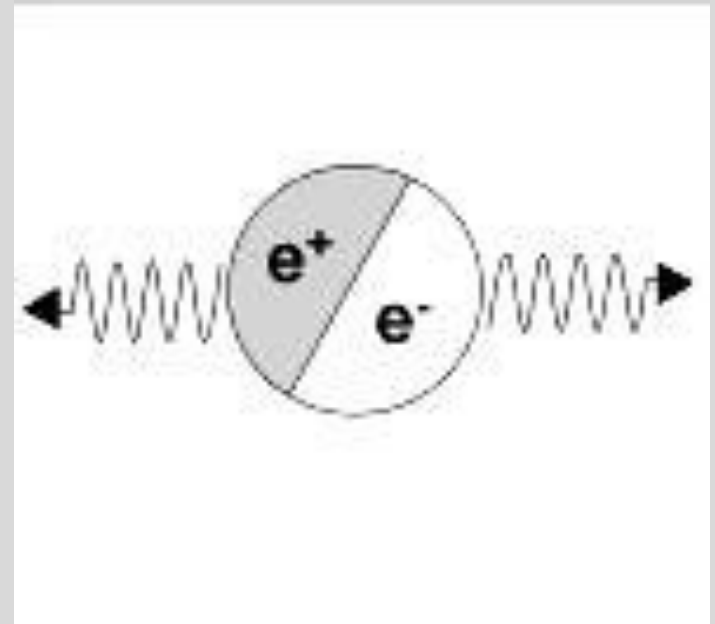


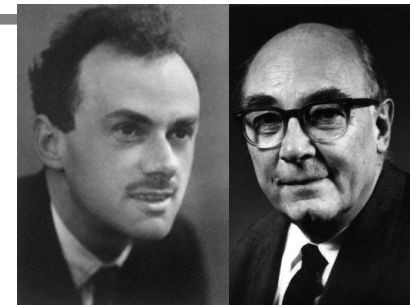
Aniquilación de positrones



Espectroscopia de aniquilación de positrones


Características del sistema e^-e^+

Antecedentes históricos



- 1927, P.A.M.Dirac: teoría relatividad *huecos*

$$E = \pm \sqrt{c^2 p^2 + (mc^2)^2}$$

- 1932, C.Anderson: rayos cósmicos en una cámara de niebla
- 1933, Blacket y Occhialini: antipartícula del electrón: e^+
- 1950, rápido desarrollo de la física del e^+ ya que las características del proceso de aniquilación depende del estado del sistema e^-e^+ .
- 1970, crecimiento explosivo  información única en materiales

Características físicas fundamentales

- Leptón o partículas livianas: electrones, taus y neutrinos
- Fermiones: estadística de Fermi-Dirac

$$F(E) = \frac{1}{e^{(E-E_0)/kT} + 1}$$

- No participan de las interacciones fuertes.

Espectroscopia de aniquilación de positrones

Propiedades físicas

- Igual masa en reposo m
- Igual carga, signos opuestos $+e$
- Igual momento magnético $ge/2mc$
- Momento de spin y orbital con orientaciones relativas opuestas
e⁺ paralelo, e⁻ antiparalelo
- No satisfacen el ppio. de exclusión:

$$\langle \psi_+(r) | \psi_-(r) \rangle \neq 0$$

- En sólidos se comportan como ondas, en equilibrio térmico:

$$2\pi\lambda_+ = 2\pi\hbar/mv_+ = 115(316k/T)^{1/2}a_0; a_0 = \hbar^2/mc^2 = 0.529 \text{ \AA}$$

- Comparada con la distancia interatómica:

$$2\pi\lambda_+/a \gg 1; a \sim 0.2a_0$$

Espectroscopia de aniquilación de positrones

Creación y aniquilación del sistema e^-e^+

La creación de un par e^-e^+ , producción de pares:

$$h\nu \rightarrow e^- + e^+$$

La energía asociada con la masa en reposo del e^- ,
 $m_e c^2 = 0.511 \text{ MeV}$

Luego, la energía mínima del fotón necesaria para producir un par será:

$$**$2m_e c^2 = 1,022 \text{ MeV}$**$$

La transformación de masa en fotones, proceso de aniquilación, se puede representar:

$$e^+ + e^- + M \rightarrow n\gamma + M$$

Deben cumplirse las leyes de conservación y reglas de selección:

- energía total
- cantidad de movimiento total
- carga total
- momento angular total
- paridad

Espectroscopia de aniquilación de positrones

De la electrodinámica cuántica los distintos mecanismos de aniquilación:

$$e^+ + e^- + M \rightarrow n\gamma + M$$

Nº γ	Spin	Nº de cuerpos	Características	resultado
0	0	2	Colisión 4 cuerpos, momento transferido $\sim 2m/M$	Nunca detectada
1	1	1	Colisión 3 cuerpos, creación de un gamma	Altas energías
2	0	0	Colisión 2 cuerpos, creación de dos gammas	Más probable
3	1	0	Colisión de 2 cuerpos, creación de 3 gammas	$3\gamma/2\gamma \sim 1/378.16$
4	0	0	Colisión 2 cuerpos, 4 gammas	Nunca detectada

$\gamma=0$:

$$e^+ + e^- + 2M \rightarrow +2M'$$

$\gamma=1$:

$$e^+ + e^- + M \rightarrow \gamma + M'$$

Espectroscopia de aniquilación de positrones

Las secciones eficaces relativistas (Dirac):

$$\sigma_1 = \frac{4\pi r_0^2 Z^5 \alpha^4}{(\gamma + 1)^2 \sqrt{\gamma^2 - 1}} \left[\gamma^2 + \frac{2}{3}\gamma + \frac{4}{3} \frac{\gamma + 2}{\sqrt{\gamma^2 - 1}} \ln(\gamma + \sqrt{\gamma^2 - 1}) \right]$$

Aniquilación de e^+ con un e^- **1s** de un átomo con Z , r_0 el radio clásico del e^- , $\alpha=1/137.03$: cte. de estructura fina y

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - (v/c)^2}}$$

Aniquilación con un electrón libre:

$$\sigma_2 = \frac{\pi r_0^2}{\gamma + 1} \left[\frac{\gamma^2 + 4\gamma + 1}{\gamma^2 - 1} \ln(\gamma + \sqrt{\gamma^2 - 1}) - \frac{\gamma + 3}{\sqrt{\gamma^2 - 1}} \right]$$

$$\sigma_3 = \frac{4}{3\pi} (\pi^2 - 9) \alpha \sigma_2 \approx \sigma_2 / 371.3$$

Fuentes naturales, el e^+ se aniquila prácticamente en reposo, es lícito considerar $v/c \ll 1$

Espectroscopia de aniquilación de positrones

La aniquilación a dos gammas resulta la más probable:

$$\Gamma_{2\gamma} = \sigma_{2\gamma} v n_e = \pi r_0^2 c n_e$$

Siendo n_e la densidad de electrones en el sitio de aniquilación.

$$n_e = \iiint \rho^-(\vec{r}) \rho^+(\vec{r}) d^3 r$$

Los positrones sirven como partícula de prueba para determinar la densidad electrónica del medio.

¿Cómo calculamos la función de onda del e⁺?

Ecuación de Schrödinger:
$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \Psi_+(\vec{r}) + V(\vec{r}) \Psi_+(\vec{r}) = E_+ \Psi_+(\vec{r})$$

El potencial:
$$V(\vec{r}) = V_{coul}(\vec{r}) + V_{corr}(\vec{r})$$


En la red perfecta: e⁺ estado de Bloch (deslocalizado)

Gran repulsión coulombiana  espacios intersticiales.

Defectos tipo vacancias: menor repulsión  atrapamiento.

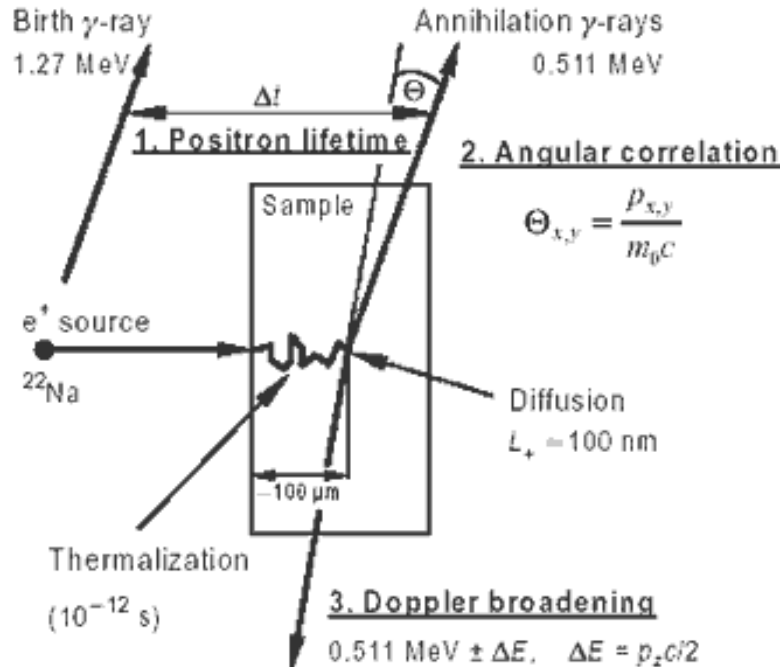
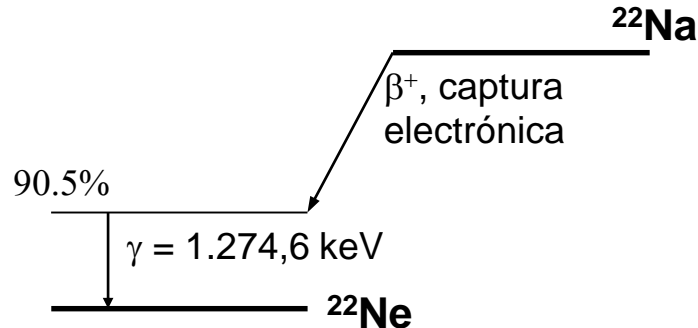
Espectroscopia de aniquilación de positrones

Cuando e^+ energéticos de una fuente radioactiva son inyectados en un medio condensado:

- Son frenados a energías térmicas (kT) en aprox. **1ps**
- El rango medio de implantación es de **10-1000 μm** , garantiza que los e^+ alcancen el bulk ya que **$L_+ \approx 100 \text{ nm}$** (longitud de difusión del e^+).
- Al alcanzar el equilibrio térmico se aniquilan por alguno de los procesos anteriores.
- El más probable, emisión de dos rayos gamma de 511 keV en direcciones opuestas.
- Las técnicas basadas en la aniquilación de positrones tienen ventajas sobre otras.
- Método no destructivo  radiación de aniquilación penetrante.

