

Método de aniquilación positrónica para el estudio de defectos en materiales

Y. Ortega

*Centro de Estudios Aplicados al Desarrollo Nuclear
Calle 30 esq. 5^{ta}, P.O. Box 6122, Ciudad de la Habana, Cuba*

Recibido el 14 de mayo de 1999; aceptado el 1 de marzo de 2000

Las técnicas basadas en el fenómeno de la aniquilación electrón-positrón se vienen aplicando cada vez con más fuerza en diferentes campos de la actividad humana. En este trabajo brindamos un análisis crítico acerca de la panorámica actual de las aplicaciones de la aniquilación positrónica en la física del estado sólido, la ciencia de materiales y la industria.

Descriptores: Aniquilación positrónica; defectos en sólidos; daño radiacional

Techniques based on the positron-annihilation phenomenon have become more interesting for different fields of the human activity. In this work, we review critically the current applications in solid state physics, materials science and industry.

Keywords: Positron annihilation; defects in solids; radiation damage

PACS: 61.80; 78.70.B; 61.72.H

1. Introducción

Desde el descubrimiento del positrón (e^+), luego de haber sido predicha de forma teórica su existencia por Paul Dirac en 1928, el fenómeno de la aniquilación de éste con su anti-partícula, el electrón (e^-), ha sido ampliamente explotado en la investigación de los sólidos.

En la actualidad, el desarrollo de nuevas variantes experimentales basadas en el mencionado fenómeno, hace que no se puedan aún prever los límites de sus aplicaciones, encontrándose aplicaciones en la industria como técnicas de evaluación no destructiva. Con este artículo deseamos brindar una panorámica, que aunque muy general, permita dar una visión de las técnicas basadas en la aniquilación electrón-positrón, de sus aplicaciones y del estado actual de la temática en la física del estado sólido, la ciencia de materiales y la industria.

2. Breve fundamentación teórica

2.1. Proceso de termalización

El positrón que penetra en un medio condensado sufre el llamado proceso de termalización, en el que en un tiempo del orden de 1 a 10 pico-segundos su energía desciende hasta la energía térmica del medio. La suposición de que el proceso de termalización es pequeño comparado con el tiempo de vida del positrón es particularmente importante en las mediciones del momento del electrón, pero también en el estudio de los defectos juega un papel muy importante. En el proceso de termalización influye la interacción positrón-electrón y la interacción fonón-positrón, siendo ésta la que predomina en el proceso final de termalización [1].

2.2. Poder de penetración

Durante el proceso anterior el positrón penetra una distancia de alrededor de 10 a 1000 μm , dependiendo de la densidad del sólido. El poder de frenado $P(x)$ de positrones energéticos provenientes de una fuente radioactiva es exponencial, y se expresa por la siguiente fórmula [1]:

$$P(x) = \alpha \exp[-\alpha x], \quad \alpha = 16 \frac{\rho[\text{g}/\text{cm}^3]}{E_{\text{max}}^{1.4}[\text{MeV}]} \text{cm}^{-1},$$

donde ρ es la densidad del sólido, E_{max} la energía máxima de los positrones emitidos y α es el coeficiente de absorción del sólido.

Para una fuente de Na^{22} , que es la más usada, la profundidad característica de penetración es $1/\alpha$ que es en el caso del Si 110 μm , en el Ge 50 μm y en el W 14 μm . Por lo tanto, estos positrones sondan el volumen del sólido. Sin embargo, para positrones monoenergéticos, los cuales no siguen este comportamiento, la penetración es menor, variando desde 1nm hasta algunos μm . Por lo tanto, con un haz positrónico de baja energía se pueden hacer experimentos en las superficies de láminas delgadas y se pueden sondear los defectos en regiones cercanas a la superficie.

2.3. Trampas de positrones

La energía potencial de un positrón en la materia está gobernada fundamentalmente por las fuerzas coulombianas entre el positrón, los electrones y los protones. Entonces, esta energía (E_+) es grande cerca de la posición del núcleo y pequeña entre los núcleos, tal como se observa en la Fig. 1, donde los círculos representan los núcleos atómicos del sólido estudiado.



