

# Revista cubana de Física

Vol. 26, No. 2A, 2009



Sociedad Cubana de Física  
Facultad de Física, Universidad de La Habana

## Simposio'08 de la Sociedad Cubana de Física

Memorias del "XI Simposio y IX Congreso de la Sociedad Cubana de Física" y del Simposio Internacional "La Física en el 150 Aniversario del nacimiento de Max Planck"	103	Celda solar sensibilizada con estructura de doble capa de TiO <sub>2</sub> nanocristalino. <i>F. Forcade et. al.</i>	161
Noticias	105	Composito nanocristalino novedoso de CuO-TiO <sub>2</sub> : inyección de electrones del CuO al TiO <sub>2</sub> iluminando con luz visible sin voltaje de polarización. <i>E. Vigil et. al.</i>	165
The overcoming of the mechanistic world view in Planck's research around 1900: a comparison with the contributions of Boltzmann, Wien, Rayleigh, Einstein. <i>Angelo Baracca</i>	106	Instalación para medir el lazo de histéresis y las corrientes de conmutación en láminas delgadas de materiales ferroeléctricos. <i>D. Rivero</i>	169
Solar bursts with fine temporal structure. <i>A. Méndez</i>	112	Efecto de la razón Zr/Ti sobre las propiedades de la cerámica PZT modificada con 0.05 mol de estroncio. <i>J. Costa et. al.</i>	174
Influence of defects on cathodoluminescence along ZnTe <sub>x</sub> O <sub>1-x</sub> -ZnO microstructures grown by the vapour-solid technique. <i>A. Iribarren et. al</i>	116	Influencia del desorden cristalino en los espectros Mössbauer del YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3-y</sub> Fe <sub>y</sub> O <sub>7-x</sub> . <i>Y. Abreu et. al.</i>	179
Simulación del efecto del embolismo xilemático sobre la conductividad hidráulica en las plantas. <i>A. Socorro</i>	120	Una experiencia en la elaboración de los trabajos de laboratorio "circuitos RC y RL" con equipos docentes de la R.P.Ch. <i>S. García et. al.</i>	186
Estudio teórico del espectro rovibracional del trímero de Argón. <i>M. Márquez-Mijares et. al</i>	127	Vinculación de las asignaturas de física y diseño a través el desarrollo de productos. <i>A. Berazaín</i>	190
Obtención de radiografías de fantasmas mamográficos de microcalcificaciones y fibrillas empleando un detector de silicio cristalino de microbandas. <i>A. Leyva et. al.</i>	133	Estudio del aporte de electrones y positrones a la distribución de <i>dpa</i> en materiales sólidos. <i>I. Piñera et. al.</i>	193
Criterios físicos para el estudio de la compresión con pérdidas en la imagen médica digital: revisión del tema. <i>J. Paz y M. Pérez</i>	137	Fenómenos del tiempo de fase y la conductancia en el tunelaje de huecos desacoplados. <i>S. Arias y L.Diago.</i>	197
Análisis de las relaciones señal-ruido y contraste-ruido en imágenes de resonancia magnética a tres intensidades de campo magnético. <i>M. Noda et. al.</i>	144	Desarrollo de un modelo teórico para superconductores policristalinos anisótropos utilizando la aproximación del medio efectivo. <i>A. Cruz-García et. al.</i>	203
Estudio monte carlo del acelerador clínico elekta SL 5735 para radiocirugía estereotáxica. <i>W. González et. al.</i>	150	Interacción dipolar magnética en películas ultradelgadas. <i>H. León y E. Estévez.</i>	210
Efectos de la hidroxirea sobre la densidad de los eritrocitos de los pacientes drepanocíticos, empleando la relajación magnética protónica. <i>A. A. Fernández et. al.</i>	156	Ondas acústicas en un fluido viscoso y rotatorio; difracción en una ranura. <i>J. Marín y J. Pardo.</i>	213
		Optimización de los patrones de campo cercano y lejano en láseres de In <sub>x</sub> Ga <sub>1-x</sub> N. <i>J. Martín et. al.</i>	218



La Revista Cubana de Física (*RCF*), publica artículos originales de investigación, revisión y divulgación en el campo de la Física.

**Editor**

Dra. María Sánchez Colina  
Facultad de Física,  
Universidad de la Habana 10400  
San Lázaro y L, Vedado  
Ciudad de la Habana. Cuba  
maruchy@fisica.uh.cu

**Editores asociados**

Dr. Víctor Fajer Ávila  
Dr. Ernesto Altshuler  
Dr. Augusto González  
Dr. Oscar Díaz Rizo  
Dr. Roberto Mulet

**Edición WEB**

Dr. Arnaldo González Arias  
arnaldo@fisica.uh.cu



## Instrucciones a los autores

1. Los manuscritos enviados a la RCF son contribuciones originales que no están bajo la consideración de otra revista. La revista publica artículos de tres categorías (a) de revisión, conciliados previamente con el Consejo Editorial, con una extensión máxima de 10 páginas; (b) de investigación, con un máximo de 6 páginas; (c) de divulgación, con extensión no mayor de 6 páginas. Se aceptan artículos en español e inglés.
2. El manuscrito deberá ajustarse a las instrucciones y formato de la plantilla que se proporciona, a descargar del sitio [www.fisica.uh.cu/biblioteca/revcubfi/index.htm](http://www.fisica.uh.cu/biblioteca/revcubfi/index.htm), usando cualquier versión de Microsoft Office Word. No se aceptan otros formatos. También es posible solicitar el envío de la plantilla por correo electrónico al editor correspondiente.
3. Hay una plantilla para artículos/revisiones y otro para divulgación. **Las instrucciones en el cuerpo de la plantilla se deben leer detenidamente** para evitar retrasos posteriores. *Los manuscritos que no se ajusten a las especificaciones de la plantilla serán devueltos sin iniciar proceso.*
4. El procedimiento de arbitraje consta de un sólo paso. El Comité Editorial, oído el criterio de los árbitros, aceptará o rechazará el artículo de forma definitiva. En caso de aceptación, y de acuerdo al arbitraje, el artículo podrá ser remitido al autor para correcciones.
5. Enviar el manuscrito por correo electrónico a [rcf@fisica.uh.cu](mailto:rcf@fisica.uh.cu). Las figuras en formato .jpg ó .gif, ancho no mayor de 8.0 cm (instrucciones en la plantilla). Posibles excepciones en el tamaño a conciliar con el Consejo Editorial.

*Correo ordinario:*

Editor Revista Cubana de Física  
Facultad de Física  
Universidad de la Habana  
San Lázaro y L, La Habana 10400  
Cuba.

# RCF

## REVISTA CUBANA DE FÍSICA

---

UNIVERSIDAD DE LA HABANA

*Dos números al año*



*Una publicación conjunta de la  
Sociedad Cubana de Física y la  
Facultad de Física de la Universidad de la Habana.*

*San Lázaro y L. Colina Universitaria, Vedado, Ciudad Habana.*

Artículos originales de investigación, revisión y divulgación en inglés y español en el campo de la Física. ISSN: 0253-9268.

*RCF*

## Memorias del XI Simposio y IX Congreso de la Sociedad Cubana de Física y del Simposio Internacional "La Física en el 150 Aniversario del nacimiento de Max Planck"



### *Asistentes al XI Simposio de la SCF y IX Congreso*

El "XI Simposio y IX Congreso de la Sociedad Cubana de Física (SCF)" se celebró en La Habana del 7 al 11 de Julio de 2008 con más de 200 participantes de 6 países. En paralelo se desarrolló el Simposio Internacional "La Física en el 150 Aniversario del nacimiento de Max Planck". Estos eventos tuvieron la particular significación de que se realizaron en el año del 30 aniversario de la fundación de la SCF. En el presente número se recogen algunos de los trabajos presentados.

La Sociedad Cubana de Física contó para la realización de estos eventos y la publicación de estas memorias con el co- patrocínio de: i) Centro Latinoamericano de Física; ii) Universidad de La Habana, iii) Universidad Autónoma de Madrid; iv) The Institute of Physics y v) Instituto Max Planck de Historia de la Ciencia.

Se realizaron entre ambos eventos 20 conferencias plenarias de los más variados temas actuales de la física y algunas relacionadas con temas históricos sobre la influencia de Max Planck y los inicios de la física cuántica. Aparte de especialistas de Alemania, España

e Italia, las conferencias fueron leídas por algunos de los físicos cubanos más relevantes. Una interesante y polémica mesa redonda cuyo tema fue "La Enseñanza de la Física en la Educación Media Cubana Actual" acaparó la atención de los participantes el martes 8 a primera hora. Además fueron expuestos más de 150 carteles relacionados con los temas de las diferentes secciones de la Sociedad.

Con motivo del 30 Aniversario de la fundación de la SCF se realizó un emotivo homenaje a los fundadores de la sociedad así como a todos lo que han sido presidentes de la misma. También se realizó acto en memoria de los 100 años del nacimiento del Dr. Ángel Álvarez Ponte.

Durante el Congreso de la Sociedad quedó electa la nueva directiva compuesta por los siguientes miembros. Presidente: Dr. Osvaldo de Melo; Vicepresidente Primero: Dr. Jesús Rubayo; Vicepresidente de Finanzas: Dr. Aurora Pérez; Vicepresidente Organizador: Dr. Augusto González; Vicepresidente de Divulgación: Dr. José Llovera; Vicepresidente Relaciones Internacionales: Dr. Victor Fajer; Vicepresidente

de Física Teórica: Dr. José Marín; Vicepresidente de Física Médica: M.C. Adlín López; Vicepresidente de Enseñanza de la Física: Dr. Eduardo Moltó Gil; Vicepresidente de Óptica y Espectroscopia Dr. Germán Muñiz; Vicepresidente de Agrofísica: Dra. María Elena Ruiz; Vicepresidente de Física de la Tierra y el Espacio: Dr. Alexander Calzadilla; Vicepresidente de Ciencia de Materiales: Dr. Augusto Iribarren; Vicepresidente de Física Nuclear, Atómica y Molecular: Dr. Oscar Díaz Rizo; Directora de la Revista Cubana Física: Dra. María M. Sánchez Colina. No se realizaron las correspondientes reuniones de las secciones de Energías no convencionales y Protección radiológica.

Varios importantes acuerdos emergieron del IX Congreso. Entre ellos el de establecer premios que la

Sociedad otorgue a físicos cubanos, y el de construir una base de datos con todos los miembros de la sociedad.

Los almuerzos se realizaron en el restaurante “El Cochinito” y una malograda actividad de clausura en el Club “Amanecer” no pudo estar a la altura que se esperaba debido a múltiples y largos apagones que hicieron que la mayoría de los asistentes desistieran de participar.

La próxima convocatoria en el 2011. ¡Los esperamos a todos!

O. de Melo, Presidente.



## V Taller Iberoamericano de enseñanza de la física universitaria

Efectuado en la Ciudad de La Habana, Cuba, del 26 al 30 de enero de 2009



*Sede del evento y participantes en el V Taller*

### Datos

- Participantes: **98**, de los siguientes países: Alemania: (2), Angola (2), Brasil (2), Colombia (8), Cuba (51), Ecuador (2), España (8), México (20), Puerto Rico (1), USA (1) y Venezuela (1)
- Conferencias: **9**
- Presentaciones orales: **27**
- Carteles: **33**
- Mesas Redondas (**2**):
  - ✓ *Futuro de la Profesión de Física y los Planes de Estudio. El Espacio Europeo de Educación Superior y algunas experiencias latinoamericanas.*
  - ✓ *Virtualización.*
- **Foro:** *Nueva representación de la Termodinámica.*
- **Tema central del evento**  
*Las experiencias actuales en la enseñanza de la Termodinámica.*

### Temas tratados

1. Experiencias actuales en la enseñanza de la Termodinámica.
2. Potencialidades de las TIC's en el aprendizaje de la Física.
3. El papel de la enseñanza experimental en el aprendizaje de la Física.
4. Energía.
5. Experiencias en el proceso de enseñanza-aprendizaje de la Física.

Dos de las conferencias fueron presentadas por los Profesores Herrmann y Fuchs de la *Fundación Job para la Termodinámica y la Dinámica Química*, para mostrar

sus teorías al respecto. Además, se llevó a cabo el Foro: “*Nueva representación de la Termodinámica*” que contó con una nutrida asistencia. En él se debatieron los principales conceptos y aplicaciones de las teorías mencionadas. El Taller ha sido de gran utilidad para que los profesores asistentes conocieran del trabajo que se viene desarrollando por la Fundación Job y pudieran expresar sus inquietudes, coincidencias y discrepancias con lo allí expuesto. Además, nos brindó la posibilidad de captar el interés general sobre estos temas que pueden ser potenciados en el futuro en nuevos encuentros y mediante el uso de Internet en el periodo que transcurra entre este encuentro y el siguiente.



*El Prof. Friedrich Herrmann respondiendo preguntas en una de las sesiones de trabajo.*

(...[continúa en la página 223](#))

# The overcoming of the mechanistic world view in Planck's research around 1900: a comparison with the contributions of Boltzmann, Wien, Rayleigh, Einstein

Angelo Baracca

Department of Physics, University of Florence, Italy

Received 15/07/2008. Approved in final version 06/04/2009

**Abstract.** The studies on the spectrum of the cavity radiation around 1900 are analyzed. The originality of Planck's approach is discussed, related to the overcoming of the mechanistic world view, and in contrast with Boltzmann's ideas. It is discussed how Rayleigh and Jeans researches were mainly related with the equipartition theorem, did not search for an expression of the spectrum of radiation, and had no influence on Planck's thought. Finally, the relationship between Planck' and Einstein's contribution is briefly considered.

**Sumario.** Se analizan los estudios sobre el espectro de la radiación de cavidad alrededor del año 1900. Se discute la originalidad de los trabajos de Planck en relación con la superación del enfoque mecanicista, y en contraste con las ideas de Boltzmann. Se subraya que los estudios de Rayleigh y Jeans se desarrollaron con relación al problema de la validez del teorema de equipartición, no buscaron una expresión del espectro de la radiación, y no influenciaron el pensamiento de Planck. Se subraya en fin brevemente la relación entre las contribuciones de Planck y las de Einstein.

**Key words** History of Science, 01.65.+g ; blackbody radiation 44.40.+a

## 1 Introduction

Max Planck is acknowledged for the introduction of the quantization of energy in his usually cited paper of 1900<sup>1</sup>. A faithful analysis of his contribution, in the context of his physical worldview and his line of research since the end of the 19<sup>th</sup> century, shows that such a claim is unjustified. Planck has however the, probably higher, scientific merit of having overcome the mechanistic view and method in physics.

In order to approach this problem, it seems useful to start from the history of Planck's radiation law repeated in every textbook of physics, i.e. that in the year 1900:

- Rayleigh proposed an expression for the spectrum of the cavity radiation based on the equipartition theorem for the normal modes.

- in response to the failure of this formula, Planck introduced a statistical approach based on the quantum of energy.

Both these assertions are actually false. In fact:

- Rayleigh did not propose the expression known as "Rayleigh formula", but merely modified Wien's heuristic exponential law, preserving its exponential behaviour;
- in fact, Planck not even mentioned Rayleigh's paper;
- in 1900 Planck actually published *two papers*, not merely one, in which he derived his law: the **first one** contains a *purely thermodynamic* inference of his formula, while only in the **second one** he adopted a *discretization procedure* (very usual at that time) in order to perform a statistical counting, although he had opposed till then Boltzmann's statistical approach to the second

law.

This paper will be limited to these aspects: the points of view that we will discuss have been extensively developed in previous studies.<sup>2,3,4,5,6,7</sup> The expansion of the electrical industry as the nineteenth century drew to a close was an important context for the prominent role of electrodynamics and its increasingly sophisticated experimental technique. It was only the robustness of knowledge founded in practical experience that made for the explosive power of borderline problems of classical physics.

## 2 Rayleigh, 1900

At the end of the 19<sup>th</sup> century the generally acknowledged law for the spectrum of the cavity radiation was a heuristic expression proposed by Wien in 1896<sup>8</sup>

$$u(\lambda, T) \cdot d\lambda = \gamma \lambda^{-5} e^{-\delta/\lambda T} \cdot d\lambda \quad (1)$$

In his paper in 1900<sup>9</sup>, Rayleigh actually limited himself to propose an empirical modification of Wien's expression (1), preserving its exponential behaviour

$$u(\lambda, T) \cdot d\lambda = \gamma \lambda^{-4} T \cdot e^{-\delta/\lambda T} \cdot d\lambda \quad (2)$$

In fact, on the basis of phenomenological considerations, he concludes that the density of normal modes should have the behavior

$$T \lambda^{-4} \cdot d\lambda$$

In Rayleigh's words:

«There are reasons to suppose that [this] expression can be more suitable than  $\lambda^{-5} \cdot d\lambda$ , obtained from (1) when  $\lambda T$  is large. »

He concluded that:

«I cannot say if (2) reproduces the observed data as well as (1). »

It is important to add that Rayleigh's main interest was not represented by the radiation field, or the cavity radiation, but instead by the problem of the validity of the equipartition theorem, as we will see at the end of our discussion.

## 3 Planck against Boltzmann: thermodynamics vs. probability

In order to appreciate Planck's research program, one has to recall that at the end of the 19<sup>th</sup> century he opposed Boltzmann's statistical approach. Boltzmann tried to solve the conflict between mechanics and thermodynamics by giving the second law a statistical meaning, while Planck first pinned his hopes on electrodynamics. Has he recalls in his *Scientific Autobiography*<sup>10</sup>:

«Boltzmann knew that my point of view was fundamentally different from his one. He was especially upset for the fact that I was not only indifferent, but in a certain sense hostile towards atomic theory, which was at the basis of all his researches. The reason was that, in that moment, I considered the principle of entropy in-

crease as no less immutably valid of the principle itself of the conservation of energy, while Boltzmann treated it simply as a law of probability. [...] Boltzmann answered the young Zermelo in a tone of bitter sarcasm, that obviously was in part directed to me, since Zermelo's paper had been published with my approval. This was the reason of that malevolent tone that, in other occasion too, Boltzmann kept on showing me, both in publications and in our personal correspondence. It was only in the years of his life, when I informed him of the atomistic basis of my radiation law, that he assumed a more friendly attitude. »

In what concerns his studies on radiation, Planck thought he had found an irreversible elementary process in the absorption and emission of radiation by an electrical resonator, but he had met difficulties, and had finally acknowledged that:

«I had no other alternative than to resume the problem from the beginning, this time from the opposite point of view, from the side of thermodynamics: here I felt on my own ground. »

We could conclude, therefore, that before 1900 Planck had already considered, rejected and overcome an approach based on the atomic statistical theory. For him, the search for the thermal radiation law thus took on a central role. Originally Planck had tried to derive a law of Wilhelm Wien for the energy distribution among the different colours of heat radiation from the laws of thermodynamics and electrodynamics. When he needed an additional assumption in his derivation of Wien's law – just like Lorentz had to introduce one when confronting the result of the Michelson-Morley experiment – he found it in a soon-to-be-controversial expression for the entropy of a resonator

$$\left( \frac{\partial^2 s}{\partial \varepsilon^2} \right)^{-1}, \quad (3)$$

where  $s$  and  $\varepsilon$  are, in Planck's absolute conception of thermodynamics, respectively the entropy and energy of a resonator. We will discuss later on the deep physical content of this function. Planck's resonators are simply a specific type of the matter that is supposed to be in thermal equilibrium with heat radiation. There were good reasons to expect that this specification by and large would not affect his argument. In the following we must pay attention to the dates: the experimental results on the spectrum of the cavity radiation were communicated in October of 1900.

## 4 Planck, february 1900: justification of Wien's law

In February of 1900 Planck was able to establish a connection between Wien's formula (1) and the analytic expression of the thermodynamic function (3), i.e. the following expression<sup>11</sup>

$$\left(\frac{\partial^2 s}{\partial \varepsilon^2}\right)^{-1} = -a\varepsilon \quad (4)$$

In fact, integrating with respect to energy gives

$$\partial s / \partial \varepsilon = -1/\alpha \cdot \ln(\varepsilon / \beta),$$

whence, since  $\partial s / \partial \varepsilon = 1/T$ , one gets the energy of the material oscillator

$$\varepsilon = \beta \cdot \exp(-\alpha/T)$$

and consequently the expression of the spectral density

$$u(\nu, T) d\nu = 8\pi\beta / c^3 \nu^3 e^{-\alpha(\nu/T)} d\nu, \quad (1\text{-bis})$$

which coincides with Wien's law (1).

This paper represents a non mechanistic, purely thermodynamic approach to the study of the properties of the radiation field: in fact, it allowed Planck to reach the first derivation of his radiation law eight months later.

## 5 The first paper deducing Planck's law, october 1900

When the experimental results on the spectrum of the cavity radiation showed that the expressions (1), or (1-bis), are incorrect, Planck was well prepared to study a more complicated expression than (4). In the first of the two papers in which he obtained his law<sup>12</sup>, he simply assumed the following expression

$$\left(\frac{\partial^2 s}{\partial \varepsilon^2}\right)^{-1} = -a(\varepsilon^2 + \gamma\varepsilon) \quad (5)$$

whence, by integration

$$1/T \equiv \partial s / \partial \varepsilon = (\alpha/\gamma) \cdot \ln \frac{\gamma + \varepsilon}{\varepsilon} = \frac{\alpha}{\gamma} \cdot \ln \left(1 + \frac{\gamma}{\varepsilon}\right) \quad (6)$$

and finally

$$\varepsilon = \frac{\gamma}{\exp(\alpha/\gamma T) - 1} \Rightarrow u(\nu, T) = \frac{A\nu^3}{e^{B\nu/T} - 1},$$

where the general Wien's law requires for the constants  $\gamma = A\nu$  and  $\alpha/\gamma = B\nu$ .

Planck then concludes:

«...at last I reached the point of constructing an absolutely arbitrary expression for entropy which, though more complicated than Wien's expression, seems to satisfy with the same perfection every requirement of the thermodynamic and electromagnetic theories».

As he recalls in his *Scientific Autobiography*:

«The following morning I received a visit from Rubens. He told me that after the meeting, the same night, he had compared my formula with the results of his measurements and had found good agreement in every point. Lummer and Pringsheim too.»

RCF

## 6 A remark: potential implications of Planck's parameterization

It seems interesting to add some comments on this paper. As we have discussed, Planck rejected the statistical interpretation of entropy, in favour of an absolute interpretation: as a consequence, he could not have paid attention to the fluctuations of the energy of the oscillators. To be sure, statistical mechanics had not yet been introduced in 1900. Nevertheless, had Planck considered this fact, he would have anticipated the wave-particle duality, introduced by Einstein in 1909, precisely on the basis of the fluctuations of the electromagnetic field. In fact, the thermodynamic function (3) has a very important physical meaning in statistical mechanics, since

$$\overline{(\varepsilon - \bar{\varepsilon})^2} = \frac{\int_0^\infty (\varepsilon - \bar{\varepsilon})^2 \cdot W(\varepsilon)}{\int_0^\infty W(\varepsilon)} = -k_B \left(\frac{\partial^2 s}{\partial \varepsilon^2}\right)^{-1}$$

Planck's assumption (5) implies then

$$\overline{(\varepsilon - \bar{\varepsilon})^2} = -A\varepsilon - B\varepsilon^2 \quad (5\text{bis})$$

i.e. the simultaneous presence of a wave and a particle contribution. With this insight, which Einstein published only in 1909 but probably had before 1905, the wave-particle dualism was born, and would determine the subsequent development of quantum theory: Einstein advanced it further in connection with another model, involving a mirror exposed to heat radiation, which executes Brownian motion due to radiation pressure.