Técnicas Experimentales

El isotopo más común es el ^{22}Na :



- Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy (**PALS**)
- Doppler Broadening Spectroscopy (**DBS**)
- Angular Correlation of Annihilation Radiation (**ACAR**)
- Low-Energy Positron Diffraction (**LEPD**)
- Positron annihilation-induced Auger-Electron Spectroscopy (**PAES**)
- REmitted-Positron Energy-Loss Spectroscopy (**REPELS**)
- Reemitted-Positron or -Positronium Spectroscopy (**RPS**)

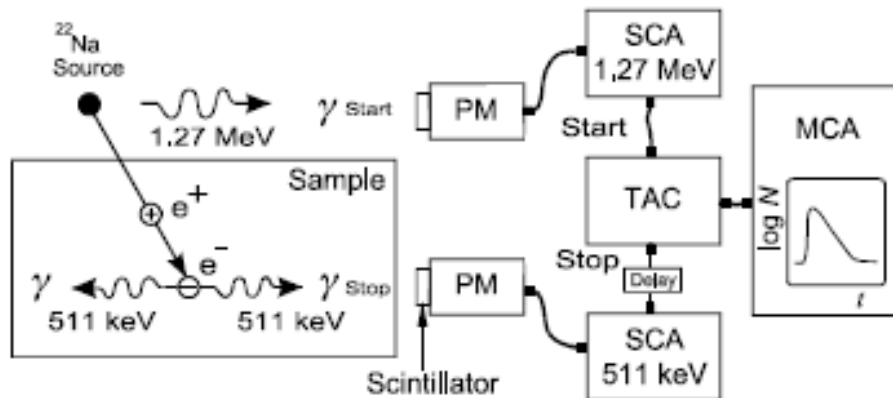
Técnicas Experimentales

Medida de vidas medias de positrones

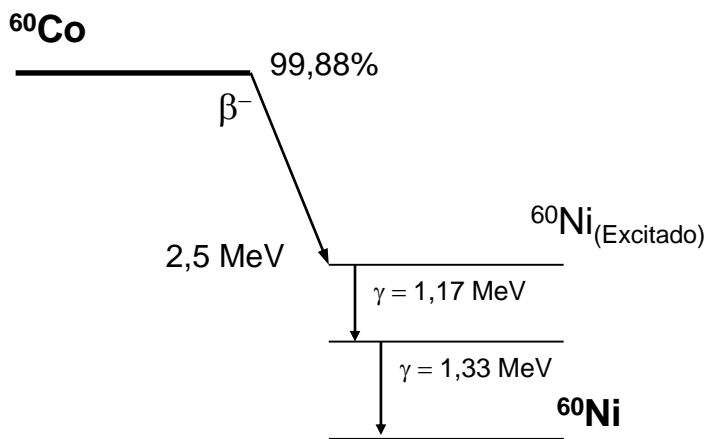
Fuente $^{22}\text{NaCl}$ actividad de pocos μCi depositada sobre material:

Kapton: 386 ps

Aluminio: 160 ps



Función resolución experimental:



Material de referencia, metal libre de defectos:

Sn 204 ps

Ni 174 ps

Se utiliza para evaluar la corrección de fuente y resolución.

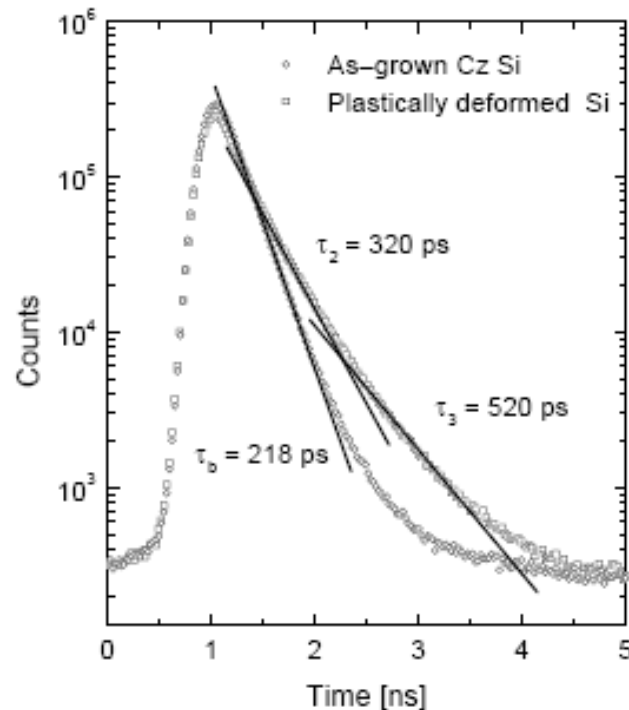
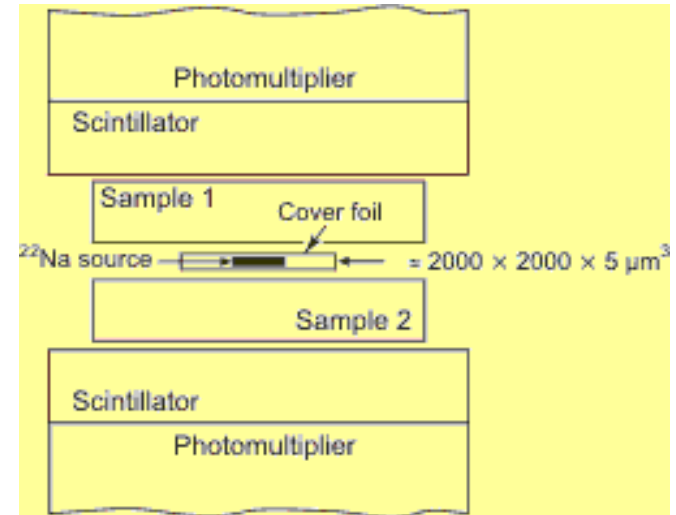
Espectroscopia de aniquilación de positrones

Geometría de la muestra, tipo "sandwich":

La vida media del positrón es característica del material:

Metales 100-150 ps

Semiconductores 200-300 ps



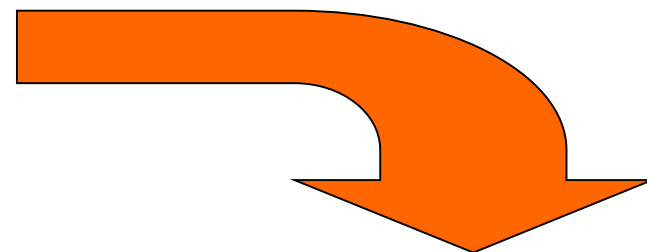
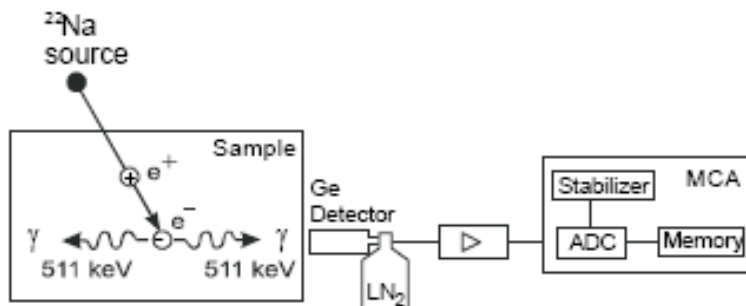
Los defectos aumentan la vida media: vacantes (20ps), asociaciones de vacantes (500ps)

Materiales orgánicos y polímeros varios decaimientos exponenciales, más interés del orden de los ns, relacionado con volúmenes libres.

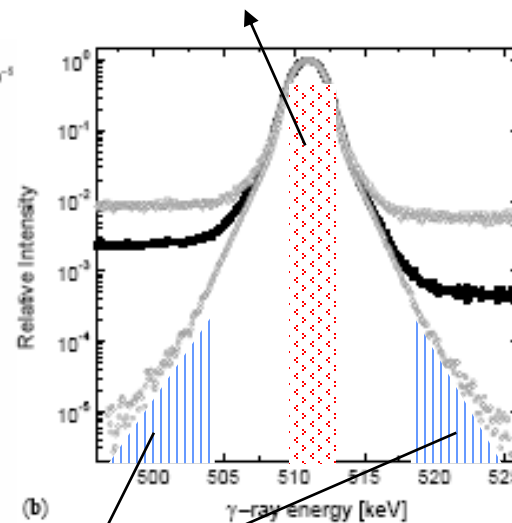
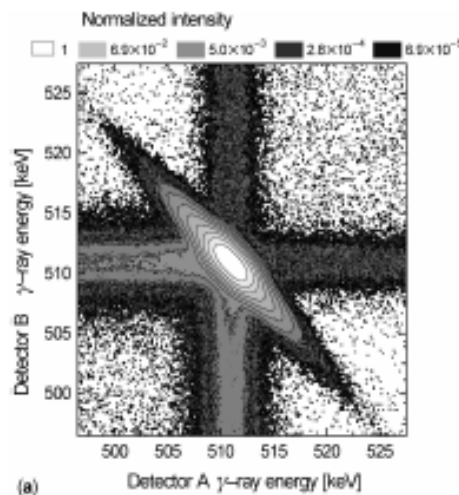
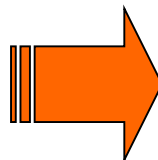
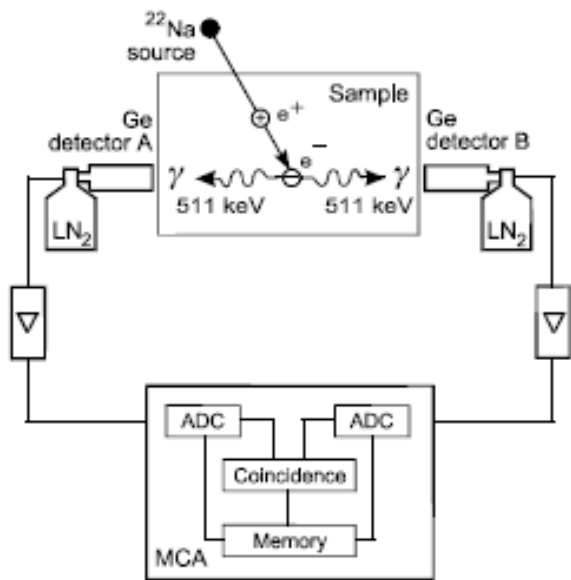
Espectro típico de vidas medias

