente cuando los dos detectores se encuentran desfasados, pues sólo se registran así coincidencias aleatorias. Dado que la ventana temporal del programa Cassy es de cuatro microsegundos, un desalineamiento temporal de uno, dos o tres microsegundos entre ambos pulsos nos proporcionará el mismo número de cuentas (verdaderas + aleatorias) que para el caso de alineamiento óptimo. Por otra parte, el número de cuentas de un ensayo a otro varía por fluctuaciones estadísticas (puede variar en  $\pm\sqrt{N}$ , siendo  $N$  el número de cuentas), por lo que

es necesario medir cada espectro con una duración de quince minutos para conseguir así una estadística suficientemente buena como para que estas fluctuaciones no conduzcan a conclusiones erróneas.

En la tabla que se muestra a continuación, se presentan los resultados obtenidos para las diferentes posiciones del potenciómetro y una distancia muestra-detector de 100 cm.

<b><i>Distancia Detector-Muestra:</i></b>	
<b><i>100 cm</i></b>	
<b><i>Posición del potenciómetro DELAY (<math>\mu</math>s)</i></b>	<b><math>\sum_{\text{Canales}} \frac{\text{Cuentas}}{\text{Canal}}</math></b>
0,1	683
1,1	757
2,0	778
3,0	733
4,0	714
5,0	684
6,0	746
7,0	663
7,5	299
8,0	300
9,0	291
10,0	323
11,0	302

*Tabla 3. Delay/Cuentas.*

Se puede observar dos intervalos bien diferenciados, uno con un número de cuentas menor, correspondiente a las señales desfasadas temporalmente, y otro en el que el número de cuentas aumenta notablemente, lo que implica un ‘alineamiento temporal’ de las señales. El valor óptimo del retardo para que se produzca dicho alineamiento se encuentra en la mitad del intervalo asociado al mayor número de cuentas: 4  $\mu$ s.

A continuación, se representa el número de cuentas frente al retardo introducido:

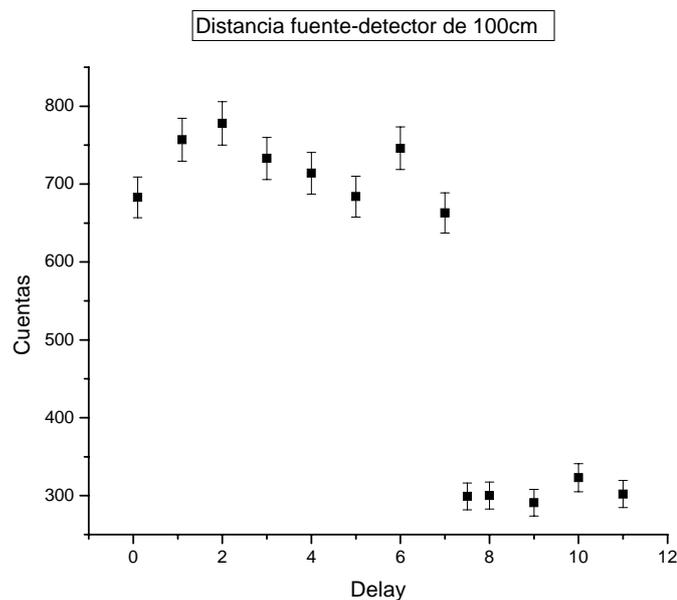


Figura 21. Representación Delay vs Cuentas. Se puede distinguir un valor límite,  $7.0 \mu\text{s}$ , que marca dos comportamientos distintos: Alineamiento y No Alineamiento. Para este valor existe cierto solapamiento, pero el alineamiento óptimo estará en la mitad del intervalo con mayor número de cuentas.

Así, se determina el valor del retardo necesario para recoger coincidencias auténticas, procedentes de un mismo evento de aniquilación, y el valor de retardo que, por el contrario, garantiza, casi seguro, coincidencias aleatorias, debidas a fotones que inciden en los detectores dentro del intervalo temporal definido por la ventana de coincidencias temporales.

En estas condiciones, se puede obtener el espectro de coincidencias del detector HPGe con la señal lógica procedente del CZT+SCA. Cada señal se lleva a uno de los dos canales del MCA-CASSY. Cuando al detector CZT le llega un fotón dentro de la ventana de energía seleccionada por el SCA (ver figura 20 por ejemplo), el programa registra los fotones que llegan al detector HPGe (de cualquier energía) dentro de un intervalo temporal de 4 microsegundos.

#### **4. RESULTADOS EXPERIMENTALES**

Una vez realizado y alineado en el tiempo el dispositivo experimental, se procede a comprobar el correcto funcionamiento del mismo y sus limitaciones. El objetivo es conseguir eliminar, tanto como sea posible, el fondo en el espectro obtenido con el detector HPGe, mediante el sistema de coincidencias diseñado. Dicho fondo está compuesto por fotones que no corresponden a la aniquilación de positrones con los electrones del material. De esta forma, el estudio del espectro en torno al pico de 511 keV, libre de fondo y por tanto correspondiente a la aniquilación de los positrones, proporciona información sobre los electrones del núcleo de los átomos que constituyen el material. Este hecho permite analizar y comparar muestras con distintos tipos de defectos.

La muestra utilizada para la comprobación del correcto funcionamiento del sistema es una aleación de Hierro-Aluminio ( $\text{Fe}_{40}\text{Al}$ ) recocida a 600 °C. El recocido es un tratamiento térmico cuyo objetivo es la eliminación de defectos. Se trata de proporcionar energía al sistema, o a los elementos atómicos que constituyen el mismo para que, al superar pequeñas barreras de potencial mediante el incremento de temperatura, alcancen situaciones de equilibrio físico más estable y de menor energía. Con ese fin, se eleva la temperatura,  $T$ , del sólido durante un tiempo hasta que se alcanza la temperatura deseada. Esta temperatura se mantiene durante un intervalo de tiempo determinado, al que llamamos tiempo de tratamiento, a partir del cual se hace descender la temperatura lentamente. El tiempo de enfriamiento no debe ser excesivamente corto con el fin de evitar que el sólido sufra tensiones térmicas que seguramente crearían más defectos de los que se desean eliminar. El tiempo de tratamiento es muy variable y dependerá de los objetivos en cada caso concreto. En el caso que nos ocupa esta muestra ha sido tratada de tal manera que presenta vacantes a temperatura ambiente.

Los espectros registrados en el laboratorio con dicha aleación de Hierro-Aluminio y con la fuente de  $^{22}\text{Na}$  se muestran en la figura 22. La gráfica en negro representa el espectro recogido por el detector HPGe (sin coincidencias), la gráfica en rojo, el espectro de coincidencias (espectro registrado para una posición del potenciómetro de 4 microsegundos, valor óptimo para alinear temporalmente, o sincronizar, las señales procedentes de ambos detectores). Este espectro de coincidencias está constituido tanto por coincidencias verdaderas, es decir, fotones que se emiten simultáneamente por la fuente y son registrados en los dos detectores, como por coincidencias aleatorias, debidas a fotones detectados simultáneamente por los detectores pero no procedentes del mismo evento de aniquilación. La gráfica verde representa el espectro de 'coincidencias retardadas', es decir, el espectro recogido con un retardo tal que las únicas coincidencias registradas son las aleatorias.

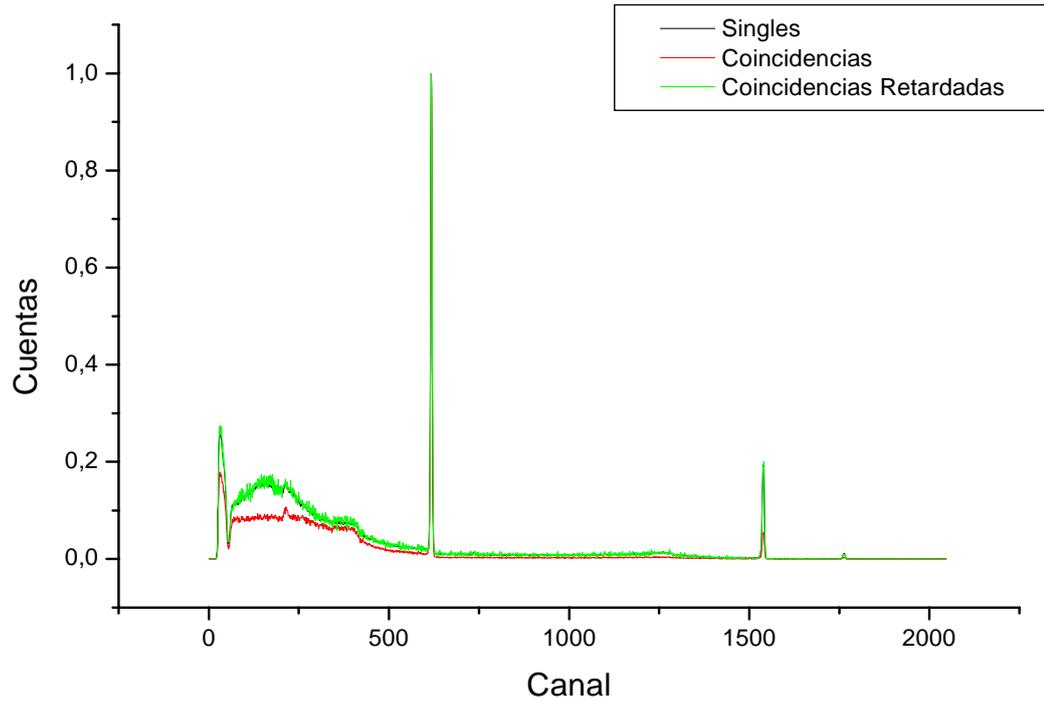


Figura 22. Espectros de Ge(HP) sin coincidencias (singles), en coincidencia y en coincidencias retardadas normalizados a la altura del pico para una distancia detector-muestra de 100 cm. El espectro de coincidencias retardadas y el recogido sin imponer coincidencias (singles), tiene la misma forma. El eje y está en unidades arbitrarias.