In eq. (5bis) the linear term corresponds to the exponential Wien's formula, while the quadratic one leads to the so-called "Rayleigh's formula" (although nobody had introduced it!). Eq. (5) could then be interpreted, *a posteriori*, as an interpolation between Wien's and "Rayleigh's" formulae.

## 7 The second paper on Planck's law in 1900

Let us discuss now Planck's second paper, the unique that is usually cited, in which he tried to give an explanation of his previous result, one that he called an "act of despair" in his Nobel lecture, i.e. to provide a sounder foundation for «the very simple logarithmic expression for the dependence of the entropy of the radiant oscillator, vibrating in a monochromatic way, on its vibration energy». [Eq. (6)]

One could remark that he seems to assign a more fundamental meaning to the thermodynamic parameterisation (6), than to the final law he had obtained. After attempts to derive the mean energy distribution of the resonators by purely thermodynamic arguments had failed, Planck resorted to a statistical method taken over from Boltzmann

$$S = k \cdot \ln W \quad (7)$$

which he adapted in such a way that the mean energy distribution followed first for the resonators and then for

the heat radiation and trying to calculate the different ways of distributing the energy on the material oscillators of different frequencies.

*«In the procedure that follows, it will seem to you that there is something arbitrary and complicated»*

One central element of his paper consists in the introduction of a discretization procedure, in order to calculate the number of different partitions of energy on the material oscillators: that assumption which has been interpreted as the early introduction of energy quantum

«We have now to divide energy over the oscillators of each kind, in the first place the energy E among the  $z_v$  oscillators of frequency  $\nu$ . If we consider E as a magnitude infinitely divisible, the division is possible in an infinity of ways. We however – and this is the most essential point in all the calculation – will consider E as composed of a determined number of equal finite parts, and use then the physical constant  $h = 6,55 \cdot 10^{-27}$  erg·s. This constant, multiplied by the common frequency  $\nu$  of the resonators, gives us the energy element  $\epsilon_0$  in erg; dividing E by  $\epsilon_0$ , we get the number  $n_v$  of the energy elements which must be divided over the  $z_v$  resonators. *When the ratio thus calculated is not an integer, we take for  $n_v$  an integer in the neighbourhood.*»

We have put in italics the last sentence, since it clearly shows that the “energy element” did not have for Planck any physical meaning: although one must justify the fact that at the end he did not let this “energy element” tend to zero. In fact, Planck himself did not imagine a quantum structure of radiation and did not doubt the classical radiation theory.

There is however a second aspect of Planck’s work which must be underlined. Boltzmann’s formula (7) was in fact interpreted at that time together with the expression of probability,  $W = N! / \prod_i n_i!$ . Planck assumed instead the following expression

$$W = \prod_{v=1}^k \frac{(n_v + z_v)!}{n_v! z_v!}, \quad (8)$$

which had to be interpreted only 24 years later as an approximation of Bose-Einstein statistics.<sup>13</sup>

From (7) and (8) one easily gets

$$\begin{aligned} s_v &= \frac{S_v}{z_v} = \frac{k_B \ln W v}{z_v} = \frac{k_B}{z_v} \ln \frac{(z_v + n_v)^{(z_v + n_v)}}{z_v^{z_v} \cdot n_v^{n_v}} \\ &= k_B \left[ \left( \frac{n_v + 1}{z_v} \right) \cdot \ln \left( \frac{n_v + 1}{z_v} \right) - \frac{n_v}{z_v} \cdot \ln \frac{n_v}{z_v} \right] \\ &= k_B \left[ \left( \frac{\bar{\epsilon}}{\epsilon_0} + 1 \right) \cdot \ln \left( \frac{\bar{\epsilon}}{\epsilon_0} + 1 \right) - \frac{\bar{\epsilon}}{\epsilon_0} \cdot \ln \frac{\bar{\epsilon}}{\epsilon_0} \right] \end{aligned}$$

Deriving this expression with respect to the energy  $\epsilon$  of the oscillator, one gets

$$\frac{1}{T} = \frac{\partial s_v}{\partial \bar{\epsilon}} = \frac{k_B}{\epsilon_0} \cdot \ln \left( 1 + \frac{\epsilon_0}{\bar{\epsilon}} \right).$$

that is, just “*the very simple logarithmic expression*” eq. (2). Here he could stop: it was then not necessary to impose the limit  $\epsilon_0 \rightarrow 0$ , although Planck did not add any comment on this.

## 8 The end of the story of “Rayleigh’s formula”: Rayleigh and Jeans, 1905

It may be interesting to complete the story of the so-called “Rayleigh’s formula”. In fact, it appeared in 1905, but with very different physical meanings than usually assumed.

**Rayleigh, 1905.** In fact, Rayleigh published a paper<sup>14</sup> on his research line on the validity of the equipartition theorem. At that time the scientific community was aware of the success of Planck’s law for the cavity radiation. This fact led Rayleigh to remark that

*«For some reason the high modes cannot impose.»*

Deriving the expression of the distribution for the low modes, Rayleigh calculated the density of the normal modes, but made a mistake of a numerical factor 8, since he did not divide for the number of quadrants. Apart from this error, this seems the first appearance of “Rayleigh’s formula”, but it was never conceived as the possible expression of the full spectrum Rayleigh wrote in fact

$$u(\lambda, T) \cdot d\lambda = 128\pi \cdot \lambda^{-4} \epsilon_v \cdot d\lambda \quad (9)$$

which, with  $\epsilon_v = \frac{1}{2} kT$ , becomes

$$u(\lambda, T) \cdot d\lambda = 64\pi \cdot \lambda^{-4} kT \cdot d\lambda$$

As Rayleigh concluded:

«My result is 8 times higher than Planck’s one» «It seems that we must admit the failure of the equipartition law in these extreme cases»

**Jeans, 1905.** In this paper<sup>15</sup> Jeans corrected the factor 8 in Rayleigh’s result, writing correctly

$$u(\lambda, T) \cdot d\lambda = 8\pi \cdot RT \lambda^{-4} \cdot d\lambda$$

It seems more relevant, however, the very different interpretation that Jeans proposed for this result. He held in fact an opposite view than Rayleigh’s, i.e. that equipartition holds at equilibrium, but equilibrium is not reached (Boltzmann’s 1896 hint). Jeans referred in fact to a hypothesis proposed by Boltzmann in 1896, in order to justify the fact that the internal degrees of freedom do not contribute to the specific heats: Boltzmann had supposed in fact that the exchange of energy between the internal degrees of freedom and the thermal bath is so slow that it never happens in practice. In Jeans’ words:

*«It is obvious that this law [eq. (9)] cannot be the true law of partition of radiant energy which really occurs in nature. The law is obtained from the hypothesis of having reached the statistical equilibrium between the energies of the different wavelengths and matter; the inference that has to be made from the failure of this law to represent natural radiation, is that in natural radiation*

*this equilibrium state is not reached. A similar situation is met in gas theory. Along with the equipartition theorem, the energy of a gas is almost completely absorbed by the internal vibration modes of its molecules, while it is known that in nature only a very small fraction of energy is held by these internal vibrations. We arrive then to suppose that there is not an equilibrium state between the internal vibrations of molecules and their energy of translation; we find that the transference of energy from the translational to the vibrational degrees of freedom is so slow, that the latter never acquire the part of energy that corresponds to them from the theorem of equipartition, since the energy of these vibrations is dissipated as rapidly as it is received from the translational energy of molecules. A similar explanation is suggested from the case of the partition of radiant energy. [...] The radiant energy acquired from the ether, both of short and long wavelengths, is reabsorbed by other bodies, or is irradiated in space, so that the partition of energy really present in ether in every instant is completely different from that predicted from the law of equipartition.*

*From this view, the true radiation law can be obtained only from a study of the process of transference of energy from matter to ether. »*

## 9 From Planck to Einstein and the 1900 revolution

While the knowledge about the energy distribution of heat radiation was firmly rooted in precision measurements combined with laws of classical physics, Planck's statistical arguments could not be anchored in an equally well-established area of classical physics. They owed their substantiation not least to the fact that they gave the correct result: the known law of heat radiation. Planck's radiation formula solved this special problem at the border between electrodynamics and thermodynamics, however this veiled a foundational crisis: the classical picture of a continuum of waves of all possible energies could not be reconciled with Planck's radiation formula. Instead it turned out that totally new, non-classical concepts were necessary to find a physical interpretation for the energy distribution of radiation in thermal equilibrium, as described by this formula. Even the most outstanding results of the masters of classical physics did not yet represent the breakthrough to modern physics: Planck's derivation of the radiation law in particular had as little to do with the beginning of the quantum theory as Lorentz's derivation of his transformation equations can be considered as a first result of relativity theory.

Every attempt to understand the origin of the 1905 revolution will fall short if it does not take this pattern into account. Only against this background does it become clear which specific perspective ever made Einstein concentrate on these borderline problems and

perceive them as challenges. Evidently there were also other points of view, which simply made these look like special problems, presenting no questions of principle about the compatibility of concepts between different subfields of classical physics. For example, Max Planck regarded the problem of heat radiation essentially as a special problem in the theory of heat; Ludwig Boltzmann regarded fluctuation phenomena, like Brownian motion, as problems in mechanics; and for Hendrik Antoon Lorentz the electrodynamics of moving bodies was of concern just to electrodynamics, and not to the foundations of mechanics. Lorentz would be – and also would not be – the initiator of the theory of relativity, Planck would be the father of quantum theory, and Boltzmann the originator of statistical physics, just as Galileo was at the same time a late representative of Aristotelianism and a pioneer of classical mechanics.

It was apparently no accident that the scientific revolution kindled by Einstein in 1905 ignited on the very borderline problems we have discussed. Namely, these borderline problems concern not just any single question, but the overlap zones between the continents of classical physics, where highly integrated systems of knowledge collided. The solutions to the borderline problems of classical physics found by Lorentz, Boltzmann and Planck remained in the conceptual framework of classical physics, even if several of their assumptions and constructions could not really be interpreted in this framework. In contrast, the solutions suggested by Einstein in his revolutionary papers of 1905 broke out of this frame and replaced it with a completely new one, at least in the case of the special theory of relativity.

Einstein's later theory is based on the assumption that, contrary to classical physics, the energy of a single resonator can take on only discrete values. Although the speculative idea of the young Einstein did not anticipate such a break with classical physics, it provides a model whose details could later be made to agree with such new insights. What is more important for our story is that this idea also provided the framework for Einstein's critique of Planck's radiation theory. In fact, soon after formulating his idea Einstein began to have doubts whether resonators with fixed period and damping can bring about the energy exchange in thermal equilibrium. But the first encounter with Planck had placed just that aspect of the problem of radiation at the center of Einstein's attention that was to become one of the germs for the later conceptual innovation: the relationship between heat radiation in equilibrium and the law of equipartition of Energy. The first part of Einstein's light quantum paper shows with the aid of the equipartition theorem of energy that a classical theory of radiation is impossible because it leads to the ultraviolet catastrophe.

## References

1. Planck, M. "Zur Theorie des Gesetzes der

---

Energieverteilung im Normalspektrum”, Verhandl. Deutsch. Physik Gesellschaft, 2, , 237-245, (1900).

2. Klein, M.J., “Thermodynamics and quanta in Planck’s work”, Physics Today, 19, 23-32, November (1966).

3. Kangro, H., Planck’s Original Papers in Quantum Physics, (1972). Kuhn, T.S., Blackbody Theory and the Quantum Discontinuity (1894-1912), Oxford, (1978).

4. Spanish transl. La Teoría del Cuerpo Negro y la Discontinuidad Cuántica 1894-1912, Alianza Editorial, Madrid, (1980).

5. Jürgen Renn’s studies on this period and the 20th century revolution in Physics were more centred on Einstein’s role, e.g. “Die atomistische Revolution”, Physik Journal, 4, 53-59 (2005).

6. A. Baracca, “1905, annus mirabilis: the roots of the 20th century revolution in physics and the take-off of the quantum theory”, Lull (Zaragoza), Vol. 28 (n. 62), 295-381 (2005).

7. Arias Avila, N, and Baracca, A., “Quien escribió la llamada fórmula de Rayleigh y Jeans?”, Lull (Zaragoza), Vol. 29 (n. 63), 5-18 (2006).

8. Wien, W., “Eine neue Beziehung der Strahlung schwarzer Körper zum zweiten Hauptsatz der Wärmetheorie”, Berl. Ber., 55-62 (1893).

9. Lord Rayleigh, “Remarks upon the law of complete radiation”, Phil. Mag., 49, 539-540 (1900).

10. Planck, M., Wissenschaftliche Selbstbiographie, Leipzig, Barth, (1948).

Engl. transl., Scientific Autobiography and Other Scientific Papers, New York, Philosophical Library, (1949).

11. Planck, M., “Entropie und Temperatur strahlender Wärme”, Ann. d. Phys., 1, 719-737 (1900).

12. Planck, M., “Über eine Verbesserung der Wien’schen Spektralgleichung”, Verhandl. d. Deutsch. Physik Gesellschaft, 2, 202-204 (1900)

13. See for instance Bergia, S., Ferrario, C., And Monzoni, V., “Planck’s heritage and the Bose statistics”, Annales de Fondation Louis de Broglie, 10, 161-190, (1985).

14. Lord Rayleigh, “The dynamical theory of gases and radiation”, 54-55, Nature, 72, (1905).

15. Jeans, J., “On the laws of radiation”, Proc. Roy. Soc. London, 76, 545-552 (1905).

## Solar bursts with fine temporal structure

A. Méndez Berhondo

Astronomy Department, Institute of Geophysics and Astronomy, Ciudad de La Habana, Cuba;  
ado@iga.cu

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 6/04/2009

**Abstract.** This paper summarized the talk presented at XI Symposium and IX Congress of the Cuban Physical Society, where the main results obtained in the Solar Astrophysics group (Institute of Geophysics and Astronomy in Havana, Cuba) were presented. Solar bursts with fine temporal structure (characteristic time less than 1 s) are explained as a fragmentation in the energy release process.

**Sumario.** Este trabajo resume la conferencia impartida en el XI Simposio y IX Congreso de la Sociedad Cubana de Física donde los principales resultados del grupo de Astrofísica Solar del Instituto de Geofísica y Astronomía fueron presentados. Las explosiones solares en ondas de radio (*bursts* en inglés) con una estructura temporal fina (tiempo característico menor de 1 s) se explican como resultado de una fragmentación durante el proceso de liberación de la energía durante el destello.

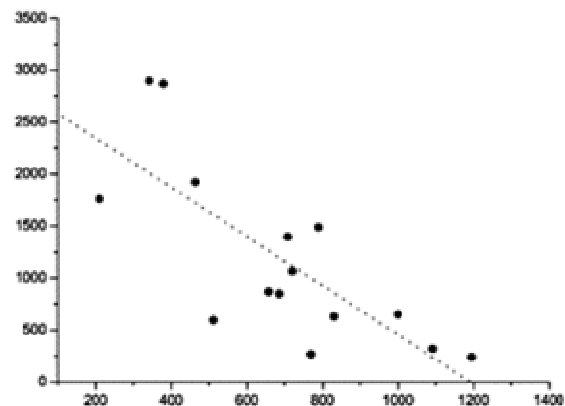
**Key words.** Solar Physics 96.60\_j, Flares 96.60.qe, Magnetic reconnection 96.60.Iv.

### 1 Introduction

The solar corona is a high structured and dynamic plasma formed by dense tubes of solar plasma. There are many kinds of transients phenomena occurring on various time scales from hours to few tens of milliseconds associated to the evolution of these dense tubes of solar plasma. In particular, solar flares are one of the paradigmatic active phenomena where magnetic energy stored in these structures is transformed into kinetic energy of highly accelerated particles via magnetic reconnection.

One of the characteristic parameters of solar flares is its duration. Solar flares observed at radio frequencies (called bursts) with duration less than 1 s can be a key to understand the basic energy release process in flares. Observed from decameter wavelength range ( $\sim 20$  MHz) up to microwave wavelengths (near 10 GHz) these bursts with characteristic time less than 1 s include spikes, spike-like, very short period pulsations (regular or irregular), dips in radio emission, type I bursts, zebra-pattern structures, etc. which can be related with some

kind of process of energy release fragmentation<sup>1</sup>.



**Figure 1.** Relationship between intensities of spike-like events (y-axis) and intensity of associated background continuum (x-axis) observed at 327 MHz for July 9, 1982 solar flare. Axes in solar flux units ( $10^{-32} \text{Wm}^{-2} \text{Hz}^{-1}$ ).

This fragmentation process might be produced by in-



trinsic properties of the radio emission mechanism itself during the primary energy release or as a result of local fragmented inhomogeneities of the source<sup>2</sup>. In [3, 4] a reviews on spatial fragmentation of radio emission sources are presented.

This paper resumes the talk gave at XI Symposium and IX Congress of the Cuban Society of Physics. The main results obtained by the Solar Astrophysics group (Institute of Geophysics and Astronomy in Havana, Cuba) are presented.

The used data is from Trieste Solar Radio System (INAF-Trieste Astronomical Observatory, Basovizza Observing Station, Italy) with high time resolution (from 10 to 1 ms) at metric-decimetric range (237, 327, 408, 610, 1420 and 2695 MHz).

## 2 Intensity of the bursts vs. background continuum

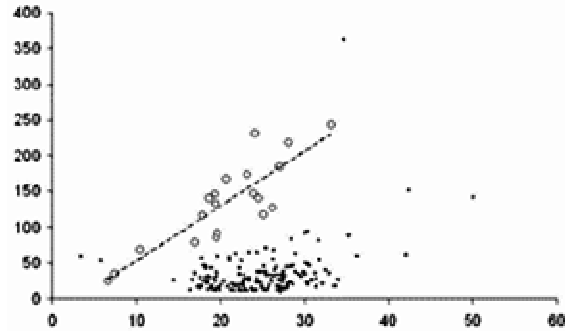
A crucial unsolved problem is the possible relationship between intensity of the solar burst with fine temporal structure and the associated background continuum. This subject would be directly related with mechanism of generation of burst and on the evolution of associated sources. Earlier works had focused mainly on the cluster or group of bursts not analyzing individual bursts.

In [5] this aspect is discussed analyzing selected study cases of spike-like bursts and type I bursts. In [5] the study case July 9, 1982 solar flare was analyzed and inverse linear relationship between intensities of spike-like bursts and intensities of the associated background continuum was found (Figure 1). We conclude if both mechanisms for spike-like bursts and background continuum are powered by the same primary energy source, and if spike-like burst generation mechanism has a growth index greater than the continuum one, early bursts could obtain much more energy than later one as background continuum mechanism extracts a significant part of the primary released energy. In this hypothetical description, these spike-like bursts cannot be used as a measure of primary energy source fragmentation. They would be the result of an emergence of new sources with a different generation mechanisms. However, analyzing another study case (September 8, 1999 flare) no relationship was found. So, at is point we conclude that no general rule is expected.

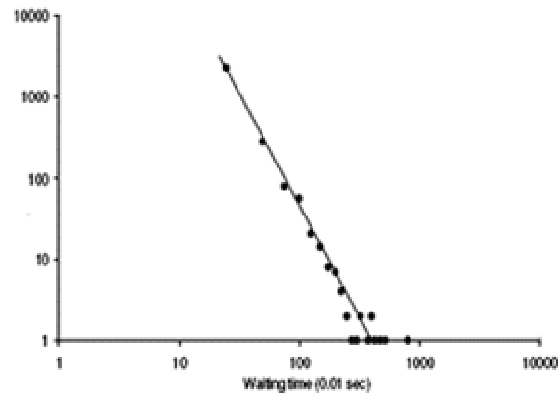
The study was extended to type I burst and some preliminary results were obtained. In three quiet different solar Noise Storms, a typical solar phenomenon containing type I burst, no clear relationship between intensities of type I bursts and the background continuum emission was found. However, it can be notice a group of bursts that seems to follow a positive linear dependence (Figure 2). These separated bursts would be represents some kind of different class of type I bursts in the evolution of the noise storm. Some detailed study must be do it in this respect; we do not know any report in the literature regarding distinctive classes of type I bursts.

## 3 Waiting time and energy distribution

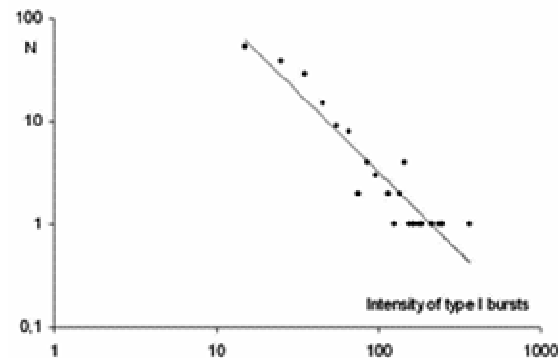
There are many papers devoted to examine the waiting time distribution between individual solar events [i.e. 6-8] and a clear power-law is obtained implying that successive events are strongly correlated and there is not an characteristic value of waiting time.



**Figure 2.** Relationship between intensities of type I bursts (y-axis) and background continuum (x-axis) for November 18, 2005 solar noise storm. It can be notice a group of bursts (marked with open circles) that seems to follow a positive linear dependence. Axes in solar flux units.



**Figure 3.** Log-log of waiting time distribution for spike-like bursts associated to large flare of July 14, 2000.



**Figure 4.** Log-log of energy distribution for type I bursts associated to Noise Storm of November 18, 2005.

We examined the waiting time and energy distribution of spike-like and type I bursts<sup>9</sup>. The waiting time distribution was examined in spike-like bursts associated to

the large flare of July 14, 2000 and in the type I bursts associated to the three Noise Storms before mentioned. The energy distribution was analyzed in the spike-like bursts associated to the large flare of September 8, 1999 and in the same type I bursts.

In all examined cases, both waiting time and energy distribution of bursts seems to follow a power-law distribution (Figures 3 and 4).

These results point to waiting time and energy of all sizes is expected in these events. This could be related to some process fragmenting the source in all sizes in an avalanche of successive magnetic reconnections. The possibility of a self-organized criticality behavior must be analyzed in the future.

#### 4 Dips in radio emission

Dips in radio emission are not common events and they are associated with the evolution of large flares. There is not an abundant literature on this subject. Dips are sudden reduction in the radio emission intensity lasting less than 1 s. Some authors refer dips events as anti-spike bursts.

In [5] dips events of very short duration (duration ~ 0.2 s) associated to large flare on July 9, 1982 were reported less than 1 s after the maximum of the flare only at 408 MHz (Figure 5).

Sudden reductions in radio emission are explained by upward injected high energy electron beams filling the loss-cone of the coronal magnetic trap<sup>10, 11</sup>. From our point of view, we explain the observed dips, not by the proposed mechanism but due to the increase by two orders of magnitude in the value of the optical depth related to a substantial increase of the temperature during the large associated flare, reducing the radio emission by the opaque radio emission level (408 MHz).