Espectroscopia de aniquilación de positrones

Ensanchamiento Doppler



Parámetro **S**: interacción con e⁻ de valencia (momento bajo)



Parámetro **W**: interacción con e⁻ de core (momento grande)

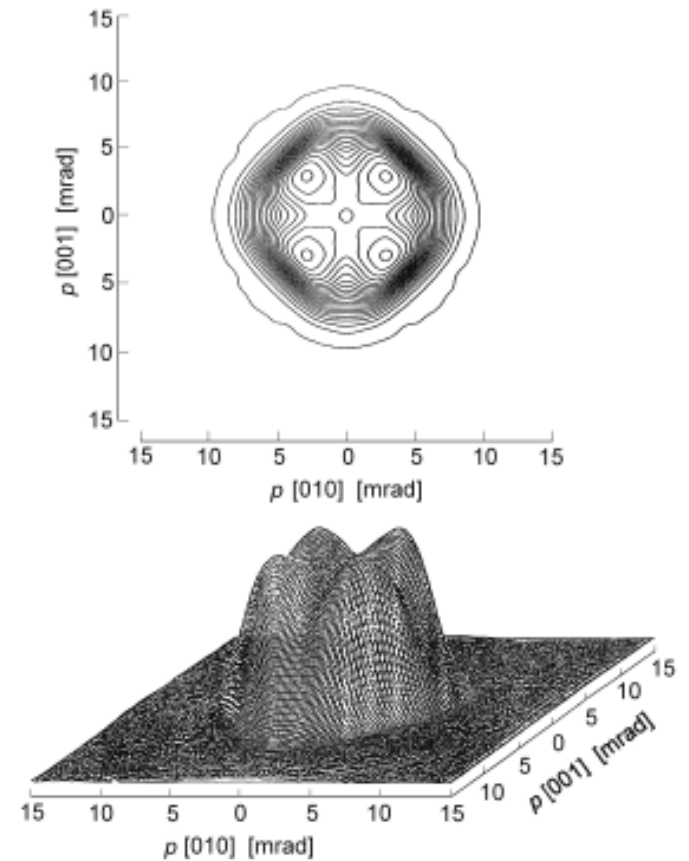
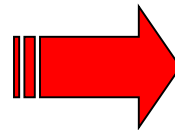
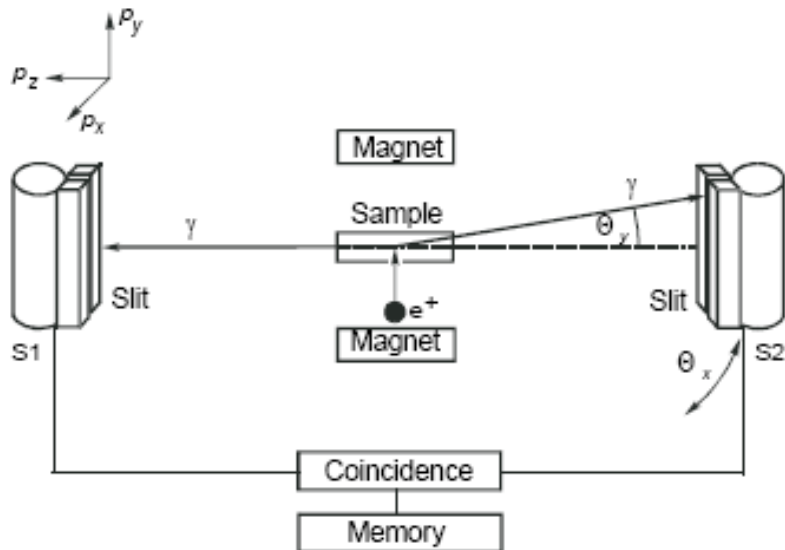
Espectroscopia de aniquilación de positrones

Correlaciones angulares:

Desviaciones en componentes del momento transversal de unos ***mrاد***



Fuente de positrones intensa, ***mCi***



Análisis de los espectros de vidas medias



El espectro a determinar:

$$N(t) = N_0 \sum_{i=1}^k I_i \tau_i^{-1} \exp(-t / \tau_i)$$

El espectro medido:

$$f(t) = N(t) \otimes R(t) + B$$

Varios métodos:

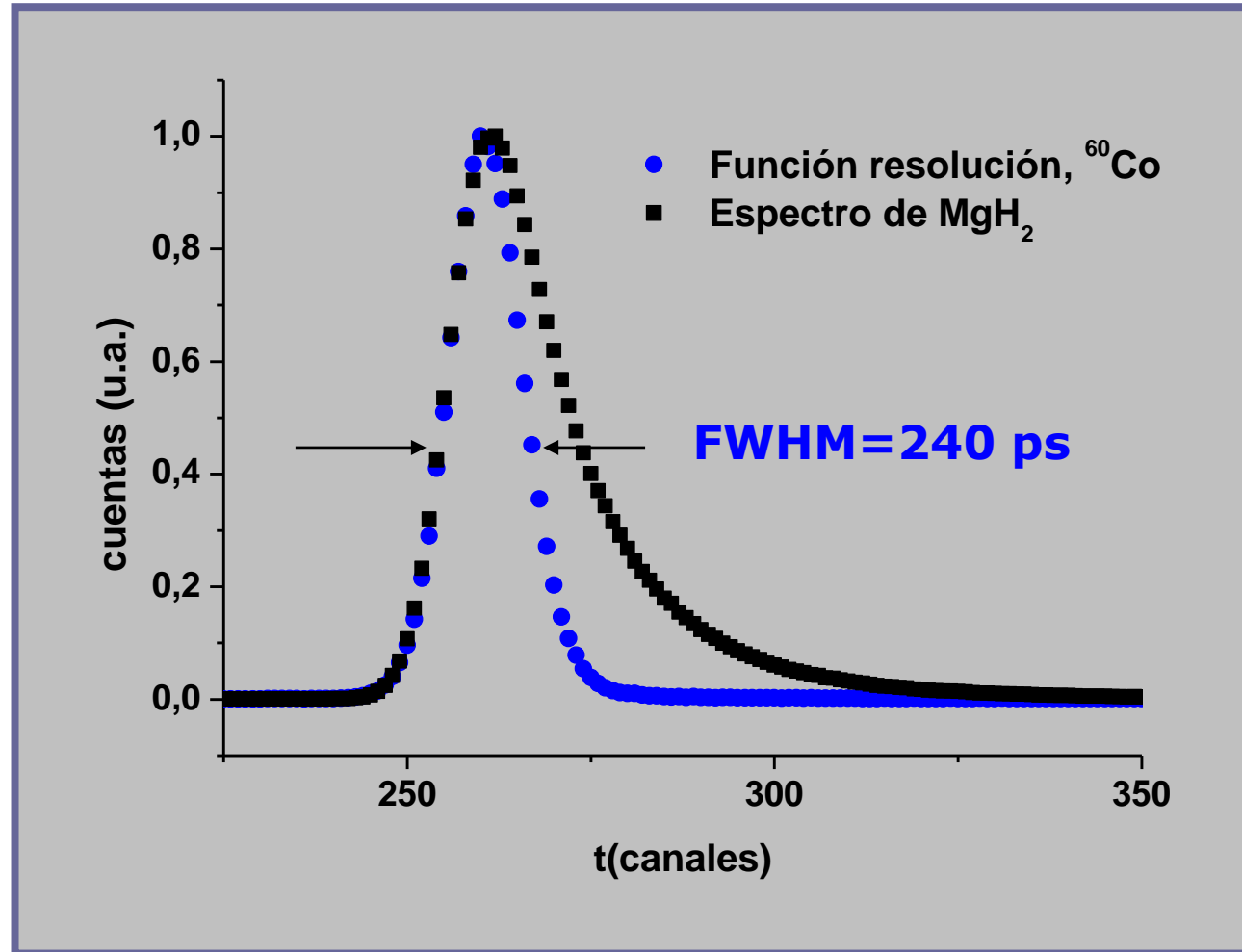
- Métodos gráficos
 - POSITRONFIT, Kirkegaard y Eldrup, 1988
 - Términos finitos (discreto)  necesita la determinación previa del n° de estados de aniquilación.
 - Términos continuos  CONTIN-PALS, Gregory, 1990, transformada de Laplace.
 - MELT, Shukla, 1993, máxima entropía.
- Independientes, a priori, del número de decaimientos

Análisis de los espectros de vidas medias

- Componentes de la muestra.
- Contribución de fuente.
- Componentes espúreas.
- Aniquilaciones casuales.

Calibración:

24.4 ps/canal



Modelo de atrapamiento

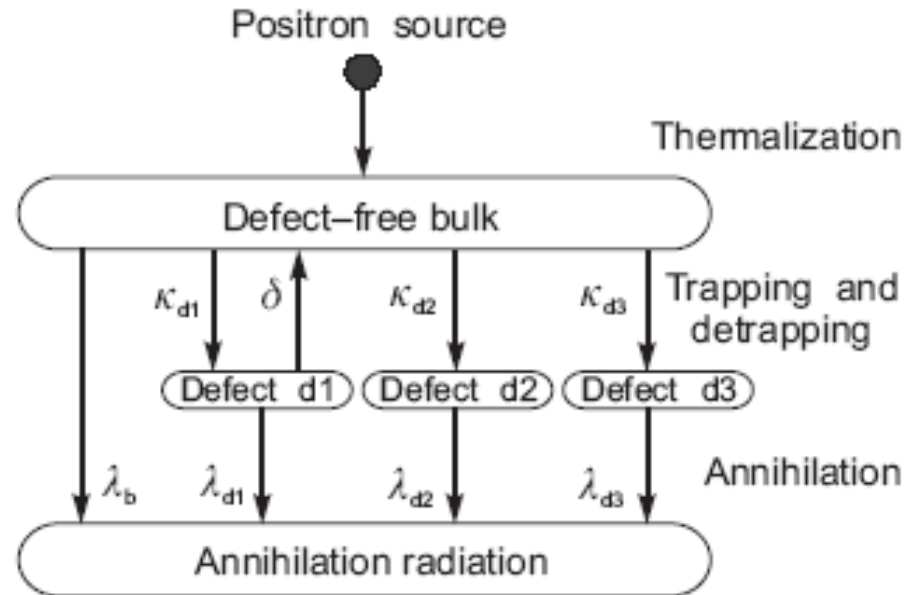
Descripción fenomenológica del atrapamiento del e^+ por defectos de volumen abierto, Bertolaccinni y Dupasquier (1970).