FIGURA 1. Distribución de la energía potencial del positrón dentro de una red cristalina. E_+ representa la energía potencial del positrón, la cuál tiene un valor más pequeño en las zonas donde hay presencia de vacancias y E_B es la energía de enlace del positrón a dichas zonas.

En una red, el resultado es una energía potencial en forma de función de Bloch dependiente de la posición del positrón. Si debido a alguna distorsión los átomos se localizan fuera de los parámetros de la red, el mínimo en el potencial será menor en esa posición que en el resto del volumen. Si la menor energía del positrón dentro del potencial es menor que la energía del estado básico del positrón en el volumen de la red, el atrapamiento debe ocurrir, siendo E_B la energía de enlace del e^+ en esa trampa. Entonces el positrón es sensible a los defectos tales como vacancias o dislocaciones, zonas en las cuales va a existir un pozo de potencial debido a la ausencia de los átomos. El positrón va a vivir durante un tiempo en primera aproximación determinada por el inverso de la densi-

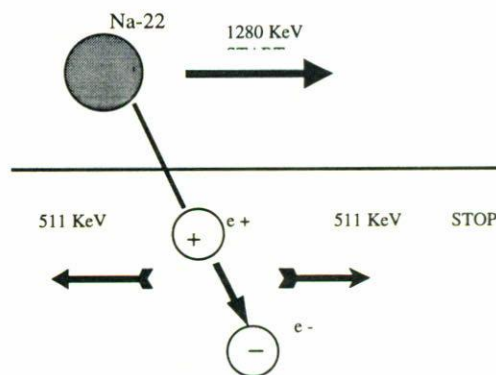


FIGURA 2. Proceso de aniquilación positrónica con la emisión de dos cuantos gamma colineales.

dad de electrones. Es decir, mientras mayor es la densidad electrónica en el medio, menor es el tiempo de vida del positrón y viceversa.

Por todo lo dicho anteriormente, la naturaleza química del material, su estructura cristalina, y de defectos determinan distintos comportamientos de la energía de los cuantos gamma que surgen en el proceso de aniquilación (e^-e^+), así como del tiempo de vida del positrón (Fig. 2). Estos parámetros se utilizan pues para diferentes aplicaciones en la física del estado sólido y la ciencia de los materiales.

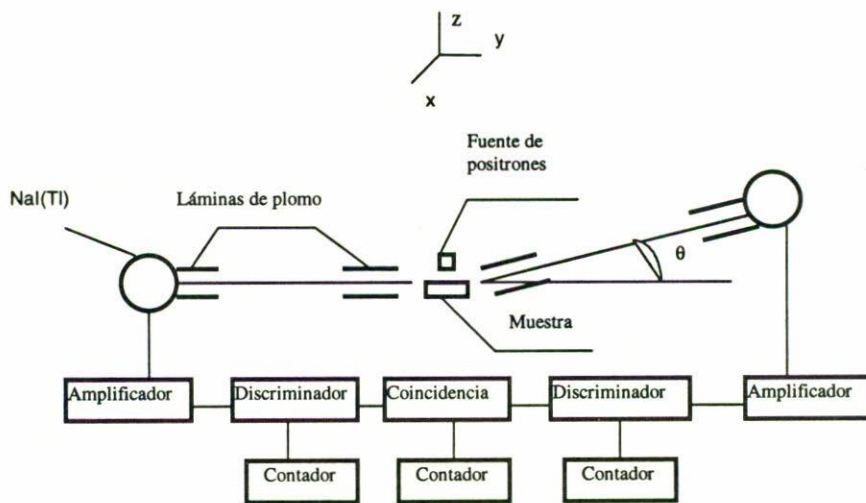


FIGURA 3. Diagrama de bloques del espectrómetro de correlación angular.

