

Capítulo N°3

Método experimental

3-1 Medición de la correlación angular

Como hemos analizado en los Capítulos 1 y 2, la introducción de una sonda o una impureza radiactiva en un sólido nos permite determinar características del cristal a partir de la medición de la interacción hiperfina entre el núcleo de la sonda y el campo cristalino del sólido.

En detalle, el ^{181}Hf decae a un estado metaestable de 17.8 μs de vida media por emisión β^- , y posteriormente al ^{181}Ta vía una emisión consecutiva de dos rayos gamma (γ_1 y γ_2), es decir que desde que el ^{181}Hf se encuentra en el estado metaestable hasta decaer a ^{181}Ta , pasa por tres estados nucleares: un estado inicial I_i , uno intermedio I (de momento cuadrupolar Q y vida media λ) y un estado final I_f , entonces el gradiente de campo eléctrico GCE del campo extranuclear interactúa con el momento cuadrupolar eléctrico nuclear Q del estado intermedio I. Esto se conoce como interacción cuadrupolar eléctrica y es la herramienta física que utilizamos para caracterizar el cristal en estudio. Cabe aclarar que solo se considera la interacción cuadrupolar eléctrica puesto que la interacción dipolar magnética es varios órdenes de magnitud menor en un material paramagnético.

Cuantitativamente, para determinar dicha interacción es necesario determinar la correlación angular entre los dos γ emitidos que es perturbada por el GCE. En la expresión (1.12), la función de correlación angular $W(\vartheta, t)$ quedó expresada en función del factor de perturbación monocristalino $G(\vartheta, t)$, el cual contenía toda la información cuadrupolar eléctrica, de modo que este factor es lo que queremos determinar en el experimento. Esto se logra midiendo el número de coincidencias γ_1 - γ_2 como función del tiempo t que transcurre desde que se detecta γ_1 hasta que se detecta γ_2 en dos posiciones diferentes, en nuestro caso los detectores están a $\vartheta = 90$ y 180° . Definiremos coincidencia

$C^{\text{exp}}(\vartheta, t)$ a la detección de γ_1 en el detector 1 en coincidencia con la detección de γ_2 en el detector 2 (un tiempo t posterior), ambos detectores formando un ángulo ϑ :

$$C^{\text{exp}}(\vartheta, t) = AP_1P_2\varepsilon_1\varepsilon_2\varepsilon_c W^{\text{exp}}(\vartheta, t)e^{-t/\lambda} + C^A, \quad (3.1)$$

donde A es la actividad de la muestra, P_1 es la probabilidad de emisión de γ_1 por cada desintegración del núcleo sonda, P_2 es la probabilidad de emisión de γ_2 habiéndose emitido γ_1 por cada desintegración, ε_1 y ε_2 son las eficiencias absolutas de los cristales para detectar γ_1 y γ_2 , respectivamente, ε_c es la eficiencia del circuito de coincidencias y λ es la vida media del estado intermedio de la cascada γ - γ . Las coincidencias accidentales C^A son aquellas en las que γ_1 y γ_2 provienen de diferentes núcleos, dichas coincidencias son proporcionales al cuadrado de la actividad de la muestra y a la resolución temporal del equipo. En la Figura 3.1 se muestra a modo de ejemplo, un espectro de coincidencias típico, las cuentas a la izquierda del máximo son las coincidencias accidentales, las que se deben descontar para determinar las coincidencias reales.

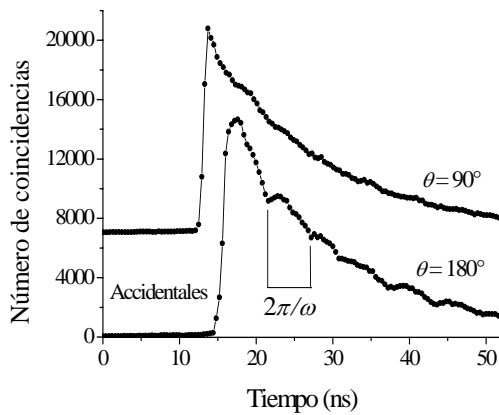


Figura 3.1: Espectros de coincidencias γ - γ para $\vartheta = 90^\circ$ y $\vartheta = 180^\circ$. Los espectros corresponden a ^{181}Ta en $\text{C-Ho}_2\text{O}_3$.

La función de correlación angular perturbada $W^{\text{exp}}(\vartheta, t)$ se determina a partir de la convolución temporal de la función de correlación perturbada teórica $W(\vartheta, t)$, cuya forma explícita se dedujo en la expresión (1.12), con la resolución temporal finita $r(t-t')$ del sistema analizador y el decaimiento exponencial $e^{-t/\lambda}$ del estado intermedio nuclear I:

$$W(\vartheta, t)^{\text{exp}} = \frac{\int_0^\infty r(t-t')W(\vartheta, t')e^{-t'/\lambda} dt'}{\int_0^\infty r(t-t')e^{-t'/\lambda} dt'} \quad (3.2)$$