Suposiciones básicas:

- n_i : n° de e^+ en el estado i
- A $t=0$ todos los e^+ se encuentran en estados libres
- La tasa de atrapamiento κ_i es proporcional a la concentración de defectos de tipo i

$$\kappa_i = \mu_i C_i$$

μ : coeficiente de atrapamiento específico



- El e^+ puede escapar de una trampa con una tasa δ , distinta para cada tipo de defecto.

En cada instante t , el no. total de positrones en el sólido:

$$n(t) = n_b(t) + n_{d1}(t) + n_{d2}(t) + n_{d3}(t)$$

Modelo de atrapamiento

Las variaciones temporales del n^o de e⁺ en cada uno de estos estados será:

$$\begin{aligned}\frac{dn_b(t)}{dt} &= -(\lambda_b + \kappa_{d1} + \kappa_{d2} + \kappa_{d3}) n_b(t) + \delta n_{d1}(t), \\ \frac{dn_{d1}(t)}{dt} &= -(\lambda_{d1} + \delta) n_{d1}(t) + \kappa_{d1} n_b(t), \\ \frac{dn_{d2}(t)}{dt} &= -\lambda_{d2} n_{d2}(t) + \kappa_{d2} n_b(t), \\ \frac{dn_{d3}(t)}{dt} &= -\lambda_{d3} n_{d3}(t) + \kappa_{d3} n_b(t).\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}I_1 &= 1 - (I_2 + I_3 + I_4), \\ I_2 &= \frac{\delta + \lambda_{d1} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})}{\mathcal{E}} \\ &\quad \times \left[1 + \frac{\kappa_{d1}}{\delta + \lambda_{d1} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})} + \frac{\kappa_{d2}}{\lambda_{d2} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\kappa_{d3}}{\lambda_{d3} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})} \right], \\ I_3 &= \frac{\kappa_{d2}(\delta + \lambda_{d1} - \lambda_{d2})}{[\lambda_{d2} - \frac{1}{2}(\Lambda + \mathcal{E})][\lambda_{d2} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})]}, \\ I_4 &= \frac{\kappa_{d3}(\delta + \lambda_{d1} - \lambda_{d3})}{[\lambda_{d3} - \frac{1}{2}(\Lambda + \mathcal{E})][\lambda_{d3} - \frac{1}{2}(\Lambda - \mathcal{E})]}.\end{aligned}$$

Resolviendo

$$\begin{aligned}\tau_1 &= \frac{2}{\Lambda + \mathcal{E}}, & \tau_2 &= \frac{2}{\Lambda - \mathcal{E}}, \\ \tau_3 &= \frac{1}{\lambda_{d2}}, & \tau_4 &= \frac{1}{\lambda_{d3}},\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\Lambda &= \lambda_b + \kappa_{d1} + \kappa_{d2} + \kappa_{d3} + \lambda_{d1} + \delta, \\ \mathcal{E} &= \sqrt{(\lambda_b + \kappa_{d1} + \kappa_{d2} + \kappa_{d3} - \lambda_{d1} - \delta)^2 + 4\delta\kappa_{d1}}.\end{aligned}$$

Espectroscopia de aniquilación de positrones

De esta forma el espectro de aniquilación se obtiene de la probabilidad de aniquilación al tiempo t dado por:

$$f(t, \lambda_i, I_i) = \frac{d[1 - n(t)]}{dt} = \sum_{i=1}^{N+1} I_i \lambda_i e^{-\lambda_i t}$$

Un parámetro estadístico, es la vida media promedio,

$$\bar{\tau} = \sum_{j=1}^4 I_j \tau_j .$$



Su variación indica existencia de otro mecanismo adicional de atrapamiento.

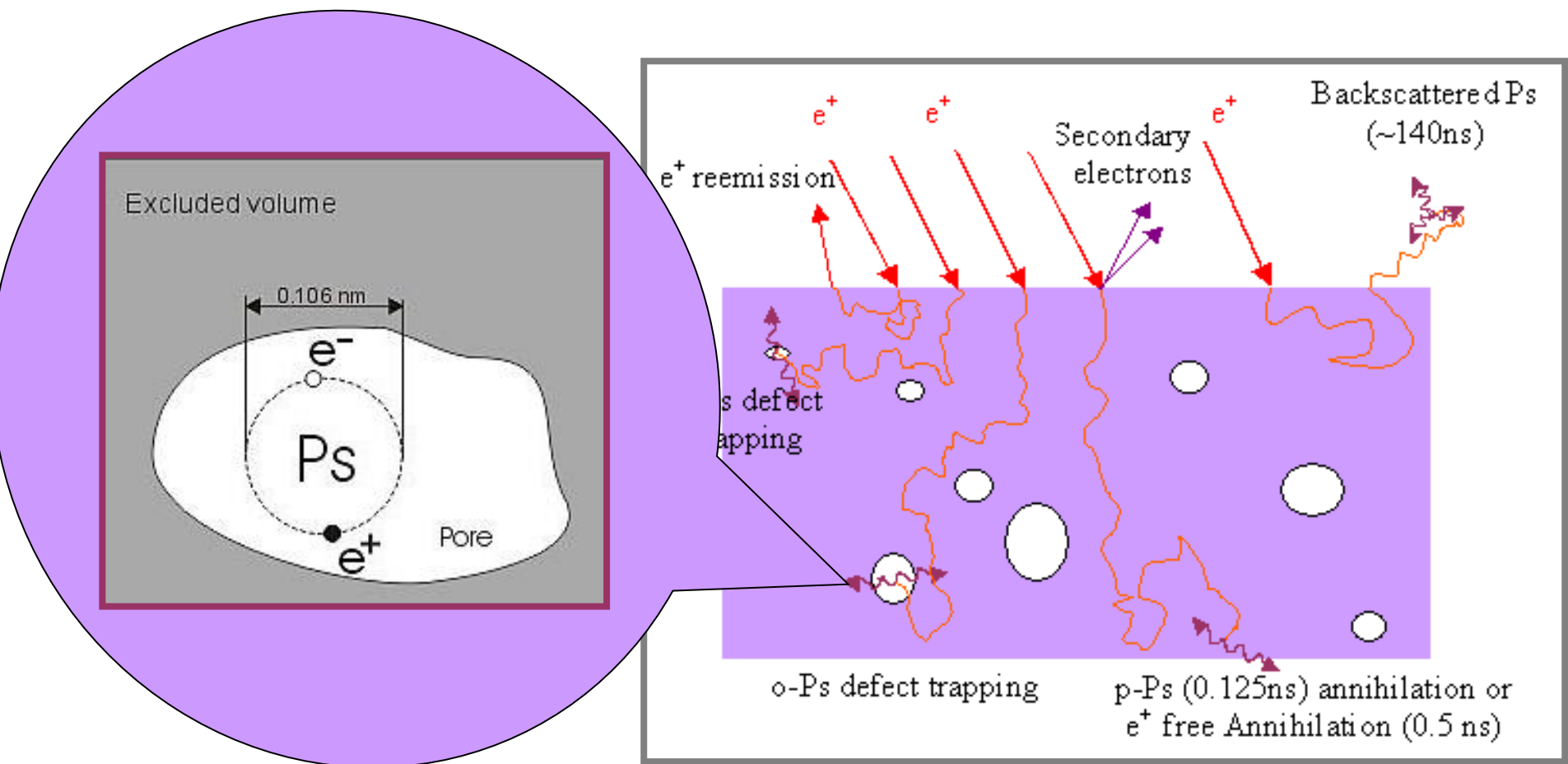
Aniquilación de positrones: formación de positronio

Estado ligado e^+e^- , tipo hidrogenoide:

$$E_f = 6.8 \text{ eV}$$

$S=1$, o-Ps, triplete

$S=0$, p-Ps, singlete



Espectroscopia de aniquilación de positrones

Volúmenes libres en medios porosos.

$$V_f = V_T - V_o$$

y la fracción de volumen libre:

$$f = V_f / V_T$$

polímeros, $f \sim 20\%$

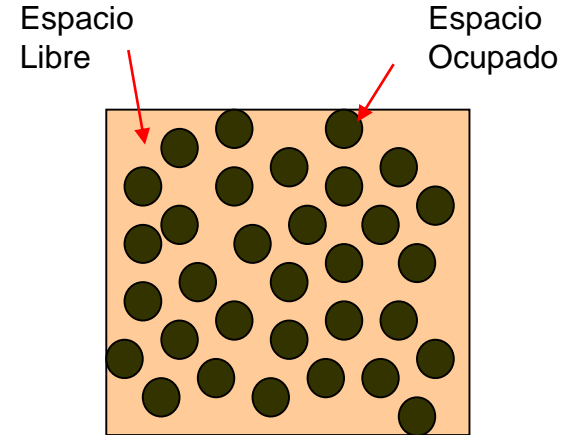
materiales nanocristalinos 10-50%

Teorías de volumen libre:

modelo (semiempírico) de Tao y Eldrup, relaciona la vida medio del o-Ps con el tamaño del void.

$$\lambda_{o-Ps} = \lambda_b \left[1 - \frac{R}{R + \Delta R} + \frac{1}{2\pi} \sin \left(2\pi \frac{R}{R + \Delta R} \right) \right] + \lambda_t$$