#### 4.1 Características de los espectros obtenidos

En primer lugar, se analizará la forma del espectro registrado sin coincidencias:

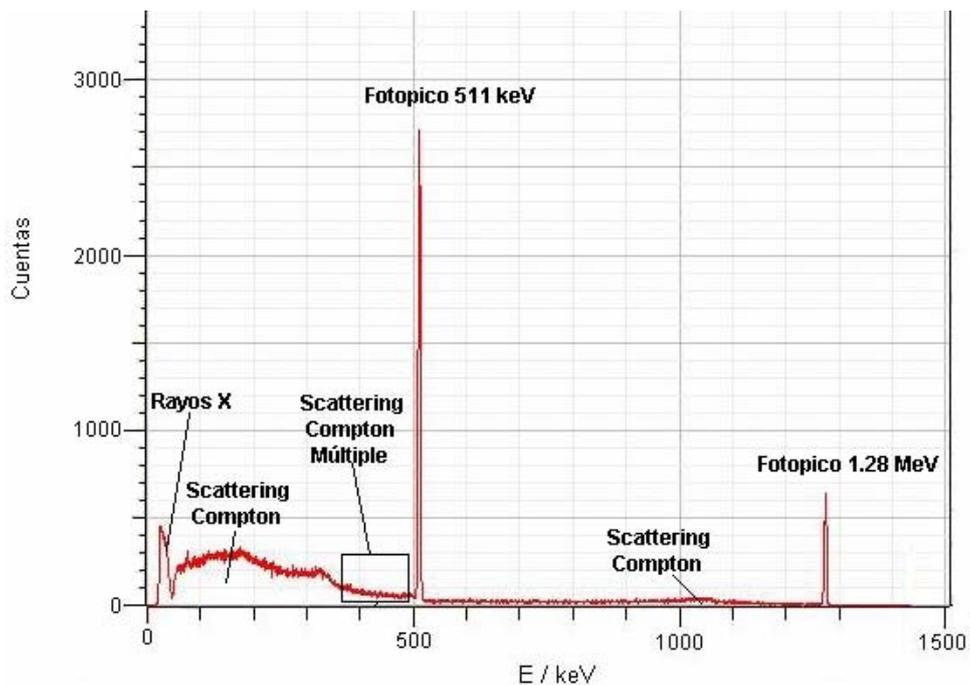


Figura 23. Espectro registrado por el detector HPGe sin coincidencias.

Para analizar la forma del espectro obtenido, es necesario conocer los diferentes procesos de interacción que pueden experimentar los fotones incidentes con los átomos del detector:

1. *Absorción fotoeléctrica*: El proceso que interesa que ocurra en el detector para poder conocer el espectro de emisión de los rayos gamma de la fuente es el efecto fotoeléctrico, ya que los fotones absorbidos por efecto fotoeléctrico depositan toda su energía en el detector. El fotón incidente entrega toda su energía a un electrón ligado a un átomo, liberándolo con una energía igual a la del fotón incidente menos la energía de ligadura atómica del electrón. El resto de procesos suponen un fondo de detección para energías menores o iguales que la del pico fotoeléctrico que hay que eliminar en la medida de lo posible para poder analizar el espectro.
2. *Efecto Compton*: Cuando un fotón interacciona por efecto Compton pierde sólo parte de su energía y es dispersado con un cierto ángulo. Cuando los fotones llegan al detector después de haber sufrido una dispersión Compton, sólo dejan en el detector parte de su energía. Esto da lugar a la denominada 'zona Compton', que ocupa una amplia región del espectro, con energías inferiores a las del fotopico. Tras la dispersión, el fotón secundario puede escapar de detector sin más interacciones, ser absorbido por efecto fotoeléctrico o sufrir una nueva dispersión Compton. Estos dos últimos casos, más probables cuanto mayor sea el detector, alteran el perfil del fondo correspondiente a una única interacción Compton y hacen que el fotón incidente pierda más energía que la posible mediante un solo proceso Compton.
3. *Creación de pares*: En este caso, la energía del fotón incidente (que tiene que ser superior a 1022 keV, para que este proceso tenga lugar) se emplea en generar un par electrón-positrón, que se reparten entre sí la energía del fotón incidente.

Así, según los procesos anteriormente descritos, el espectro de energía depositada en el detector HPGe consiste en dos picos fotoeléctricos, centrados en 511 keV y 1.28 MeV, más un perfil Compton continuo a la izquierda de cada pico fotoeléctrico

Los fotopicos de 511 keV y 1.28 MeV corresponden a los fotones resultantes de las distintas aniquilaciones de los positrones con electrones de la muestra y a los fotones emitidos en la desintegración del  $^{22}\text{Na}$ , respectivamente, que han depositado toda su energía en el detector. Los fotones que son dispersados y dejan una cantidad incompleta de energía en el detector constituyen la región Compton, asociada a cada fotopico del espectro.

Hay que señalar que el proceso de creación de pares en el rango de energías de este trabajo no tiene relevancia debido a la escasa probabilidad de que suceda a bajas energías (1.28 MeV, no siendo posible para los fotones de 511 keV).

Por último, se observa un pico en el espectro en la región de bajas energías. Este pico corresponde a rayos X (energías de unos cientos keV) cuyo origen se puede encontrar en los materiales que rodean al detector que, al recibir rayos gamma, se ionizan dejando vacantes en los niveles inferiores electrónicos de sus átomos. Tras este proceso, se producen transiciones de electrones de los niveles superiores a estos niveles, emitiendo rayos X con energía correspondiente a la diferencia de energía entre niveles.

Desde el punto de vista del análisis de los espectros obtenidos en función de los distintos mecanismos de interacción de los fotones en el detector, se puede comprobar que el espectro de coincidencias y el de coincidencias retardadas presentan la misma forma que el espectro registrado por el detector HPGe sin coincidencias, anteriormente descrito.

A continuación, se procede a estudiar el espectro de coincidencias (gráfica roja, figura 22). Se trata de analizar el espectro proporcionado por el detector HPGe cuando la señal que llega a este detector está 'en coincidencia' (alineada temporalmente), con la señal lógica del CZT. Con la configuración de módulos electrónicos dispuesta en el laboratorio y como ya se ha comentado, el MCA registrará:

- (1) *Coincidencias aleatorias*, (debidas a fotones externos y fotones procedentes de distintos eventos de aniquilación).
- (2) *Coincidencias auténticas*, es decir, fotones que son emitidos simultáneamente por la fuente. Se esperan hasta tres fotones emitidos por la fuente casi en coincidencia (sin contar las coincidencias aleatorias): el fotón de 1.28 MeV, emitido en la desintegración del  $^{22}\text{Na}$ , y los dos fotones producto de la aniquilación del positrón.

En la zona del espectro del HPGe alrededor del pico de 511 keV, se registran los sucesos en los que algún fotón ha dejado una energía comprendida entre los umbrales marcados con el 'Timing SCA' (entre 100 y 500 keV aproximadamente) en el detector CZT y una energía alrededor de 511 en el HPGe. Los pulsos registrados pueden proceder de:

- (a) Un fotón de 1.28 MeV que haya dejado energía en ambos detectores, tras sucesivos rebotes de un detector a otro o en el material de alrededor. Este caso es menos probable, dada la distancia entre los dos detectores, y más difícil de estimar y por tanto no lo consideraremos en lo que sigue.
- (b) Un fotón de 1.28 MeV que haya dejado una cantidad incompleta de energía en el CZT (debido a scattering Compton, colisiones antes de llegar al CZT o interacciones sufridas en la muestra) y llegue simultáneamente con uno de los fotones de 511 keV al HPGe, o viceversa. Estos fotones pertenecen al fondo Compton de 1.28 MeV en el espectro de CZT o de HPGe, respectivamente.

Hay que hacer notar que tanto en el caso (a) como (b), las dos señales en ambos detectores se registran realmente (y no por azar) en coincidencia. Así, por cada

fotón de 1.28 MeV emitido por la fuente, se emite casi simultáneamente un positrón que al aniquilarse da lugar a dos fotones de 511 keV.

Sin embargo, estos fotones (1.28 MeV y 511 keV) no están correlacionados angularmente y se emiten en direcciones arbitrarias. Así, el ángulo sólido subtendido para ambos detectores y por lo tanto, la distancia fuente-detector, determina el número de coincidencias de este tipo.

- (c) Dos fotones de 511 keV asociados a la aniquilación de un positrón. Son las coincidencias que interesan. En este caso, la distancia a la cual se sitúe el detector también es importante. Si el ángulo sólido subtendido por uno de los detectores es menor que el subtendido por el otro detector y no están perfectamente alineados, un porcentaje de fotones de 511 keV ‘escaparán’ sin ser registrados.