3. Técnicas experimentales

3.1. Variantes más populares de las técnicas de aniquilación positrónica

3.1.1. Correlación angular para la salida de dos cuantos gamma

La emisión más probable en la aniquilación de un par electrón-positrón es la de dos fotones, cada uno de ellos con una

energía cercana a los 511 keV [2]. Producto de la conservación del momento en el sistema del centro de masa ellos son emitidos colinealmente. Generalmente la energía cinética del par de aniquilación es de algunos electrón-volts. Como consecuencia de esto, el momento del par electrón-positrón no es cero y los fotones se desvían de su colinealidad en el sistema del laboratorio [3]. El esquema de medición se muestra en la Fig. 3. Para determinar la distribución de los momentos de

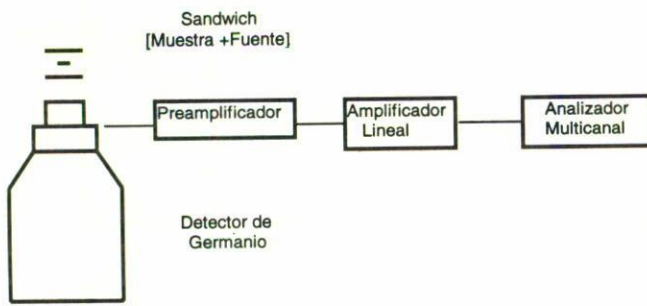


FIGURA 4. Diagrama de bloques del espectrómetro de ensanchamiento Doppler.

los electrones se grafica la velocidad de conteo del circuito de coincidencia con respecto al ángulo θ que va barriendo uno de los detectores en su movimiento, mientras que el otro detector se mantiene fijo. La resolución angular del equipo está fundamentalmente determinada por la geometría de los colimadores y es de 0.5 a 1 mrad [4]. En las mediciones de correlación angular se logran determinar las componentes perpendiculares del momento del par a la dirección de los fotones aniquilados. Usualmente las fuentes de positrones que se usan para este experimento están entre 10–100 mCi y el tiempo de medición es del orden de 1 a 7 días [4].

3.1.2. Ensanchamiento Doppler

El movimiento del par electrón-positrón en el instante de la aniquilación causa un desplazamiento en la energía de la radiación de aniquilación (511 keV), conocido como ensanchamiento Doppler dado por la siguiente expresión [3]:

$$E = m_0 c^2 \left(1 + \frac{v}{c} \cos \theta \right), \quad (1)$$

donde m_0 es la masa en reposo del electrón, c la velocidad de la luz y θ el ángulo entre el momento y la dirección de los rayos gamma.

En el estudio de ensanchamiento Doppler puede usarse el mismo sistema fuente-muestra con el cual se llevan a cabo las mediciones de tiempo de vida [4]. Generalmente las fuentes utilizadas en este experimento tienen una actividad entre 10 y 50 μ Ci. Todos los tipos de fuentes de positrones sirven para realizar estas mediciones ya que no se necesita una radiación gamma coincidente con la emisión positrónica. Este ensanchamiento de la línea de 511 keV se mide con detectores de Ge(Li) o con detectores hiperpuros de Ge. La mejor resolución energética que se alcanza con los detectores de semiconductor en estas mediciones es alrededor de 10 a 20 veces peor que la que se alcanza con los estudios de correlación angular [5]. Sin embargo, cuando no se necesitan mediciones de gran exactitud, este método tiene ventajas con respecto al de correlación angular en cuanto a la simplicidad de la instrumentación nuclear asociada al experimento, tal como lo demuestra la Fig. 4: solamente se necesita un detector y no