$\Delta R \sim 1.656 \text{ \AA}$, parámetro empírico

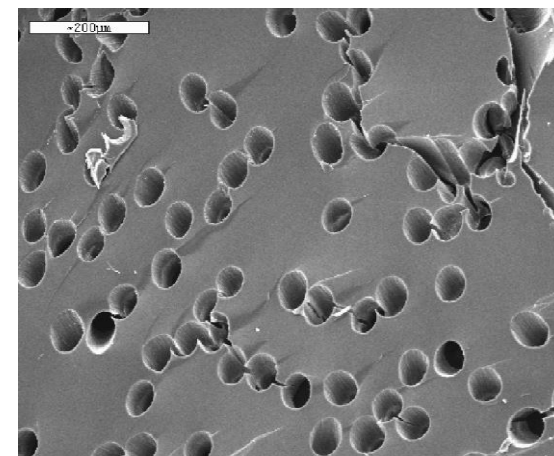
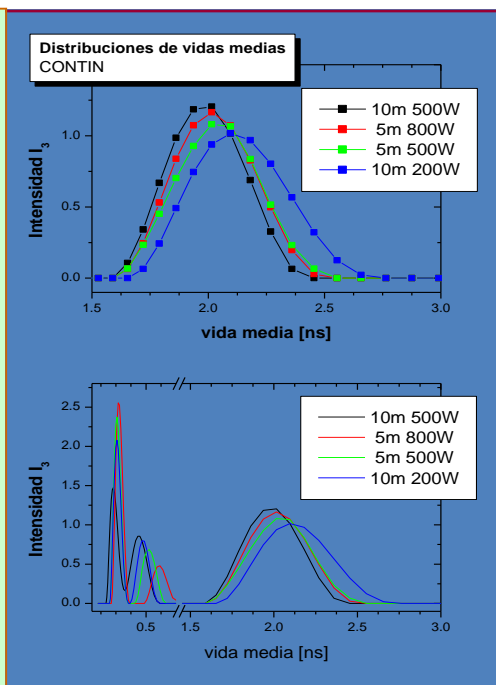
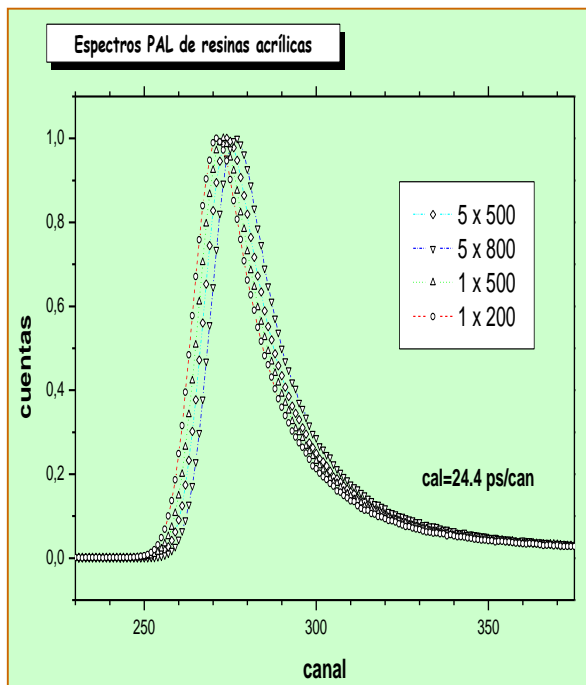


Representación esquemática de los volúmenes de un sustrato molecular.

Aplicaciones: Volúmenes libres en polímeros

Polivinilsiloxanos (PVS)

Polímeros de Poli(Acrilato de Etilo)



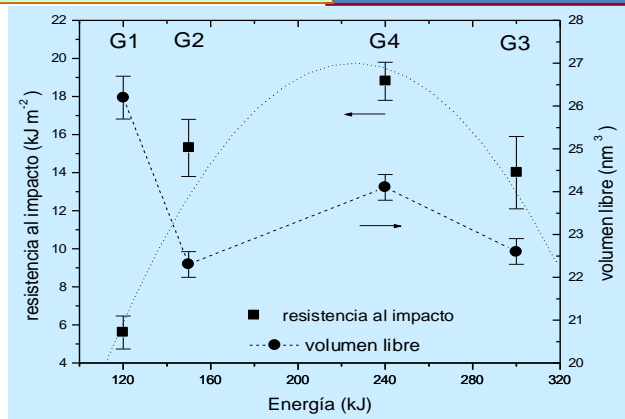
Se determinó el tamaño de los huecos:

$$R \sim 2.5 \text{ \AA}$$

Damonte, APHYS 2003, Spain

POSITRONFIT

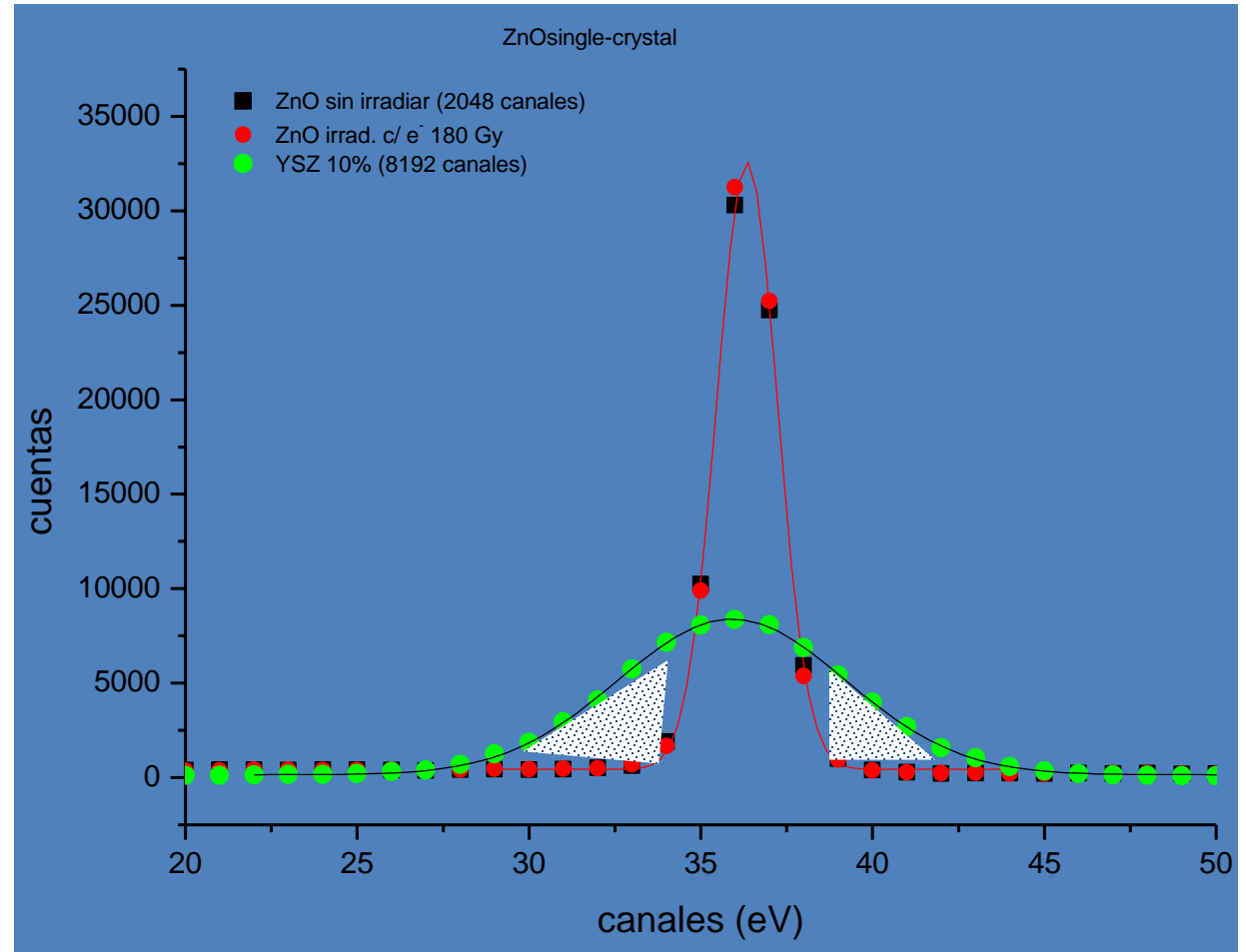
CONTIN



Alessandrini, SLAP 2004, Spain

Aplicaciones: Defectos en semiconductores

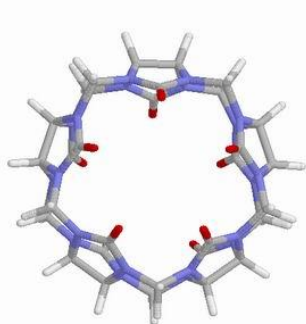
Óxidos Semiconductores, un análisis por ensanchamiento Doppler



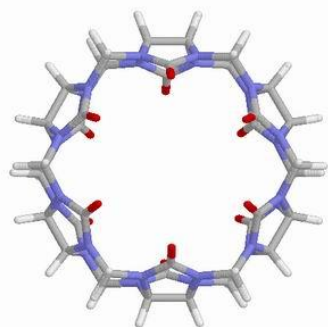
Aplicaciones: Determinación de voids

Cucurbiturils (CB) son cápsulas orgánicas de forma particular atractivas por el hecho que pueden alojar complejos con gran estabilidad.