En consecuencia, la distancia a la cual se sitúa el detector HPGe respecto de la fuente es importante. Cuanto más pequeña sea esta distancia, mayor será el número de coincidencias por segundo registradas por el detector y mejor será, por tanto, la estadística de conteo. Sin embargo, una distancia relativa menor supone un aumento en la frecuencia de conteo en ambos detectores y, por tanto, aumentará el número de eventos aleatorios, (1), y también un mayor ángulo sólido subtendido entre las muestras y los detectores y, por lo tanto un aumento también de las coincidencias (auténticas) registradas que no están relacionados con la aniquilación del positrón, debidas a los procesos del tipo (a) y (b) que se han mencionado anteriormente.

La influencia de la distancia del detector HPGe a la muestra en los espectros registrados será analizada en una sección posterior.

A continuación, se procederá a analizar el espectro de ‘coincidencias retardadas’. Hay que destacar la importancia de la medida de este espectro. Los espectros de coincidencias retardadas están medidos con un desalineamiento temporal de los pulsos tal que es muy altamente improbable que se registren coincidencias provenientes de fotones en auténtica coincidencia, procedentes de un mismo evento de aniquilación y registrados por los detectores de HPGe y CZT. Como se ha explicado anteriormente, el programa CassyLab en el modo ‘Coincidence’, registra los eventos que recoge el detector de HPGe cuando el ‘Timing SCA’ envía un disparo tras recibir una señal con una energía predeterminada, en torno a 511 keV. Así, al introducir un retardo relativo entre los dos detectores mayor que 4 microsegundos, un fotón asociado a una aniquilación y que se registra gracias al detector de CZT estará desfasado respecto del segundo fotón, producto de la misma aniquilación y registrado por el detector HPGe, en más de 4 microsegundos. El resultado final es que los dos fotones procedentes del mismo evento de aniquilación no entrarán dentro de la ventana temporal del CassyLab y, por tanto, sólo se registrarán coincidencias aleatorias. Si se tiene en cuenta que al espectro de coincidencias (gráfica roja, figura 21) contribuyen tanto las coincidencias verdaderas, procedentes de un mismo evento, como un determinado número de coincidencias casuales, en cierto modo inevitables, restando a dicho espectro el de coincidencias retardadas se obtendrá un espectro de coincidencias constituido únicamente por coincidencias verdaderas (espectro de coincidencias corregidas). De esta forma, se consigue reducir el fondo en el espectro registrado por el detector HPGe (Figura 24).

Cada espectro tiene un ritmo de conteo distinto y, por lo tanto, el número de cuentas por segundo acumuladas en el espectro total es muy diferente. Para tener una buena estadística es necesario acumular al menos unas 50 cuentas por canal en la zona alrededor del pico de 511 keV y, en consecuencia, cada espectro necesita un tiempo de medida distinto.

Así, a una distancia entre detector (HPGe) y muestra ( $Fe_{40}Al$ , 650 °C) de 100 cm, los tiempos de medida empleados se elevan a 1800 segundos para el espectro de HPGe sin coincidencias, 126400 segundos para el espectro de coincidencias y 24900 para el de coincidencias retardadas, que sólo adquirimos para tener una idea del número de cuentas alrededor del pico.

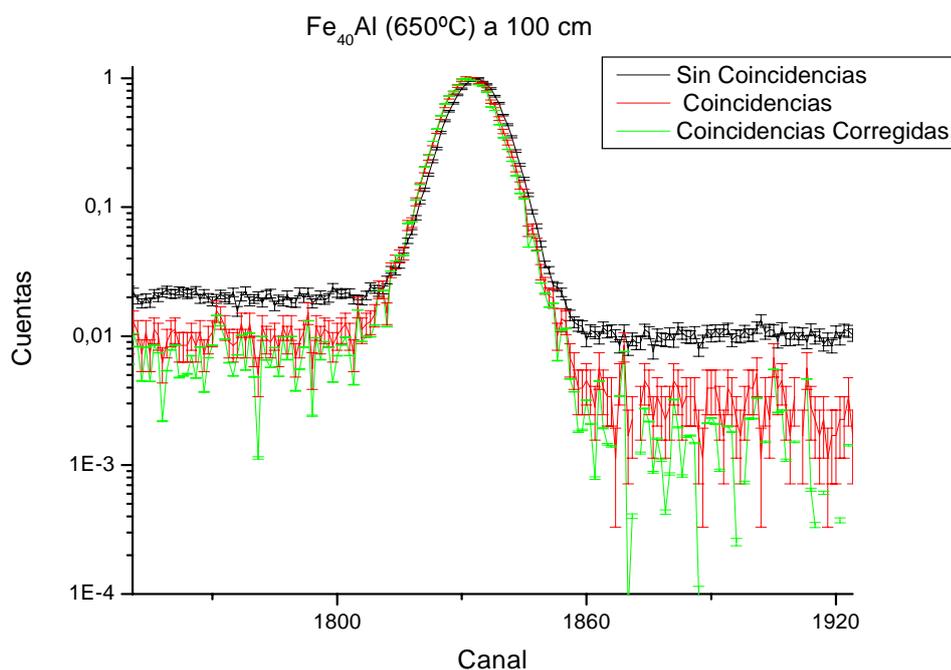


Figura 24. Espectros de HPGe para el  $Fe_{40}Al$ , sin coincidencias, en coincidencia y en coincidencia corregidas normalizados a la altura del pico para una distancia detector-muestra de 100 cm.

Material	Singles(cps)	Coincidencias (cps)	C.Retardadas (cps)
$Fe_{40}Al$ (650 °C)	72	0.22	0.05

Tabla 4. Número de pulsos asociados al pico de 511 keV por unidad de tiempo, recogidos en el detector HPGe, para una distancia de 100 cm y muestra  $Fe_{40}Al$  (650 °C)

Se puede comprobar que la forma del espectro sin coincidencias y con coincidencias retardadas es la misma (Figura 25), salvo variaciones estadísticas. Como se ha explicado, en el caso del espectro de coincidencias retardadas, al encontrarse las señales procedentes de cada detector desfasadas, con un retardo mayor que 4 microsegundos (ventana temporal del CassyLab), el programa no registra las coincidencias verdaderas, sino sólo las aleatorias, y así, al elevar el tiempo de adquisición, se terminará registrando el espectro completo del  $^{22}Na$  en el

detector de HPGe, aunque con un menor número de cuentas, que depende de la eficiencia del detector CZT, de la ventana temporal y del tiempo de adquisición.

De esta forma, dividiendo ambos espectros se obtiene un factor de proporcionalidad entre ellos que está relacionado con la eficiencia del detector de CZT y la ventana de coincidencia. Si  $A$  es el número de positrones por segundo que salen de la fuente, se tiene:

$$N_1 = A \cdot \varepsilon_{HPGe}$$
$$N_2 = (A_1 \cdot \varepsilon_{HPGe}) \cdot \tau \cdot (A_2 \cdot \varepsilon_{CZT})$$

siendo  $N_1$  el número de cuentas registradas en el espectro obtenido sin coincidencias,  $N_2$  el número de cuentas registradas en el espectro de coincidencias retardadas,  $\tau$  la ventana temporal de coincidencia,  $A_1$  y  $A_2$  las actividades de la fuente hacia el detector HPGe y CZT, respectivamente,  $\varepsilon_{HPGe}$  el factor de eficiencia del HPGe y  $\varepsilon_{CZT}$  el factor de eficiencia del CZT.

Si el retardo existente entre las señales que llegan a los dos detectores es tan grande que no hay correlación entre  $A_1$  y  $A_2$ , ambos sucesos se pueden considerar independientes. Es decir, se puede considerar  $A_1 = A$ . Por tanto, la relación entre el número de cuentas registrado en el detector HPGe sin coincidencias y con coincidencias retardadas es:

$$\frac{N_1}{N_2} = \tau \cdot (A_2 \cdot \varepsilon_{CZT})$$

Este cociente es constante siempre que la actividad que sale de la fuente hacia el CZT ( $A_2$ ), la eficiencia y posición del CZT no varíen. El tiempo muerto afecta a la eficiencia del detector, así que es conveniente mantener actividades similares en todas las medidas.

De esta forma podemos ahorrar mucho tiempo con las medidas de coincidencias retardadas, pues una vez estimado el factor de proporcionalidad, no es necesario medir espectros de coincidencias retardadas, que requieren mayores tiempos de adquisición para conseguir un número de cuentas por canal parecido, es decir, para obtener una misma estadística.

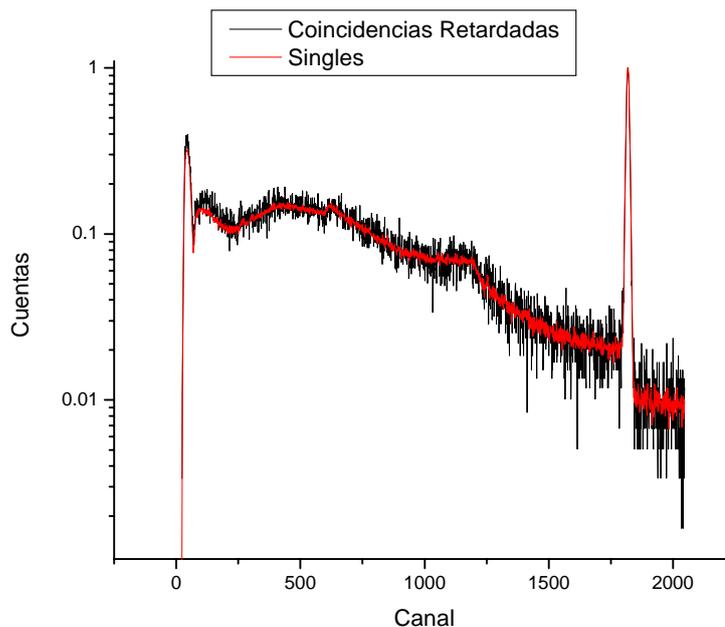


Figura 25. Espectros de singles y coincidencias retardadas registrados por el detector HPGe, reescalados a la misma altura en el pico.