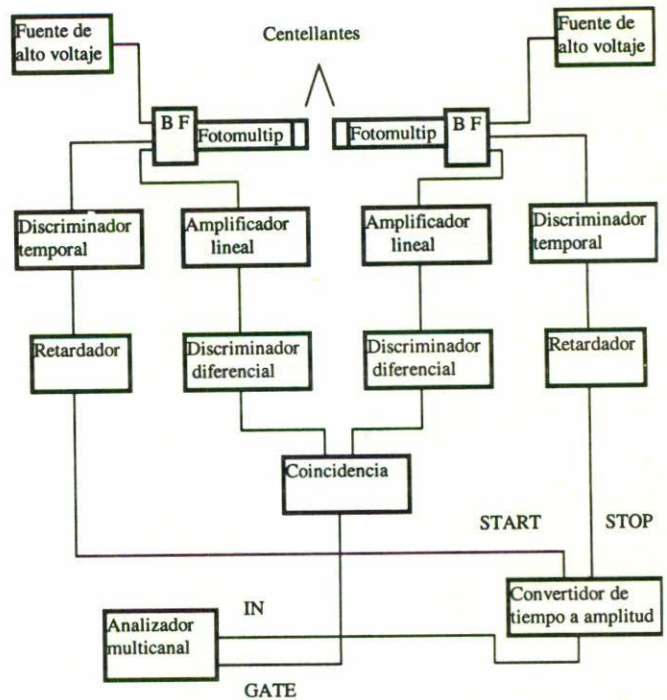


FIGURA 5. Diagrama de bloques del espectrómetro de medición de tiempo de vida.

es necesario un circuito de coincidencia permitiendo una rápida colección de los datos. El tiempo de medición para este tipo de espectro está entre 0.5 a 2 horas [4].

3.1.3. Tiempo de vida del positrón

El tiempo de vida del positrón en un metal está determinado por la densidad promedio de electrones en el sitio de la aniquilación. La fuente más usada para este tipo de experimento es el ^{22}Na [2]. El núcleo de ^{22}Na emite un positrón con una energía máxima de 0.54 MeV y el núcleo pasa a un estado excitado de $^{21}\text{Ne}^*$. Este estado excitado emite después de un picosegundo un rayo gamma de 1.28 MeV y cambia al estado básico del ^{21}Ne [3]. Por lo tanto, nosotros medimos este cuanto gamma como el momento del nacimiento del positrón. El instante de aniquilación del positrón se toma como el momento en el cual los dos detectores que se encuentran colineales registran dos cuantos gamma de 0.511 MeV en coincidencia. El intervalo de tiempo entre el pulso de 1.28 MeV y los dos pulsos de 0.511 MeV es el tiempo de vida del positrón. La Fig. 5 representa esquemáticamente el sistema espectrométrico, el cual consta de una rama rápida con la que se determina el tiempo de vida del positrón y una rama lenta que asegura que midamos el evento correcto. Los espectros de tiempo de vida son los que se obtienen con mayor rapidez, solamente se requieren entre 6 y 24 horas. Las fuentes de positrones que se utilizan en esta medición tienen una actividad entre 10 y 50 μ Ci, prefiriéndose que tengan la menor actividad posible para evitar las posibles coincidencias aleatorias que pudieran surgir [4].

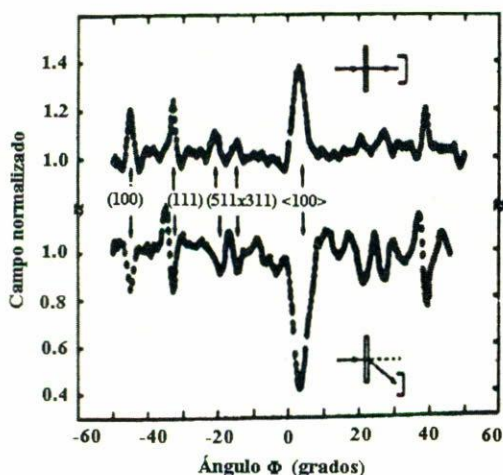


FIGURA 6. Canalización de positrones de 50 keV en un cristal de Si(100) de un ancho de $0.26 \mu\text{m}$. Las dos curvas muestran la intensidad de los positrones transmitidos; la curva de arriba fue obtenida con un detector de barrera superficial en el eje original del haz y la curva inferior fue obtenida midiendo los positrones dispersados. Los datos juntos con otros espectros fueron tomados desde diferentes orientaciones del mismo cristal, mostrando que este efecto es clásico a los 50 keV [5].