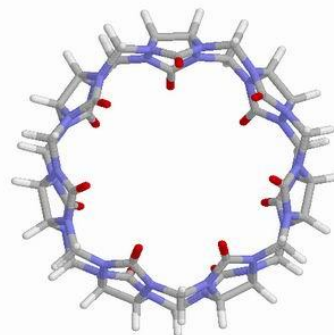
Estructuralmente, CBs están formadas por unidades glycoluril ligadas por grupos metileno.



cucurbit[5]uril

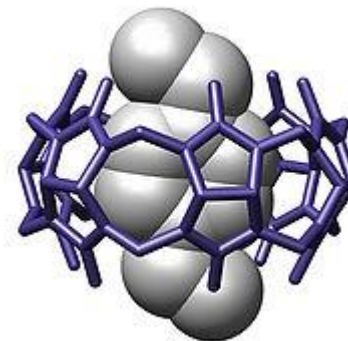


cucurbit[6]uril

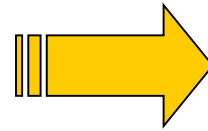
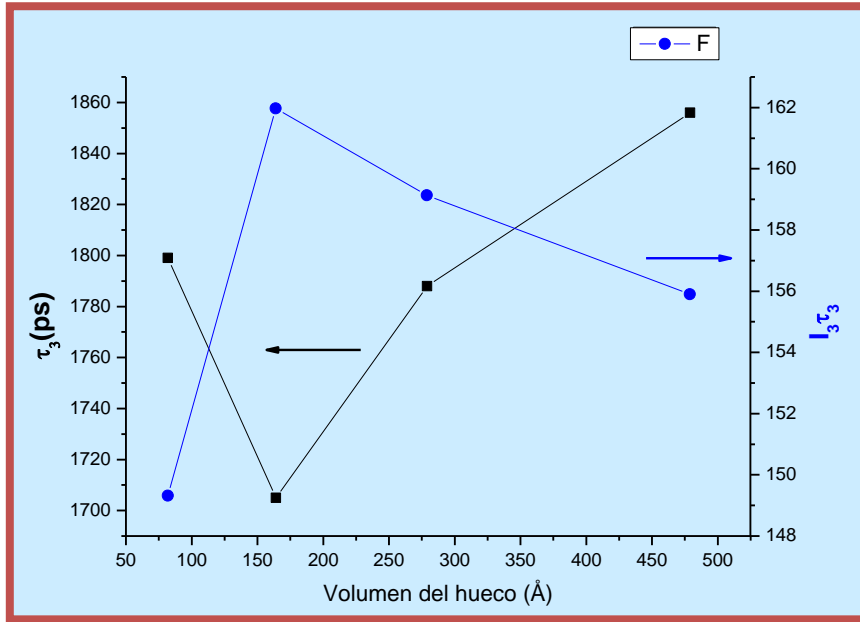


cucurbit[7]uril

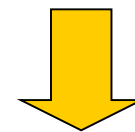
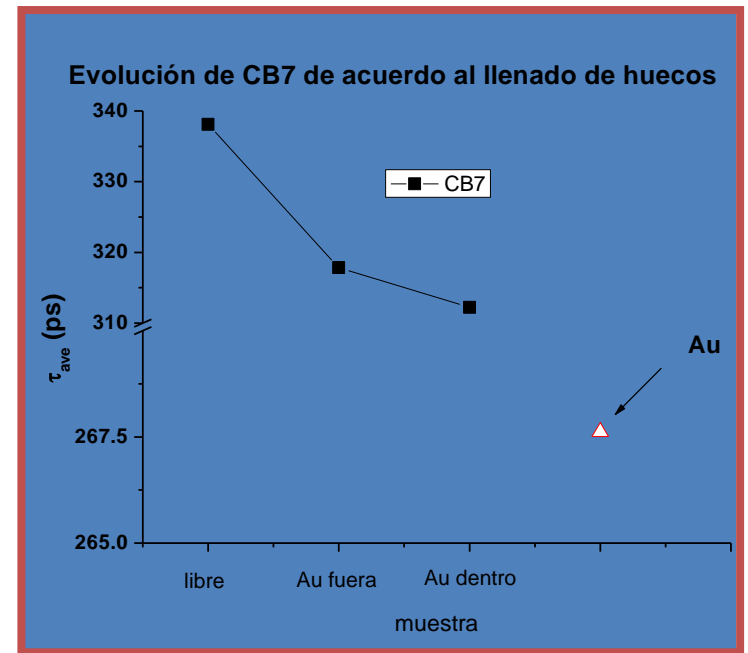
Dependiendo del número de unidades de glycoluril las dimensiones del hueco interno de la cápsula orgánica varía.



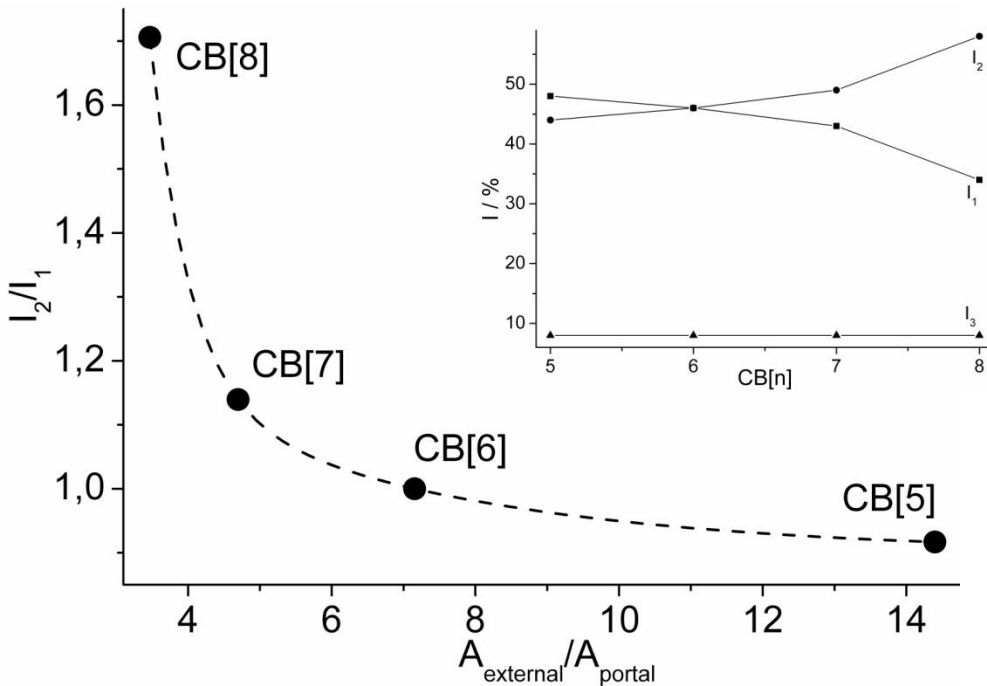
Aplicaciones: Determinación de voids



□ τ₃ información del tamaño del hueco



□ τ_prom llenado del hueco



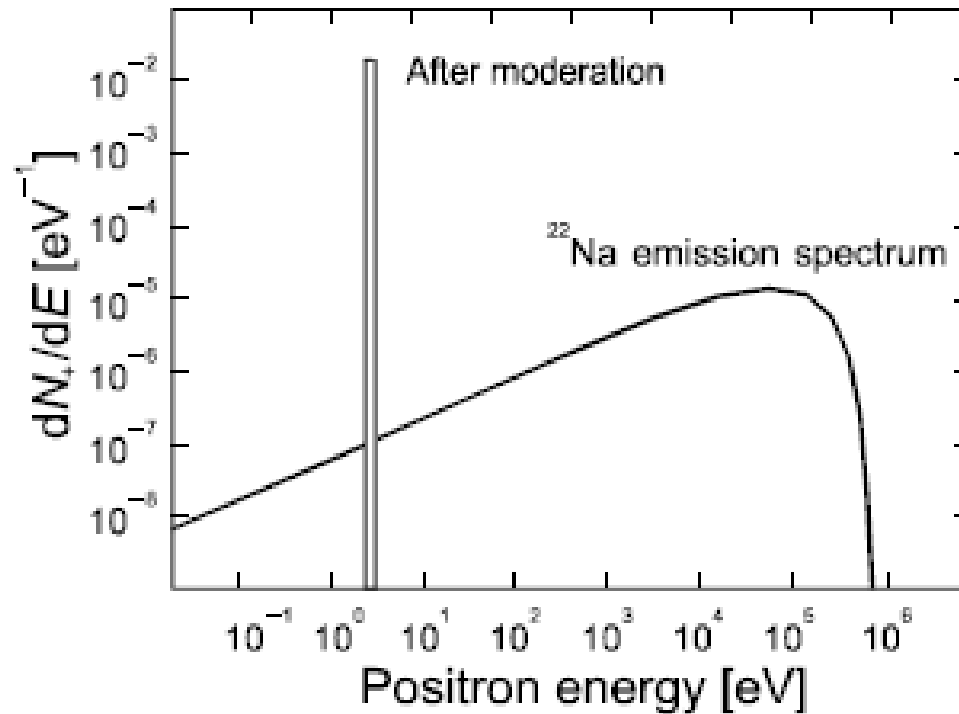
Cálculos ab-initio

- ❑ Teoría de la funcional densidad (DFT, Density Functional Theory)
- ❑ Program MIKA: Multigrid Instead of the K-spAce)
- ❑ La densidad electrónica se aproxima por una superposición de densidades electrónicas de átomos libres (ATSUP).
- ❑ Otras aproximaciones

Se aplicó a semiconductores II-VI. Buen acuerdo entre resultados experimentales y cálculos.