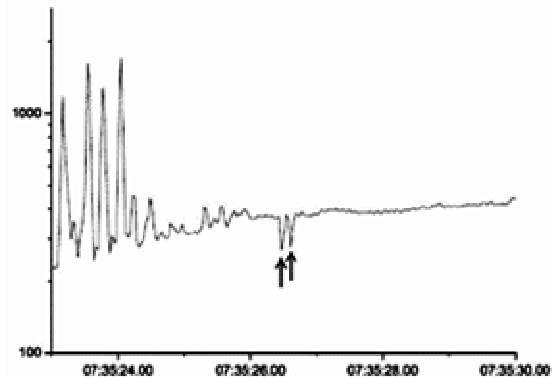
#### 5 Pulsations

On the continuum of the strongest and longest radio emission at radio wavelengths, quasi-periodic variations have been known for several decades ago<sup>12, 13</sup>. These kinds of phenomena, related to strong energy release processes, represent a useful diagnostic tool giving information about highly perturbed plasma and physical conditions of the source region. Typical periods of quasi-periodic pulsations at radio wavelengths are in the range from milliseconds to several minutes.

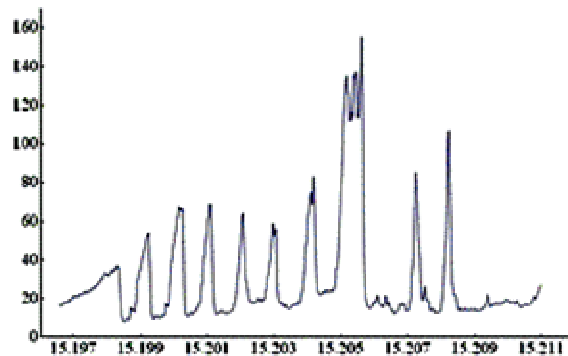
Many models have been proposed to explain the observed characteristics of the quasi-pulsating events: magnetohydrodynamic oscillations, periodic plasma instabilities, periodic injections of fast electrons are mainly candidates for the driving mechanisms responsible for the generation of such phenomena<sup>14</sup>.

In [15] we describe a singular case of pulsations observed during September 9, 2001 solar flare only at 237 MHz. Two different types of pulsations that occur in

about 4 minutes were identified. Not pulsations were found at 327, 408, 610, 1420, 2695 MHz.



**Figure 5.** Segment of the profile of July 9, 1982 solar flare records at 408 MHz. The dips in radio emission intensity are marked with arrows. X-axis is referred to time (Universal Time). Y-axis is referred to logarithm of solar flux units.



**Figure 6.** “Saw tooth-like” structure of the quasi-periodic pulsations observed at 237 MHz. X-axis is referred to time (Universal time) in hours and fraction of an hour. Y-axis is referred to solar flux units.

The first one shows a profile resembling a “saw tooth-like” structure with an increase continuum that is suddenly stopped and reduced it to a “forbidden” continuum (Figure 6). The second interval less than 4 minutes later represents a well “sinusoidal-like” structure.

Both pulsating structures were interpreted as magneto-acoustic oscillations of plasma dense flux tubes with an estimated radius of  $4.58 \times 10^3$  km, relatively small diameter for such structures. The “saw tooth-like” structure with process where the radio emission is abruptly diminished was explained qualitatively by magnetic quasi-periodic compression of the structure, contrary to [10, 11] where injection of particles have been proposed to explain the sudden diminution of radio emission. A scenario for such magnetic quasi-periodic compression of the structure evolving magnetic traps of electrons following the magnetic reconnection was proposed [15].

#### 6 Conclusions

This paper summarizes the talk presented at XI Symposium and IX Congress of the Cuban Society of Physics. The main results obtained by the Solar Astrophysics group (Institute of Geophysics and Astronomy in Havana, Cuba) concerning solar bursts with fine temporal structures are presented. Spike-like and type I bursts were analyzed using data from Basovizza Observing Station of Trieste Astronomical Observatory with high temporal resolution.

Intensity of radio bursts vs. associated background continuum, waiting time and energy distribution, dips, and quasi-periodic pulsations are analyzed.

## Acknowledgements

Author is very grateful to Dr. Paolo Zlobec of Basovizza Observing Station for his suggestions and comments, and Mr. Sergio Padovan (same Institution) for his help in the calibration and preparation of the data.

## References

1. Benz, A. O., "Radio spikes and the fragmentation of flare energy release", *Solar Physics* 96, 357-370 (1985).
2. Fleishman, G. D. and V. F. Melnikov, "Millisecond solar radio spikes", *Physics-Uspekhi* 41, 1157-1189 (1998)
3. VLAHOS, L., "Theory of fragmented energy release in the Sun", *Space Science Reviews* 68, 39-50 (1994)
4. BROWN, J. C. and N. GRAY, "Spatial fragmentation of solar flare plasma and beams", *Space Science Reviews* 68, 93-96 (1994)
5. Méndez, A. And R. E. Rodríguez, "Radio bursts of very short duration, Fine structure of solar flare emissions", *Geofísica Internacional* 45, 271-276 (2006)
6. Boffeta, G.; V. Carbone; P. Giuliani; P. Veltri And A. Vulpiani, "Power Laws in Solar Flares, Self-Organized Criticality or Turbulence?", *Physics Review Letters* 83, 4662-4665 (1999)
7. Wheatland, M. S., "The Origin of the Solar Flare Waiting-Time Distribution", *Astrophysical Journal* 536, L109-L112 (2000)
8. Wheatland, M. S., "The Coronal Mass Ejection Waiting-Time Distribution", *Solar Physics* 214, 361-373 (2003)
9. Rodríguez, R. E. And A. Méndez, "Bastille day flare multi-spectral characterization of radio emission polarization from milliseconds to minutes time scale", *American Institute of Physics Conference Proceedings* 875, 326-329 (2006)
10. Benz, A. O. and J. Kuijpers, "Type IV DM bursts-Onset and sudden reductions", *Solar Physics* 46, 275-290 (1976)
11. Fleishman, G. D.; A. V. Stepanov and Yu. F. Yurovsky, "Microwave bursts of November 17, 1991, evidence of fragmented particle injection into a coronal loop", *Space Science Reviews* 68, 205-210 (1994)
12. Young, C. W.; C. L. Spencer, G. E. Moreton And J. A. Roberts, "A Preliminary Study of the Dynamic Spectra of Solar Radio Bursts in the Frequency Range 500-950 Mc/s", *Astrophysical Journal* 133, 243-260 (1961)
13. Abrami, A., "Pulsating Radio Emissions from the Solar Corona", *Solar Physics* 11, 104-116 (1970)
14. Aschwanden, M. J., "Theory of radio pulsations in coronal loops", *Solar Physics* 111, 113-136 (1987)
15. Méndez, A.; R. E. Rodríguez and P. Zlobec, "Solar radio pulsating structures during September 9, 2001 at meter wavelength", *Astrophysics and Space Science* 318, 73-78 (2008).

## Influence of defects on cathodoluminescence along $\text{ZnTe}_x\text{O}_{1-x}$ -ZnO microstructures grown by the vapour-solid technique

A. Iribarren<sup>a, b†</sup>, P. Fernández<sup>b</sup>, and J. Piqueras<sup>b</sup>

a) Instituto de Ciencia y Tecnología de Materiales, Universidad de La Habana, Zapata y G, Vedado, Ciudad de La Habana 10440, Cuba; agosto@fisica.uh.cu

b) Departamento de Física de Materiales, Facultad de Ciencias Físicas, Universidad Complutense de Madrid, 28040, Madrid, España.

Received 15/07/2008. Approved in final version 07.05.2009.

**Sumario.** Se presenta el comportamiento de la emisión catodoluminiscente (CL) a lo largo de microestructuras alargadas de ZnO con impurificación isovalente de Te que fueron obtenidas por la técnica de vapor – sólido. La intensidad de la CL varía a lo largo de las microestructuras debido a la influencia de los defectos. Dos defectos principales fueron considerados, las vacancias y el desorden estructural. Cada defecto tiene diferente influencia sobre la intensidad de la CL, lo que se observa en el estudio de estructuras típicas seleccionadas. El grado de influencia de cada defecto fue analizado de los datos experimentales. Los tiempos de vida de recombinación en cada defecto fueron también estimados.

**Abstract.** The behaviour of the cathodoluminescence (CL) along elongated ZnO microstructures with isoelectronic Te doping, which were obtained by the vapour – solid technique is presented. The CL intensity changes along the microstructures due to the influence of the defects. Two main defect kinds were considered, the vacancy and the structural disorder. Each defect kind has different influence on the CL intensity, which is observed in the study of selected typical structures. The degree of influence of each defect was analysed from the experimental data. The recombination lifetimes for each defect were also estimated.

**Palabras clave.** Te-doped ZnO 61.72.uj, Cathodoluminescence 72.20.Jv, Defects 71.55.Gs

### 1 Introduction

The main and most observed defects of ZnO are those consequence of vacancies, mainly related to oxygen ones ( $\text{V}_\text{O}$ )<sup>1</sup> and its complexes. Such vacancies induce the formation of deep trap levels into the band gap. The transitions to these deep levels give a wide band centred at about 2.35–2.4 eV that ranges from 1.7 to 2.8 eV<sup>2</sup> in luminescence spectra. Under certain obtaining conditions of ZnO structures, as the isovalent doping that passivates the vacancies, the defect band is not present<sup>3</sup>; however structural disorder can be present and form band tails,

which favours non radiative mechanisms and lowering of the luminescence emission. In this work the study of the influence of both defect types, the vacancy and the disorder ones, was carried out from the behaviour of the cathodoluminescence (CL) emission spectra along Te doped ZnO microstructures grown by vapour-solid technique and, from them, and the carrier lifetime associated to each defect was estimated and compared.

### 2 Experimental

The raw materials were commercially available ZnO and

TeO<sub>2</sub> powders, which were mixed. The TeO<sub>2</sub> concentrations corresponded to 0.18 at.% Te. The mixed powders were milled for 10 h in a Retsch S100 centrifugal agate balls mill. Afterwards, the milled powders were compacted under a 2 T compressive load to form disc-shaped samples of about 7 mm diameter. The samples were then placed on an alumina boat near the gas inlet in a furnace, and sintered at 1270 °C under 2 litres per minute argon flow for 15 hours. Structure and morphology were investigated by scanning electron microscopy (SEM) in a Leica 440. CL measurements were carried out at room temperature on a Leica 440 SEM, and were carried out at constant exposure time and measured area. CL images were recorded by using a Hamamatsu R928 photomultiplier and CL spectra were obtained with a Hamamatsu PMA-11 CCD camera. X-ray microanalysis was performed using a JEOL JXA-8900 Superprobe by EDS.

For this study two main parameters were used and obtained from the spectra correspondingly. One of them is the integrated CL emission,  $A$  with a proper subscript, given by the area under the corresponding CL emission. The other one is the band tail parameter,  $E_0$ , given by the exponential fitting of the low energy side of the corresponding CL peaks<sup>4</sup>.

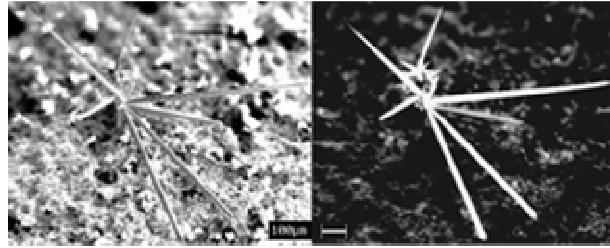
### 3 Results and discussion

**3.1 Influence of structural disorder.** In needle- and pencil-like microstructures, which are typical in the sample centre, shown in Figure 1 the defect band is not present, and they present a unique violet band due to ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub> and some ZnO as can be observed in the CL spectra in Figure 2. However, Figure 2 shows that CL emission intensity diminishes as the band tail  $E_0$  increases, which takes place from the microstructure base to the tip. It indicates that the structural disorder described by  $E_0$  increases in such a way. The disorder would be related to strain and formation of states near the top of the valence band due to isovalent and less electronegative Te atoms in O sites<sup>5</sup>.

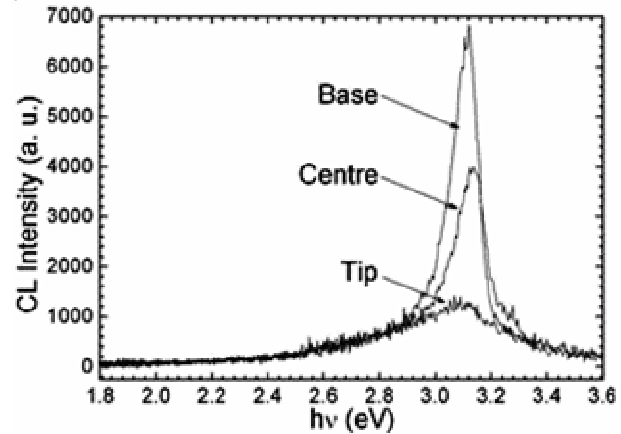
The main violet CL emission band is composed typically by two contributions, one at about 3.27 eV corresponding to transition in ZnO and the other one at 3.12 eV, which have higher intensity, corresponding to ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub><sup>1</sup>. The ZnO emission intensities were observed to be lower than that of ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub>. This is explained from the lower ZnO recombination coefficient, related to a typical recombination lifetime  $\tau_{\text{ZnO}} \sim 100$  ps, respect to that of ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub>,  $\tau_{\text{ZnTeO}} \sim 30$  ps<sup>5,6</sup>.

Figure 3 displays the behaviour of the integrated CL emission  $A_T$  as a function of the band tail parameter  $E_0$ , which was exponentially fitted. It shows that for high  $E_0$  the emission decreases up to minimal value  $A_T$  and conversely it would reach a maximum one. It indicates that the increase of the density of states in the band tail leads to the increase of the transitions through it, which would have lower transition probability. For high tail parameters the CL emission tends to a minimum value of the

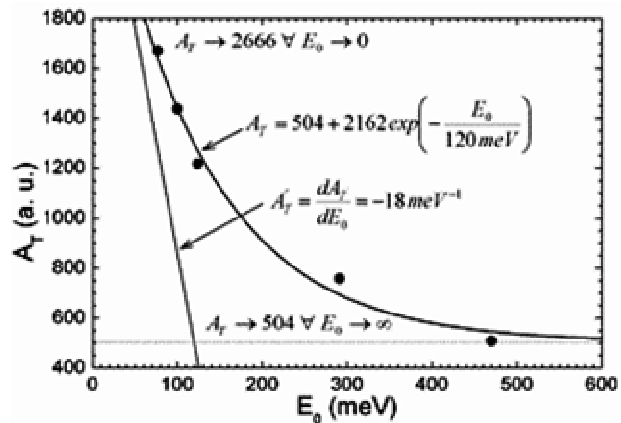
emission  $A_{T\text{tail}}$  due to all the transitions take place mainly through the band tail.



**Figure 1.** SEM and CL images of ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub> - ZnO needle- and pencil-like microstructures located in the sample centre region.



**Figure 2.** CL spectra along a needle-like microstructure.



**Figure 3.** Behaviour of the total CL integrated emission area ( $A_T$ ) as a function of the ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub> band tail parameter ( $E_0$ ) in a needle-like microstructure.

For this case, recombination through deep levels can be neglected and a unique radiative transition from ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub> conduction to valence bands can be considered. For low band tail parameter,  $E_0 \rightarrow 0$ , i. e., in a nearly perfect material, the emission intensity  $A_{T0}$  is related to the recombination constant  $\gamma_{\text{ZnTeO}}$  and the excited carrier concentration that occupy states in the band,  $N_0$ . From experiment it can be represented by:

$$A_{T0} = 2666 \propto \frac{N_0}{\tau_{ZnTeO}}. \quad (1)$$

For very disordered material with high  $E_0$ , i. e.,  $E_0 \rightarrow \infty$ , the density of localized states in the tails is so high that it can be grossly considered that the same carrier concentration  $N_0$  occupies states only in the band tail. Then, the emission intensity can be given by:

$$A_{Ttail} = 504 \propto \frac{N_0}{\tau_{tail}}. \quad (2)$$

From comparing Eqs. 1 and 2, and using the  $\tau_{ZnTeO}$  value, it is possible to estimate that the carrier lifetime in the tail localized states is about  $\tau_{tail} \sim 160$  ps.

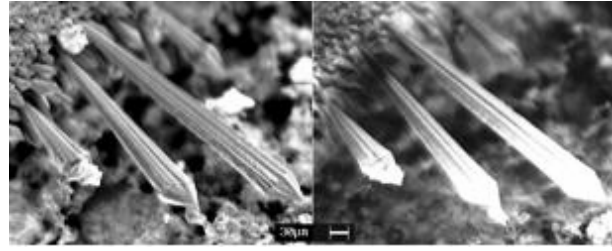
**3.2 Influence of the vacancies.** The mace-like microstructures displayed in Figure 4 have high CL emission in the tip region and it diminishes toward the base due to the increase of the defect concentrations related to the increase of the defect CL emission as can be observed in Figure 5. EDS measurements showed that the Te content decreases from tip to base<sup>3</sup>, i.e., less Te amounts lead low passivation of the O vacancies toward the base. The presence of vacancy defects leads to non radiative transition through the deep trap levels related to them.

The wide defect emission band centred at about 2.36 eV, is due to several transitions through deep trap levels<sup>1</sup>. The complexity of this band prevents a clear definition of the emission processes. The recombination constants related to defects have been reported ranging from high values corresponding to recombination lifetimes as short as  $\tau_{def} \sim 30$  ps, to high ones as long as minutes and hours<sup>6,8-10</sup>.

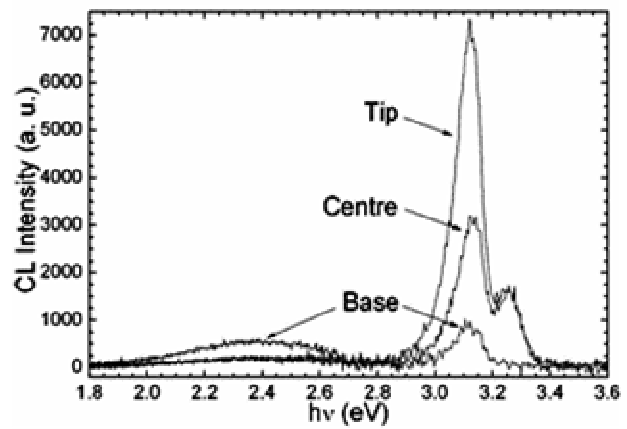
The  $ZnTe_xO_{1-x} - ZnO$  CL emission in the mace-like microstructures quickly decays as the defect band increases until a minimum emission, which takes place practically only in transitions through the defect levels. Further studies are necessary for attain a full description of the defect band emission processes. However, an effective recombination lifetime of vacancy defect can be grossly estimated. The tail parameters of the  $ZnTe_xO_{1-x}$  emission peak in mace-like microstructures range from 68 meV to 90 meV. This short range can be explained from the lattice relaxation in the vacancy complex centres. According to the previous calculus,  $E_0$  values would lead to 35 % – 43 % reduction of the emission intensity. However, the sharp experimental reduction of the emission as defect band increases suggests that the dominant mechanism for the reduction of the  $ZnTe_xO_{1-x} - ZnO$  CL emission is by transitions through vacancy defects. For the study it was defined a parameter  $r$  given by the ratio of the integrated defect emission  $A_{def}$  and the integrated  $ZnTe_xO_{1-x} - ZnO$  emission  $A_{ZnTeO-ZnO}$ . Thus, the integrated total emission  $A_{T0}$  was plotted as a function of such parameter  $r$  in Figure 6, and the experimental points were exponentially fitted. According to the fitting curve, if no defects are present ( $r \rightarrow 0$  or  $A_{def} \rightarrow 0$ ), the total emission  $A_{T0}$  is mainly related to the excited carrier con-

centration in the conduction band,  $N_0$ , and:

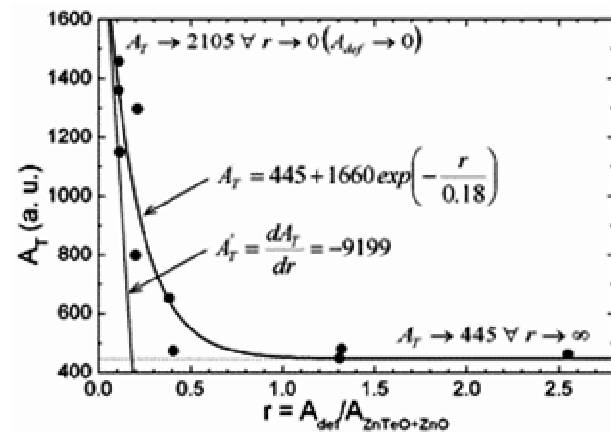
$$A_{T0} = 2105 \propto \frac{N_0}{\tau_{ZnTeO}}. \quad (3)$$



**Figure 4.** SEM and CL images of  $ZnTe_xO_{1-x} - ZnO$  mace-like microstructures located in the sample rim region.



**Figure 5.** CL spectra along one of the mace-like microstructures.



**Figure 6.** Behaviour of the total CL integrated emission area ( $A_T$ ) as a function of the ratio  $r$  between the  $ZnTe_xO_{1-x} - ZnO$  and the defect CL integrated emission areas.

At the high- $r$  asymptotic extreme, only defect transitions can be considered to take place. In this case a further consideration must be done, which is that the deep level concentration is so high that reach similar values to  $N_0$ , i.e.,  $N_{def} \sim N_0$ , and as the same excited carriers inter-

vene in the transitions to traps, the emission can be given as:

$$A_{\text{Tdef}} = 445 \propto \frac{N_0}{\tau_{\text{def}}} \quad (4)$$

From Eqs. 3 and 4 the effective recombination lifetime of the carriers in transitions through deep trap levels was estimated to be  $\tau_{\text{def}} \sim 145$  ps. This value can not be thought about even an average, because the transitions are multiples, including band-deep level, deep level-deep level, and other emission and absorption transitions, aside from the lifetime of each trap depends exponentially on its energy position within the band gap<sup>11,12</sup>.

**3.3 Comparison of defect influences.** The first order terms of the expansion to series of the total integrated emission area dependences on  $r$  and  $E_0$  respectively, which are displayed in the Figs. 3 and 6, give the rate of CL diminishing,  $A'_T = \frac{dA_T}{dr}$  for the vacancy defects in the region of low defect concentrations and

$A'_T = \frac{dA_T}{dE_0}$  for the disorder defects as a function of  $E_0$  in

the region of low disorder. In the needle- and pencil-like microstructures, where no defect CL bands are present, the CL emission diminishing represented by its  $A'_T$  is softer than that of maze-like structure where the main influence on the CL emission are the vacancy defects, which is sharper. This is related to the vacancy defects stronger influence of the vacancy defect on the total emission diminishing and the quick increase of the vacancy concentration from base to tip. The fact that the vacancy defects are luminescent and contribute to the total emission strengthen that assumption, meanwhile the disorder-defects increase reduces the transition probability without luminescence contribution.

On the other hand, the estimated effective recombination lifetime of the transitions through the band tails is some higher than that of the transitions through the vacancy defects. However, due to the proper nature of the recombination lifetime in the vacancies, some of them individually must have either higher values or lower ones.