De este modo, para la medida experimental de la correlación angular perturbada al tiempo t se tiene en cuenta la naturaleza probabilística del proceso a partir del factor de desintegración y el tiempo finito de detección del sistema analizador por medio de su resolución temporal. Teniendo en cuenta que la correlación solo depende del tiempo a través del factor de perturbación $G(\vartheta, t)$, la expresión (3.2) se puede escribir como:

$$W(\vartheta, t)^{\text{exp}} = 1 + A_{22}^{\text{exp}} \frac{\int_0^{\infty} r(t-t') G(\vartheta, t') e^{-\frac{t'}{\lambda}} dt'}{\int_0^{\infty} r(t-t') e^{-\frac{t'}{\lambda}} dt'} = 1 + A_{22}^{\text{exp}} G^{\text{exp}}(\vartheta, t) \quad (3.3)$$

Para determinar experimentalmente la resolución temporal del equipo $r(t-t')$ se mide la respuesta temporal frente a una excitación tipo delta de dirac $\delta(t)$. Esto se logra a partir de la medición del decaimiento β^+ del ^{22}Na , en dicho decaimiento el positrón se aniquila con un electrón de la red, y por conservación del momento lineal y la energía se emiten dos gamma de 511 keV a 180° [Leo, 1994]. En la Figura 3.2 se esquematiza dicho decaimiento:

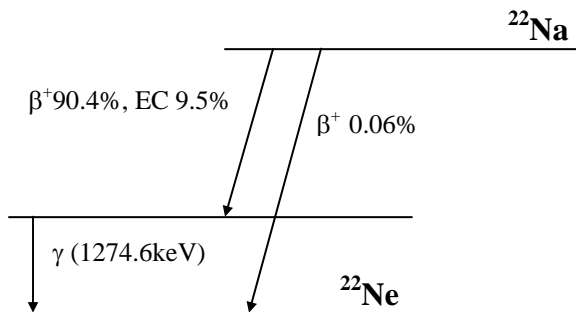


Figura 3.2: Esquema del decaimiento radiactivo del ^{22}Na .

En la Figura 3.3 se muestra el espectro de coincidencias del aniquilamiento entre el e^- y el e^+ , el tiempo de resolución del equipo experimental $2\tau_{\text{res}}$ es el ancho a mitad de altura.

Para determinar $G(\vartheta, t)$ se miden las coincidencias en dos posiciones diferentes de los detectores, esto es, para dos ángulos ϑ distintos, de este modo la expresión (3.1) para $C^{\text{exp}}(\vartheta, t)$ da un sistema de dos ecuaciones con dos incógnitas (C^{A} y $W^{\text{exp}}(\vartheta, t)$). Comúnmente se eligen las posiciones $\vartheta = 90$ y 180° debido a que la distribución angular del patrón de radiación del núcleo presenta mayor diferencia de intensidad relativa entre estas dos posiciones.

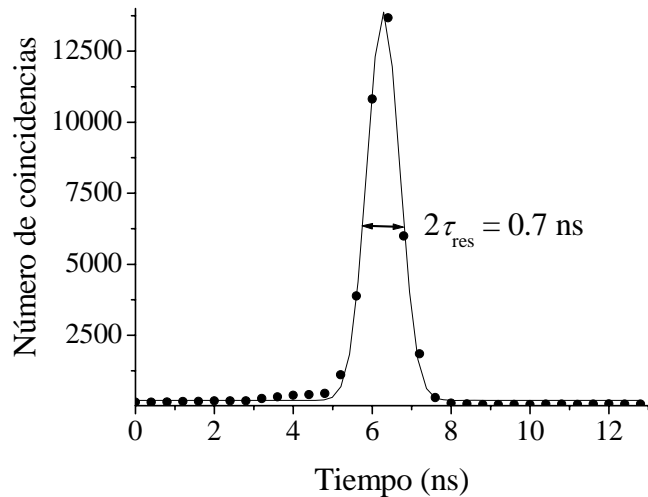


Figura 3.3: Resolución temporal de nuestro equipo. El ajuste se hizo con una función gaussiana

Se define la “relación de asimetría” o “espectro de precesión de espín” o espectro PAC $R(t)$ como:

$$R(t) = 2 \frac{C(180^\circ, t) - C(90^\circ, t)}{C(180^\circ, t) + 2C(90^\circ, t)}, \quad (3.4)$$

donde definimos:

$$C(\vartheta, t) = C^{\text{exp}}(\vartheta, t) - C^A \quad (3.5)$$

De esta manera, por la forma del $R(t)$, podemos independizarnos de las constantes y del decaimiento exponencial.

En la medición de coincidencias para muestras policristalinas, los términos con $K_1 \neq K_2$ y $N_1 \neq N_2$ se anulan y debido a que A_{44} es despreciable frente a A_{22} , en la función de perturbación (1.13) solo será apreciable el término G_{22} . Entonces, la función de correlación angular se resume a:

$$W(\vartheta, t) = 1 + A_{22}G_{22}(t) = 1 + A_{22}G_{22}^0 P_2 \cos(\vartheta) \quad (3.6)$$

A partir de la forma de $C(\vartheta, t)$ encontrada en el apéndice II, tenemos:

$$R(t) = A_{22}^{\text{exp}} \tilde{G}_{22}^{\text{exp}}(t) \quad (3.7)$$

Esta expresión nos permite obtener $\tilde{G}_{22}^{\text{exp}}(t)$ luego de que hallamos determinado A_{22}^{exp} a partir del espectro de $R(t)$ medido.