Haz de positrones lentos

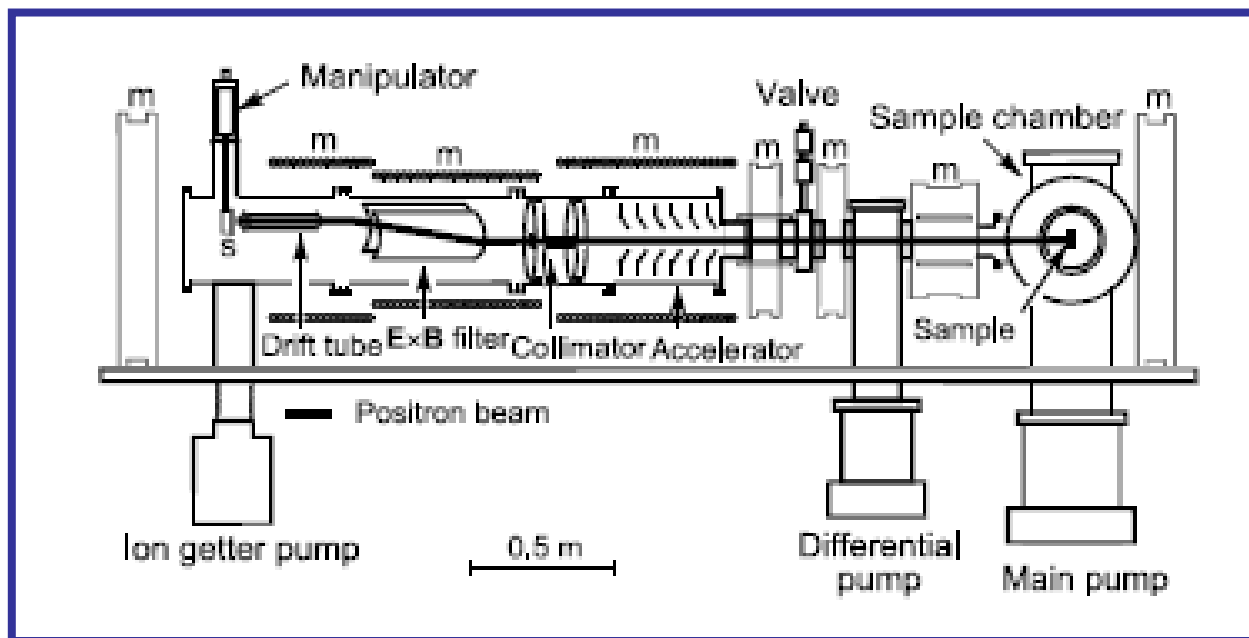
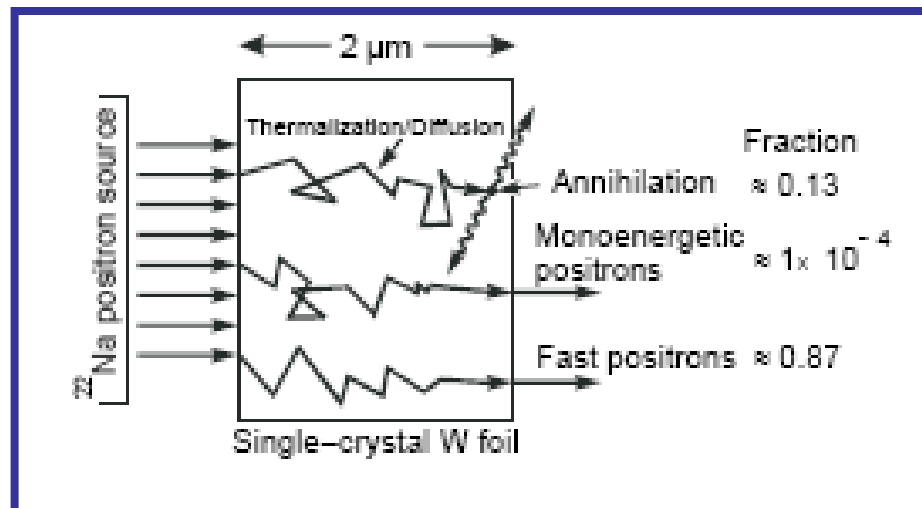
Espectro de emisión de energía de una fuente de ^{22}Na .



Una lámina delgada de tungsteno produce una distribución centrada en 3 eV.

Haz de positrones lentos

Permiten estudios en láminas delgadas.

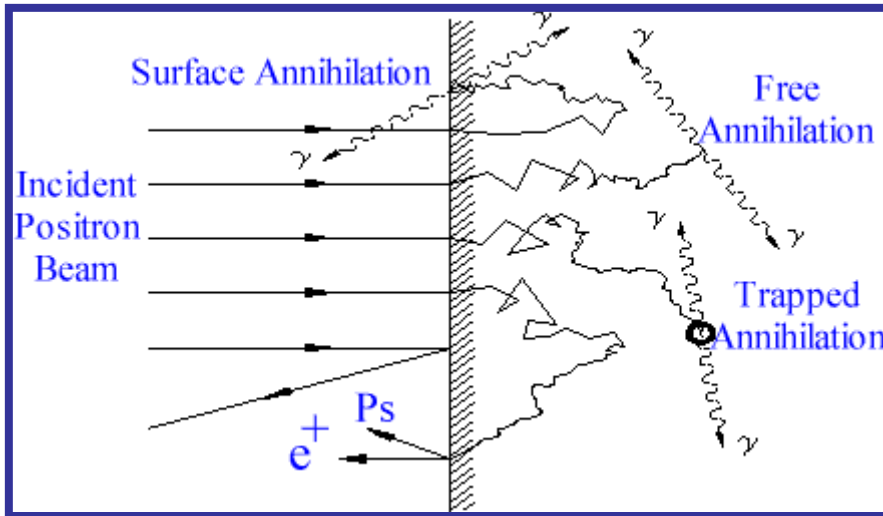


Sistema de haz de positrones lentos guiados magnéticamente en la Martin Luther University Halle-Wittenberg.

Haz de positrones lentos

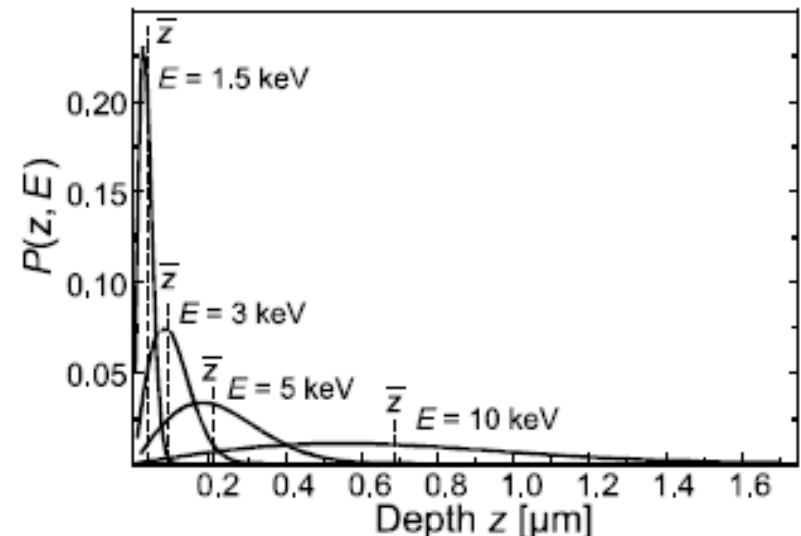
Perfil de defectos como función de la penetración z en el material

$$P(z, E) = \frac{mz^{m-1}}{z_0^m} \exp\left[-\left(\frac{z}{z_0}\right)^m\right] \quad \text{with} \quad z_0 = \frac{AE^r}{\rho\Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right)}$$



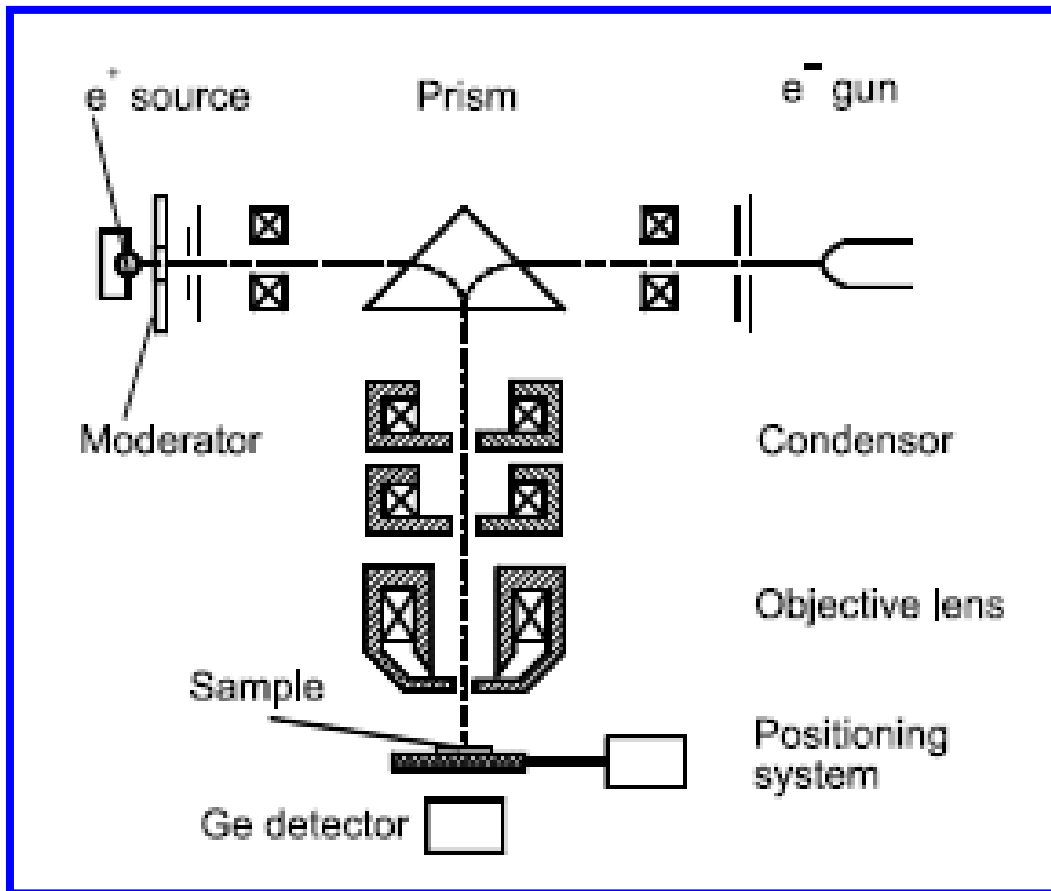
Perfil de Makhof.

Segunda ley de Fick de la difusión. Métodos MonteCarlo.