The described behaviours of the CL emission along the microstructures is associated to the structures grow at high temperatures, which stimulate the evaporation of the initial source compound, ZnO and TeO<sub>2</sub>. However the growing structures in the internal zone of the ZnO substrate have an environment with high concentration of the source compounds, which decreases toward the rim. Thus the structures at the centre of the substrate, as the needle- and pencil-like ones, tend to be Te passivated and those near the rim have a concentration gradient, as in the maze-like microstructures. Additional concentration gradient can be expected if the microstructures grow and distance from the substrate surface, which was ob-

served in other microstructures not presented in this work.

## 3 Conclusions

The influence of the two main defect kinds, vacancies and structural disorder, on the CL emission was studied along ZnTe<sub>x</sub>O<sub>1-x</sub> - ZnO microstructures. The vacancy defects lead to the presence of deep levels through which the transitions take place, compete with the band to band transitions and diminish the CL emission. When the isovalent Te passivates the vacancies the defect CL emission decreases, but it was found that if the structural disorder increases the states of band tails also increase and the transitions through the band tails compete with that of the conductivity band and the CL emission also diminishes. However, the vacancy defects have higher influence on the CL emission diminishing than the structural disorder. From experimental data the tail and the defect recombination lifetimes were estimated.

## Acknowledgements

One of the authors (A.I.) would like to thank MEC and Universidad Complutense de Madrid, Spain, for a research grant under SAB2005-0018. This research was partially supported by Project MAT2006-01259 and it is also under Project PNCIT 00613457.

## References

1. A. Iribarren, P. Fernández, J. Piqueras, Superlattice and Microstructures 43, 600 (2008), and references therein.
2. J. Grym, P. Fernández and J. Piqueras, Nanotechnology 16, 931 (2005).
3. A. Iribarren, P. Fernández, J. Piqueras, J. Mater. Sci. 43, 2844 (2008).
4. A. Iribarren, R. Castro-Rodríguez, V. Sosa., J.L. Peña, Phys. Rev. B 60, 4758 (1999).
5. H.J. Liu, C.T. Chan, Phys. Lett. A 352, 531 (2006).
6. H. L. Porter and J. F. Muth, J. Narayan, John V. Foreman and Henry O. Everitt, J. Appl. Phys. 100, 123102 (2006).
7. G. A. Garrett, H. Shen, M. Wraback, L. Tsakalacos, S. F. LeBoeuf. CLEO '07. 2007 Conference on Lasers and Electro-Optics. IEEE, pp. 907-8. Piscataway, NJ, USA.
8. T.E. Murphy, K. Moazzami and J.D. Phillips, J. Electron Mater. 35, 543 (2006).
9. Zh. Fan, P.-ch. Chang, J. G. Lu, E. C. Walter, R. M. Penner, Ch.-h. Lin, H. P. Lee, Appl. Phys. Lett. 85, 6128 (2004).
10. Ü. Özgür, A. Teke, C. Liu, S.-J. Cho, and H. Morkoç, H. O. Everitt, Appl. Phys. Lett. 84, 3223 (2004).
11. A. Muller, P. Bianucci, C. Piermarocchi, M. Fornari, I. C. Robin, R. André, and C. K. Shih, Phys. Rev. B 73, 081306(R) (2006).
12. A. Gupta, H. S. Bhatti, D. Kumar, N. K. Vermaa, R. P. Tandon, Digest J. Nanomater. Biostruct. 1, 1 (2006).

## Simulación del efecto del embolismo xilemático sobre la conductividad hidráulica en las plantas

A. Socorro

Instituto de Investigaciones Fundamentales en Agricultura Tropical “Alejandro de Humboldt” INIFAT;  
asocorro@inifat.co.cu

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 1/02/2009.

**Sumario.** A partir de las características físicas de los elementos que forman el xilema, se proponen hipótesis para llegar a una expresión matemática que defina el flujo de agua a través de estos tejidos conductores, en función de la diferencia de potencial de agua entre la zona superior e inferior de la planta. En ella se tuvo en cuenta la incidencia del embolismo xilemático sobre la conductividad hidráulica. Se utilizaron valores provenientes de la literatura para realizar una simulación de la corriente de agua y del porcentaje de pérdida de conductividad (PLC). Se discuten los resultados y se valora desde el punto de vista físico y fisiológico como este fenómeno incide en situaciones de estrés hídrico.

**Abstract.** A hypothesis to obtain a mathematical expression to define the water flow through conductor tissues, regarding the water potential difference between top and bottom sites of the plant, was proposed from physic characteristics of xylem elements. The xylematic embolism incidence on the hydraulic conductance was kept in mind in the theoretical development. A simulation of water current by xylem way and the Percent Loss Conductivity (PLC) was made with values from bibliography. The results of the model were analyzed from biophysical and physiological point of view as well as the incidence of this phenomenon at water stress situations.

**Palabras clave.** Cavitación en fluidos no homogéneos, 47.55.dp, eco-hidrología, ecología vegetal, 92.40.Oj, hidrodinámica de fluidos 47.35.-I

### 1 Introducción

Una de las teorías que explica el ascenso del agua a través de los vasos xilemáticos es la denominada Tensión-Cohesión- Transpiración (TCT).<sup>1</sup> En 1725 Stephen Hales demostró que dentro de los tubos xilemáticos tenían lugar fuerzas de capilaridad y que mientras más pequeño es el diámetro del tubo más se favorece el ascenso del agua.<sup>2</sup>

Según la teoría TCT, la energía que permite que la columna de agua se eleve, proviene de la diferencia de potencial de agua ' $\Delta\Psi$ ' entre la zona superior e inferior de la planta. Debido a la transpiración en las hojas, las células externas del mesófilo tienden a disminuir su valor de contenido de agua y de esta forma se establece un gra-

diente de  $\Psi$  que se propaga hasta llegar a los tejidos conductores del xilema. En estos tejidos, debido a sus propiedades capilares y a la acción de las fuerzas de cohesión entre las moléculas de agua, se provoca una tensión o fuerza de succión de agua en contra de la fuerza de gravedad. Esta presión ha sido medida experimentalmente con la aplicación de cámaras presurizadas (Cámara de Sholander).<sup>3</sup>

Sin embargo la TCT presupone las columnas de agua de forma continua y en la práctica en los vasos xilemáticos tiene lugar la aparición de burbujas de aire denominadas cavitaciones. A este fenómeno se le denomina embolismo xilemático.<sup>4,5,6</sup> Este fenómeno tiene lugar cuando la presión que se ejerce sobre la columna de savia xilemática, excede el valor umbral definido por las ca-



racterísticas morfológicas del tejido.<sup>7</sup> Una de las características que posee mayor incidencia es la presencia de poros en las paredes de estos conductos, los cuales comunican unos vasos con otros, así como también su propia geometría.<sup>8</sup>

El embolismo ocurre generalmente en situaciones de estrés hídrico. Cuando el potencial de agua en la atmósfera adyacente a las hojas desciende a valores relativamente muy bajos, se produce un aumento del flujo de agua y las columnas de savia pierden su continuidad, afectándose de esta forma la conductividad hidráulica en el xilema. Así la planta evita una excesiva pérdida de agua por vía estomática. Es decir, el embolismo xilemático, de cierta manera constituye un mecanismo adaptativo de la planta para no perder agua en exceso debido a la transpiración.

Este trabajo tiene como objetivo obtener una expresión matemática para simular el flujo vía xilema respecto a la presión sobre la columna de agua, a partir de hipótesis relacionadas con las características físicas de estos elementos conductores.

## 2 Presentación del modelo

Se considera un tubo cilíndrico de radio “r” y altura “h”, donde se aplica una diferencia de potencial de agua  $\Delta\Psi = \Psi(h) - \Psi(0)$ , donde  $\Psi(h)$  y  $\Psi(0)$  son el potencial de agua en  $x=h$  y  $x=0$  respectivamente. La presión “P” con la que la columna de agua es “empujada” hacia arriba es igual a:

$$P = -\Delta\Psi - \rho gh \quad (1)$$

donde  $\rho$  es la densidad del agua y  $g$  la aceleración de la gravedad. Para que exista un flujo o corriente de agua “I” ascendente, es necesario que  $P$  sea positiva, es decir,  $\Psi(h) < \Psi(0)$ , de modo que el valor negativo de  $\Delta\Psi$  sea modularmente mayor que  $\rho gh$ . Cuando el valor modular de esta presión es menor que cierto umbral “ $P_U$ ”, el valor de  $I$  (masa de agua por unidad de tiempo) satisface la ecuación:

$$I = \frac{-\Delta\Psi - \rho gh}{R_0} \quad (2)$$

donde  $R_0$  es la resistencia xilemática para valores de  $P$  menores que cierto valor umbral “ $P_U$ ”. Bajo estas condiciones, la resistencia xilemática se mantiene constante, sin embargo cuando  $P$  sobrepasa a  $P_U$ , el valor de la resistencia xilemática aumenta desde  $R_0$  hacia cierto valor  $R$ . Ello se debe entre otras causas a la presencia de ciertos orificios en las paredes de las traqueidas que forman estos vasos, lo cual permite la comunicación con los conductos vecinos.<sup>9</sup> Cuando se incrementa la tasa de transpiración disminuye el potencial de agua en el extremo superior, dando lugar a un incremento del potencial de agua negativo. Aunque aún no se han esclarecido del todo como se forman las burbujas de aire dentro de estos elementos conductores, se puede plantear que la tensión que provoca el gradiente de presión hidráulica debido a la transpiración, repercute en una fuerte ad-

hesión de la savia xilemática sobre las paredes de los vasos conductores, lo cual provoca que exista una mayor resistencia sobre las moléculas de agua que se encuentran lejos del eje central del cilindro y cerca de las paredes del mismo.

Esta presión sobre las paredes de las traqueidas, las cuales están cubiertas de poros, facilita no solo la incorporación de micropartículas de aire desde los referidos poros, sino que estas al interactuar dentro de una corriente de agua que fluye con una mayor presión de succión, pueden formar partículas cada vez mas grandes, hasta llegar a ser burbujas que afecten significativamente la continuidad de la columna de savia y por ende aumenta la resistencia hidráulica del xilema, hasta valores muy altos, inclusive  $R \approx \infty$ .

A partir de observaciones experimentales,<sup>4,10</sup> se va a considerar que dentro de la savia xilemática existen moléculas de aire que forman pequeñas microburbujas, las cuales no afectan notablemente la resistencia hidráulica para  $P < P_U$  y que estas se encuentran en la periferia del cilindro. Con el aumento de la presión de agua (por encima de  $P_U$ ) se produce un aumento de la velocidad media de las moléculas de agua. Al existir una mayor presión sobre la columna de savia,<sup>2</sup> estas pequeñas partículas de aire incrementarían la probabilidad de unirse unas con otras dando como resultado una mayor interacción entre ellas. De aquí proponemos que la unión de estas partículas de aire suspendidas dentro de la columna de agua, forma burbujas de diámetro cada vez mayor, las cuales sí afectan significativamente la Conductividad hidráulica.

Experimentalmente se ha podido comprobar la aparición de una fuerte adhesión de los líquidos a las superficies internas de estos tubos, así como la presencia de burbujas de aire en las mismas.<sup>3</sup> Por ello se considera además que las imperfecciones de las paredes del cilindro xilemático son tales, que permiten la presencia de las micropartículas de aire adheridas a las paredes del cilindro, las cuales pueden ser arrastradas hacia el flujo de agua solo cuando la tensión sobre las paredes es relativamente mayor.

El hecho de que las micropartículas de aire no afectan significativamente la Conductividad hidráulica, es justificado sobre la base de que el diámetro de estas es muy pequeño y que su nivel de interacción con las moléculas de agua que se elevan dentro del vaso, es mínima. Por el contrario, las burbujas de mayor diámetro pueden llegar a ocupar todo el ancho de la traqueida, rompiendo de esta forma la continuidad de la columna de agua e impidiendo que esta pueda ascender. Esto conlleva a pensar que el número  $N$  de burbujas que se forman a raíz del incremento de la presión negativa, debe arribar a cierto valor límite  $N_{MAX}$ . Se debe tener en cuenta además que el inicio de la formación de las burbujas ocurre debido al incremento de la tensión sobre la columna y que el aumento progresivo del embolismo xilemático, va propiciando la disminución de esta presión.

Todo ello puede conducir a la introducción dos postu-

lados para el establecimiento de una relación entre las variaciones de I respecto a incrementos de P, debido a la presencia de un aumento del número de burbujas dentro del vaso xilemático. En primer lugar se propone que la variación del número “N” de burbujas que se forman en el tubo, dependen de cierto coeficiente ‘a’ y de la diferencia entre el número máximo “N<sub>MAX</sub>” y N:

$$\frac{dN}{dP} = a(N_{MAX} - N) \quad (3)$$

Esta ecuación considera el hecho de que mientras más difieran N y N<sub>MAX</sub> (vaso sano), ante variaciones de la presión de succión, el valor de N aumenta. Sin embargo cuando N≈N<sub>MAX</sub> (vaso afectado), la formación de burbujas es menor, a pesar de que se continúe incrementando la presión negativa. La magnitud ‘a’ dependerá de las características propias del cilindro y en principio debe ser diferente entre especies, variedades y/o órgano de la planta.

La integración de (3) brinda una dependencia exponencial entre N y P que converge hacia N<sub>MAX</sub>. Los resultados experimentales que se han observado en algunas especies,<sup>10</sup> pueden justificar la introducción de (3) como vía para cuantificar la causa que origina la brusca disminución de la conductividad ante incrementos del valor modular de -ΔΨ. Como segundo postulado se plantea que el incremento de la resistencia R respecto a R<sub>0</sub> debe ser proporcional al aumento de N, ya que el embolismo incide directamente en ello. Esta relación la podemos escribir matemáticamente como sigue:

$$\frac{R - R_0}{R_0} = \frac{N_{MAX}}{N - N_{MAX}} e^{ab} \quad (4)$$

El coeficiente e<sup>ab</sup> es el factor de proporcionalidad, donde se elige a b como un número negativo debido a que en N=0, R≈R<sub>0</sub>.

Integrando (3) y sustituyendo en (4) se obtiene:

$$R = R_0 + R_0 \text{Exp}[a(P + b)] \quad (5)$$

Esta es la expresión para la resistencia xilemática en función de la presión P que se le aplica hacia arriba. De acuerdo con la ecuación de Hagen-Poiseuille:<sup>2</sup>

$$R_0 = \frac{8\eta}{\pi r^4 \rho} h \quad (6)$$

donde ρ y η son la densidad y viscosidad del agua, respectivamente.

Sea K la conductividad hidráulica del xilema (inverso de R) mientras que K<sub>0</sub> es el inverso de R<sub>0</sub>, de (5) se obtiene:

$$K = K_0 \frac{\text{Exp}[-a(P + b)]}{1 + \text{Exp}[-a(P + b)]} \quad (7)$$

Teniendo en cuenta que I=KP y la ecuación (1), se llega finalmente a la siguiente ecuación:

$$I = -K_0 (\Delta\Psi + \rho gh) \frac{\text{Exp}[a(\Delta\Psi - \Psi_0)]}{1 + \text{Exp}[a(\Delta\Psi - \Psi_0)]} \quad (8)$$

donde:

$$\Psi_0 = b - \rho gh < 0 \quad (9)$$

Para considerar el flujo total de agua por el tejido xilemático en el tallo, el valor de I que se obtiene de (8) se multiplica por el número “N” de elementos (vasos o traqueidas) que componen el tejido conductor (elementos conectados en paralelo). Cuando ΔΨ → -∞, I≈0, en cambio para valores de ΔΨ ≈ 0, la ecuación (8) se convierte en (2). ‘Ψ<sub>0</sub>’ se interpreta como el valor de ΔΨ necesario para reducir la conductividad hidráulica al 50% respecto a su valor inicial.

Los métodos empleados para cuantificar la Conductividad hidráulica con relación a la presión xilemática, utilizan la magnitud denominada Porcentaje de pérdida de conductividad (PLC) que se calcula según:<sup>11</sup>

$$\text{PLC} = \frac{K_{MAX} - K}{K_{MAX}} \quad (10)$$

Donde K<sub>MAX</sub> es la máxima Conductividad. De acuerdo con (8) se puede escribir:

$$\text{PLC} = \frac{100\%}{1 + \text{Exp}[a(\Delta\Psi - \Psi_0)]} \quad (11)$$

La cual coincide con la ecuación logística autocatalítica utilizada como ajuste para el PLC respecto a -ΔΨ,<sup>10</sup>.

### 3 Estimación y procesamiento de datos

Para realizar la simulación de la corriente I, se utilizaron datos estimados, constantes universales y valores obtenidos de la literatura, los cuales se exponen en la Tabla I.

Tabla I				
Valores de las magnitudes empleadas en la simulación				
Magnitudes Generales	Valor	Unidad		
Densidad del agua	1	g·cm <sup>-3</sup>		
Radio del cilindro (vaso)	5	μm		
Longitud del vaso	12	cm		
Viscosidad del agua	0.001	Pa·s		
Resistencia R <sub>0</sub>	3.06	MPa·s·g <sup>-1</sup>		
Conductividad K <sub>0</sub>	0.327	MPa <sup>-1</sup> ·g·s <sup>-1</sup>		
Constante de gravedad	9,8	m·s <sup>-2</sup>		
Magnitudes Específicas	Valor	Unidad		
	Verano	a	1.881	MPa <sup>-1</sup>
Eucalipto		b	-1.729	MPa
GC1*	Invierno	a	1.581	MPa <sup>-1</sup>
		b	-1.630	MPa
	Verano	a	1.660	MPa <sup>-1</sup>
Eucalipto		b	-1.853	MPa
GC2*	Invierno	a	1.450	MPa <sup>-1</sup>
		b	-1.676	MPa

(\*Se utilizaron datos correspondientes a los Clones GC1 y GC2 de *Eucalyptus grandis*.)

Para el cálculo de la corriente de agua total vía xilema se estimó (N=300 vasos).<sup>12</sup> En el caso de los coeficientes a y b, se utilizaron valores correspondientes a 2 clones de eucalipto (*Eucalyptus grandis* W. Hill ex Maiden. x camaldulensis Denhnh. híbridos GC1 y GC2),<sup>10</sup> cuya vulnerabilidad al embolismo fue evaluada durante las es-

taciones de verano e invierno.

## 4 Resultados y discusión

La figura 1 muestra el comportamiento del flujo de agua utilizando los valores de  $a$  y  $b$  de los clones GC1 y GC2 en dos estaciones (verano e invierno). Las curvas obtenidas por simulación de la ecuación (8) contienen tres zonas fundamentales. La zona I se corresponde a un comportamiento lineal análogo a la ley de Ohm para una porción del circuito (ecuación 2) la cual tiene lugar para valores de  $-\Delta\psi$  entre 0 y  $P_U$ . Una vez que el valor del potencial de agua sobrepasa el umbral, el valor de la corriente sigue aumentando aunque con mayor lentitud, y la curva pierde la linealidad hasta llegar a un valor máximo, donde luego comienza a disminuir.

Esos valores cercanos al extremo representan la zona II. Los cálculos realizados por vía computarizada proporcionaron valores de  $\Delta\psi_{MAX}$  (diferencia de potencial de agua que provoca que  $I$  sea máxima) de  $-1.45$  MPa para GC1 en ambas temporadas y  $-1.60$  y  $-1.50$  MPa para GC2 en verano e invierno respectivamente. Luego, existe una zona III en el rango desde  $-2$  hasta  $-5$  MPa aproximadamente, donde la curva decrece hasta hacerse igual a cero. En los puntos donde  $I$  resulta máxima, la curva de PCL posee un punto de inflexión.

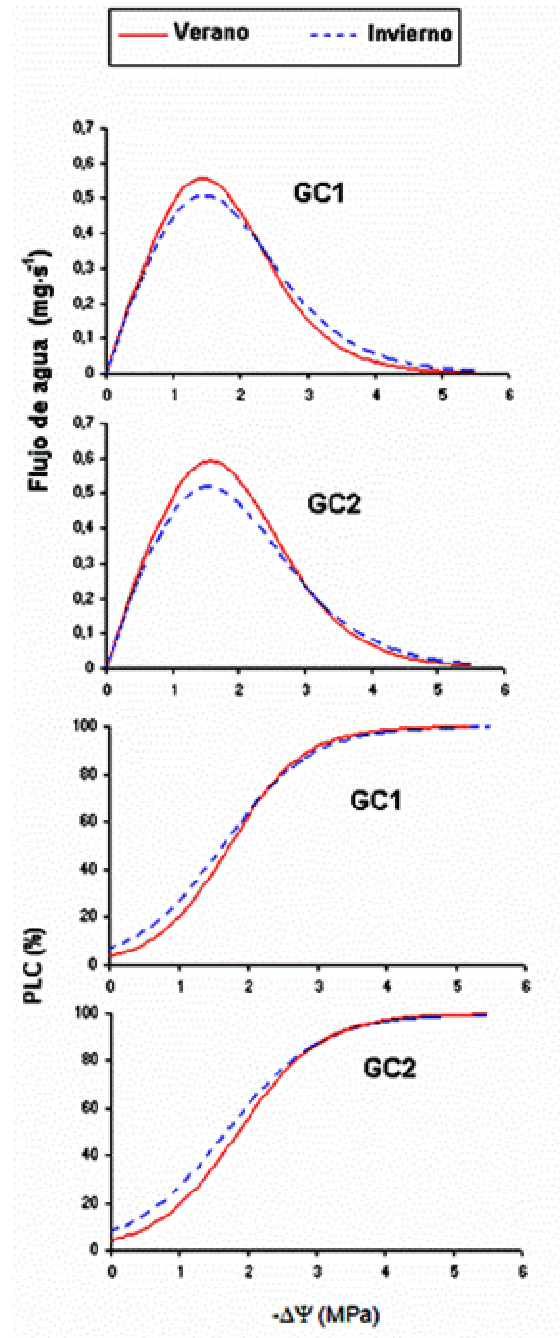
En figura 1 se muestra el comportamiento de acuerdo con (11) en los dos clones GC1 y GC2, el cual es muy similar al obtenido experimentalmente por Pammenter y Vander Willigen (1998).<sup>10</sup> Para valores de  $\Delta\psi$  por debajo de  $-5$  MPa, prácticamente no hay flujo de agua, por lo que los elementos del xilema han perdido casi el 100% de la conductividad inicial.

Generalmente, las plantas mantienen un nivel de  $\Delta\psi$  por encima del punto donde tiene lugar el fenómeno de la cavitación y por debajo de los valores que hacen que  $I \approx 0$ . La arquitectura hidráulica asociada a este estado de flujo controlado por medio del embolismo, es encontrada en un gran número de especies.<sup>13</sup> Este estado se caracteriza por poseer dos casos extremos: uno donde para valores de  $\Delta\psi$  relativamente altos se minimiza la susceptibilidad al embolismo mediante el cierre estomático, reduciendo de esta forma la tasa de transpiración. El otro caso se encuentra cerca de  $\Delta\psi_{MAX}$ , donde la planta mantiene el mayor valor de conductividad de agua en fase líquida.

Es decir, en la práctica las curvas se mantienen dentro de las zonas II y III, lo cual contrasta con la propia estructura de estos elementos que presuponen un comportamiento en la zona I, donde el flujo varíe linealmente respecto al potencial de agua (ecuación 2).