Ahora, para el caso de monocristales se deben tener en cuenta todos los términos de (1.13), a partir de

$$W(\vartheta, t) = 1 + A_{22}G(\vartheta, t) \quad (1.12):$$

Se puede ver en el apéndice II, que el espectro $R(t)$ queda en función de un factor de perturbación efectivo $G^{\text{exp,ef}}(t)$:

$$R(t) \cong A_{22}^{\text{exp}} G^{\text{exp,ef}}(t) \quad , \quad (3.8)$$

donde dicho factor efectivo se determina a partir del factor de perturbación experimental $G^{\text{exp}}(\vartheta, t)$ medido para 90° y 180° entre las emisiones de los dos gamma:

$$G^{\text{exp,ef}}(\vartheta, t) = \frac{2}{3} \left[G_{180^\circ}^{\text{exp,ef}}(\vartheta, t) - G_{90^\circ}^{\text{exp,ef}}(\vartheta, t) \right] \quad , \quad (3.9)$$

y el factor experimental $G^{\text{exp,ef}}(\vartheta, t)$ es el deducido en la expresión (1.15):

$$G^{\text{exp,ef}}(\vartheta, t) = \sum_{n=0}^3 S_{Kn}^{\text{ef}}(\vartheta, \eta) \cos(\omega_n t) \quad (3.10)$$

3-2 Tratamiento de datos

El resultado de un experimento PAC es un conjunto de ocho espectros de coincidencias $C_{ij}(\vartheta, t)$, de los cuales cuatro se obtienen con los detectores a 180° entre sí y los otros cuatro a 90° entre ellos. C_{ij} representa el número de coincidencias reales obtenidas a partir de detectar γ_1 en el detector i y coincidentemente, γ_2 en el detector j , con las coincidencias accidentales ya descontadas. A partir de estos espectros individuales C_{ij} se obtienen los espectros totales a 90° y 180° :

$$C(180^\circ, t) = \left[C_{13}(t) + C_{31}(t) \right]^{\frac{1}{2}} \left[C_{24}(t) + C_{42}(t) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3.11)$$

$$C(90^\circ, t) = \left[C_{12}(t) + C_{21}(t) \right]^{\frac{1}{2}} \left[C_{34}(t) + C_{43}(t) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3.12)$$

Los espectros C_{ij} y C_{ji} son equivalentes ya que provienen del mismo par de detectores, y entonces a partir de (3.11) y (3.12) podemos reconstruir el espectro $R(t)$ de (3.4):

$$R(t) = 2 \frac{C(180^\circ, t) - C(90^\circ, t)}{C(180^\circ, t) + 2C(90^\circ, t)}$$

A partir de la forma presentada para el espectro $R(t)$ en la sección 3-1, expresión (3.7) para policristales y expresión (3.8) para monocristales (deducidas en el apéndice II), tenemos:

$$R(t) = A_{22}^{\text{exp}} G_{22}^{\text{exp}}(t) = A_{22}^{\text{exp}} \sum_{n=0}^3 S_{2n}(\eta) \cos(\omega_n t) \quad (\text{policristal}) \quad (3.13)$$

$$R(t) \cong A_{22}^{\text{exp}} G^{\text{exp, ef}}(\mathcal{G}, t) = A_{22}^{\text{exp}} \sum_{n=0}^3 S_{Kn}^{\text{ef}}(\mathcal{G}, \eta) \cos(\omega_n t) \quad (\text{monocristal}) \quad (3.14)$$

Y a partir de (3.9), tenemos:

$$S_{Kn}^{\text{ef}}(\mathcal{G}, \eta) = \frac{2}{3} \left[S_{Kn}^{180^\circ}(\mathcal{G}, \eta) - S_{Kn}^{90^\circ}(\mathcal{G}, \eta) \right] \quad , \quad (3.15)$$

donde se hace explícita la dependencia de los S_{Kn} con el tensor GCE y con las direcciones de emisión \vec{k}_1 y \vec{k}_2 , a través de η y θ , respectivamente.

Debido a que (3.14) tiene la misma forma funcional que (3.13), podemos utilizar el programa TDPAC [Ayala, 1994] comúnmente utilizado para analizar medidas PAC de policristales, para analizar las medidas de nuestro monocristal $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Para calcular los parámetros ω_Q , η , δ y f_i , dicho programa realiza un ajuste por cuadrados mínimos a partir de valores iniciales dados de los mismos parámetros, de forma tal de minimizar la diferencia entre el espectro $R(t)$ teórico y el experimental. La precisión del ajuste se verifica a partir del valor de χ^2 [Leo, 1994], incorporado en dicho programa. Y además, proporciona la transformada de Fourier de $R(t)$, dicha transformada brinda información

acerca de η y de la orientación de las componentes principales del GCE en el caso de monocristales.