3.2. Otras variantes utilizadas

3.2.1. Correlación angular para la salida de dos cuantos gamma en dos dimensiones

Para lograr una mayor eficiencia con las resoluciones adecuadas para estudio de superficies de Fermi, se introduce una variación en la medición de correlación angular anteriormente descrita, la cual consiste en la introducción de un segundo ángulo de medición que se mide en el plano perpendicular al de medición del primero. Esto da la posibilidad de realizar estudios completos de las distribuciones de momento [2]. La técnica también se viene aplicando en estudios de defectos de los materiales sólidos así como de enlaces en líquidos a través del análisis de la formación de estados enlazados positron-electron (positronium).

3.2.2. Canalización de positrones

Cuando un haz de partículas incide sobre un sólido cristalino hay fuertes variaciones en la dispersión y penetración del haz en dependencia de la orientación del cristal. Las partículas pueden recorrer grandes distancias, para determinadas direcciones, sin ser apenas dispersadas. Es decir, van como a través de corredores o túneles dentro del material. Una de sus aplicaciones más importantes es el estudio de impurezas intersticiales en los materiales, puesto que los iones son muy destructivos. La Fig. 6 es el resultado de un experimento de determinación de coeficientes de retrodispersión y transmisión en una lámina de Si monocristalino en diferentes orientaciones, donde se observa claramente el fenómeno de retrodispersión [5].

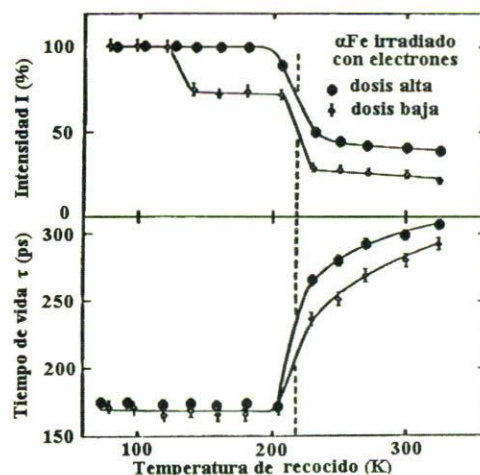


FIGURA 7. Tiempo de vida e intensidad de la componente λ_2 en el hierro alfa en función de la temperatura de recocido [1].

4. Aplicaciones

4.1. Principales aplicaciones en la física del estado sólido y la ciencia de materiales

4.1.1. Estudios de estructura electrónica de los sólidos

Los estudios de la estructura electrónica de los sólidos son de importancia capital para el conocimiento de sus propiedades. Fundamentalmente la forma de la superficie de Fermi explica propiedades tan importantes como la conductividad eléctrica y la capacidad calorífica. La aniquilación es una de las pocas técnicas, si no la única, que permite hacer estos estudios en el caso de los sólidos polifásicos. Un ejemplo de esta aplicación es el estudio de superficies de Fermi realizado en aleaciones Cu-Ga, Cu-Ge y Cu-Ni [6].

4.1.2. Estudios de la formación y migración de diferentes tipos de defectos en sólidos, creados por diferentes mecanismos (por irradiación, tratamientos térmicos y deformación plástica)

Algunos de los defectos que se encuentran en los sólidos son creados por irradiación; en este aspecto se estudian actualmente algunas aleaciones que son utilizadas en las vasijas de los reactores fundamentalmente el acero, aceros ferríticos y materiales de fusión. También producto de los cambios de temperatura pueden ocurrir transiciones de fase [7].

Como resultado de estos estudios se han logrado determinar:

- un número de energías de formación de vacancias en metales y aleaciones, algunas de las cuáles no pueden ser determinadas por otros métodos.
- una estimación de la energía de activación del movimiento de una vacancia, lo cuál se demuestra en la Fig. 7 [1].

- en los reactores rápidos y materiales de fusión es necesario conocer las propiedades fundamentales de los defectos tales como entalpías de formación de mono-vacancias, entalpías de migración y energías de interacción defecto-impureza.