De igual modo se ha podido constatar experimentalmente que el flujo de agua no se describe por la ley de Hagen-Poiseuille (H-P) (ecuación 6) en cuanto a la relación entre la conductividad y la cuarta potencia del radio del capilar,<sup>13</sup> lo cual ocurriría si el proceso tuviera lugar en la zona I, en ausencia de embolismo. Tampoco la ley de H-P se cumple para el caso de ausencia de embolismo

(sin burbujas), debido a la presencia de los poros transversales a las paredes de las traqueidas. En este trabajo se empleó la ley de H-P como una vía aproximada para estimar los valores de  $K_0$ , (máxima conductividad), despreciando las imperfecciones de las paredes de los vasos conductores.



**Figura 1.** Curvas de flujo de agua y porcentaje de pérdida de conductividad utilizando los valores de los coeficientes  $a$  y  $b$  para los clones de eucalipto GC1 y GC2 (datos provenientes de Pammenter y Vander Willigen, 1998),<sup>10</sup> y valores estimados para las dimensiones de un vaso xilemático.

Según la hipótesis propuesta, el coeficiente “ $a$ ” representa la constante de incremento de las burbujas, que

implican una reducción significativa de la conductividad (Postulado 1). Los valores de la tabla II representan los valores del flujo máximo de agua y a que valor de  $-\Delta\psi$  esto ocurre.

**Tabla II**

Valores del potencial de agua  $-\Delta\psi_{MAX}$  donde se alcanza el valor máximo de flujo de agua\* ( $I_{MAX}$ ), para diferentes valores del parámetro 'a'.

a (MPa <sup>-1</sup> )	$-\Delta\psi_{MAX}$ (MPa)	$I_{MAX}$ (g·s <sup>-1</sup> )
0.75	1,855	0.393
1.00	1,555	0.348
1.25	1,305	0.325
1.50	1,155	0.313
1.75	1,050	0.308
2.00	1.000	0.307
2.25	0,950	0.308

\*Los valores fueron obtenidos por simulación de la ecuación (8), utilizando los datos de las magnitudes generales de la Tabla I, para b = -1 MPa.

Para valores altos de 'a', ' $-\Delta\psi_{MAX}$ ' disminuye, es decir, N tiende a  $N_{MAX}$  con mayor rapidez, ante incrementos de la tensión entre los extremos del xilema. Sin embargo, el valor del flujo de agua por unidad de tiempo, aunque disminuye también, tiende a estabilizarse cerca de 307 mg·s<sup>-1</sup>. Es decir, el aumento de la cinética de formación de las burbujas, va a afectar el movimiento de la columna de aire hasta cierto límite, aunque dicho límite se alcance con una presión negativa cada vez menor.

El hecho de que algunas especies sean más vulnerables al embolismo dependerá de la frecuencia de poros en las paredes de las traqueidas, ya que aquellas con una mayor comunicación con los vasos vecinos, poseen una mayor probabilidad de recibir burbujas de aire desde vasos afectados.<sup>2</sup> Por ejemplo, en el abeto balsámico (*Abies balsamea*), el embolismo total ocurre entre -2 y -3 MPa aproximadamente, mientras que el cedro de Virginia (*Juniperces virginiana*) posee un potencial umbral de -4 MPa y aún a -10 MPa, el 10% del agua que transpira lo hace por conductos intactos. Otro aspecto que influye es el diámetro de las traqueidas, que varían entre 10 y 50  $\mu$ m y dependen además, del grupo y/o familia de plantas a las que pertenezcan.

Los factores abióticos que influyen en la aparición del embolismo xilemático son muy diversos. La experiencia ha demostrado que durante el día, cuando la cantidad de agua transpirada por unidad de tiempo es mayor (apertura de los estomas), existe una mayor probabilidad de obtener un mayor número de vasos cavitados.<sup>13</sup> Se ha encontrado que en las plantas con una baja disponibilidad de agua en el suelo, la vulnerabilidad es aun mayor. El embolismo puede ser provocado además por el congelamiento de la columna xilemática.<sup>14</sup>

Sin embargo, esta situación de pérdida de conductividad, causada por la vulnerabilidad de estos sistemas al embolismo, es reversible y los vasos capilares de este te-

jido pueden volver a recuperar su continuidad. Este proceso de reparación consta de tres etapas.<sup>15</sup> Una se caracteriza por el movimiento de agua dentro de los conductos con embolismo. La segunda refiere el aislamiento de los vasos cavitados, de modo que alrededor de ellos exista un número considerable de vasos continuos que permitan una presión de agua lateral hacia los capilares afectados. Finalmente en la tercera etapa debe existir suficiente conexión entre estos vasos adyacentes, de modo que se facilite el flujo de agua desde estos, para que las burbujas sean rellenadas de agua.

El proceso de reparación del embolismo xilemático genera no pocas polémicas. Teniendo en cuenta las características físicas de estos tejidos y el proceso de disolución de las burbujas, la reparación de los vasos debe ocurrir solo cuando la presión positiva sobre estas exceda el límite  $P_R$ , el cual se calcula por:<sup>16</sup>

$$P_R = P_A - \frac{T_{SF}}{r_B} \quad (12)$$

Donde  $P_A$  es la presión atmosférica,  $T_{SF}$  la fuerza de tensión superficial del agua y  $r_B$  el radio de la burbuja. Sin embargo existen trabajos experimentales que demuestran que el rellenado de las cavitaciones ocurre no solo en presencia de presiones positivas, ni siquiera cuando la tensión negativa sobre la columna de agua es menor, sino también en presencia de una tasa de transpiración elevada.<sup>14</sup>

Cuando la planta posee una suficiente disponibilidad de agua en el suelo, la presión radical favorece el llenado de los vasos afectados. Esto pudiera justificar como las plantas pueden reparar el embolismo en horario diurno, donde el potencial de agua en las hojas decrece.

## 5 Conclusiones

A través de las consideraciones sobre las irregularidades de las traqueidas que componen los vasos xilemáticos en el tallo, se propone una expresión matemática para la formación de las burbujas que surgen como resultado de someter al elemento conductor bajo altas tensiones hídricas. A partir de ello se llega a una ecuación para la corriente de agua respecto al potencial de agua entre los extremos del vaso, la cual se acerca a la realidad experimental. Aunque los datos fueron obtenidos por medio de la simulación computarizada y valores estimados, el comportamiento de las curvas obtenidas arrojan resultados que pudieran ser utilizados para predecir el comportamiento de un gran número de especies de plantas superiores, ante situaciones de estrés hídrico.

## Referencias

1. J. Barceló, N. Rodrigo, B. Sabarter, y R. Sánchez, *Fisiología Vegetal*, (Ediciones Pirámide S.A., Madrid, 1992).
2. M. Schopfer, *Plant Physiology*, (Springer, Berlin Heidelberg, 1995).
3. C. Wei, E. Steudle and M.T. Tyree, Water ascent in plants: Do Ongoing Controversies have a sound basis, Trends in Plant

Sciences, Vol. 4 No. 9, p. 372-375, (1999).

4. T. Brodribb and R.S. Hill, Increases in Water Potential Gradient Reduce Xylem Conductivity in Whole Plants. Evidence from a Low-Pressure Conductivity Method, *Plant Physiology*, Vol. 123 No. 3, p. 1021-1028, (2000).

5. A. Nardini, M.T. Tyree and S. Salleo, S, Xylem Cavitation in the Leaf of *Prunus laurocerasus* and Its impact on Leaf Hydraulics, *Plant Physiology*, Vol. 125 No. 4, p. 1700-1709 (2001).

6. P.J. Melcher, M.A. Zwieniecki, and N.M. Holbrook, Vulnerability of Xylem Vessels to Cavitation in Sugar Maple. Scaling from Individual Vessels to Whole Branches, *Plant Physiology*, Vol. 131 No. 4, p. 1775-1780, (2003).

7. J.S. Sperry and M.T. Tyree, Mechanism of water stress-induced xylem embolism, *Plant Physiology*, Vol. 88 No 2, p. 581-587, (1988).

8. J.S. Sperry and U.G. Hacke, Analysis of Circular Bordered pit function I. Angiosperm vessels with homogeneous pit membranes, *American Journal of Botany*, Vol. 91 No. 3, p. 369-385, (2004).

9. J.R. Lancashire and A.R. Ennos, Modelling the Hydrodynamic Resistance of Bordered Pits, *Journal of Experimental Botany*, Vol. 53 No. 373, p. 1485-1493, (2002).

10. N.W. Pammenter and C. Vander Willigen, A mathematical and statistical analysis of the curves illustrating vulnerability of xylem to cavitation, *Tree Physiology* 18, p. 589-593,

(1998).

11. H. Cochard, L. Coll, X. Le Roux and T. Améglio, Unraveling the effects of Plant Hydraulics on Stomatal Closure during Water Stress in walnut, *Plant Physiology*, Vol. 128 No. 1, p. 282-290, (2002).

12. M.T. Tyree, S. Yang, P. Cruiziat and B. Sinclair, Novel Methods of Measuring Hydraulic Conductivity of Tree Root Systems and Interpretation Using AMAIZED, *Plant Physiology*, Vol. 104, p. 189-199, (1994).

13. H.S. Neufeld, D.A. Grantz, F.C. Meinzer, G. Goldstein, G.M. Crisosto, and C. Crisosto, C, Genotypic Variability in Vulnerability of Leaf Xylem to Cavitation in Water-Stressed and Well-Irrigated Sugarcane, *Plant Physiology*, Vol. 100 No. 3, p. 1020-1028, (1992).

14. M.E. McCully, Root Xylem Embolisms and Refilling. Relation to Water Potentials of Soil, Roots, and Leaves and Osmotic Potentials of Root Xylem Sap, *Plant Physiology*, Vol. 119 No. 3, p. 1001-1008, (1999).

15. M.A. Zwieniecki and N.M. Holbrook, Bordered Pit Structure and Vessel Wall Surface Properties. Implications for Embolism Repair, *Plant Physiology*, Vol. 123 No 3, p. 1015-1020, (2000).

16. J.S. Sperry, V. Stiller, and U.G. Hacke, Xylem Hydraulics and the Soil-Plant-Atmosphere Continuum, *Agronomy Journal*, Vol. 95, p. 1362-1370, (2003).

## Estudio teórico del espectro rovibracional del trímero de Argón

M. Márquez-Mijares<sup>a, b</sup>, J. Rubayo-Soneira<sup>a</sup>, R. Pérez de Tudela<sup>b</sup>, T. González-Lezana<sup>b,†</sup>, O. Roncero<sup>b</sup>, S. Miret-Artés<sup>b</sup>, G. Delgado-Barrio<sup>b</sup> y P. Villarreal<sup>b</sup>

a) Instituto Superior de Tecnologías y Ciencias Aplicadas, Ciudad de La Habana, Cuba

b) Instituto de Física Fundamental, CSIC, Madrid, España, tglezana@imaff.cfmac.csic.es

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 05/05/2009.

**Sumario.** El sistema  $\text{Ar}_3$  se ha estudiado mediante un método variacional cuántico exacto basado en la utilización de funciones Gaussianas distribuidas para describir las distancias interatómicas Ar-Ar. Este trabajo contiene el espectro de niveles rovibracionales del trímero para el caso en el que el momento angular total  $J$  sea 0 ó 1. Para describir la rotación, se ha empleado un método aproximado, donde las autofunciones radiales del caso estrictamente vibracional, se utilizan en la resolución aproximada del problema en el que  $J > 0$ . Además de los niveles energéticos, se han calculado las correspondientes constantes rotacionales asociadas a los mismos. Dos posibles métodos para obtener dichas constantes son analizados en detalle.

**Abstract.** The  $\text{Ar}_3$  system has been studied by means of an exact quantum mechanical variational method based in the use of distributed Gaussian functions to describe the interparticle Ar-Ar distances. This work includes the rovibrational levels spectra for the zero total angular momentum,  $J=0$ , case and for  $J=1$ . In order to describe the rotational part, we have used an approximate method in which the eigenfunctions obtained in the purely vibrational problem are employed in the solution of the  $J > 0$  case. Besides the energy levels, rotational constants have been calculated. Different approaches for the calculation of such constants are comparatively analysed.

**Palabras clave.** Variational methods in atomic physics, 31.15.xt, vibrational levels molecular 33.20.Tp

### 1 Introducción

El trímero  $\text{Ar}_3$  ha sido objeto de estudio en numerosas ocasiones. Así por ejemplo, el espectro vibracional y la estructura geométrica de los correspondientes estados ligados del sistema cuando el momento angular total es nulo,  $J=0$ , se han investigado empleando diferentes métodos teóricos<sup>1-12</sup>. Este sistema molecular, en comparación con los correspondientes trímeros formados por gases nobles más ligeros<sup>6,7</sup>, como el Helio, presenta estructuras rígidas y localizadas espacialmente. No es de extrañar, por tanto, que mucho del interés suscitado por

el  $\text{Ar}_3$  esté relacionado con la investigación del papel que juegan, en la función de energía potencial, los términos que describen interacciones de tres cuerpos<sup>1,4,9-17</sup>. En particular, en un estudio reciente realizado empleando un método cuántico variacional exacto en el que se emplean funciones Gaussianas distribuidas (FGD)<sup>18,19</sup> para describir la distancia interatómica que separa a cada par de átomos de Ar, se encontró que la inclusión de términos no aditivos de tres cuerpos puede modificar notablemente la estructura geométrica promedio de algunos de los estados ligados vibracionales<sup>9</sup>. Aparte del análisis del espectro puramente vibracional, existen intentos previos de

investigar aspectos relativos de la rotación de la molécula. Así, se han calculado las constantes rotacionales  $A$ ,  $B$  y  $C$  asociadas a diferentes niveles vibracionales<sup>4,9,10,15,20</sup>. También se han llevado a cabo cálculos del espectro rovibracional correspondiente, como el de la referencia [20], en el que se utilizaron coordenadas de Jacobi para obtener los estados ligados para  $J=1$ , o el trabajo reciente realizado por Kalický *et al.*<sup>15</sup> en el que se resolvieron, mediante un método exacto con coordenadas hiperesféricas, los casos de  $J=0-6$ .

En este trabajo se aborda el caso del trímero  $\text{Ar}_3$  para valores no nulos del momento angular total, en particular  $J = 1$ . Para ello, empleamos un método aproximado en el que el problema puramente vibracional ( $J=0$ ) se separa del rotacional ( $J > 0$ ). Así, tras resolverse el Hamiltoniano vibracional mediante el arriba mencionado método FGD, las autofunciones vibracionales correspondientes se emplean, junto con funciones rotacionales estándar  $|J\Omega M\rangle$  donde  $\Omega$  y  $M$  son las proyecciones de  $\mathbf{J}$  en los ejes  $z$  de los sistemas de referencia fijos al cuerpo y el espacio respectivamente, como base en la que diagonalizar el Hamiltoniano rovibracional. Este método ha sido utilizado recientemente<sup>21</sup> para este mismo sistema empleando el potencial de la referencia [15] en el que las contribuciones no-aditivas que describen términos de tres cuerpos se han obtenido mediante cálculos *ab initio*. Aquí emplearemos exclusivamente potenciales de pares para obtener los espectros rovibracionales del trímero  $\text{Ar}_3$  para los casos  $J=0$ , y 1. El cálculo de las constantes rotacionales se realiza evaluando los valores medios en los estados ligados vibracionales concretos. La viabilidad del método para la descripción de la rotación de  $\text{Ar}_3$  se discutirá comparando con los resultados de investigaciones previas en este sistema.

En la Sección 2 describiremos someramente la teoría del método utilizado; en la Sección 3 se presentarán y discutirán los resultados, y finalmente en la Sección 4 expondremos las conclusiones.

## 2 Teoría

Tal y como se ha comentado antes, la solución de la parte vibracional se obtiene mediante la aplicación del método FGD. El lector interesado en una descripción detallada de este método puede encontrar información suficiente en los artículos de revisión de las refs. [18,19] y las primeras aplicaciones del mismo en trímeros de gases nobles de las refs. [6,22]. En dicho procedimiento, se emplean coordenadas de pares  $(R_1, R_2, R_3)$ , en las que la función de onda total se expresa:

$$\Phi_k(R_1, R_2, R_3) = \sum_j a_j^{(k)} \phi_j(R_1, R_2, R_3) \quad (1)$$

donde las funciones de base  $\phi$  se escriben como producto de funciones Gaussianas,  $\varphi$ , como sigue:

$$\phi_j(R_1, R_2, R_3) = N_{l_1 l_2 l_3}^{-1/2} \varphi_{l_1}(R_1) \varphi_{l_2}(R_2) \varphi_{l_3}(R_3) \quad (2)$$

siendo  $N_{l_1 l_2 l_3}$  una constante de normalización. Cada

una de las funciones de base descritas en la Ec. (2) constituye una estructura triangular concreta. El total de la base utilizada está formado, por tanto, por una colección finita de triángulos. Para describir la parte rotacional, consideramos el Hamiltoniano del caso general de un trompo asimétrico<sup>23</sup>:

$$H_{rot} = \frac{1}{2}(A+C)J^2 + \frac{1}{2}(A-C)(J_A^2 + \kappa J_B^2 - J_C^2) \quad (3)$$

donde  $\kappa$  corresponde al factor de asimetría de Ray<sup>24</sup>, definido como  $\kappa = (2B-A-C)/(A-C)$ . La expresión de los elementos de matriz de  $H_{rot}$  en la base vibrotacional  $|k; J\Omega M\rangle$ , resulta ser diagonal en  $J$  y  $M$ , pudiéndose expresar como:

$$\langle k; J\Omega M | H_{rot} | k'; J'\Omega M' \rangle = \sum_{jj'} a_{jj'}^{(k,k')} \langle \varphi_j; \Omega | H_{rot}^{JM} | \varphi_{j'}; \Omega' \rangle \quad (4)$$

con  $a_{jj'}^{(k,k')} = a_j^{(k)} a_{j'}^{(k')}$ . Las integrales en cada una de las coordenadas radiales  $R_i$  presentes en los elementos de matriz de la ecuación (4) se resuelven, de forma aproximada, como el producto de los solapamientos de cada par de funciones Gaussianas en la correspondiente coordenada radial por el valor del Hamiltoniano rotacional,  $H_{rot}^* \equiv H_{rot}(R_1^*, R_2^*, R_3^*)$ , en las posiciones  $R_i^*$ <sup>18,19</sup>. Estos valores corresponden a los centros de las funciones Gaussianas obtenidas como producto de las dos FGD que intervienen, para cada coordenada radial, en la expresión (4). La matriz del Hamiltoniano rotacional es diagonal en los números cuánticos  $J$  y  $M$ , pero no en  $\Omega$ , que no constituye por tanto un buen número cuántico, sino aproximado, ya que tenemos:

$$\langle J\Omega M | H_{rot}^* | J\Omega' M' \rangle = \frac{A^* - C^*}{2} D^* \sqrt{f(J, \Omega \pm 1)} \delta_{\Omega \pm 2, \Omega'} + \left[ \frac{A^* + C^*}{2} J(J+1) + \frac{A^* - C^*}{2} [F^* J(J+1) + (G^* - F^*) \Omega^2] \right] \delta_{\Omega \Omega'} \quad (5)$$

donde el símbolo  $*$  indica que las correspondientes expresiones están evaluadas en las consiguientes coordenadas  $R^*$  definidas anteriormente. En la Ecuación (5) se han utilizado las constantes  $F = (\kappa + 1)/2$ ,  $D = (\kappa - 1)/2$  y  $G = -1$ , correspondientes a la base de un rotor casi oblat<sup>19</sup>, y se tiene el operador:

$$f(J, \Omega \pm 1) = \frac{1}{4} [J(J+1) - \Omega(\Omega \pm 1)] [J(J+1) - (\Omega \pm 1)(\Omega \pm 2)] \quad (6)$$

Para evaluar las constantes rotacionales  $(A, B, C)$  presentes en la ecuación (5), en este trabajo, hemos empleado dos métodos diferentes, cuyos esquemas y las consiguientes coordenadas empleadas se muestran en la Figura 1:

(i) **Método I:** (M1) utilización de las expresiones de ref. [25], obtenidas en un sistema de referencia en el que se satisfacen las condiciones de Eckart [26]:

$$A = \frac{\hbar^2}{2} \frac{\mu_1 R^2 \sin^2 \alpha + \mu_2 r^2 \sin^2 \beta}{\mu_1 R^2 \mu_2 r^2 \sin^2 \theta}, \quad B = \frac{\hbar^2}{2} \frac{\mu_1 R^2 \cos^2 \alpha + \mu_2 r^2 \cos^2 \beta}{\mu_1 R^2 \mu_2 r^2} \quad (7)$$

$$C = \frac{\hbar^2}{2} \frac{1}{\mu_1 R^2 + \mu_2 r^2};$$

y (ii) **Método 2:** (M2) utilizando las constantes rotacionales que se obtienen de la inversión del tensor momento de inercia en un sistema de ejes principales de inercia, con el eje  $z$  dirigido en la dirección perpendicular al plano de la molécula. En este caso tendremos:

$$A = \frac{3\hbar^2}{m} \left[ \sum_{i=1}^3 R_i^2 - 2 \sqrt{\sum_{i=1, j>i}^3 (R_i^4 - R_i^2 R_j^2)} \right]^{-1}$$

$$B = \frac{3\hbar^2}{m} \left[ \sum_{i=1}^3 R_i^2 + 2 \sqrt{\sum_{i=1, j>i}^3 (R_i^4 - R_i^2 R_j^2)} \right]^{-1}$$

$$C = \frac{3\hbar^2}{2m} \left[ \sum_{i=1}^3 R_i^2 \right]^{-1}$$

siendo  $m$  la masa del átomo de Ar. Esta última es la elección que se hizo en nuestro estudio de la ref. [21]. En M1, las expresiones de la Ecuación (7) aparecen en función de las coordenadas de Jacobi,  $r$  para la distancia Ar-Ar,  $R$  para la distancia del tercer átomo de Ar al centro de masas del diátomo Ar<sub>2</sub> y el ángulo  $\theta$  entre los vectores  $r$  y  $R$ . En este trabajo, hemos utilizado la conversión de dichas coordenadas a las distancias  $R_i$  empleadas en el método FGD, y más concretamente, los valores en las posiciones  $R_i^*$  del cálculo de los elementos de matriz de  $H_{rot}$ . Asimismo,  $\mu_1$  y  $\mu_2$  denotan las masas reducidas de los sistemas Ar<sub>2</sub> y Ar-Ar<sub>2</sub> respectivamente y los ángulos  $\alpha$  y  $\beta$  vienen dados por  $\beta = \alpha + \theta$  y  $\alpha = \arctan(\delta \cos\theta / (1 + \delta \sin\theta))$ , con  $\delta^2 = I_2 I_2^0 \cdot [I_1 I_1^0]^{-1}$ , donde los momentos de inercia  $I_i$  e  $I_i^0$  (este último correspondiente a la configuración de equilibrio en forma de T, mostrada en la figura 1 con círculos en línea discontinua), están asociados a las masas reducidas  $\mu_i$  definidas anteriormente. Nótese que el resto de constantes que aparecen en la Ecuación (5) puede obtenerse a partir de la terna  $A$ ,  $B$  y  $C$ , y por consiguiente, su cálculo queda sujeto a la elección que de entre los dos procedimientos aquí descritos se haga.