Para el caso de policristales, para un dado valor del parámetro η existe una única cuaterna fija de los parámetros S_{2n} . En cambio para monocristales, debido a que los $S_{Kn}(\mathcal{G}, \eta)$ dependen de la orientación de la muestra respecto del sistema de detectores, los coeficientes tendrán un grado de libertad más comparado con los de policristales. Y como a priori, no se conoce la orientación de los ejes principales del tensor GCE respecto de los detectores, en el programa TDPAC se los deja libres para que dicha cuaterna varíe de modo de minimizar χ^2 , con la restricción de que sumen a uno. El programa ajusta los $S_{2n}^{libr}(\mathcal{G}, \eta)$ por lo que:

$$R(t) = A_{22} \sum_{n=0}^3 S_{2n}^{libr}(\mathcal{G}, \eta) \cos(\omega_n t) \quad (3.16)$$

Esto se debe identificar con la ecuación (3.13):

$$R(t) \cong A_{22}^{exp} \sum_{n=0}^3 S_{Kn}^{eff}(\theta, \eta) \cos(\omega_n t)$$

Una vez determinados los $S_{2n}^{libr}(\mathcal{G}, \eta)$ con el programa TDPAC, se los compara con los calculados por el programa SKNTA, el cual determina cada cuaterna para cada orientación relativa entre el GCE y el sistema de laboratorio. Conociendo la orientación del cristal respecto a los detectores se puede concluir, vía la mejor comparación entre los coeficientes calculados y medidos, cual es la orientación de los ejes principales respecto de los ejes cristalinos.

El programa SKNTA calcula los $S_{Kn}^{eff}(\theta, \eta)$ a partir de la expresión (3.15) para cada orientación del GCE respecto de los detectores y para cada η .

$$S_{Kn}^{eff}(\theta, \eta) = \frac{2}{3} \left[S_{Kn}^{180^\circ}(\theta, \eta) - S_{Kn}^{90^\circ}(\theta, \eta) \right] \quad , \quad (3.17)$$

donde $S_{Kn}^{180^\circ}(\theta, \eta)$ es el promedio de las dos posibles configuraciones no equivalentes con los detectores a 180° entre si, $S_{Kn}^{90^\circ}(\theta, \eta)$ el promedio para los detectores a 90° , y además, se explicita la dependencia con θ , este ángulo es función de la orientación de los ejes principales del tensor respecto de los detectores, en la deducción se utiliza el ángulo ϑ que representa el ángulo entre las direcciones de emisión es por esto que para los S_{Kn}^{eff} calculados con el programa SKNTA usamos θ en lugar de ϑ . En la Figura 3.4 se esquematiza la geometría utilizada para el equipo de cuatro detectores y la forma explícita de dichos promedios.

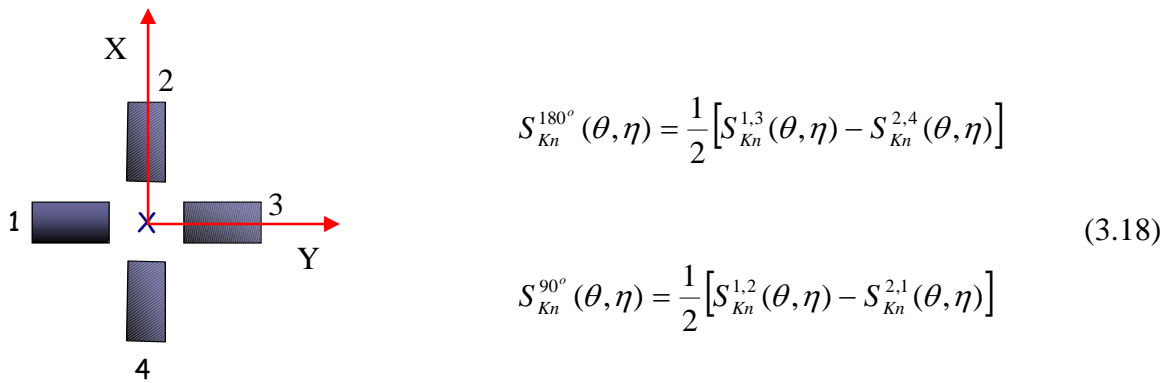


Figura 3.4: Esquema del sistema de cuatro detectores utilizado en el experimento. Promedios de los S_{Kn} para detecciones a 90° y 180° de configuraciones no equivalentes.

Si observamos la expresión (1.16) por un momento, veremos que los S_{Kn} se expresan en función de $S_{22}^n, S_{24}^n, S_{42}^n, S_{44}^n$ como:

$$S_{Kn}(\theta, \eta) = S_{22}^n(\theta, \eta) + \frac{A_{24}}{A_{22}} S_{24}^n(\theta, \eta) + \frac{A_{42}}{A_{22}} S_{42}^n(\theta, \eta) + \frac{A_{44}}{A_{22}} S_{44}^n(\theta, \eta) \quad (3.19)$$

Para la sonda utilizada ^{181}Ta , las anisotropías son (para medidas de los cristales de los detectores de 51mm x 51mm y posicionados a 5cm de la muestra):

$$\begin{aligned}
A_{22} &= -0.227_3 \\
A_{24} &= -0.036 \\
A_{42} &= -0.177 \\
A_{44} &= -0.028_4
\end{aligned}$$

y como el término de mayor peso en la sumatoria de (3.18) es A_{42}/A_{22} , este es el término que tiene en cuenta el programa SKNTA para calcular los coeficientes $S_{Kn}^{eff}(\theta, \eta)$, esto es:

$$S_{Kn}(\theta, \eta) = S_{22}^n(\theta, \eta) + \frac{A_{42}}{A_{22}} S_{42}^n(\theta, \eta) \quad (3.20)$$

Como ya hemos dicho, el programa SKNTA calcula los $S_{Kn}^{eff}(\theta, \eta)$ en función de la orientación de los ejes principales respecto del sistema de detectores. Comparando estos resultados con los puntos experimentales para varias orientaciones del cristal (es decir del GCE) respecto del laboratorio se obtiene la orientación del GCE en el sistema de ejes cristalinos.