Las técnicas de aniquilación positrónica se usan también en el estudio de fracturas de materiales, debido a su sensibilidad a defectos en la zona plástica. Cuando un metal o aleación está sometido a tensión, siempre hay una pequeña o larga zona plástica que aparece en el punto cercano a la ruptura. El tamaño y la estructura de defectos de la zona plástica tiene relación con la resistencia que ofrece el metal a la propagación de la ruptura.

4.1.3. Estudios de superficies y recubrimientos

Algunos materiales poseen ciertas características que les permiten ser utilizados como cubiertas de superficies metálicas, una de estas características es la resistencia a la corrosión [8]. Una vez que las propiedades de estos materiales se ven dañadas dejan de cumplir su función como cubiertas, por lo cual es de vital importancia probar cada cierto tiempo sus características. Se conoce que las propiedades de estos materiales están influenciadas por parámetros de deposición. Una característica microestructural que provoca una baja dureza es la presencia de vacancias [9].

Las técnicas de aniquilación positrónica son un instrumento que permiten caracterizar y estudiar los defectos puntuales en la superficie de estos recubrimientos. Existen en la literatura aplicaciones de distintas variantes de la aniquilación a todos los tipos de materiales conocidos. A continuación hacemos referencias a algunos trabajos a manera de ejemplos de los materiales más estudiados.

4.2. Entre los metales y sus aleaciones

4.2.1. Metales de alta pureza

En los metales de alta pureza se estudia fundamentalmente la generación de defectos que ocurren con el incremento de la deformación plástica [10]. Incluso en estados de baja deformación estas técnicas son sensibles a los cambios que se producen en los metales, además el posterior proceso de recocido a través de tratamientos térmicos se puede monitorear para analizar el efecto de recuperación de estos defectos, tal como lo demuestra la Fig. 8 [11].

Se han realizado otros estudios en estos tipos de metales, en el caso del Zr de alta pureza se ha detectado la agrupación de vacancias en el intervalo de 230 a 330 K [12]. Estos estudios, a través de la medición del tiempo de vida del positrón, han demostrado que la señal de agrupación de vacancias está asociada con un modesto incremento en el tiempo de vida y un notable incremento en la velocidad de captura de los positrones. Otro de los metales que ha sido muy estudiado es el

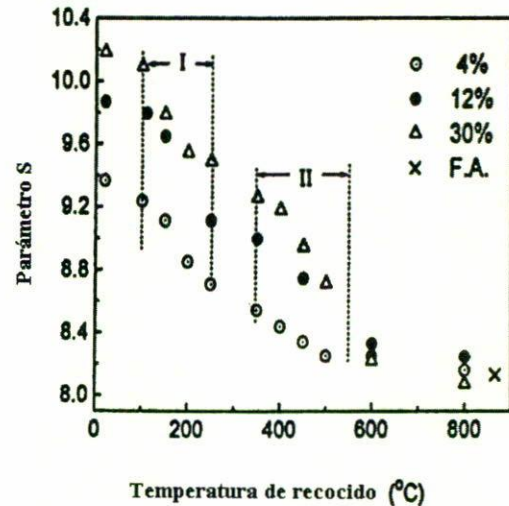


FIGURA 8. Parámetro S en función de la temperatura de recocido en iguales intervalos de tiempo [11].

Ti de alta pureza con un porcentaje de deformación por debajo del 2%, demostrándose que durante el proceso de recocido las dislocaciones interfaciales contribuyen fundamentalmente al estado de recristalización [13].

4.2.2. Metales de la tecnología nuclear

Los materiales que se usan en la tecnología nuclear están expuestos a altas temperaturas y altos flujos de neutrones, los cuales provocan un gran número de defectos y cambios estructurales [10]. Un factor decisivo para la seguridad y estabilidad del funcionamiento de un reactor nuclear es la calidad de las vasijas de presión del reactor, las cuales se endurecen debido a la alta radiación neutrónica a que son sometidos durante su operación. La única posibilidad de reducir la fragilidad y de aumentar el margen de seguridad contra el deterioro de las propiedades mecánicas es el recocido térmico [14]. A través de las técnicas de aniquilación positrónica se les realiza un análisis no destructivo a estos materiales y se investiga con el objetivo de encontrar el régimen más eficiente de temperatura con respecto al tiempo para el tratamiento post-irradiación.