El número de cuentas que salen de la fuente hacia el detector CZT (la actividad) depende del material, por lo que este factor de proporcionalidad entre singles y coincidencias retardadas depende de la muestra en estudio.

En principio ninguna modificación en los parámetros del detector HPGe afectará al cociente entre el número de cuentas registrado en el espectro de HPGe sin coincidencias y con coincidencias retardadas, siempre que se deje exactamente idéntico el montaje del CZT.

#### 4.2 Influencia de la geometría

Para analizar la influencia de la posición del detector en los resultados experimentales, se han realizado nuevas pruebas de 'alineamiento temporal' de los detectores para una distancia del detector HPGe de 33 cm, que serán comparadas con los resultados ya obtenidos para una posición de 100 cm (ver figura 21).

Así, procediendo de la misma forma, descrita anteriormente para obtener el retardo existente entre ambos detectores, se realizan nuevas medidas en función de la posición del potenciómetro, esta vez para una distancia de 33 cm.

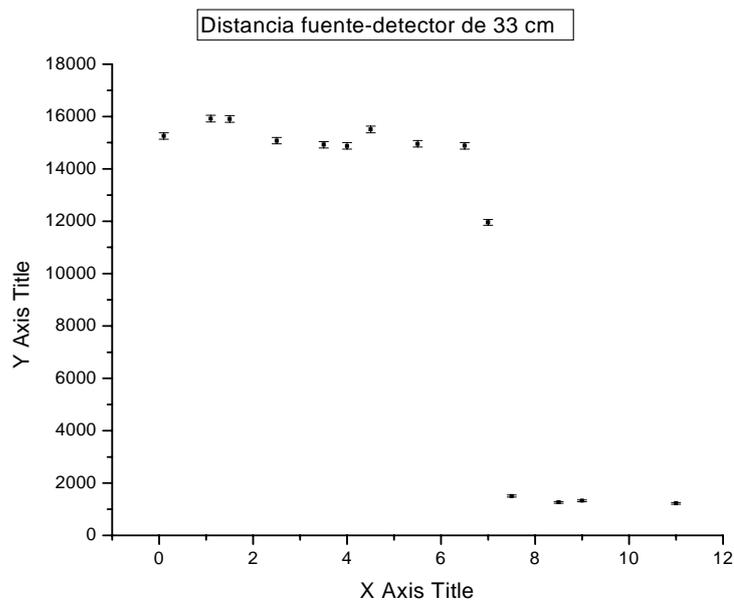
Los resultados obtenidos se muestran a continuación:

<b>Distancia Detector-Muestra:</b>	
<b>33 cm</b>	
<b>Posición del potenciómetro DELAY (<math>\mu\text{s}</math>)</b>	$\sum_{\text{Canales}} \frac{\text{Cuentas}}{\text{Canal}}$
0,1	15255
1,1	15920
1,5	15905
2,5	15075
3,5	14922
<b>4</b>	<b>14880</b>
4,5	15504
5,5	14955
6,5	14883
7	11955
7,5	1503
8,5	1265
9	1322
11	1224

*Tabla 5. Delay/Cuentas*

Como se puede observar, en este caso el número de cuentas registradas aumenta considerablemente respecto a las registradas para una distancia detector-muestra de 100 cm (Tabla 3). De nuevo, el valor óptimo del retardo para que las señales procedentes de ambos detectores lleguen en coincidencia es de 4 microsegundos.

La función que muestra los resultados obtenidos se muestra en la figura 26.



*Figura 26. Representación Delay vs Cuentas. Se puede distinguir un valor límite, 7.0  $\mu\text{s}$ , que marca dos comportamientos distintos: Alineamiento y No Alineamiento. Para este valor existe cierto solapamiento, pero el alineamiento óptimo estará en la mitad del intervalo con mayor número de cuentas.*

Una vez determinado el retardo existente entre las señales procedentes de ambos detectores se registran de nuevo los espectros. Los resultados obtenidos pueden verse en la figura 27:

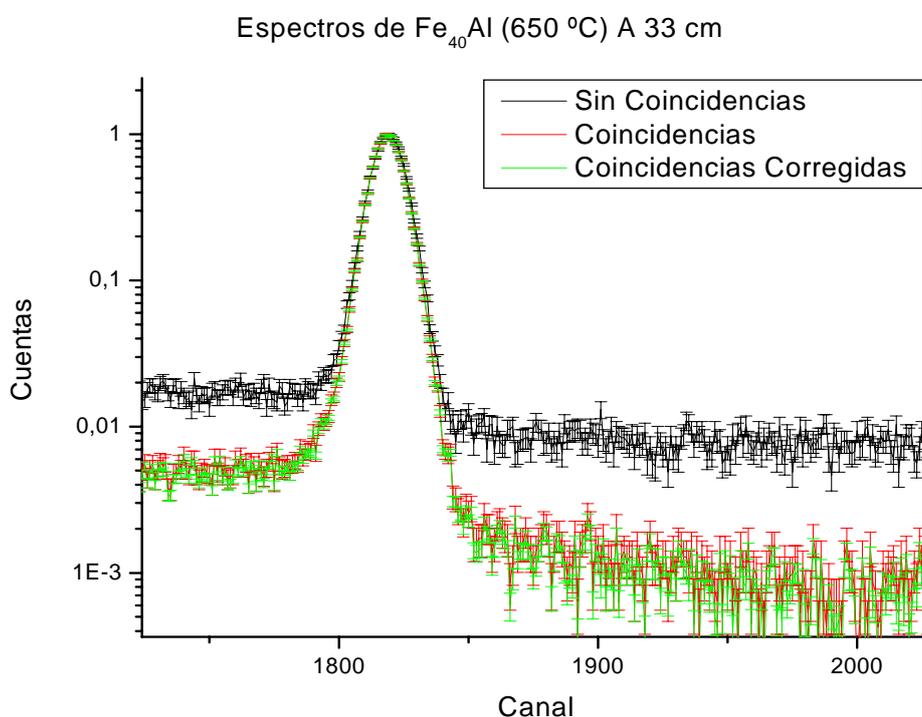


Figura 27. Espectros registrados por el HPGe para el  $Fe_{40}Al$ (650 °C), sin coincidencias, en coincidencias y en coincidencias corregido (este último espectro se obtiene restando al espectro de coincidencias el de coincidencias retardadas),normalizados a la altura del pico, para una distancia muestra-detector de 33 cm.

<b>Material</b>	<b>Singles(cps)</b>	<b>Coincidencias (cps)</b>	<b>C.Retardadas (cps)</b>
$Fe_{40}Al$ (650 °C)	394	6	0.22

Tabla 6. Número de pulsos asociados al pico de 511 keV por unidad de tiempo, recogidos en el detector HPGe, para una distancia de 33 cm y muestra de  $Fe_{40}Al$  (650 °C).

En primer lugar, se analizará la influencia de la distancia del detector HPGe a la fuente en los espectros medidos sin coincidencias y con coincidencias retardadas. En principio, un acercamiento del detector HPGe no debe influir en el cociente entre ambos espectros, pues como se ha descrito, el factor de proporcionalidad entre ellos sólo depende de los parámetros del detector CZT y de la actividad que sale de la fuente hacia dicho detector.

Para comprobarlo, se registran los espectros de singles (sin coincidencias) y de coincidencias retardadas para dos posiciones distintas del detector HPGe, 100 cm y 33 cm, y se calcula el factor de proporcionalidad entre ambos en cada caso. Los resultados obtenidos se

muestran en la figura 28. Se puede observar que la forma de los espectros es la misma en ambos casos:

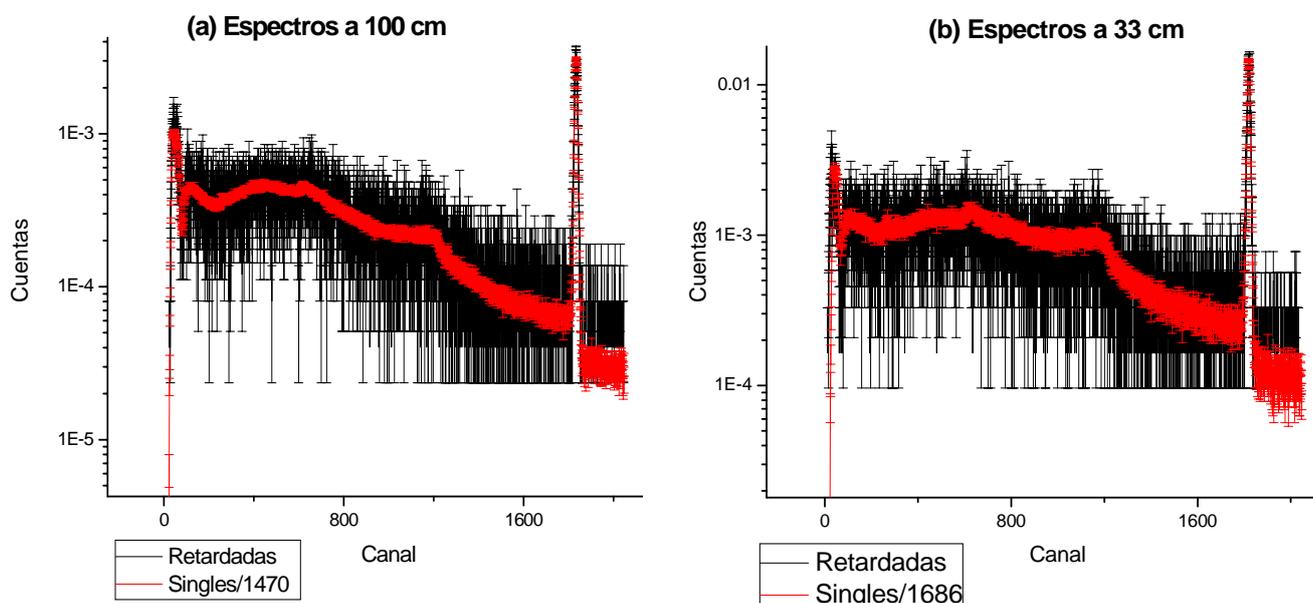


Figura 28. Comparación de los espectros de singles y de coincidencias retardadas para una distancia muestra ( $Fe_{40}Al$ , 650 °C) y detector de (a) 100 cm y (b) 33 cm. El espectro de singles está dividido por un factor de proporcionalidad.