Este programa ha sido modificado [Darriba, 2004] para utilizarlo con la sonda ^{181}Ta , puesto que con anterioridad se utilizaba la sonda ^{111}Cd que posee diferentes valores de anisotropía.

Por lo tanto, podemos analizar las coincidencias $\gamma_1\text{-}\gamma_2$ provenientes de un monocristal con un programa que analiza espectros $R(t)$ con una expresión para policristales. En la Figura 3.5 se muestran simulaciones de espectros $R(t)$ de una muestra policristalina con $I = 5/2$.

La anisotropía A_{22} , para un dado arreglo experimental puede determinarse a partir de su correspondiente espectro $R(t)$, midiendo la correlación angular en un compuesto que presente un GCE nulo en la posición del núcleo sonda, el cual se reduce para este caso particular a una recta de pendiente nula, cuyo valor es A_{22} , como muestra la Figura 3.5 izquierda (a).

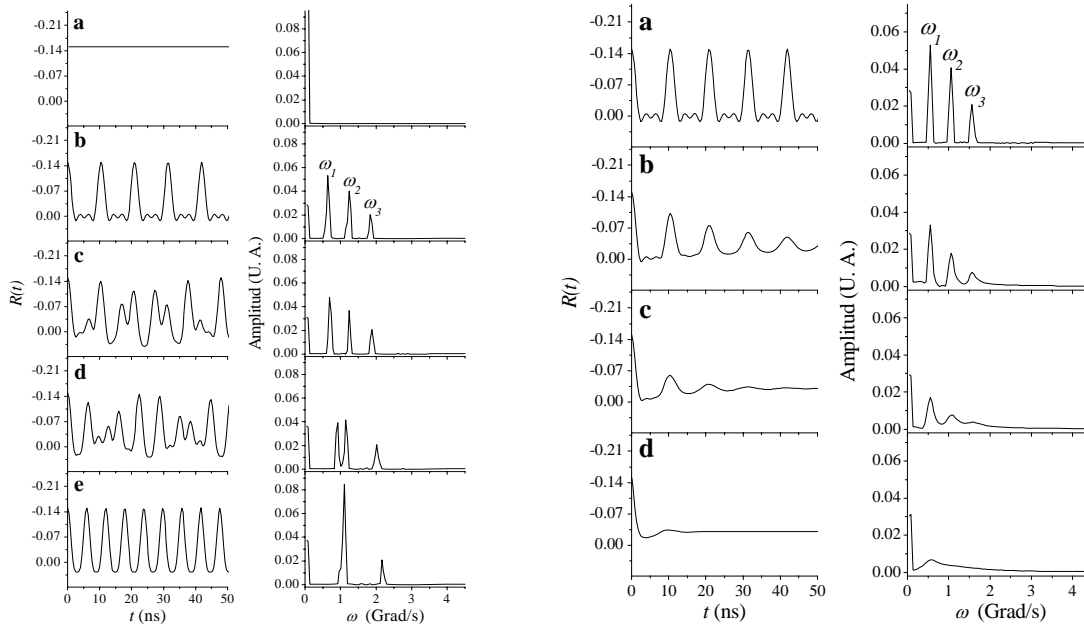


Figura 3.5: Espectros $R(t)$ simulados para una única interacción caracterizada por: Izquierda: a) GCE nulo; b) $\eta = 0$; c) $\eta = 0.3$; d) $\eta = 0.7$; e) $\eta = 1$. Para los casos b)-e) se consideró $\omega_Q = 100$ Mrad/s. Derecha: a) $\delta = 0$; b) $\delta = 0.05$; c) $\delta = 0.10$; d) $\delta = 0.15$. En todos los casos se consideró $\omega_0 = 100$ Mrad/s y $\eta = 0$.

Cabe aclarar que en vistas de llegar a una expresión que nos relacione el espectro $R(t)$ con el factor de perturbación $G_{22}^0(t)$ hicimos varias suposiciones como por ejemplo haber considerado la muestra y los cristales de los detectores como puntuales, suponer que el sólido real constituye una red cristalina perfecta o considerar que las sondas radiactivas solo ocupan sitios atómicos con los mismos entornos cristalográficos en cada sitio (esto es lo que llamamos sitios equivalentes). Debido a tantas idealizaciones es necesario introducir en el factor de perturbación $G_{22}^0(t)$ determinadas modificaciones que nos acerquen más al factor real:

- Como dijimos arriba, para el cálculo de la función de correlación angular $W(\vartheta, t)$ hemos supuesto puntuales los cristales centelladores de los detectores y la fuente radiactiva. Su tamaño finito y por ende la abertura de ángulo sólido no infinitesimal subtendida desde la muestra hasta los detectores provoca la atenuación de la anisotropía $A_{K_1 K_2}$, por lo que $W^{\text{exp}}(\vartheta, t)$ tendrá una amplitud