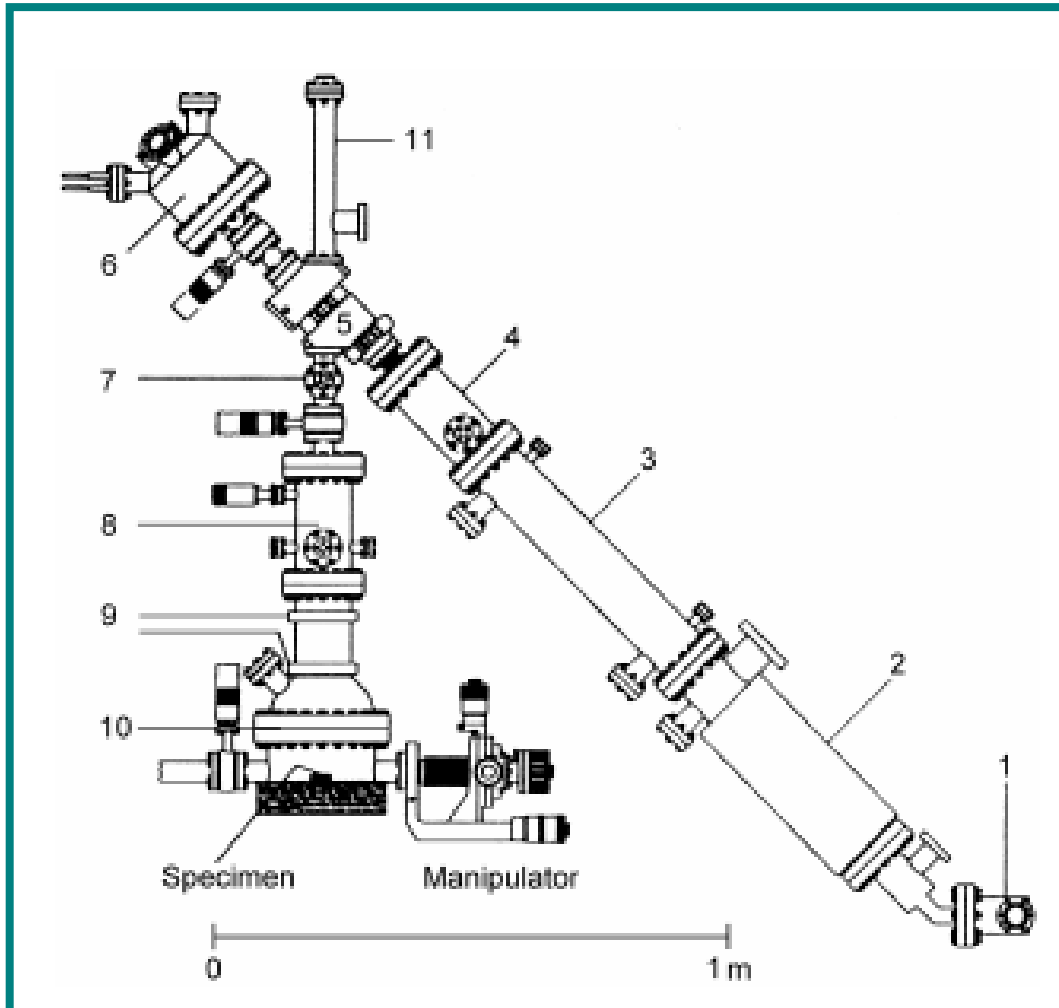
Microscopía de barrido de positrones

Combinación de un SEM y una microsonda de e^+ , Bonn, 1997.



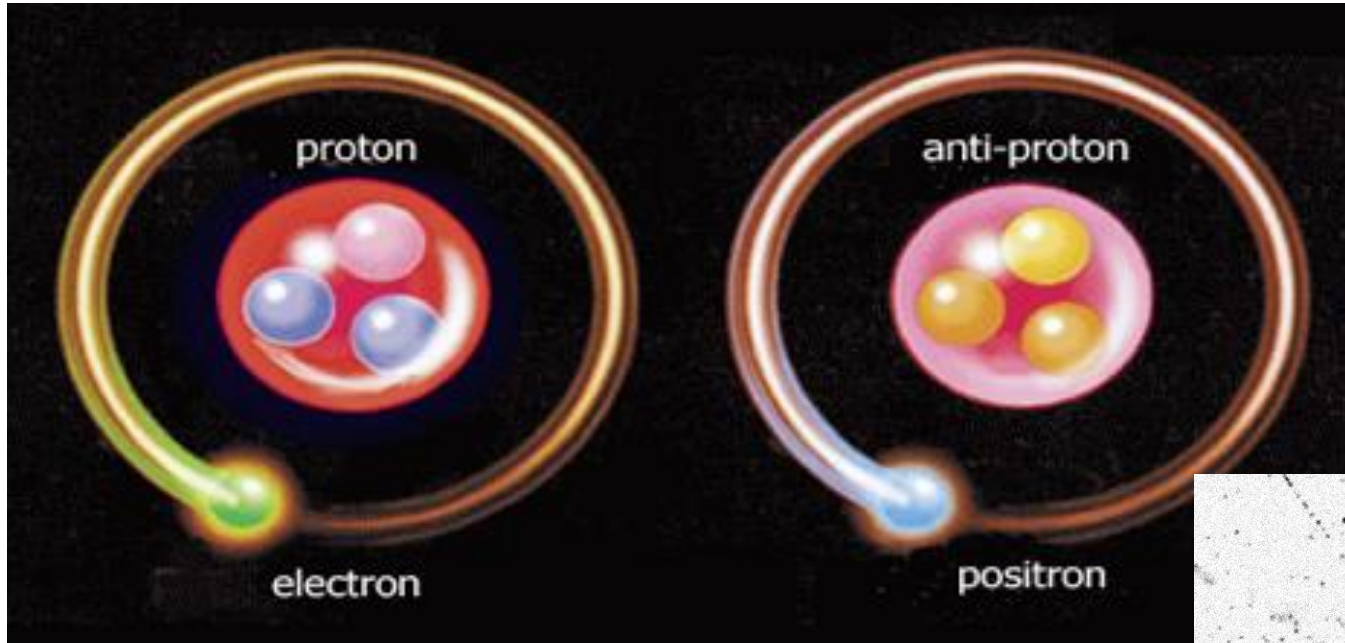
Microscopía de barrido de positrones

Scanning Positron
Microscope, Munich, 1997.

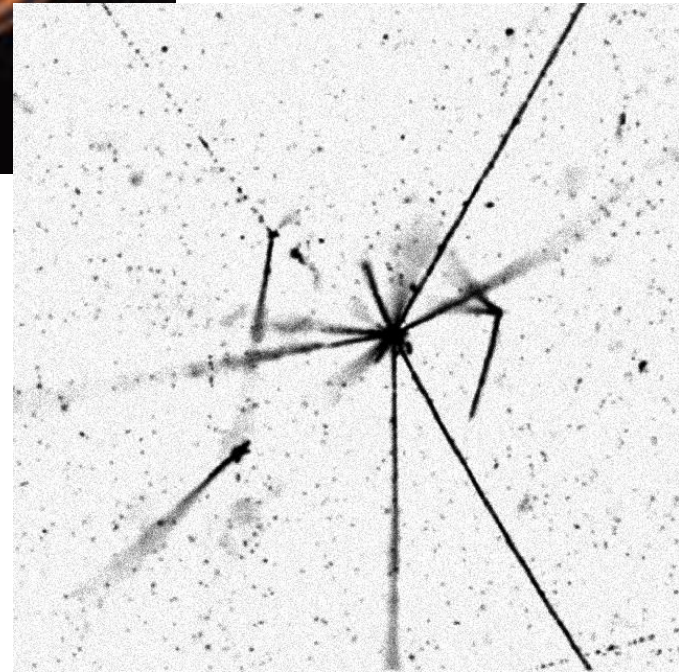


¿Cae la antimateria?

Colaboración AEGIS en el CERN, medir la aceleración de la gravedad en la antimateria.



Medir g con antihidrógeno



Aplicaciones: Medicina, diagnóstico por imágenes

Tomografía por emisión de positrones (PET)

Equipos multidisciplinares:

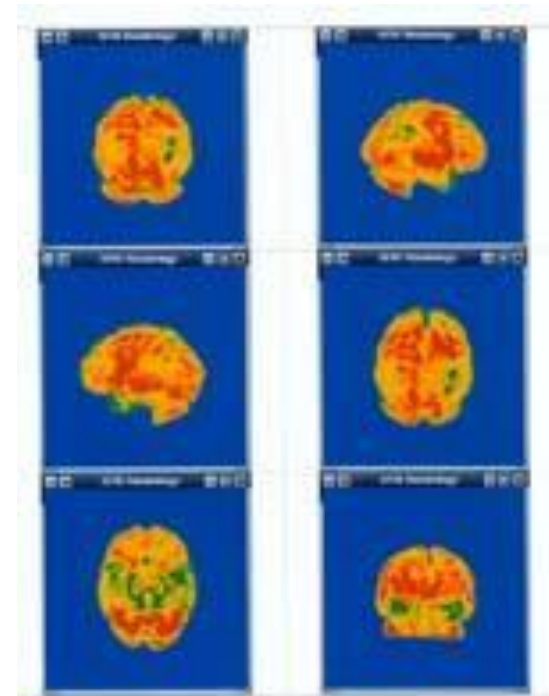
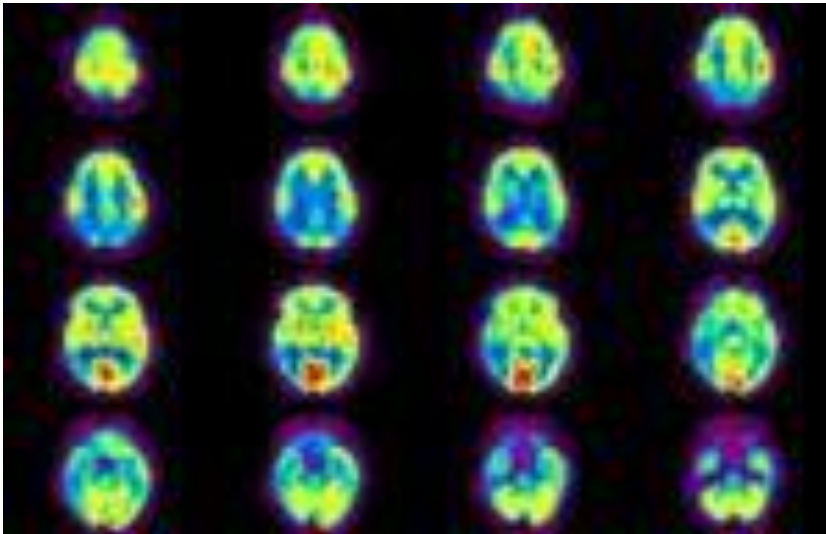
Físicos

Médicos

Físicos médicos

Químicos

Bioquímicos, etc



Suma importancia, tratamiento de imágenes