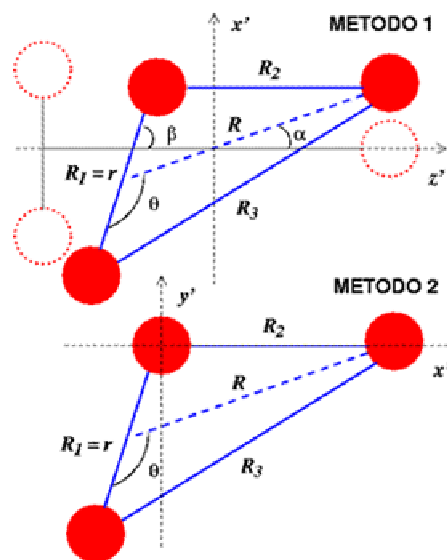
Aparte de la obtención de los espectros rovibracionales correspondientes a  $J=0$  y 1, en este trabajo sobre el trímero de Ar, también se han calculado valores de las constantes rotacionales para algunos de los estados ligados vibracionales. Para ello, se calcula el promedio de las expresiones (7) y (8) correspondientes a los métodos M1 y M2 respectivamente para cada nivel vibracional  $k$ . Para llevar a cabo esto, hacemos uso de los pseudopesos estadísticos  $P_j^{(k)}$  definidos <sup>6,18,19</sup> como

$P_j^{(k)} = a_j^{(k)} \langle \Phi_k | \phi_j \rangle$ . El valor medio de la constante asociado a un estado vibracional  $k$  es la suma de los productos del valor del pseudopeso para cada función triangular de nuestra base, por el valor de la constante en dicho triángulo. Otro procedimiento, no utilizado aquí, consiste en la utilización de expresiones analíticas en función de las constantes rotacionales para ajustar los espectros vi-

brotales para  $J > 0$  <sup>15,20</sup>.

Tal y como se describe en nuestro estudio previo sobre Ar<sub>3</sub>, debido a que en el método FGD no se impone la simetría total,  $\Gamma$ , en el cálculo de los espectros rovibracionales, es necesario asignar la misma a cada uno de los niveles energéticos. Se sigue para ello el procedimiento detallado en la ref. [21], trabajo en el que se puso de manifiesto su validez mediante comparación con la asignación realizada en un cálculo con coordenadas hipersféricas.

En este cálculo se ha utilizado el potencial de par Ar-Ar de Aziz de la ref. [27]. Se ha omitido, por consiguiente, cualquier término no-aditivo correspondiente a posibles efectos de tres cuerpos.



**Figura 1.** Esquema de las coordenadas utilizadas en los dos métodos para obtener las constantes rotacionales. Ver texto para más detalles.

**Tabla I**

Energías de los estados ligados de Ar<sub>3</sub> para  $J=0$ , obtenidos en este trabajo (en la 2ª columna). El índice  $k$  y la simetría total  $\Gamma$  se incluyen en la 1ª y 3ª columnas respectivamente. Los resultados de Wright y Hutson, se muestran en la 4ª columna.

$k$	$E (cm^{-1})$	$\Gamma$	$E (cm^{-1}) a$
1	-254.89	A <sub>1</sub>	-254.90
2,3	-232.37	E	-232.38
4	-224.28	A <sub>1</sub>	-224.29
5	-211.94	A <sub>1</sub>	-211.96
6,7	-211.82	E	-211.83
8,9	-205.03	E	-205.04
10	-198.24	A <sub>1</sub>	-198.25
11,12	-195.38	E	-195.40
13	-193.51	A <sub>1</sub>	-193.53
14	-190.20	A <sub>2</sub>	-190.22

a) Referencias [5,20].

### 3 Resultados



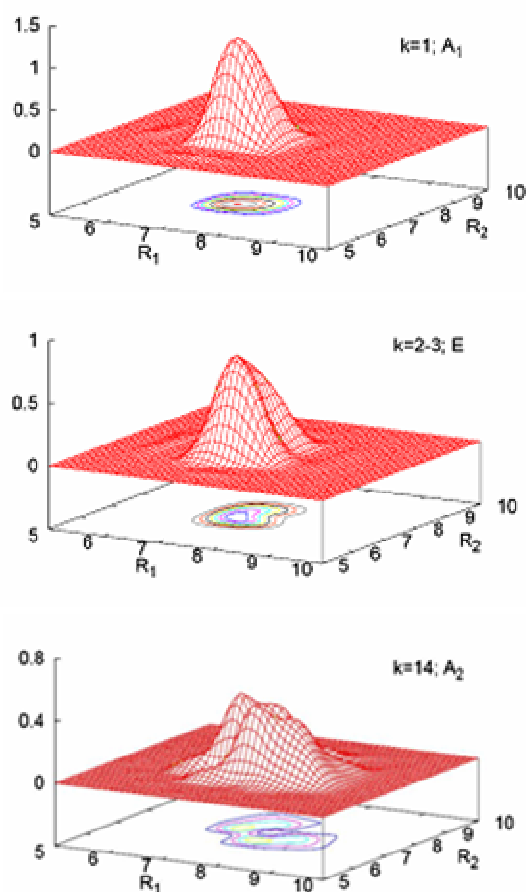
Nuestra investigación acerca del trímero  $Ar_3$  comienza con el cálculo del espectro puramente vibracional a  $J=0$ . En la Tabla I se presentan los correspondientes niveles energéticos en comparación con los obtenidos, con el mismo potencial en la refs. [5,20]. La simetría de cada uno de los estados, incluida también en la Tabla, se ha calculado siguiendo el procedimiento descrito en la ref. [21]. Tal y como se indica en ese trabajo, para el caso de  $J=0$ , es posible además discriminar entre las representaciones  $A_1$ ,  $E$  o  $A_2$  utilizando, en cálculos de FGD separados, bases, aparte de la aquí indicada en la Ec. (2), que incluyan el caso de dos y tres partículas idénticas. Así por ejemplo hay que indicar que el nivel  $k = 12$ , el único asignado a la representación  $A_2$ , es a su vez el único que aparece exclusivamente cuando se utiliza la base de la Ec. (2), en la que no se ha supuesto igualdad alguna entre las partículas que constituyen el trímero. De igual forma, en dicha base, los estados de la representación  $E$  ( $k = 2-3, 6-7, 8-9$  y  $11-12$ ) aparecen por duplicado. Finalmente aquellos estados asignados a la representación  $A_1$  ( $k = 1, 4, 5, 10$  y  $13$ ) son los únicos que aparecen cuando se consideran tres partículas iguales en la base del cálculo de FGD. La asignación mostrada en Tabla I es totalmente consistente con la de los trabajos previos de Wright y Hutson arriba mencionados, en los que los casos  $A_1$  y  $A_2$  quedaban separados en bloques diferentes (simétrico y antisimétrico) del Hamiltoniano expresado en coordenadas de Jacobi [5].

Por otro lado, en dichos trabajos, las dos componentes degeneradas correspondientes a la representación irreducible  $E$ , aparecen por separado, una en cada bloque. El acuerdo entre los resultados de este trabajo y los mostrados en las refs. [5,20] es muy bueno. Además, el valor obtenido para el estado fundamental, aquí denotado como  $k = 1$  es idéntico, en la precisión aquí escogida con el obtenido por Ernesti y Hutson [10].

En la Figura 2, se han representado las funciones de densidad de probabilidad radiales para el primer estado vibracional de cada una de las tres representaciones irreducibles  $A_1$ ,  $E$  y  $A_2$  en las coordenadas  $R_1$  y  $R_2$ , obtenidas mediante integración en la coordenada  $R_3$  del módulo al cuadrado de la función de onda total mostrada en la Ecuación (1). Una representación similar se mostró en la ref. [6], aunque en dicho trabajo las densidades de probabilidad correspondían exclusivamente al caso totalmente simétrico de la representación  $A_1$ . Para los tres ejemplos seleccionados aquí se observa una fuerte localización espacial, con máximos alrededor de  $7 a_0$ . Sólo, la densidad del estado  $k = 14$  parece extenderse hasta  $9 a_0$  en ambas coordenadas radiales.

Mediante la aplicación del método explicado en la Sección 2, se ha investigado además el caso de  $J=1$ . En la Tabla II se presenta el espectro rovibracional calculado con el método M2 para el valor de  $A$ ,  $B$  y  $C$ . Hay que hacer notar que las diferencias en los valores precisos de las energías observadas por utilizar bien el método M1 o el M2 aquí presentados sólo afectan a la tercera cifra decimal. Más sensibles a dicha elección sin embargo son, tal y como veremos posteriormente, los valores prome-

dio de las constantes rotacionales en cada uno de los estados vibracionales. En la Tabla II se han escogido los primeros niveles rovibracionales de las representaciones irreducibles incluidas en el grupo  $D_3$ :  $A_1', A_1'', A_2', A_2'', E'$  y  $E''$ , donde los grupos con ' (") corresponden a valores pares (impares) de  $\Omega$ . La comparación con los resultados de ref. [20] de los espectros rovibracionales a  $J=1$  se ve dificultada por la omisión, en dicho trabajo, del valor correspondiente de  $\Omega$ . Tampoco se dice nada acerca de la simetría total de cada nivel, y la información acerca de la presunta simetría vibracional de cada uno de ellos, no corresponde con la asignación, contrastada por otro lado con el resultado de cálculos exactos en coordenadas hiperesféricas, realizada con el método de FGD. A pesar de ello, el acuerdo mostrado en la Tabla II para las energías de los niveles es ciertamente bueno.



**Figura 2.** Densidades de probabilidad radiales correspondientes a los estados  $k = 1$  (arriba),  $2-3$  (centro) y  $k = 14$  (abajo), primeros estados ligados de  $J=0$  de las representaciones irreducibles  $A_1$ ,  $E$  y  $A_2$  respectivamente. Las unidades de las distancias son  $a_0$ , y las de las densidades de probabilidad  $a_0^{-1}$ .

Nuestro estudio del espectro rovibracional del trímero de Argon se completa con la obtención de las constantes rotacionales asociadas a los primeros estados vibracionales, cuyas energías se mostraron en la Tabla I. Los resul-

tados obtenidos mediante los métodos M1 y M2, se muestran en la Tabla III. En dicha Tabla se han incluido los resultados obtenidos en la ref. [20], donde las expresiones utilizadas para el cálculo de las constantes rotacionales no son, sin embargo, ni las de la Ecuación (7) ni la (8), sino las obtenidas por Hutson *et al.*<sup>28</sup>. En el trabajo de Ernesti y Hutson de la referencia [10], sin embargo, las constantes rotacionales se calcularon mediante el método M1, llegándose a un resultado idéntico al que se presenta en la Tabla III para el estado vibracional fundamental obtenido en el estudio de la ref. [20].

El acuerdo entre las predicciones del presente cálculo de FGD y los resultados de Wright es muy bueno. La máxima diferencia es de unos 3 MHz en los casos más desfavorables para el valor de  $\bar{B}$ , pero no supera nunca 1 MHz en el caso de C.

A la vista de la Tabla III se puede concluir que no existe diferencia alguna entre utilizar el método M1 y M2. Sin embargo, la dependencia con el método utilizado se hace mucho más evidente si, en vez de considerar su valor medio,  $\bar{B}$ , uno considera las propias constantes A y B. Aunque no se muestran en la Tabla III, al utilizar el método M1, en el que se satisfacen las condiciones de Eckart<sup>26</sup>, la diferencia entre los valores de A y B correspondientes a los estados ligados del problema vibracional,  $J = 0$ , es muy pequeña, de tal forma que se tiene que prácticamente  $A \sim B$  para todos los casos (con la única excepción de  $k = 13$ , para el que se llega a obtener que las dos constantes rotacionales difieren en casi 5 MHz). Los valores obtenidos con el método M2, en el que se hace uso de los momentos principales de inercia, por el contrario, lleva a diferencias de hasta varias decenas de MHz en la mayoría de los casos. En estudios previos<sup>10,15</sup> se ha considerado que la geometría promedio, al menos de los primeros estados vibracionales, es la de un trompo simétrico, en el que se verifica la cuasi estricta igualdad entre A y B. Únicamente, en el cálculo de la ref. [4] se encontraron diferencias entre ambas constantes rotacionales que iban desde 1 MHz para el estado fundamental, hasta los 40-50 MHz encontrados para los primeros estados de *bending* de las simetrías A' y A''. La comparación que se ha establecido aquí entre resultados obtenidos con los procedimientos M1 y M2 parece indicar que la condición de trompo simétrico se satisface cuando se utiliza un sistema de ejes que respete las condiciones de Eckart<sup>26</sup> (esto es, el método M1). A este respecto hay que señalar que el presente cálculo de FGD no impone de inicio, como se hace en trabajos previos, dicha igualdad, sino que en el Hamiltoniano rotacional utilizado, mostrado en la Ecuación (5) los valores de las constantes rotacionales no han de verificar condición alguna previa. Nótese que la dependencia de  $H_{rot}$  en la constante rotacional B aparece por medio del parámetro de asimetría  $\kappa$ , del que dependen a su vez las constantes F y D. Así, nuestro método difiere substancialmente de la elección adoptada en la ref. [15], en la que el cálculo de las constantes rotacionales se efectuó por medio de un ajuste a una expresión de los niveles de energía rovibracionales de un trompo si-

métrico en el que, por defecto,  $A = B$ . También en la ref. [20] se utilizó, como una de las posibles formas de determinación de las constantes rotacionales, dicha igualdad para poder ajustar los estados ligados para  $J=1$ .

**Tabla II**

Igual que en Tabla I para  $J=1$ . El valor de la componente de J a lo largo del eje z del sistema ligado al cuerpo,  $\Omega$ , para los niveles obtenidos en el cálculo FGD se incluye en la 2ª columna.

$\Gamma^a$	$k$	$\Omega$	$E (cm^{-1})$	$E (cm^{-1})^b$
$E''$	1	1	-254.80	-254.81
	2,3	1	-232.28	-232.34
$A_2'$	1	0	-254.77	-254.78
	4	0	-224.17	-224.18
$A_1''$	2,3	1	-232.28	-232.26
	6,7	1	-211.74	-211.72
$E'$	2,3	0	-232.25	-232.24
	6,7	0	-211.71	-211.69
$A_2''$	2,3	1	-232.28	-232.25
	6,7	1	-211.74	-211.84
$A_1'$	14	0	-190.09	-190.10

<sup>a)</sup> La asignación de simetría se refiere exclusivamente al cálculo de FGD <sup>b)</sup>Referencia [20].

**Tabla III**

Constantes rotacionales, en MHz, obtenidos mediante los métodos M1 (Ec. (7)) y M2 (Ec. (8)) correspondientes a los estados vibracionales  $k$ , mostrados en Tabla I para  $J=0$ .  $\bar{B}$  indica el valor medio  $(A+B)/2$ . El valor de C para el método M2 es idéntico al obtenido con M1.

$k$	M1		M2	Ref. [20]	
	$\bar{B}$	C	$\bar{B}$	$\bar{B}$	C
1	1740.5	862.5	1740.5	1741.3	862.2
2,3	1713.8	839.0	1713.8	1715.5	838.6
4	1693.4	832.5	1693.3	1694.4	832.3
5	1689.1	813.9	1689.1	1691.3	813.5
6,7	1687.9	811.1	1687.9	1690.1	810.6
8,9	1670.1	807.7	1670.1	1672.1	807.3
10	1666.8	785.1	1666.8	1668.8	784.8
11,12	1674.5	775.0	1674.5	1676.9	774.6
13	1654.2	790.3	1654.2	1655.9	790.0
14	1655.5	790.2	1655.5	1658.4	789.7

## 4 Conclusiones

En este trabajo hemos estudiado el espectro rovibracional del trímero Ar<sub>3</sub> mediante un método basado en la utilización de funciones Gaussianas distribuidas para describir las distancias entre átomos. El tratamiento supone la separación de la vibración respecto de la rotación. Una vez resuelta la primera, las autofunciones del espectro

puramente vibracional, esto es para  $J=0$ , se utilizan en la base en la que se diagonaliza el Hamiltoniano rotacional, para el que se ha escogido el correspondiente al caso general de un rotor asimétrico en el que las constantes rotacionales no guardan, en principio, relación alguna entre ellas. Para la expresión de las constantes rotacionales se han empleado dos posibilidades diferentes: por un lado se ha escogido un sistema de referencia definido por las condiciones de Eckart; por otro lado, las constantes se han obtenido utilizando los ejes principales de inercia con el eje  $z$  en la dirección perpendicular al plano de la molécula, en el que se diagonaliza el tensor de inercia. Las predicciones para las constantes rotacionales difieren, en un caso y otro, exclusivamente en la diferencia existente entre las constantes rotacionales  $A$  y  $B$ , pero no en el valor medio de las mismas ni en la constante  $C$ . La comparación con resultados previos utilizando el mismo potencial de pares Ar-Ar, revela un muy buen acuerdo.

La asignación de la simetría de los niveles de energía tanto para el espectro a  $J=0$  como  $J=1$ , se ha llevado a cabo mediante un procedimiento sugerido recientemente.

## Referencias

1. T. R. Horn, R. B. Gerber, J. J. Valentini and M. A. Ratner, *J. Chem. Phys.* 94, 6728 (1991).
2. S. W. Rick, D. L. Lynch and J. D. Doll, *J. Chem. Phys.* 95, 3506 (1991).
3. D. M. Leitner, J. D. Doll and R. M. Whitnell, *J. Chem. Phys.* 94, 6644 (1991).
4. A. R. Cooper, S. Jain and J. M. Hutson, *J. Chem. Phys.* 98, 2160 (1993).
5. N. J. Wright and J. M. Hutson, *J. Chem. Phys.* 110, 902 (1999).
6. T. González-Lezana, J. Rubayo-Soneira, S. Miret-Artés, F. A. Gianturco, G. Delgado-Barrio and P. Villarreal, *J. Chem. Phys.* 110, 9000 (1999).
7. D. Blume, C. H. Greene and B. D. Esry, *J. Chem. Phys.* 113, 2145 (2000).
8. D. Blume and C. H. Greene, *J. Chem. Phys.* 113, 4242 (2000).
9. I. Baccarelli, F. A. Gianturco, T. González-Lezana, G. Delgado-Barrio, S. Miret-Artés and P. Villarreal, *J. Chem. Phys.* 122, 144319 (2005).
10. A. Ernesti and J. M. Hutson, *J. Chem. Phys.* 103, 3386 (1995).
11. S. Garashchuk and J. C. Light, *J. Chem. Phys.* 114, 3929 (2001).
12. P.-N. Roy, *J. Chem. Phys.* 119, 5437 (2003).
13. C. Chakravarty, R. J. Hinde, D. M. Leitner and D. J. Wales, *Phys. Rev. E* 56, 363 (1997).
14. G. Chalasiński, M. M. Szcześniak and R. A. Kendall, *J. Chem. Phys.* 101, 8860 (1994).
15. F. Karlický, B. Lepetit, R. Kalus and F. X. Gadea, *J. Chem. Phys.* 126, 174305 (2007).
16. R. Bukowski and K. Szalewicz, *J. Chem. Phys.* 114, 9518 (2001).
17. A. Malijevský and A. Malijevský, *Mol. Phys.* 20, 3335 (2003).
18. T. González-Lezana, S. Miret-Artés, G. Delgado-Barrio, P. Villarreal, J. Rubayo-Soneira, I. Baccarelli, F. Paesani and F. A. Gianturco, *Comp. Phys. Comm.* 145, 156 (2002).
19. I. Baccarelli, F. A. Gianturco, T. González-Lezana, G. Delgado-Barrio, S. Miret-Artés and P. Villarreal, *Phys. Rep.* 452, 1 (2007).
20. N. J. Wright, PhD Thesis, Chem. Departm., Univ. of Durham, UK (1998).
21. M. Márquez-Mijares, T. González-Lezana, O. Roncero, S. Miret-Artés, G. Delgado-Barrio and P. Villarreal, *Chem. Phys. Lett.* 460, 417 (2008).
22. T. González-Lezana, J. Rubayo-Soneira, S. Miret-Artés, F. A. Gianturco, G. Delgado-Barrio and P. Villarreal, *Phys. Rev. Lett.* 82, 1648 (1999).
23. H. W. Kroto, *Molecular Rotation Spectra*, Dover Publications, New York (1992).
24. B. S. Ray, *Z. Phys.* 78, 74 (1932).
25. A. Ernesti and J. M. Hutson, *Chem. Phys. Lett.* 222, 257 (1994).
26. C. Eckart, *Phys. Rev.* 47, 552 (1968).
27. R. A. Aziz, *J. Chem. Phys.* 99, 4518 (1993).
28. J. M. Hutson, J. A. Beswick and N. Halberstadt, *J. Chem. Phys.* 90, 1337 (1988).

## Obtención de radiografías de fantasmas mamográficos de microcalcificaciones y fibrillas empleando un detector de silicio cristalino de microbandas

A. Leyva<sup>†</sup>, L. M. Montaña<sup>a</sup>, M. Fontaine<sup>a</sup>, A. E. Cabal, I. Piñera, A. Cerna<sup>a</sup>, C. M. Cruz y Y. Abreu

Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear, (CEADEN), Cuba; aleyva@ceaden.edu.cu

a) Centro de Investigaciones y Estudios Avanzados (CINVESTAV-IPN), México

<sup>†</sup>autor para la correspondencia

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 17/06/09.

**Sumario.** La radiografía digital desplaza paulatinamente su antecesora fílmica y como elemento clave en esta tendencia se encuentra el desarrollo de nuevos detectores de radiaciones con cada vez mejores propiedades. Un detector de silicio cristalino de microbandas diseñado para investigaciones de la Física de las Altas Energías es evaluado con vista a su posible introducción de mamografía digital. El dispositivo se caracterizó eléctrica y espectrométricamente. También, utilizando fantasmas de microcalcificaciones y de fibrillas se realizaron pruebas de obtención de imágenes radiográficas. Los resultados obtenidos fueron satisfactorios y revelan la potencialidad de este tipo de detector para ser introducido en aplicaciones como la mamografía digital.

**Abstract.** The digital radiography gradually displaces its filmic predecessor and in this behavior the development of new radiation detectors with better properties plays an essential role. A microstrips crystalline silicon detector designed for High Energies Physics researches is analyzed as detector for digital mammography. With this objective the detector was electrically and spectrometrically characterized. Also, using phantoms of fibrous structures and microcalcifications, were carried out experiments in order to obtain digital radiographic images. The obtained results were satisfactory and reveal the potentiality of this detector to be introduced in the digital mammography.

**Palabras clave.** Detector semiconductor 29.40.Wk, radiografía digital 87.59.bf, imagen médica 87.57.-s, mamografía 87.59.E.