- menor que la teórica. Para reducir estas anomalías se utilizan fuentes lo más puntuales posible y se trata de reducir la abertura del ángulo sólido aumentando la distancia muestra-detector, pero teniendo en cuenta que el número de eventos detectados decrece con el cuadrado de dicha distancia.
- Un cristal real no puede considerarse como una red cristalina perfecta sin imperfecciones como ser impurezas, dislocaciones de planos, defectos puntuales como vacancias, átomos en los intersticios, daños debidos a la radiación.. Estas imperfecciones producen una distribución finita δ en las frecuencias cuadrupolares ω_n alrededor de sus valores medios. Dicha distribución puede suponerse una distribución gaussiana o lorentziana $P(\omega_n)$. En la figura 3.8 derecha se aprecia como estas distribuciones atenúan las oscilaciones del espectro $R(t)$. Por lo tanto, el factor de perturbación teórico debe ser pesado con las distribuciones $P(\omega_n)$ en la forma:

$$\mathcal{G}_{22}^{\omega_0}(t) \rightarrow \int_{-\infty}^{\infty} P(\omega) \mathcal{G}_{22}^{\omega}(t) d\omega \quad (3.21)$$

- Las sondas pueden ubicarse en sitios con entornos cristalográficos distintos, esto es, en sitios no equivalentes, aún para el caso de una red cristalina perfecta. Entonces, el factor de perturbación $\mathcal{G}_{22}^{\omega_0}(t)$ más general que podamos tener será una combinación lineal de la forma: $\mathcal{G}_{22}^{\omega_0}(t) = f_0 + \sum_i f_i \mathcal{G}_{22}^{\omega_0}(t)$ donde f_i es la fracción de núcleos sonda que experimentan una interacción hiperfina caracterizada por los parámetros ω_{Qi} y η_i en el sitio inequivalente i y f_0 es la fracción de núcleos sonda que experimenta un GCE nulo. Dichas fracciones deben cumplir $f_0 + \sum_i f_i = 1$
- Suponiendo que la respuesta temporal del equipo experimental (ver figura 3.3) es gaussiana, teniendo en cuenta la aproximación de la convolución de $W(\mathcal{Q},t)$ con dicha respuesta, y que una función gaussiana y su transformada de Fourier tiene el mismo aspecto funcional, nos lleva a introducir factores reales del tipo:

$$S_{2n}^{real} = S_{2n}(\eta) \cdot e^{-\frac{1}{2}\tau_{res}^2 \omega_n^2} \quad (3.22)$$

En la Figura 3.6 se muestra como varía el espectro $R(t)$ con la resolución temporal, a través de dos espectros $R(t)$ para la misma muestra, K_2ZrF_6 dopado con ^{181}Ta , medida con dos detectores de resolución temporal diferente, claramente puede apreciarse que las oscilaciones del espectro $R(t)$ tienden a desaparecer cuanto menor sea la resolución temporal.

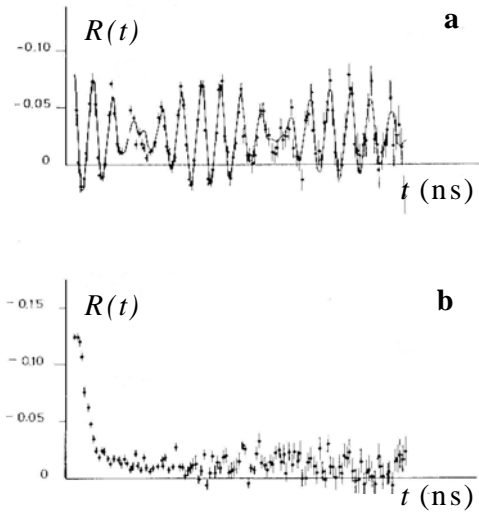


Figura 3.6: Espectros $R(t)$ de ^{181}Ta en K_2ZrF_6 tomados con equipos con diferente resolución temporal: a) CsF ($\sim 0,8$ ns); b) NaI(Tl) (~ 3 ns) [Martinez, 1981].

Por lo tanto, considerando todas las modificaciones introducidas tendientes a acercar la expresión de $R(t)$ a la mayor realidad posible, dicha expresión queda:

$$R(t) = A_{22}^{\text{exp}} \left(f_0 + \sum_i f_i G_{22}^i(t) \right) \quad (3.23)$$

El factor de perturbación para cada sitio inequivalente i tiene la forma:

$$G_{22}^i(t) = \sum_{n=0}^3 S_{2n}^{ireal}(\eta^i) \cdot \cos(\omega_n^i t) \cdot e^{-(\omega_n^i \delta_0^i)^p / p} \quad (3.24)$$

El factor exponencial proviene de convolucionar $G_{22}^i(t)$ con la distribución de frecuencias $P(\omega)$. Si dicha distribución es lorentziana ($p=1$), toma la forma:

$$P(\omega) = \frac{\delta}{\pi \left(\delta^2 + \frac{(\langle \omega \rangle - \omega)^2}{\omega^2} \right)}, \quad (3.25)$$

y si es gaussiana ($p=2$), se tiene:

$$P(\omega) = \frac{1}{\delta \sqrt{2\pi}} \cdot e^{-((\omega)-\omega)^2/2\delta^2} \quad (3.26)$$

3-3 Equipo Experimental

La determinación experimental de $\tilde{G}_{22}(t)$ da como resultado la determinación de los parámetros hiperfinos característicos de la interacción cuadrupolar eléctrica entre el momento cuadrupolar Q del núcleo sonda y el tensor GCE del campo extranuclear del sólido donde dicha sonda se aloja. Por lo visto más arriba, para realizar esta medición indirecta es necesario medir las coincidencias $C(\mathcal{G}, t)$ de la cascada γ - γ del núcleo sonda para dos ángulos distintos. Esto es, medir γ_1 en el detector 1 y, coincidentemente, γ_2 en el detector 2. Dicha medición está caracterizada por la energía de los dos rayos γ_1 y γ_2 , y por la determinación precisa de la diferencia temporal entre la emisión del primer gamma y la del segundo gamma, puesto que de ella depende la precisión en determinar V_{33} y η .