<b>Distancia HPGe</b>	<b>Singles (cps en el pico)</b>	<b>Coincidencias Retardadas (cps en el pico)</b>	<b>Factor de proporcionalidad</b>
<b>100 cm</b>	72.0	0.05	1470
<b>30cm</b>	394	0.2	1686

Tabla 7. Pulsos por segundo registrados en los espectros de singles y coincidencias retardadas en el pico de 511 keV, para la muestra  $Fe_{40}Al$ , 650 °C, a dos distancias distintas. Factor de proporcionalidad.

Una distancia menor entre fuente-detector implica un mayor número de cuentas registrado en el espectro sin coincidencias proporcionado por el detector HPGe, pero también un mayor número de eventos aleatorios, registrados en el espectro de coincidencias retardadas.

Por otra parte se puede considerar que la diferencia entre los factores de proporcionalidad obtenidos no es significativa, es decir, el alejar el detector de HPGe no afecta al porcentaje de cuentas aleatorias respecto al de ‘singles’. El cociente entre ambos difiere de la unidad en un 13%, lo que puede deberse a fluctuaciones estadísticas o al tiempo muerto del detector. Así, a la vista de los resultados obtenidos se puede concluir que el cociente entre ambos espectros es prácticamente independiente de la distancia a la cual se sitúe el HPGe.

A continuación, se procede a estudiar la influencia de la distancia relativa entre fuente y detector en el espectro de coincidencias.

Se ha explicado en la sección anterior, que los fotones procedentes de la desintegración del  $^{22}Na$  (1.28 MeV), tras experimentar alguna interacción, pueden dejar una cantidad incompleta de energía en el detector CZT y llegar simultáneamente con uno de los fotones de 511 keV al HPGe, y viceversa.

La fórmula que rige estas coincidencias viene dada por:

$$N = N_a \cdot \varepsilon_{HPGe(1.2 \rightarrow 511)} \times N_b \cdot \varepsilon_{CZT(511)} + N_b \cdot \varepsilon_{HPGe(511)} \times N_a \cdot \varepsilon_{CZT(1.2 \rightarrow 511)}$$

donde  $N_a$  y  $N_b$  es el número de fotones de 1.28 MeV y 511 keV emitidos por la fuente, respectivamente.  $\varepsilon_{HPGe}$  y  $\varepsilon_{CZT}$  son los factores de eficiencia de los detectores.

La eficiencia de un detector depende, entre otros factores de la energía del fotón incidente. Así, la notación  $\varepsilon_{HPGe(1.2 \rightarrow 511)}$  y  $\varepsilon_{CZT(1.2 \rightarrow 511)}$  hace referencia a la eficiencia del HPGe y CZT para detectar fotones de 1.2 MeV que dejan una cantidad incompleta de energía y llegan en coincidencia con algún fotón de 511 keV al detector CZT y HPGe, respectivamente.  $\varepsilon_{HPGe(511)}$  y  $\varepsilon_{CZT(511)}$ , representan los factores de eficiencia de ambos detectores para fotones de 511 keV.

En este caso, los fotones no están correlacionados angularmente porque el fotón de 1.28 MeV y el de 511 keV se emiten en direcciones arbitrarias. De esta forma, el factor de eficiencia del CZT y del HPGe también depende del ángulo sólido subtendido por ambos detectores. Así:

$$\varepsilon_{HPGe} = \varepsilon_{\text{int}(HPGe)} \times \text{factor geométrico}$$

$$\varepsilon_{CZT} = \varepsilon_{\text{int}(CZT)} \times \text{factor geométrico}$$

donde  $\varepsilon_{\text{int}}$  es la eficiencia intrínseca del detector que se define como el cociente entre el número de pulsos registrados por el detector y el número de fotones que inciden en el mismo. El factor geométrico se puede estimar mediante la medida de la fracción entre la superficie del detector que observa la fuente y la superficie de una esfera de radio  $d$ , siendo  $d$  la distancia entre la fuente y el detector.

Así, el número de coincidencias de este tipo depende de  $\varepsilon_{HPGe}$ , que es proporcional al ángulo sólido subtendido y, por tanto, disminuye con el cuadrado de la distancia.

Por otra parte, las coincidencias que se desean registrar ('coincidencias auténticas') son aquellas en que se detectan los dos fotones de 511 keV, procedentes del mismo evento de aniquilación, que se emiten prácticamente a 180°.

En este caso, la dependencia de la distancia también es importante. Cuando los ángulos sólidos subtendidos por ambos detectores no son los mismos, los fotones de 511 keV que llegan según la generatriz del cono que abarca el mayor de los ángulos sólidos no entrarán en el ángulo sólido del otro detector y no serán registrados.

Es decir, cuando el ángulo sólido subtendido por el HPGe es menor que el del CZT, o lo que es lo mismo, el área eficaz de CZT que subtendería el mismo ángulo sólido que el HPGe disminuye, se 'escapan' fotones de 511 keV, registrándose, por tanto, un menor número de coincidencias auténticas. Esto es lo que hace que la relación coincidencias totales/coincidencias aleatorias disminuya al aumentar la distancia del HPGe.

Para estudiar esta posible influencia de la distancia en los espectros de coincidencias auténticas, se representan y analizan los espectros de coincidencias corregidos, es decir los obtenidos restando al espectro de coincidencias el espectro de coincidencias retardadas (aleatorias):

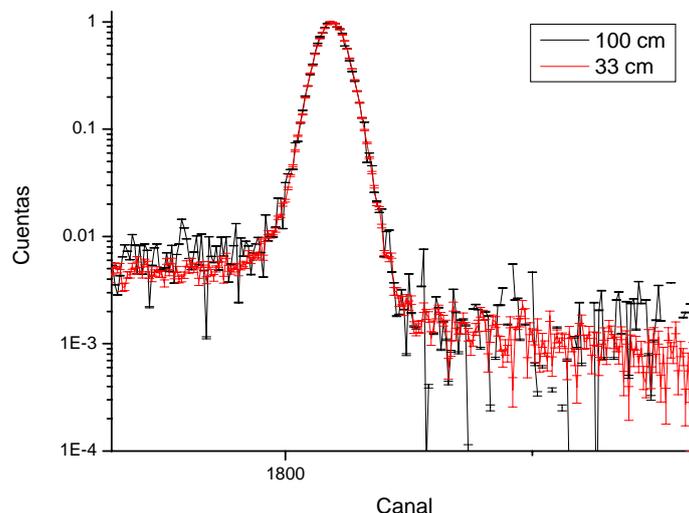


Figura 29. Espectros de coincidencias corregidos (coincidencias auténticas). Estos espectros se han obtenido restando a los espectros de coincidencias los espectros de coincidencias aleatorias, para una distancia entre muestra y detector de 100 cm y 33 cm en cada caso.

Al superponer ambos espectros, se comprueba que éstos son iguales, salvo variaciones estadísticas.

Por tanto, a la vista de los resultados, se puede concluir que la presencia de fotones de 1.28 MeV no introduce cambios significativos en los espectros. Esto se debe a que constituyen una fracción muy pequeña de coincidencias comparada con las coincidencias de 511 keV. Por una parte, estos fotones de 1.28 MeV proceden del Compton del pico, por lo que su ritmo de conteo es muy pequeño comparado con el ritmo de los fotones de 511 keV. Por otra parte, la probabilidad de que estos fotones entren en el ángulo sólido subtendido por el HPGe es también pequeña dado que no existe correlación angular entre éste y un fotón de 511 keV (ambos asociados al mismo evento) que haya detectado el CZT.

También se puede afirmar que el número de fotones de 511 keV que ‘escapan’ del HPGe debido al distinto ángulo sólido subtendido por cada detector, influye de forma significativa en el espectro de coincidencias totales, para las distancias escogidas en el laboratorio. No obstante, una vez restadas las coincidencias aleatorias, ambos picos registrados son similares.