### 1 Introducción

El empleo de los detectores de radiación en la imagenología médica en sustitución de las clásicas películas fotográficas reporta considerables ventajas, tanto para la técnica de diagnóstico, como para el paciente. Entre estas superioridades se cuentan la de obtener la imagen de manera digitalizada e instantánea con una mejor resolución y contraste, el fácil

almacenamiento, la transmisión vía telefónica, la duplicación sin pérdida de la calidad de las imágenes obtenidas y la reducción del tiempo de exposición del paciente a los rayos X.<sup>1,2</sup>

Es por ello que numerosos laboratorios del mundo investigan en este campo con el fin de introducir en la radiología médica los detectores que en un inicio se concibieron para las investigaciones de la física de las altas energías.<sup>3,4,5,6</sup>

En la actualidad ya aparecen en el mercado sistemas de radiografía que utilizan detectores semiconductores para el registro de los rayos X, pero se siguen concentrando esfuerzos en la fabricación de detectores mucho más eficientes y la optimización e integración de los sistemas de detección y la electrónica asociada.<sup>7,8</sup>

A continuación se presentan los resultados obtenidos en el estudio de un detector de microbandas de silicio cristalino desarrollado para investigaciones experimentales de Física de las Altas Energías en los marcos de una colaboración entre varias instituciones europeas y latinoamericanas que aúnan esfuerzos con vistas a introducir este tipo de dispositivos en la mamografía y la angiografía digital.<sup>6</sup> Como principal resultado de la caracterización realizada se presentan las primeras imágenes radiográficas de diferentes fantasmas de mamografía obtenidas en el laboratorio.

## 2 Materiales y métodos

El detector semiconductor de silicio se muestra en la foto de la figura 1 y está constituido por 64 microbandas conectadas directamente a un circuito integrado de aplicación específica RX64, que, operando mediante una arquitectura binaria, cumple para cada canal las funciones de preamplificador sensible a carga, conformador de pulso y discriminador por amplitud de pulso.

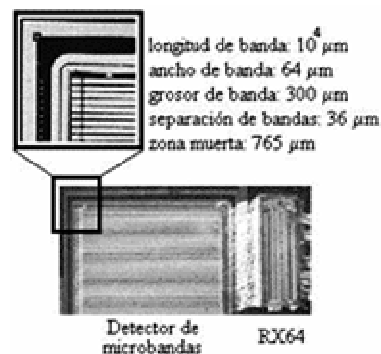
El detector y la electrónica de lectura se conectaron a una tarjeta de adquisición de datos PCI 1200 I/O acoplada a una computadora personal. Detalles sobre el funcionamiento y las características del detector pueden ser consultados en [9].

Los parámetros óptimos de amplificación y de conformación del RX64 se determinaron experimentalmente y resultaron de 35 y 60 DAC respectivamente (la conversión de DAC a mV se realiza multiplicando por el valor del bit menos significativo, que en el caso del conversor de calibración es 0.94 y del comparador 2.47).

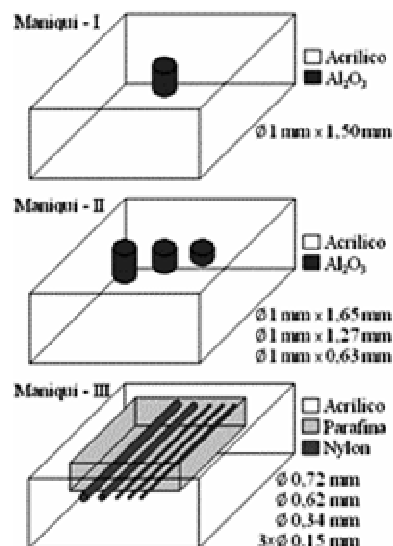
Las pruebas de obtención de imágenes se llevaron a cabo con el empleo de tubos emisores de rayos X con ánodos de Cu (8 keV) y de Mo (18 keV), con un voltaje de aceleración de 20 kV en todos los casos. El método empleado para obtener las imágenes bidimensionales fue el de barrido con una geometría detector-fuente del tipo frontal y colimación del haz de 100  $\mu\text{m}$ .

Una representación esquemática de los tres fantasmas mamográficos utilizados se muestra en la figura 2. Éstos fueron construidos partiendo de los datos que se reportan en la literatura para los fantasmas mamográficos de acreditación ([www.cirsinc.com](http://www.cirsinc.com)). Para simular las microcalcificaciones se utilizó el  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en forma de cilindros de diferentes diámetros y grosores, embebidos en una matriz acrílica de 2 mm de grosor y densidad similar a la del tejido adiposo-glandular. Las fibrillas se simularon de manera similar, representándolas mediante hilos de nylon de diferentes diámetros en una matriz de

parafina y ésta a su vez embebida dentro de otra matriz de acrílico. Las dimensiones de cada detalle del fantoma se indican en la propia figura.



**Figura 1.** Detector de silicio cristalino de 64 microbandas con RX64.



**Figura 2.** Fantasmas de mamografía de microcalcificaciones y fibrillas.

El procesamiento matemático de todos los datos numéricos registrados, así como su presentación en forma de imágenes en los casos que corresponde se realizó con el empleo del sistema de códigos Origin v.7.0 ([www.OriginLab.com](http://www.OriginLab.com)).

## 3 Análisis de los resultados

Las mediciones realizadas en régimen de calibración mostraron que el valor medio de la ganancia del detector era de 62.4  $\mu\text{V}/\text{el}$  con una fluctuación de 0.1  $\mu\text{V}/\text{el}$ , mientras que el valor medio del corrimiento de la salida del comparador era de 3.3 mV, con una fluctuación de 0.6 mV. Por último se determinó experimentalmente que el ruido de carga equivalente del sistema era de 153.7 el. rms con una fluctuación de 1.04 el. rms, valor de ruido que garantiza que la relación señal/ruido del sistema se mantenga por encima de 10 para energías de los fotones incidentes superiores a 5.5 keV, lo que resulta muy importante si tenemos en cuenta que en mediciones de

rayos X el uso de estos dispositivos está limitado a un determinado rango de energías, que va precisamente desde alrededor de 5 keV hasta algunas decenas de keV.

La calibración energética del sistema se realizó para cada uno de los canales del detector utilizando un conjunto de fuentes patrones y en la figura 3 se muestra el espectro resultante de la medición identificándose las energías de cada uno de los picos más importantes, así como el isótopo correspondiente. El ajuste matemático de esta calibración mostró una buena linealidad ( $R = 0,99955$ ) que garantiza el empleo confiable del detector para realizar evaluaciones espectrométricas.

A partir de estos resultados preliminares se concluyó que el detector en estudio pudiera ser empleado en la imagenología médica para la realización de estudios radiográficos, procediéndose entonces a la realización de las pruebas con los fantasmas de una de las aplicaciones de interés, la mamografía digital.

La figura 4 presenta la radiografía obtenida del Fantoma - I tomada con el tubo de Cu. Obsérvese que la calidad de la imagen mostrada es satisfactoria y la microcalcificación se destaca perfectamente sobre el fondo oscuro correspondiente a la matriz de acrílico donde los fotones son menos absorbidos. La radiografía del fantoma con tres microcalcificaciones (Fantoma - II) tomada en idénticas condiciones que el fantoma anterior es mostrada en la figura 5. También ahora aparecen bien definidos los detalles del fantoma; las tres incrustaciones se aprecian en diferentes tonalidades del gris que se corresponden con los diferentes grosores de estos detalles.

En estas dos imágenes los contrastes son muy buenos al estar favorecidos por la amplia diferencia existente entre las densidades de los materiales que componen el fantoma  $\frac{\rho_{Al_2O_3}}{\rho_{acrílico}} = 3,26$ , sin embargo para el caso de las estructuras fibrosas, esta diferencia es muy pequeña, pues  $\frac{\rho_{Nylon}}{\rho_{acrílico}} = 1,05$ .

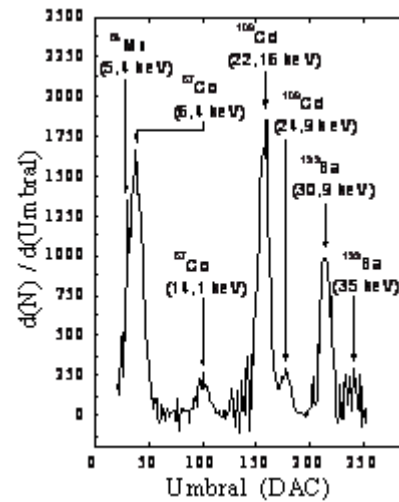
En la figura 6 se presentan los resultados obtenidos al ser radiografiado con el tubo de Mo el Fantoma - III de fibrillas para tres diferentes condiciones experimentales. Las imágenes obtenidas permiten observar perfectamente los detalles del modelo, a pesar de la mencionada cercanía entre las densidades másicas de los materiales que lo componen.

Con el aumento del número de pasos crece el área abarcada del fantoma y con el aumento del tiempo de adquisición ( $t_{adq}$ ) se favorece la relación señal ruido, mejorando así el contraste de la imagen.

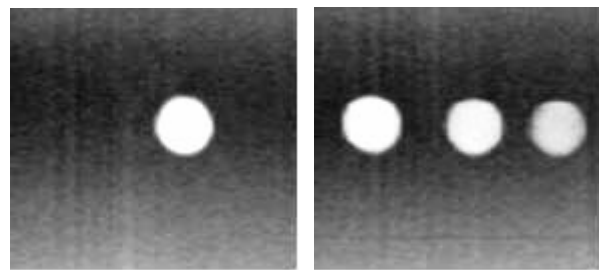
Obsérvese en la imagen de la figura 6 (c) las 6 fibrillas, incluidas las de 0,15 mm de diámetro, dimensiones menores que las que se exigen en los fantasmas de acreditación (www.cirsinc.com).

De este modo se confirma la potencialidad del nuevo detector de microbandas estudiado como dispositivo sensor de los rayos X en aplicaciones de imagenología,

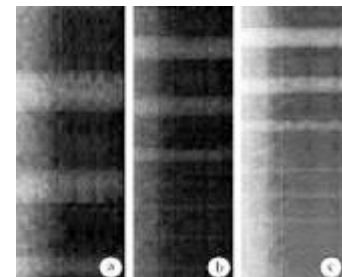
específicamente en mamografía digital.



**Figura 3.** Espectro de energías por umbral de detección para cuatro fuentes radioisotópicas.



**Figuras 4 y 5** Imagen radiográfica de fantoma de mamografía con una y tres microcalcificaciones respectivamente.



**Figura 6.** Imágenes radiográficas del fantoma de fibrillas tomadas con  $t_{adq} = 10$  s y 60 pasos (a, izq.),  $t_{adq} = 10$  s y 100 pasos (b, centro) y  $t_{adq} = 30$  s y 120 pasos (c, der.).

A modo de referencia, los resultados obtenidos con estos detectores de avanzada pueden ser comparados por ejemplo con los resultados de otros trabajos reportados en [10,11,12].

## 4 Conclusiones

Un detector de microbandas de 64 canales y circuito integrado RX64 fue caracterizado, determinándose que sus principales parámetros de detección son adecuados para la realización de mediciones con vistas a su

aplicación en la imagenología médica digital, específicamente la mamografía y la angiografía, donde se emplean rangos de energías para los cuales este dispositivo funciona satisfactoriamente, con una buena ganancia y bajo ruido. Las pruebas de obtención de imagen radiográficas de fantasmas mamográficos de microcalcificaciones y fibrillas mostraron resultados satisfactorios que corroboran esta afirmación.

## Agradecimientos

Los autores quieren expresar el agradecimiento por el soporte financiero brindado por los programas Alfa de la UE, CONACYT de México y PRN de la AENTA de Cuba.

## Referencias

1. J. P. Moy, Nucl. Instr. and Meth. A, 442, 26, (2001).
2. R. L. Morin and J. A. Seibert, Journal of the American College of Radiology, 2, 3, 287, (2005).
3. S. Midgley, A. Berry, N. Benci, S. Morton, D. Phillips, P. Smith, S. Troja and R. Lewis, Nucl. Instr. and Meth. A, 573 1, 129, (2007).
4. E. H. M. Heijne, Nucl. Instr. and Meth. A, 571 1, 7, (2007).
5. U. L. Olsen, X. Badel, J. Linnros, M. Di Michiel, T. Martin, S. Schmidt and H. F. Poulsen, Nucl. Instr. and Meth. A, 576, 1, 52, (2007).
6. J. F. Condeles, T. Ghilardi Netto and M. Mulato, Nucl. Instr. and Meth. A, 577, 3, 724, (2007).
7. P. Grybos, Meas. Sci. Technol., 18, 2465, (2007).
8. A. Gabrielli, Meas. Sci. Technol., 19, 85101, (2008).
9. D. Bollini, A. E. Cabal, W. Dabrowski, A. Diaz, M. Gambaccini, P. Giubellino, P. Grybos, M. Idzik, A. Marzari-Chiesa, L. M. Montano, F. Prino., L. Ramello, M. Sitta, K. Swientek, R. Wheadon and P. Wiacek, Nucl. Instr. and Meth. A, 515, 3, 458, (2003).
10. Digital Mammography, Proceedings of 9<sup>th</sup> International Workshop, IWDM'08, July 20-23, Springer Berlin/Heidelberg publisher, 5116, (2008).
11. Engineering in Medicine and Biology Society, 2006. EMBS'06. 28th Annual International Conference of the IEEE, Aug. 30 2006-Sept. 3, IEEE publisher, (2006).
12. Pisano E. D., and Yaffe M. J., Radiology, 234, 353, (2005).



## Criterios físicos para el estudio de la compresión con pérdidas en la imagen médica digital: revisión del tema

J. Paz y M. Pérez

Centro de Estudios de Electrónica y Tecnologías de la Información, Universidad Central “Marta Abreu” de las Villas; jpaz@uclv.edu.cu

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 03/04/2009.

**Resumen.** Se realiza un estudio de la calidad de imagen que se obtiene tras la compresión con pérdidas. Se enfoca un problema abierto de investigación, dirigido hacia el establecimiento de criterios objetivos para estimar el nivel de pérdidas durante la compresión, utilizando métricas tales como el Error Cuadrático Medio (MSE), la Relación Señal-Ruido máxima (PSNR), la relación Contraste-Ruido (RCR), el Índice de Similitud Estructural (SSIM index), Medidas de Distancia, basadas en la descomposición en valores singulares de la matriz imagen, medidas de correlación y espectrales. Se realiza además una revisión de los enfoques físicos de predicción de calidad de imagen a partir de utilizar observadores matemáticos como el de Hotelling en su forma de ventana (HO), en sus formas canalizadas (CHO y LGHO) y el del filtro acoplado no equalizador (NPWE). Finalmente, se analiza el enfoque subjetivo de análisis de calidad de imagen realizada a partir de análisis ROC basado en Curvas de Rendimiento Diagnóstico.

**Abstract.** The evaluation and description of image quality after applying lossy compression is described. It remains an open research issue in the sense of finding an objective criterion to stop lossy compression at a maximum level of compression with a minimum distortion. This value is found by implementing a set of quantitative bivariate measures such as the Mean Square Error (MSE), the Peak Signal to Noise Ratio (PSNR), the Structural Similarity index (SSIM index) and the Spectral Distance among others. A review is also done about the physical meaning of prediction algorithms for quality comparison such as the Hotelling Observer (HO), the channelized forms (CHO and LGHO), and the Non-Prewhitened Matched Filter (NPWE). Finally, the subjective evaluation of image quality is investigated through ROC analysis based on diagnostic performance curves.

**Palabras clave.** Digital imaging, image processing algorithms, 07.05.Pj

### 1 introducción

Una imagen médica es la representación gráfica de una estructura, región, órgano, o tejido del cuerpo humano que se obtiene a través de procesos físicos y computacionales ordenados para este fin.<sup>1,2</sup> Uno de los factores que incide en la calidad y cantidad del tráfico que se genera en una red de intercambio de imágenes, está relacionado con el tamaño de los ficheros que las

contienen.

Como se observa en la tabla 1, el volumen de estos datos puede complicar las tareas de almacenamiento y/o transmisión de estas imágenes<sup>3,4</sup>. Si se necesita almacenar la mayor cantidad de estudios por el mayor tiempo posible, o transmitir éstos con mayor efectividad y en menor tiempo, se hacen necesarios entonces los algoritmos de compresión o *códecs* y en particular los *códecs* con pérdidas.



La tasa de compresión (TC) que puede lograrse se mide mediante la expresión:

$$TC(\text{veces}) = \frac{T_{\text{Inicial}}}{T_{\text{Final}}}, \quad (1)$$

donde  $T_{\text{Inicial}}$  y  $T_{\text{Final}}$  son los tamaños de la imagen sin compactar y compactada respectivamente. La norma actual para la compresión con pérdidas de imágenes digitales es JPEG 2000, adoptado por DICOM (*Digital Imaging Communications in Medicine*), protocolo que regula el manejo e intercambio de datos e imágenes la medicina.<sup>5,6</sup>

La mayor desventaja de utilizar un códec con pérdidas radica en la cantidad de información que se elimina sin poderse recuperar más tarde de la data compactada<sup>7</sup>. Es de esperar que para cada tipo de imagen médica exista un valor de TC con el que se reduce al mínimo el espacio necesario para almacenarla, manteniendo en ella una calidad necesaria para diagnóstico. Este es un tema abierto de investigación hoy, común tanto para la Física Médica como para el Procesamiento Digital de Imágenes en general. En este caso el problema gira alrededor de la calidad de la imagen posterior a la compresión con pérdidas.

## 2 Calidad de la imagen médica digital

Históricamente, y gracias al surgimiento y desarrollo de otras disciplinas como la microscopía, la astronomía y la fotografía, se han establecido un conjunto de procedimientos, algoritmos y mediciones directas de tipo objetivo y subjetivo sobre las imágenes con el fin de tener un estimado global de su calidad.<sup>8</sup> Ésta se expresa en términos de los parámetros físicos tales como resolución espacial, ruido, contraste así como diferentes tipos de distorsiones. El conjunto de métricas objetivas y subjetivas utilizadas para medirla, se refieren al modo concreto de cuantificar uno o más de estos parámetros. Sin embargo, no se ha logrado definir cuál es la medida o el conjunto de ellas por las cuales juzgar los esquemas de compresión con pérdidas o determinar umbrales apropiados para cada tipo de imagen médica y protocolo de adquisición.<sup>9</sup>

**2.1 Medición de calidad de imagen a partir de medidas objetivas.** El conjunto de medidas de calidad que se presenta a continuación se han estado utilizando para evaluar calidad de imagen en estos casos.<sup>8-11</sup>

Entre las más utilizadas se encuentran las medidas de distancia y entre ellas la Relación Señal-Ruido (RSR) que puede definirse como:

$$RSR = \frac{S_{rms}}{N_{rms}}, \quad (2)$$

donde  $S_{rms}$  y  $N_{rms}$  son la raíz media cuadrática de la señal y el ruido respectivamente. Relacionada con esta magnitud puede estimarse la Ganancia en Relación Señal-Ruido como el incremento en la magnitud medido en *dB*, tras un determinado procesamiento con la imagen.

$$RSR(\text{dB}) = 10 \cdot \log_{10} \left( \frac{\sigma_x^2}{\sigma_e^2} \right), \quad (3)$$

donde  $\sigma_x^2$  es la varianza de la señal original;

$\sigma_x^2 = \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2$  con  $\bar{x} = \frac{1}{N} \cdot \sum_{i=1}^N x_i$  y  $\sigma_e^2$  es la varianza del error de reconstrucción medido con la diferencia entre la imagen sin compactar y compactada ( $e[n] = x[n] - \hat{x}[n]$ ). Si el error de reconstrucción no tiene valor medio  $e_i = 0$  entonces  $\sigma_e^2 = MSE$  (*Mean Square Error* o Error Cuadrático Medio).

$$\sigma_e^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (e_i - 0)^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \hat{x}_i)^2 = MSE \quad (4)$$

**Tabla 1**

Modalidades de imagen médica, tamaño de la matriz de imagen, profundidad de bits y espacio que ocupa en memoria.

Modalidad	Matriz	PB*	Tamaño**
Medicina Nuclear	128 x 128	8	16,384
Resonancia Magnética	256 x 256	12	98,304
Ultrasonido	256 x 256	8	65,536
Tomografía Compt.	512 x 512	12	393,216
Fluoroscopia	1024 x 1024	8	1,048,576
Radiografía Digital	2048 x 2048	12	6,291,456
Mamografía	4096 x 5120	12	31,457,280

\*PB : profundidad de bits [bpp], \*\* Tamaño [Bytes].

No obstante, un valor alto de esta magnitud no garantiza una buena percepción de la imagen.<sup>8,9,11</sup> A fin de distinguir los objetos circundantes importa más la diferencia entre sus contrastes que la intensidad propia de cada uno de ellos. Por este motivo se prefiere en muchas ocasiones la magnitud Relación Contraste-Ruido (RCR) en lugar de la RSR.

La expresión para esta magnitud puede definirse como:

$$RCR = 10 \cdot \log_{10} \left( \frac{\bar{x}}{\sigma_x} \right), \quad (5)$$

donde  $\bar{x}$  es el valor medio de las intensidades de píxel en la imagen o en una región de interés (ROI) y  $\sigma_x$  la desviación típica de la misma imagen o ROI.

Las medidas de tipo bi-variadas tales como la *MSE* en la ecuación 4, comparan la imagen sin compactar con la compactada para brindar un estimado de la distorsión que introduce el procesamiento realizado. En general pueden clasificarse en medidas de distancia, de correlación, espectrales y las que tienen en cuenta la forma en que el sistema visual humano (SVH) interpreta

la información que percibe.<sup>9</sup> A continuación se describen algunas de estas medidas:

Considerando  $F(i,j)$  y  $\hat{F}(i,j)$  las matrices que representan la imagen sin compactar y reconstruida luego de haber sido compactada, se puede calcular:

- la Distancia Media Absoluta (*MAD*) como:

$$MAD = \frac{1}{m \cdot n} \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n |F(i, j) - \hat{F}(i, j)|, \quad (6)$$

donde  $m$  es el número de filas y  $n$  es el número de columnas de la imagen.<sup>8</sup>

- la Relación Señal-Ruido máxima (PSNR):

$$PSNR(dB) = 10 \cdot \log_{10} \left( \frac{MAXp^2}{MSE} \right), \quad (7)$$

donde  $MAXp = 2^B - 1$  y  $B$  es la profundidad de bits de la imagen. Por ejemplo,  $MAXp = 255$  para una imagen de 8 bpp,

- la Ganancia en Relación Contraste-Ruido (*gRCR*) descrita por la expresión:

$$gRCR(dB) = 10 \cdot \log_{10} \left( \frac{RCR}{RCR_0} \right), \quad (8)$$

donde  $RCR$  y  $RCR_0$  son las magnitudes de la relación contraste-ruido de la imagen sin compactar y reconstruida respectivamente estimadas según la ecuación 5,

- la medida basada en la descomposición en valores singulares ( $M_{DVS}$ ) de la matriz de la imagen:

$$M_{DVS} = \frac{\sum_{i=0}^{\left(\frac{k}{n}\right) \times \left(\frac{k}{n}\right)} |D_i - D_{mid}|}{\left(\frac{k}{n}\right) \times \left(\frac{k}{n}\right)}, \quad (9)$$

donde:  $D_i = \sqrt{\sum_{i=1}^n (s_i - \hat{s}_i)^2}$  es la distancia entre los valores singulares de la imagen sin compactar ( $s_i$ ) y compactada ( $\hat{s}_i$ ) respectivamente y  $D_{mid}$  es el valor medio de los valores de  $D_i$ . Si  $n$  es el tamaño del bloque y la imagen es de dimensión  $k$  entonces existirán  $(k/n) \times (k/n)$  bloques<sup>9</sup>,

- las medidas de correlación (*Cor1*, *Cor2* y *Cor3*)<sup>10</sup> descritas por las expresiones:

$$Cor1 = \frac{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n F(i, j)^2}{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n \hat{F}(i, j)^2}, \quad (10)$$

$$Cor2 = \frac{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n F(i, j) \hat{F}(i, j)}{\sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n \hat{F}(i, j)^2}, \quad (11)$$

$$Cor3 = \frac{1}{m \cdot n} \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n \left( 1 - \frac{2 \cdot \min(F(i, j), \hat{F}(i, j))}{F(i, j) + \hat{F}(i, j)} \right), \quad (12)$$

- la distancia espectral (*SD*) descrita por la expresión:

$$SD = \frac{1}{m \cdot n} \sum_{i=1}^m \sum_{j=1}^n (\varphi(i, j) - \hat{\varphi}(i, j))^2, \quad (13)$$

donde  $\varphi(i, j)$  y  $\hat{\varphi}(i, j)$  son las componentes de fase de las transformadas de Fourier de  $F(i,j)$  y  $\hat{F}(i,j)$  respectivamente.