Los detectores están compuestos por cristales centelladores de BaF_2 . La forma de los cristales es de cono truncado con una base de 44 mm de diámetro, una altura de 30 mm, un diámetro en la zona superior de 20 mm y un ángulo cónico de 90° , esto se muestra en la Figura 3.7.

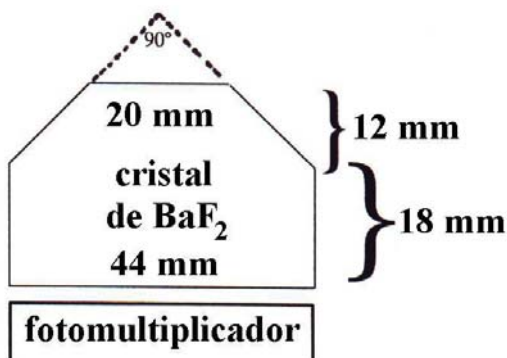


Figura 3.7: geometría de los cristales centelladores cónicos de BaF_2 diseñados especialmente para nuestro equipo PAC.

La cara inferior fue ópticamente pulida para lograr una buena transmisión de los fotones ultravioletas del cristal al tubo fotomultiplicador, las superficies restantes son opacas, lijadas con esmeril y revestidas con cinta de teflón para evitar la transmisión no deseada de luz por dichas caras. Esta forma geométrica de los centelladores mejora la respuesta temporal de los detectores minimizando el tiempo de colección de luz en el cristal [Butz, 1989] Además, pueden situarse a

una distancia de 10 mm de la muestra y detectar en forma eficiente rayos γ con energía de hasta 1 MeV.

En la figura 3.8 se muestra el espectrómetro PAC utilizado el cual consiste en un arreglo experimental de cuatro detectores fijos con una electrónica del tipo rápida-rápida. Las medidas PAC pueden realizarse, en principio, en equipos de dos, tres, cuatro, seis u ocho detectores.

Cuando un rayo γ es detectado por uno de los detectores, éste genera dos pulsos de salida, uno de ánodo y otro de cátodo. El alto del pulso de ánodo es proporcional a la energía del fotón detectado, mientras que el pulso de cátodo es de rápido crecimiento y lleva información de su tiempo de detección. Durante la medida trabajamos con la salida de ánodo, mientras que la de cátodo se la utiliza para seleccionar las energías de los γ 's deseados ("ventaneo"). La información que sale del ánodo de cada detector se divide en dos pulsos, posteriormente cada uno es procesado por un discriminador rápido con ventana (DV).

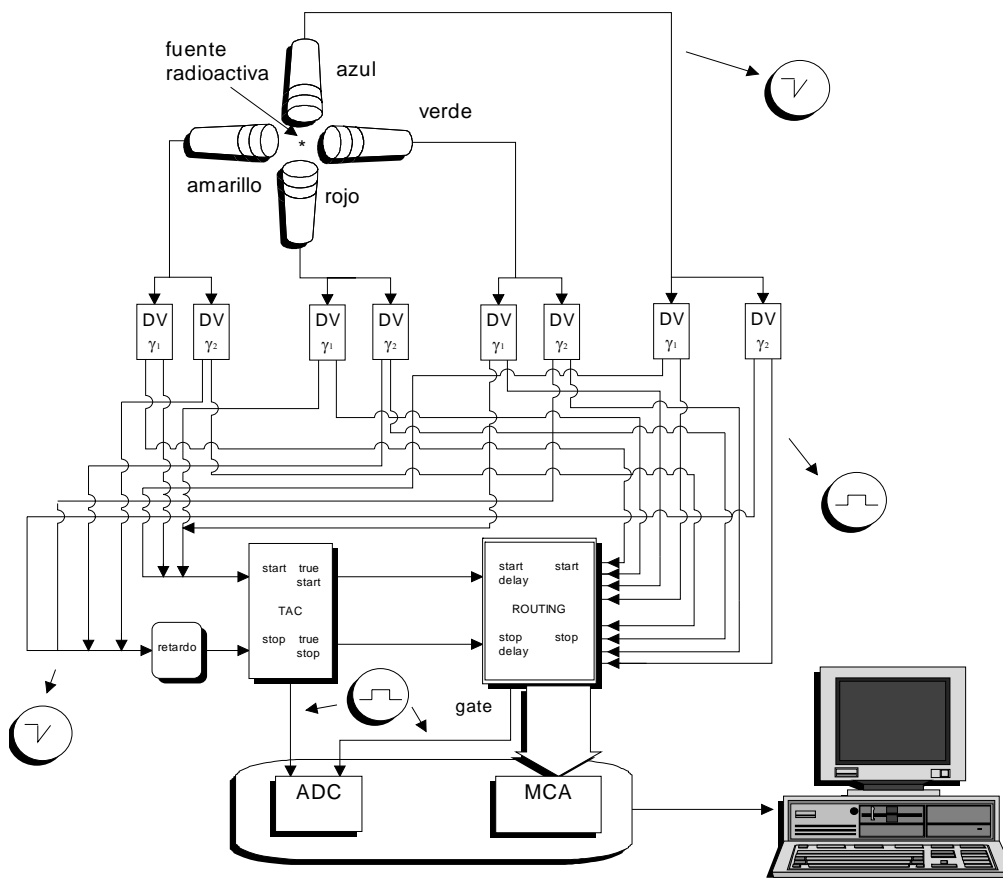


Figura 3.8: esquema del equipo PAC, arreglo de cuatro detectores sobre el mismo plano, electrónica tipo rápida-