Para apoyar este resultado con datos numéricos se puede acudir a la relación pico-fondo en cada caso. Los resultados obtenidos son:

	<b>Fe<sub>40</sub>Al (650°C) (100 cm)</b>	<b>Fe<sub>40</sub>Al (650°C) (33 cm)</b>
<b>N<sub>máx</sub></b>	1	1
<b>N<sub>Fondo</sub></b>	$9,12 \cdot 10^{-4}$	$7,64 \cdot 10^{-4}$
<b>Relación Pico -Fondo</b>	$1,1 \cdot 10^3$	$1,3 \cdot 10^3$

Tabla 8. Relación pico-fondo

En conclusión, en dos medidas que difieren sólo por la distancia del HPGe a la fuente, las coincidencias auténticas no varían de forma significativa. Así, los espectros de coincidencias corregidos presentan la misma forma y, por lo tanto, la relación pico-fondo obtenida en cada caso es la misma..

#### 4.3 Influencia del apilamiento de pulsos ('Pile-up')

Hay que hacer notar la ausencia de estabilizador y sistema de rechazo de pile-up en el dispositivo experimental montado, lo que hace inevitable un cierto solapamiento entre los pulsos registrados. Así, cuando el ritmo de conteo es muy elevado, cada pulso puede superponerse a la cola del pulso anterior. Este fenómeno produce un falseamiento de los resultados experimentales ya que la energía registrada para cada pulso es la suma de la cola del pulso previo y la del pulso en cuestión.

Para cuantificar el apilamiento y examinar su influencia en los espectros registrados se procede a realizar dos pruebas. El objetivo de ambas consiste en modificar un parámetro del dispositivo diseñado, provocando un aumento del 'pile-up', y observar si influye significativamente en la forma de los espectros obtenidos.

En primer lugar, se disminuye la distancia relativa entre el detector y la fuente. Así, al aumentar el ángulo sólido subtendido, el conteo aumenta considerablemente y también lo hará la probabilidad de apilamiento. De esta forma, comparando los espectros registrados para dos distancias del HPGe se puede analizar las diferencias entre ellos en la cola de alta energía del pico de 511 keV. Los espectros obtenidos se muestran en la figura 30.

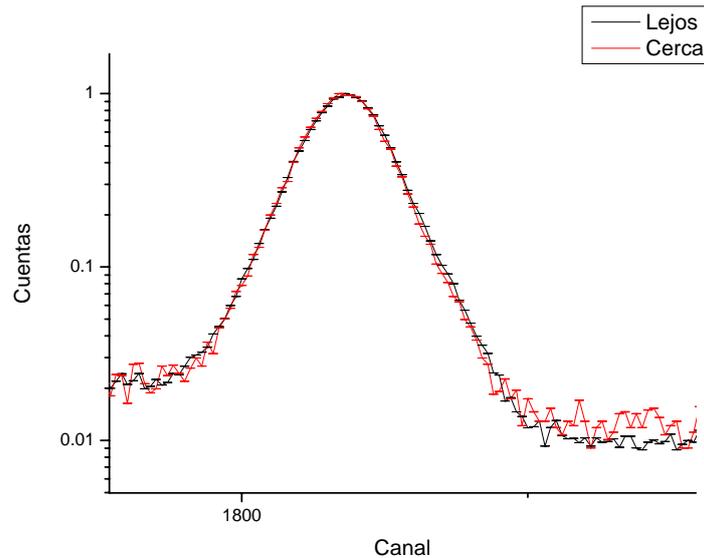


Figura 30. Espectro de singles de  $Fe_{40}Al$  (650 °C) a con el detector HPGe situado a 100 cm y 33cm respecto de la fuente.

En la figura anterior, se puede observar que las dos gráficas no son exactamente iguales. En la zona de alta energía del pico, es posible apreciar un ligero aumento del número de cuentas para el caso en el que la distancia muestra detector es menor (figura 31). Este aumento puede no ser significativo para tiempos de medida pequeños, pero para medidas más largas el apilamiento o ‘pile-up’ provocaría un falseamiento importante de los resultados experimentales y la diferencia entre los espectros sería más acusada.

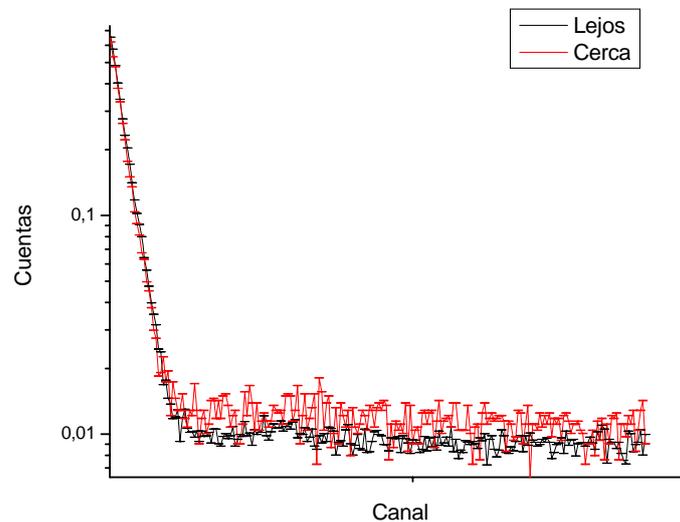


Figura 31. Ampliación de la cola de alta energía del pico de 511 mostrado en la figura 30

En segundo lugar, se puede modificar la anchura de los pulsos de HPGe de forma que dos pulsos consecutivos estarán más próximos en el tiempo y la posibilidad de que éstos se solapen y el pulso posterior se superponga al que le precede aumenta significativamente. Para ello modificamos el control ‘Shaping Time’ en el amplificador empleado (‘spectroscopy amplifier’ ORTEC 572). Los resultado obtenidos se muestran a continuación (figura 32).

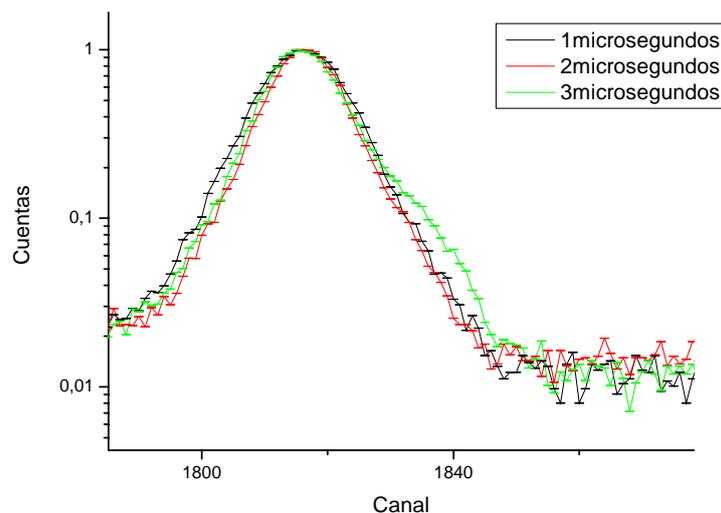


Figura 32. Espectros de singles de  $Fe_{40}Al$  ( $650\text{ }^{\circ}C$ ) registrados por el detector HPGe para pulsos de 1, 2 y 3 microsegundos.

A la vista de los resultados obtenidos se puede apreciar una mejor resolución para una anchura del pulso de 2 microsegundos (se observa que el ancho de pico es menor para este caso que para 1 microsegundo). Esto está relacionado con las exigencias del analizador multicanal para una mejor resolución y, por tanto, es posible que el CassyLab necesite un anchura mínima de los pulsos para un funcionamiento óptimo.

Sin embargo, en la figura correspondiente a 2 microsegundos se puede apreciar, nuevamente, un aumento del número de cuentas en la cola de altas energías del espectro (figura 33), lo que implica un mayor apilamiento que para una anchura de pulso de 1 microsegundo.

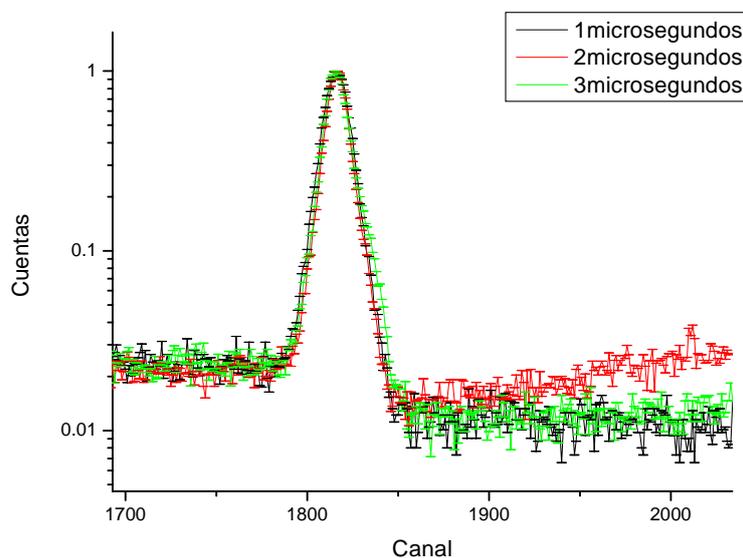


Figura 33. Espectros de singles de  $Fe_{40}Al$  ( $650\text{ }^{\circ}C$ ) registrados por el detector HPGe para pulsos de 1, 2 y 3 microsegundos

Por otra parte, para el caso de 3 microsegundos, el espectro presenta una deformación del pico característica del efecto de apilamiento. Así, se observa un ensanchamiento o ‘codo’ en el lado derecho del pico asociado a un desplazamiento en energía de ciertos pulsos respecto de su valor real (figura 32).

Para evitar, en la medida de lo posible, este efecto de ‘pile-up’ o apilamiento de pulsos se registrarán los espectros con una distancia entre detector y fuente de 100 cm y se configura una duración de los pulsos de 1 microsegundo.