4.3. Aplicaciones en la industria

Fundamentalmente, como técnica de ensayos no destructivos para determinar el comportamiento de diferentes fluidos y del estado de degradación de materiales de diferentes equipos.

Las aleaciones que tienen como base el Cu son muy estudiadas debido a sus características su aplicación en la tecnología [15]. La ventaja fundamental que en este campo aportan este tipo de técnicas es que constituyen métodos no destructivos de análisis, es decir, en muchos casos la defectación de equipos se realiza sin una posible pérdida de materiales que aún pudieran reunir las condiciones para su posterior uso [4].

La importancia de conocer los incipientes estados de degradación de materiales de diferentes equipos ha ampliado el uso práctico de estas técnicas, llegando a un nivel alto de aplicabilidad en las industrias donde en un breve intervalo de tiempo podemos conocer el estado técnico de estos materiales, estudiando desde el efecto de la exposición a las radiaciones, tratamientos térmicos, diferentes niveles de deformaciones y a muchas otras causas que provocan defectos en los mismos.

5. Conclusiones

Las técnicas de aniquilación positrónica se utilizan en diferentes variantes en la investigación y control de materiales y se encuentran en un franco perfeccionamiento y desarrollo. La física del estado sólido, la ciencia de materiales y la industria, encuentran en ellas herramientas muy poderosas, y en no muy pocos casos únicas, para abordar los diferentes problemas que las ocupan.

1. P. Hautojärvi, "Positron spectroscopy of Defects in Metals and Semiconductors", *Positron Spectroscopy of Solids*, edited by A. Dupasquier and A.P. Mills Jr., (IOS Press, Amsterdam, 1995).
2. R.W. Siegel, *Proceedings of the Sixth International Conference of Positron annihilation, Ft. worth, Texas, April (1982)* (invited paper).
3. Dayama. STI/PUB/66 *Atomic Energy Review Supplement* No.1 (1981).
4. G. Brauer, ZS. Kajosos, and T. Kemeny, *Hungarian Academy of Sciences*, KFKI-(1981) 64.
5. Propaganda Comercial. *Positron annihilation lineshape analysis*, (Mike Hutchings AEA, 1992).
6. Peter J. Schultz, *Rev. Mod. Phys.*, **60** (3) (1988).
7. Steinmetz, K.H, Fischer *et al.*, *Phys. Status Solidi* (1989) 575.
8. P.C. Jain, R.M. Singru, and K.P. Gopinathan, (eds) (A round table discussion), *Positron annihilation*, (World Scientific Publ. Co., Singapore, 1985).
9. James P. Sceffer, *J. Vac. Sci. Technol. A* **10** (1) (1982).
10. Y. Shirai, H. Kohda, T. Murakami, and Y. Yamaguchi, *Intermetallics* **4** (1996) 139.
11. K. Popp, G. Brauer, W-O. Leonhardt, and H.W. Viehrig, *IAEA Specialists' Meeting on Irradiation Embrittlement and Aging of Reactor Pressure Vessels*, (Philadelphia, USA, 1987) 27.
12. Hyuk Il Kwon, Kja Myong Oh, and In Sup Kim, *Proceedings of the 2nd Pacific Rim International*, edited by K.S. Shin, J.K. Yoon, and S.J. Kim, (The Korean Institute of metals and materials, 1995).
13. G.M. Hood, R.J. Schultz, and N. Matsuura, *J. Nucl. Mater.* **226** (1995) 260.
14. Hyuk Il Kwon and In Sup Kim, *Scripta Metallurgica et Materiala*, **32** (1995) 607.
15. Brauer, Laszlo Liskay, Bela Molner, and Rainhard Krause, *Nuclear Engineering and Design* **127** (1991) 47.