Estos módulos permiten seleccionar los pulsos asociados a los rayos γ_1 y γ_2 de la cascada. Al discriminador que selecciona los pulsos de altura correspondiente a γ_1 lo llamaremos “start” y al que selecciona los pulsos de altura que corresponden a γ_2 “stop”, debido a que γ_1 provee la señal de comienzo de la coincidencia y γ_2 el de finalización de la misma. Las ventanas de los 8 discriminadores son seleccionadas antes de realizar las medidas.

Cada vez que arriba un pulso γ_1 (γ_2) a un discriminador “start” (“stop”) genera dos salidas: una positiva, cuadrada y lenta, que va a la unidad de direccionamiento (“routing”); y una negativa rápida. Los pulsos rápidos pasan por un mezclador (“mixer”), el cual funciona básicamente como una compuerta OR, recibiendo los pulsos de los discriminadores y entregando un pulso negativo a la entrada “start” (“stop”) del TAC (“time amplitude converter”) cada vez que arriba un pulso γ_1 (γ_2). De este modo, todas las señales “start” y “stop” rápidas convergen al TAC, aunque las “stop” primero pasan por un retardo fijo, mientras que las señales lentas convergen todas al routing. La función del retardo es correr el tiempo cero del espectro de coincidencias hacia la derecha, para poder registrar las coincidencias accidentales en los canales situados a la izquierda del máximo. De esta forma, restando al espectro experimental las coincidencias accidentales, obtenemos posteriormente el espectro de coincidencias reales.

Los pulsos rápidos ingresan al TAC por las entradas “start input” y “stop input”. A la entrada “start input” llegan las señales provenientes de los discriminadores “start”, y por ende, a la “stop input” las provenientes de los “stop”. El TAC cumple la función de generar pulsos rectangulares cuya altura es proporcional a la diferencia temporal entre la llegada de los pulsos al “start input” y al “stop input”. Cada pulso “start” (“stop”) que llega al TAC produce un pulso de validación “true start” (“true stop”), el cual es enviado al routing para validar, en coincidencias temporal, los pulsos lentos que llegan al mismo, provenientes de los discriminadores. La complejidad de los circuitos electrónicos involucrados en el proceso de coincidencia hace necesaria una sincronización en tiempos entre el “true start” (y el “true stop”) y los pulsos provenientes de los discriminadores γ_1 (γ_2) que llegan al routing. De esta forma, cada vez que se produce una coincidencia validada (de las ocho posibles) el routing da un pulso de compuerta (“gate”).

Las salidas del TAC y del routing, la cual debe ser validada por el TAC, ingresan a un analizador multicanal de altura de pulsos (MCA), la cual, en nuestro equipo consiste de una plaqueta ISA que se halla inserta en una computadora PC-AT 486. Esta plaqueta contiene un convertidor analógico digital (ADC) y una memoria de almacenamiento de datos (RAM) cuya capacidad es de 8192 canales, con 1024 canales para cada uno de los ocho espectros de coincidencias adquiridos simultáneamente.

Cuando se registra una coincidencia en el routing, éste entrega un pulso de compuerta al MCA para habilitar la entrada de los pulsos provenientes del TAC, que contienen la información referida a la diferencia de tiempos entre emisiones sucesivas. Los pulsos digitalizados por el ADC (en presencia del “*gate*” para su validación) son enviados a la memoria RAM y almacenados en canales proporcionales a la altura del pulso, en el octavo de memoria correspondiente a la información provista por el routing sobre el par de detectores que ha intervenido en la coincidencia. De esta manera, se almacenan simultáneamente en el MCA ocho espectros de coincidencias, correspondientes a las ocho posibles combinaciones $\gamma_1 - \gamma_2$ que es capaz de analizar nuestro routing. En este punto es necesario hacer la siguiente aclaración: si bien un espectrómetro PAC de cuatro detectores da lugar a doce posibles espectros de coincidencias (cuatro entre detectores posicionados a 180° y ocho entre detectores a 90°), nuestra unidad de routing está diseñada para procesar ocho pares de coincidencias, obteniendo sólo ocho espectros: cuatro a 180° y cuatro de los ocho posibles a 90° .

Por lo tanto, en nuestro experimento, el resultado de una medida PAC es un conjunto de ocho pares de coincidencias que, montados sobre un umbral constante de coincidencias accidentales, nos dan la curva de decaimiento exponencial caracterizada por la vida media λ del estado intermedio nuclear I de la sonda radiactiva, y como resultado de la interacción cuadrupolar eléctrica entre el momento cuadrupolar Q y el tensor GCE del campo extranuclear, la señal de precesión $A_{22}\tilde{G}_{22}(t)$ estará superpuesta sobre dicho decaimiento exponencial (como muestra la Figura 3.1).