#### 4.4 Estudio de diferentes muestras

A la vista de los resultados obtenidos, en función de la limpieza del pico de 511 keV y del apilamiento de pulsos se puede concluir que el dispositivo experimental diseñado presenta un mejor funcionamiento para distancias entre fuente y detector mayores. Como se ha demostrado, la relación pico-fondo obtenida para las dos distancias estudiadas es la misma; sin embargo, una distancia mayor entre muestra y detector implica un menor número de eventos aleatorios registrados y un menor solapamiento de pulsos. En consecuencia, se procede a estudiar diferentes materiales con una distancia entre muestra-detector de 100 cm.

Con el fin de determinar la eficacia del sistema diseñado para la eliminación de fondo en la detección de defectos presentes en sólidos, se han tomado dos muestras de Fe<sub>40</sub>Al sometidas a dos tratamientos distintos. Estas aleaciones de Fe-Al, basadas en la presencia de diferentes fases ordenadas, están siendo objeto de estudio en la actualidad gracias a las posibilidades que plantean como elementos estructurales para alta temperatura. A temperatura ambiente el sistema Fe-Al presenta una transición gradual desde una fase desordenada A2 hasta unas fases ordenadas B2 y D0<sub>3</sub> conforme aumenta el contenido de aluminio en la aleación. Las tres fases están basadas en la estructura cúbica centrada en el cuerpo y pueden existir en un amplio rango de composición.

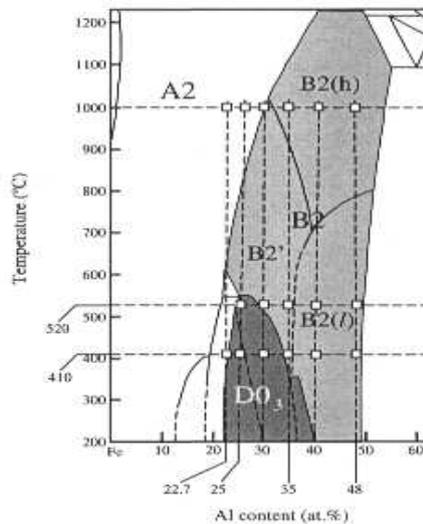


Figura 34. Diagrama de fases del sistema Fe-Al. Las líneas horizontales indican las temperaturas a las que se someten las muestras según los distintos tratamientos térmicos. Las verticales corresponden a las composiciones de las aleaciones.

De acuerdo con el diagrama de fases del sistema Fe-Al para un contenido de un 40% atómico de Al la fase estable es la fase B2, la cual está basada en la estequiometría Fe-Al. Se han utilizado dos muestras que han sido sometidas a un templado desde 950 °C y desde 600 °C respectivamente (esta última ya ha sido estudiada). Mediante estos tratamientos se introducen en

las muestras sendos defectos de alta y baja temperatura respectivamente [11]. De acuerdo con la bibliografía el defecto de alta temperatura está formado por un defecto triple en el que dos vacantes adyacentes de Fe en la dirección  $\langle 100 \rangle$  están unidos a un átomo de Fe en una posición de Al (antisitio  $Fe_{Al}$ ). Por el contrario, el defecto de baja temperatura está constituido por dos vacantes de Fe no enlazadas al antisitio  $Fe_{Al}$ .

A continuación, se estudiarán los espectros registrados para la muestra de  $Fe_{40}Al$  ( $900^{\circ}C$ ) para una distancia entre muestra y detector de 100 cm (figura 35) y se compararán con los resultados obtenidos para la aleación  $Fe_{40}Al$  ( $650^{\circ}C$ )

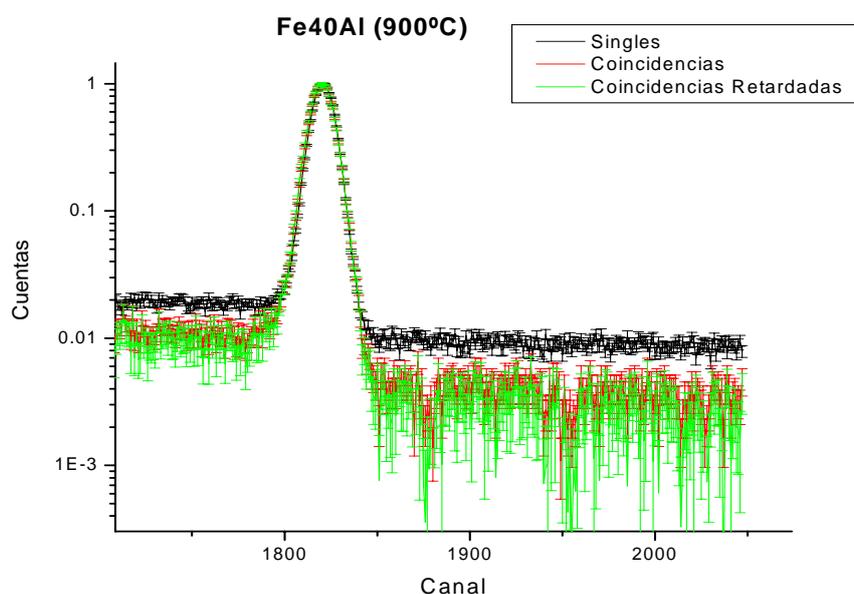


Figura 35. Espectros registrados por el HPGe para el  $Fe_{40}Al$  ( $900^{\circ}C$ ), sin coincidencias, en coincidencias y en coincidencias corregido (este último espectro se obtiene restando al espectro de coincidencias el de coincidencias retardadas), normalizados a la altura del pico, para una distancia muestra-detector de 100 cm.

Material	Singles(cps)	Coincidencias (cps)	C.Retardadas (cps)
$Fe_{40}Al$ ( $900^{\circ}C$ )	66	0.24	0.05

Tabla 9. Número de pulsos asociados al pico de 511 keV por unidad de tiempo, recogidos en el detector HPGe, para una distancia de 100 cm y muestra  $Fe_{40}Al$  ( $900^{\circ}C$ ).

En la figura 36 y 37, se muestran los espectros de coincidencias corregidos para las dos muestras en estudio:  $Fe_{40}Al$  ( $650^{\circ}C$ ) y  $Fe_{40}Al$  ( $900^{\circ}C$ ).

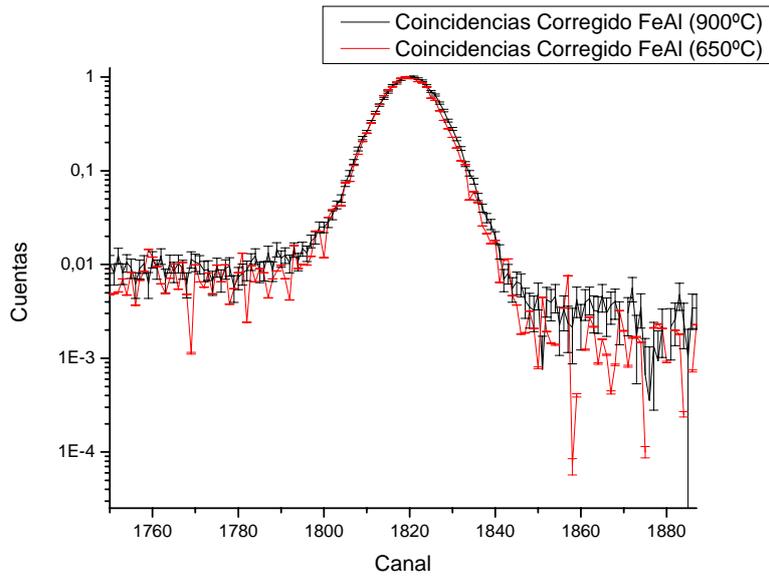


Figura 36. Espectros de coincidencias corregidos para las muestras de  $Fe_{40}Al$  (650 °C) y  $Fe_{40}Al$  (900 °C)

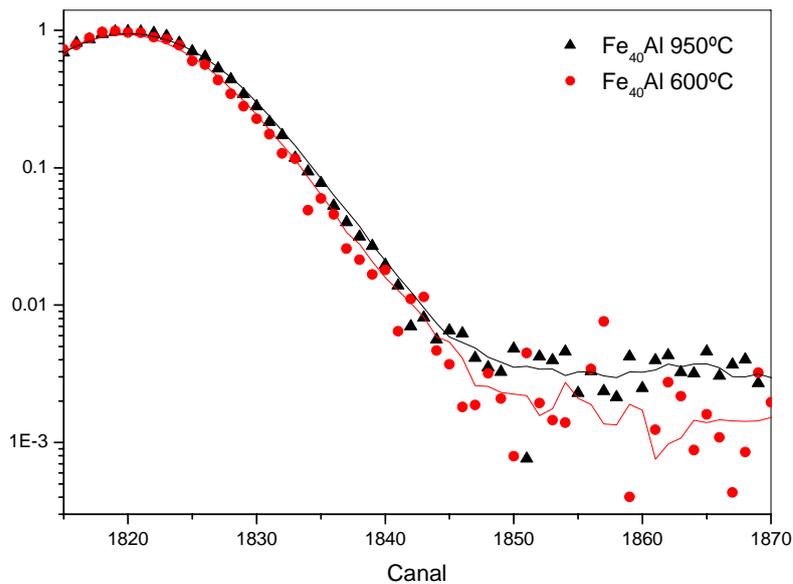


Figura 37. Ampliación de los espectros de coincidencias corregidos en el pico de aniquilación de 511 keV para las muestras templadas desde 950 y 600 °C.

Como puede observarse, a partir del canal 1845 aproximadamente, se pone de manifiesto una clara diferencia entre los espectros de ambas muestras. Esta zona es la correspondiente a la zona de altas energías, es decir a aquellos positrones que se han aniquilado con electrones de elevado momento, pertenecientes a las capas internas del átomo. Esta diferencia puede ponerse de manifiesto representando la diferencia entre los espectros de ambas muestras (figura 38).

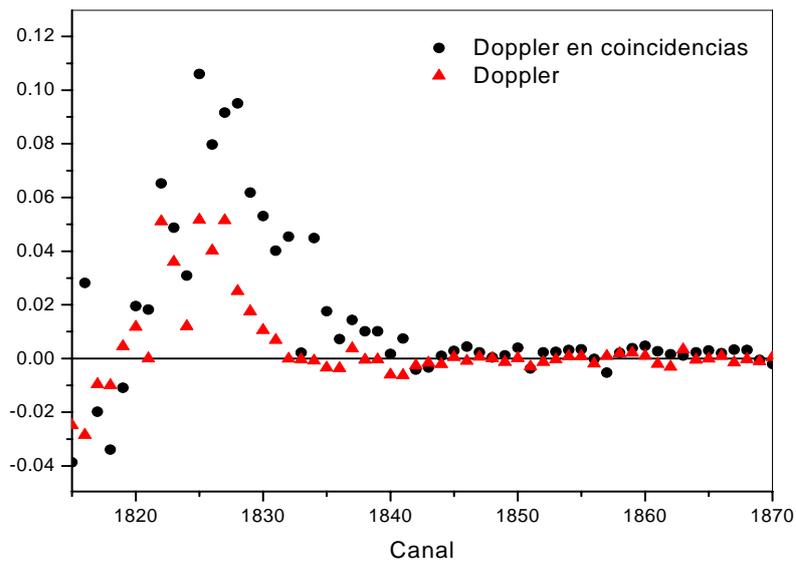


Figura 38. Diferencia entre el espectros de la muestra templada desde 950°C y el de la muestra templada desde 600°C.

La distribución de puntos entre los canales 1815 y 1840 para los espectros en coincidencias indican que los defectos presentes en ambas muestras tienen estructura diferente, como así cabía esperar de los datos presentes en la bibliografía. Si además se representa la misma diferencia, pero obtenida para los espectros sin coincidencias (singles) podemos apreciar que el dispositivo experimental construido es capaz de poner en evidencia diferencias entre ambos defectos más allá del canal 1830, demostrando con ello que, el dispositivo diseñado permite detectar eventos de aniquilación para pares positrón-electrón de alta energía. Por otra parte, y como ya se ha comentado anteriormente, los defectos presentes en las muestras templadas desde 950°C están constituidos por una divacante de Fe con un antisitio  $Fe_{Al}$  enlazado a ella. Mientras que el defecto de baja temperatura, en nuestro caso el de las muestras templadas desde 600°C, las vacantes de Fe se encuentran lo suficientemente alejados como para que los positrones las detecten como monovacantes. Los resultados obtenidos corroboran tal hipótesis, ya que en el caso de las muestras de con defectos de alta temperatura, la fracción de positrones aniquilados con electrones de alto momento es superior a la de la muestra con defectos de baja temperatura. Esta mayor fracción de eventos de alta energía se corresponde con los electrones internos del átomo de hierro próximo a la divacante que inundan en parte el volumen abierto de ésta..

Por último, se presenta un cuadro comparativo con los resultados obtenidos:

<b>Material</b>	<b>Distancia HPGe (cm)</b>	<b>Singles (cps)</b>	<b>Coincidencias (cps)</b>	<b>C.Retardadas (cps)</b>	<b>Relación pico-fondo</b>	<b>FWHM (keV)</b>
<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	33	394	6	0.22	1,3·10 <sup>3</sup>	4.2
<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	100	72	0.22	0.05	1,1·10 <sup>3</sup>	4.2
<b>Fe<sub>40</sub>Al (900 °C)</b>	100	66	0.24	0.05	1,2·10 <sup>3</sup>	4.2

*Tabla 10. Comparación de resultados. El número de cuentas por segundo en cada espectro hace referencia a las cuentas registradas debajo del pico de 511 keV*

A la vista de los resultados, se puede concluir que el número de cuentas por segundo registradas en los espectros para una distancia de 100 cm entre muestra y detector no varía significativamente de una muestra a otra. Esto puede ser debido a que las aleaciones estudiadas sólo difieren en el tratamiento térmico al que han sido sometidas. En cambio, para una distancia del detector menor, el número de cuentas registrado aumenta considerablemente, como cabía esperar. La relación pico-fondo obtenida es del mismo orden en todos los casos.

## **5. CONCLUSIONES**

Se ha conseguido diseñar un dispositivo experimental capaz de restar fondo al espectro de ensanchamiento Doppler de la línea de aniquilación. En los tres casos estudiados, se ha obtenido una relación pico-fondo de un orden de  $10^3$ , por lo que se ha logrado reducir el fondo del espectro en un orden de magnitud. Esto permite analizar los eventos de baja probabilidad asociados a las aniquilaciones de los positrones con los electrones del núcleo. Así, los espectros registrados permiten distinguir defectos presentes en muestras sometidas a distintos tratamientos térmicos.

Son varias las optimizaciones que podrían introducirse al sistema diseñado. En primer lugar, debería utilizarse otro detector HPGe, reemplazando al CZT, lo que mejoraría la resolución de los espectros adquiridos. También podría emplearse un MCA con una ventana temporal menor, con el fin de reducir la contribución de las coincidencias aleatorias.

Otra posible mejora consistiría en la introducción de un sistema de rechazo de 'pile-up'. Esto permitiría introducir en el MCA pulsos de 2 microsegundos y mejorar nuevamente la resolución, además de evitar el falseamiento de los resultados experimentales para actividades altas. También permitiría un mayor acercamiento del detector a la muestra, lo que aumentaría notablemente la estadística de los espectros adquiridos.

Recientemente, se ha estado desarrollando un sistema digital de dos detectores [7] con un software que sustituye los MCA convencionales y algunos módulos de coincidencias. Este sistema es mucho más simple que los sistemas tradicionales pero permite un mayor almacenamiento de información y mayor flexibilidad de análisis.

## APÉNDICE

<i>Material</i>	<i>Distancia HPGe (cm)</i>	<i>Singles (cps)</i>	<i>Coincidencias (cps)</i>	<i>C.Retardadas (cps)</i>	<i>Relación pico-fondo</i>	<i>FWHM (keV)</i>
<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	33	394	6	0.22	1,3·10 <sup>3</sup>	4.2
<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	100	72	0.22	0.05	1,1·10 <sup>3</sup>	4.2
<b>Fe<sub>40</sub>Al (900 °C)</b>	100	66	0.24	0.05	1,2·10 <sup>3</sup>	4.2

*Resumen Resultados.*

	<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	<b>HPGe (33 cm)</b>	<b>Fe<sub>40</sub>Al (650 °C)</b>	<b>HPGe (100 cm)</b>	<b>Fe<sub>40</sub>Al (900 °C)</b>	<b>HPGe (100 cm)</b>
	<b>Cuentas</b>	<b>Tiempo</b>	<b>Cuentas</b>	<b>Tiempo</b>	<b>Cuentas</b>	<b>Tiempo</b>
<b>Singles</b>	67000	172	127000	1800	117000	2700
<b>Coincidencias</b>	140000	22000	27000	126400	58300	240000
<b>C.Retardadas</b>	1340	6100	1300	24900	3756	71200

*Resumen Resultados.*

## **BIBLIOGRAFÍA**

- [1] I. Procházka, *Materials Structure*, vol. 8, number 2 (2001).
- [2] V I Grafutin, E P Prokop'ev, *Instruments and Methods of Investigation*, NO. 71.60, 78.70, 82.55.
- [3] *Modular Pulse-Processing Electronics and Semiconductor Radiation Detectors*. EG&G ORTEC.
- [4] Glenn F. Knoll, *Radiation detection and measurement*.
- [5] Harold S. Renne *Atomic radiation detection and measurement*
- [6] K. Iwata, G.F. Gribakin, R.G. Greaves, C.M. Surko, *Physical Review Letter* 79, 39 (1997).
- [7] P. Asoka-Kumar, M. Alatalo, V.J. Ghosh, A.C. Kruseman, B. Nielsen, K.G. Lynn, *Physical Review Letter* 77, 10 (1996).
- [8] A. Harrich, S. Jagsch, S. Riedler, W. Rosinger, *American Journal of Undergraduate Research*, vol. 2, NO. 3 (2003).
- [9] C. Y. Xi, B. J. Ye, W. Kong, H. M. Weng, X. Y. Zhou, R. D. Han, *Meas. Sci. Technol.* 16 (2005).
- [10] S. Szpala, P. Asoka-Kumar, B. Nielsen, J. P. Peng, S. Hayakawa, K. G. Lynn, *Physical Review B*, vol. 50. 7 (1996).
- [11] N. De Diego, F. Plazaola, J. A. Jiménez, J. Serna, J. Del Río, *Acta Materialia* 53 (2005).
- [12] *Contribución al estudio de defectos en sólidos mediante la técnica de Aniquilación de positrones*. Tesis Doctoral realizada por Carlos Hidalgo Vera (1984).