Por último, y no menos importante, está el índice de similitud estructural (*SSIM*) propuesto por Wang, *et al.*,<sup>11</sup> el que compara los patrones locales de intensidad de los píxeles que han sido normalizados por la luminancia y el contraste. Una forma de esta expresión es:

$$SSIM(x, y) = \frac{(2\mu_x \mu_y + C_1)(2\sigma_{xy} + C_2)}{(\mu_x^2 + \mu_y^2 + C_1)(\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + C_2)}, \quad (14)$$

donde  $\mu_i$  es el estimado de luminancia de la imagen  $i$ ,  $\sigma_i$  es el estimado del contraste en la imagen  $i$ ,  $C_1 = (K_1 L)^2$  y  $C_2 = (K_2 L)^2$  son constantes con  $K_1$  y  $K_2 \ll 1$  y  $L$  = rango dinámico de los píxeles. El valor medio sobre toda la imagen se obtiene mediante la expresión:

$$MSSIM(X, Y) = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^M SSIM(x_j, y_j), \quad (15)$$

donde  $X$  y  $Y$  son la imagen sin compactar y reconstruida respectivamente,  $x_j$  e  $y_j$  son los contenidos de cada imagen dentro de la ventana local  $j$ -ésima y  $M$  es el número de ventanas locales o bloques considerados<sup>11</sup>.

En relación con este resumen de medidas objetivas se debe enfatizar que históricamente estas se han reportado como poco correlacionadas con las opiniones de observadores humanos sobre la calidad de la imagen<sup>8-11</sup>. Por otro lado, las métricas basadas en SVH son técnicas en desarrollo que no han sido minuciosamente comparadas con el desempeño de un observador en aplicaciones médicas.<sup>10</sup>

En lo referente a la compresión con pérdidas, se estudia cómo el grado de compresión afecta el valor de estas métricas, proponiendo detener la compresión cuando la calidad de imagen (medida en estos términos), comienza a afectarse significativamente. La toma de decisiones sobre el valor de compresión óptimo a utilizar no dependerá en ningún caso de métricas de este tipo. Este valor sólo puede ser estimado mediante el empleo de observadores humanos expertos calificados y certificados para esta tarea específico de cada tipo de imagen médica y cada protocolo de adquisición. La figura 1 muestra un ejemplo de la utilización de este tipo de criterio físico para detener compresión en imágenes de cerebrales de RM de 512 x 512 píxeles 16 bpp.

**2.2 Medición de calidad de imagen a partir de observadores matemáticos.** La calidad de la imagen puede ser definida objetivamente en términos del desempeño de un observador sea este humano o matemático.<sup>12</sup> Ambos toman una decisión calculando una determinada estadística  $\lambda(\bar{g})$  y comparando su valor con un umbral de decisión. Si definimos como clase 1 la de casos positivos o de señal presente, la decisión será "positiva" si la estadística calculada sobrepasa dicho umbral. Si en realidad la señal pertenecía a esta clase se dice que la decisión es un Verdadero Positivo (VP) y si no, entonces es un Falso

Positivo (FP). El umbral de decisión controla el compromiso existente entre los VP y los FP.<sup>13</sup>

Una figura de mérito asociada a esta magnitud es la Relación Señal Ruido asociada a una estadística en particular y que también se denomina Índice de Detectabilidad y tiene la forma:

$$d^2 = \frac{[E(\lambda(g)|2) - E(\lambda(g)|1)]}{\frac{1}{2} \text{var}(\lambda|1) + \frac{1}{2} \text{var}(\lambda|2)}, \quad (16)$$

donde  $E(\lambda(g)|k)$  es la media condicional de la estadística  $\lambda(\bar{g})$  dado que  $\bar{g}$  provenga de la clase  $k$ , mientras que  $\text{var}(\lambda|k)$  es la varianza condicional correspondiente.

En el caso de los observadores matemáticos o bayesianos se trata de algoritmos, de mayor o menor complejidad, que pueden hacer un estimado de la calidad en la imagen, pueden predecir la actuación del observador humano y logran, en algunos casos, hasta reemplazar su labor.<sup>12-14</sup> Estos observadores modelo, son capaces de generar predicciones explícitas sobre la detectabilidad de una señal en un medio ruidoso.<sup>15-20</sup>

Entre los más conocidos destacan el observador de Hotelling (HO) y sus versiones canalizadas CHO (eng. *channelized Hotelling observer*) y LGHO (eng. *Laguerre-Gauss Hotelling observer*) y el filtro complementado no equalizador (NPWE, eng. *Non-PreWhitening matched filter with Eye model*)<sup>15,16</sup>.

La forma general de estos observadores es el producto interno entre una plantilla  $w_{n,j}$  y los datos  $g_{n,i}$  de la señal en cada una de las locaciones posibles.

$$\lambda_{i,j} = \sum_{n=1}^{N^2} w_{n,j} g_{n,i} = \bar{w}'_j \bar{g}_i \quad (17)$$

donde  $\lambda_{i,j}$  es la respuesta escalar del modelo en la locación  $i$  usando la plantilla  $j$ .  $\bar{w}'_j$  es una plantilla bidimensional de dimensión  $N \times N$  representada aquí por un vector columna de dimensión  $N^2 \times 1$ . El superíndice  $t$  se refiere a la transpuesta y el vector  $\bar{g}_i$  contiene los valores de la señal en la  $i$ -ésima locación presentados en forma de vector columna.<sup>12</sup>

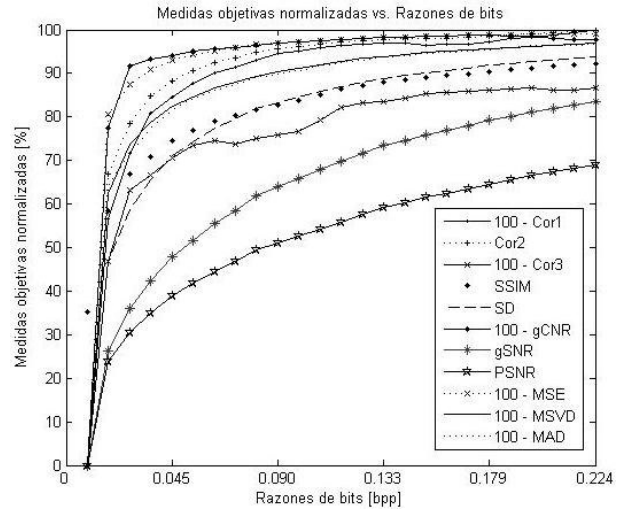
El observador de *Hotelling* utiliza información de la señal y de la correlación espacial del ruido para calcular sus plantillas. Si  $\hat{K}_g$  es la matriz de covarianza,  $\bar{g}_s$  es la media de la señal más ruido y  $\bar{g}_n$  es la media del fondo de la imagen la plantilla toma la forma:

$$\bar{w}_{Hot} = \hat{K}_g^{-1} [\langle \bar{g}_s \rangle - \langle \bar{g}_n \rangle]. \quad (18)$$

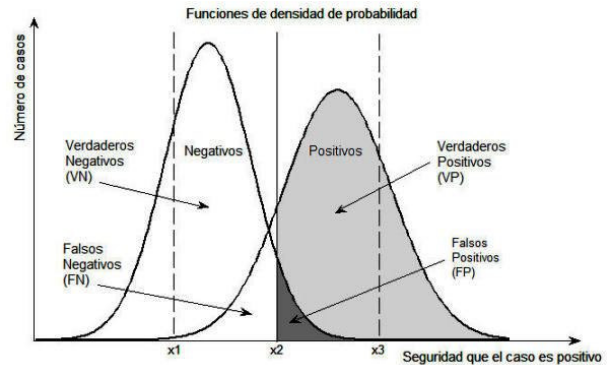
Un gran problema de este observador es la inversión de la matriz de covarianza en la anterior ecuación, a menos que la cantidad de imágenes exceda el número de píxeles en ellas; una condición que es virtualmente imposible de alcanzar con imágenes de tamaños comunes.<sup>12-14</sup>

Para resolver este problema se han planteado dos

soluciones; la primera consiste en restringir la matriz de covarianza a regiones de la imagen donde se encuentran las posibles localizaciones de la señal. A pesar de este recurso las matrices de covarianza continúan siendo cercanas a ser singulares (determinante muy cercano a cero) lo que hace muy difícil la inversión de la matriz.<sup>15</sup>



**Figura 1.** Medidas objetivas normalizadas vs. razones de bits (Inversamente proporcional a TC). Se observan las diferencias entre una métrica y otra en cuanto a sensibilidad ante los cambios de calidad. Por debajo de 0.045 bpp las métricas colapsan relacionado con un deterioro considerable en la calidad.



**Figura 2.** Distribución de probabilidad de señal útil y ruido.

La segunda solución utiliza funciones tales como los polinomios de *Laguerre-Gauss*

$$L_n = \sum_{m=0}^n (-1)^m \binom{n}{m} \left(\frac{x^m}{m!}\right)$$

para extraer rasgos significativos de las imágenes.<sup>15,16</sup> Los canales están definidos en coordenadas polares como:

$$\bar{C}_{LG} = \exp\left(\frac{-\gamma}{2}\right) L_n(\gamma), \quad (19)$$

donde:  $\gamma = 2\pi \left( (x - x_c)^2 / a^2 + (y - y_c)^2 / b^2 \right)$ ,

$x_c$  e  $y_c$  marcan la localización de la señal mientras que  $a$

y  $b$  definen la orientación de éstos.

En este caso se utiliza la matriz de covarianza de la respuesta de los canales en lugar de la matriz de covarianza de los píxeles de la imagen para obtener la plantilla. De esta manera la plantilla queda de la forma:

$$\vec{w}_{LGHO} = \hat{w}_c^t \vec{C}_{LG} \quad (20)$$

donde  $\hat{W} = \hat{K}_v^{-1} \left[ \langle \vec{g}_{c/s} \rangle - \langle \vec{g}_{c/n} \rangle \right]$  es la covarianza de la salida de los canales.

A diferencia del LGHO, el CHO usa un conjunto de canales que pretenden reflejar en la etapa de preprocesamiento en el sistema visual humano<sup>15,16</sup>. Este conjunto de canales reduce la cantidad de información disponible para el modelo. La plantilla de CHO es la más apropiada que puede resultar de una combinación lineal de la frecuencia espacial y los canales de orientación que supuestamente reflejan la respuesta de las neuronas en la corteza visual primaria. Los canales de *Gabor* están definidos por:

$$C_{CHO} = \exp\left(\frac{-4\ln(x^2 + y^2)}{W_s^2}\right) \cdot \cos[2\pi f_c(x\cos\theta + y\sin\theta) + \beta] \quad (21)$$

donde  $f_c$  es la frecuencia espacial,  $\theta$  es la orientación,  $W_s$  es el ancho y  $\beta$  es la fase. La plantilla en este caso toma la misma forma del caso anterior, el LGHO.

Por último, entre los más sencillos de implementar, el NPWE tiene una plantilla de la forma:

$$\tilde{w}_j = \tilde{s}_j | \tilde{E} |^2 \quad (22)$$

donde  $\tilde{s}_j$  y  $\tilde{E}$  son la señal y el filtro visual respectivamente en el espacio de la transformada de *Fourier*. La plantilla se obtiene transformando inversamente  $\tilde{w}$ :

$$E_p = \rho^\eta \exp(-c\rho^\gamma) \quad (23)$$

donde  $\rho = \sqrt{u^2 + v^2}$  es la frecuencia especial radial en ciclos por grado. De acuerdo con Chawla *et al.*<sup>20</sup>, el parámetro  $c$  brinda mejor respuesta visual a 4 ciclos/grado,  $\eta = 1.5$  y  $\gamma = 0.68$ .

La figura 3 muestra un ejemplo del desempeño de algunos observadores matemáticos para predecir calidad de imagen a diferentes TC en imágenes de RM.

**2.3 Medición de calidad de imagen a partir de observadores reales.** El análisis ROC, también bajo el nombre de curvas de rendimiento diagnóstico, es una técnica matemática para describir y estudiar las propiedades de las pruebas diagnósticas. Mediante ella es posible tener un estimado de la exactitud diagnóstica de un determinado método, modalidad de imagen o evaluador, midiendo su capacidad de clasificar correctamente en categorías los casos bajo estudio.<sup>21,22</sup>

Cuando se realizan pruebas de tipo dicotómico, los datos de una prueba realizada a un grupo de pacientes se

colocan en una tabla de contingencia por el resultado de la evaluación y el estado real del paciente respecto a la enfermedad.

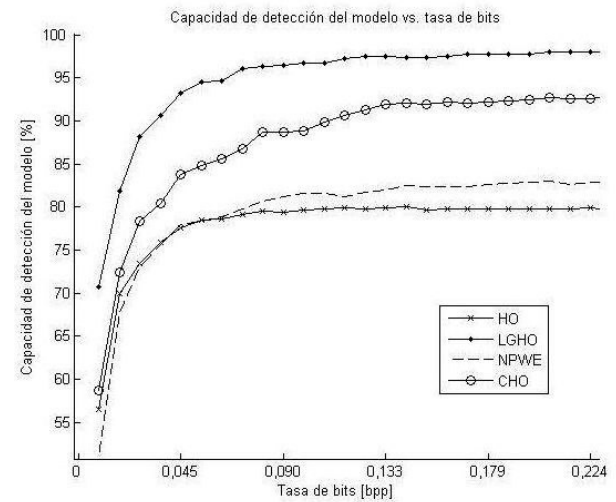
A partir de los datos en esta tabla se puede estimar la exactitud diagnóstica la cual se expresa en términos de la sensibilidad o fracción de verdaderos positivos,

$$\text{Sensibilidad} = FVP = \frac{VP}{VP + FN} \quad (24)$$

que no es más que la probabilidad de que el observador aprecie una señal anómala cuando en realidad ésta se encuentra presente y la especificidad o fracción de verdaderos negativos

$$\text{Especificidad} = FVN = \frac{VN}{VN + FP} \quad (25)$$

que mide la probabilidad de que el observador no aprecie señal anómala cuando realmente ésta no está presente.



**Figura 3.** El comportamiento de los cuatro modelos empleados en el intervalo de razones de bits desde 0 hasta 0.223 *bpp*.

<b>Tabla 2</b>			
Resultados de una prueba y su estado respecto a la enfermedad.			
		Verdadero Diagnóstico	
		Enfermo	Sano
Resultado de la prueba	Prueba positiva	Verdadero positivo (VP)	Falso Positivo (FP)
	Prueba negativa	Falso Negativo (FN)	Verdadero Negativo (VN)
		VP + FN	VN + FP

En el caso de evaluar la calidad de las imágenes médicas, en lugar de una simple evaluación dicotómica, se propone más de un umbral de calidad lo que resulta en varios valores de corte para la prueba determinados por la experiencia del observador, la información previa que éste tiene sobre la patología del paciente, el número de observaciones que realiza, las condiciones de

iluminación de que dispone para visualizar la imagen, la calidad de la imagen, y las características del sistema de detección (sensibilidad, resolución entre otras).

Un gráfico de estos valores a medida que varía el umbral de decisión se denomina curva ROC y el área bajo de ésta, (*AUC*, eng. *Area Under the Curve*) puede ser interpretada como la medida de precisión diagnóstica del observador. Sus valores oscilan entre 0.5 (clasificación regular) y 1.0 (clasificación perfecta) <sup>21,22</sup>.

En relación con la compresión de imágenes se deduce que a mayor compresión existirá mayor superposición en las distribuciones de señal útil y ruido reflejadas en la figura 2, lo cual se traduce en menores niveles de detectabilidad por parte del observador real reduciéndose el área bajo la curva ROC.

Desde el punto de vista de la teoría de las probabilidades, los valores de reales y falsos positivos se calculan según las expresiones:

$$P(S/s) = \int_{x_c}^{\infty} f(x/s) dx \quad (26)$$

$$P(S/r) = \int_{x_c}^{\infty} f(x/r) dx \quad (27)$$

donde  $f(x/s)$  es la distribución de probabilidad normalizada que describe la probabilidad de obtener un suceso particular de la variable aleatoria  $x$  cuando la señal y el ruido están presentes,  $f(x/r)$  es la distribución de probabilidad normalizada que describe la probabilidad de obtener un suceso particular de la variable aleatoria  $x$  cuando solo el ruido está presente y  $x_c$  es el umbral subjetivo planteado por el observador para delimitar la señal útil "S" ( $x > x_c$ ) de lo que es solo ruido "R" ( $x < x_c$ ).

De la normalización al área unitaria queda claro que  $P(S/s) + P(R/s) = 1$  y que  $P(S/r) + P(R/r) = 1$ . En las imágenes médicas esto significa presencia de un sujeto enfermo o no enfermo entre un grupo mixto presentado aleatoriamente a un observador que valora entre 1 - seguro que hay lesión a 4 - seguro que no hay lesión pasando por las categorías intermedias 2 - creo que existe lesión, 3 - creo que no existe lesión.

La relación entre la probabilidad condicional de una respuesta real positiva respecto a la probabilidad condicional de un falso positivo se basa en el criterio de que  $X_c$  viene dada por:

$$\frac{\int_{x_c}^{\infty} f(x/s) dx}{\int_{x_c}^{\infty} f(x/r) dx}, \quad (28)$$

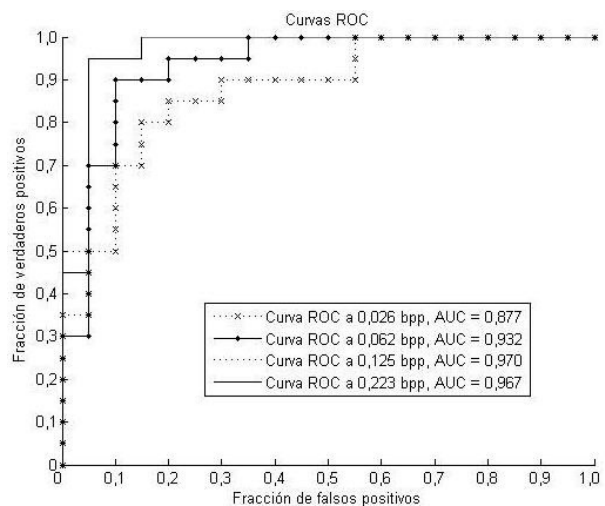
la cual es igual al cociente entre el área bajo la cola derecha de la distribución de señal más ruido, entre el área bajo la cola derecha de la distribución de ruido.

Se ha mostrado cómo un observador experto tiende a generar una única curva ROC en repetidos experimentos, pero diferentes observadores generarán curvas diferentes. Una de las principales limitaciones del método es que el observador se convierte en parte del

"sistema" bajo análisis. Mientras mayor sea el solapamiento de las distribuciones de la señal y del ruido mayor será la probabilidad de que el observador responda incorrectamente. Esto se torna crítico para valores de solapamiento menores que dos desviaciones típicas de las señales en cuestión, producto del umbral limitado de detección del ojo humano.

La figura 4 muestra un ejemplo del empleo del análisis ROC para evaluar calidad de imagen durante la compresión a partir de la evaluación subjetiva de observadores reales de imágenes cerebrales de RM de 512 x 512 píxeles.

El área bajo la curva ROC representa la probabilidad de que un sujeto enfermo elegido aleatoriamente sea correcto o ponderado con mayor sospecha que sujetos no enfermos también elegidos aleatoriamente. Este índice va desde 0.5, (curva 'A' en las figs. 8 y 9), en el caso que no exista una precisión aparente, hasta 1 en un caso ideal donde existe perfecta precisión. Este valor constituye el índice de precisión diagnóstica y puede ser utilizada para comparar dos o más procedimientos diagnósticos, dos modalidades de imágenes o dos evaluadores.



**Figura 4.** Curvas ROC para un observador modelo a 4 niveles diferentes de compresión en imágenes de RM cerebral de 512 x 512 píxeles.

### 3 Conclusiones

A partir del análisis del tema de la calidad de la imagen posterior a la compresión con pérdidas podemos concluir que:

Cuando se utilizan los algoritmos de compresión con pérdidas, se pueden eliminar detalles que representan información útil para el diagnóstico. La cantidad de información que se elimina esta directamente relacionada con el valor de TC que se emplee. Por lo tanto es necesario estimar un valor de TC para cada tipo de imagen médica donde se reduzca al mínimo el espacio necesario para su almacenamiento a la vez que se mantiene la calidad que la hace útil para el diagnóstico.

Este valor puede ser estimado con la ayuda de un grupo de medidas de calidad que van desde las de tipo objetivas, hasta medidas de la precisión diagnóstica de un grupo de especialistas entrenados para este fin (las que se reportan como las mejores pero también las que mas tiempo consumen), pasando por los observadores modelo (algoritmos matemáticos que simulan la tarea de observación de los especialistas).

Las medidas de calidad de tipo objetivas son útiles en sus modos bivariados en el que realizan una comparación con la imagen sin compactar. Hasta el momento no se ha reportado una medida de calidad objetiva correlacionada con el SVH y que pueda utilizarse para estimar el valor de TC óptimo.

Aunque se han hecho diversos esfuerzos por encontrar una medida de calidad unificada, el problema de encontrar un valor numérico para TC que se ajuste a cada modalidad de imagen en particular, y a cada patología además, continúa estando abierto a la investigación.

Los observadores matemáticos, por su parte, son útiles para predecir el comportamiento de los observadores humanos. De esta forma es posible planificar mejor los experimentos ROC los que tienden a ser altos consumidores de tiempo; situación no propicia al emplear especialistas.

El valor de TC óptimo puede ser estimado solamente a partir del análisis estadístico de las observaciones hechas por especialistas quienes son los únicos certificados y calificados para esta labor.

Los resultados que se obtengan para cada tipo de imagen médica en formato digital y para cada protocolo de adquisición podrían pasar a integrar las normas existentes para la manipulación e intercambio de las imágenes.

## Referencias

1. Russ, J.C., The Image Processing Handbook, 2ed. CRC Press, Boca Raton, Florida, (1995).
2. Bankman, I., Medical Imaging Handbook: Processing and Analysis, Academic Press. Vol. 1, San Diego, California, (2000).
3. Kalyanpur, M. A., et al., "Evaluation of JPEG and Wavelet Compression of Body CT Images for Direct Digital Teleradiologic Transmission.", *Radiology*; 217, 772-779,(2000).
4. Lau, C., et al., Telemedicine, Handbook of Medical Imaging, ed. Bellingham. 3, SPIE. 305-331,(2000).
5. Foos, D.H., et al. "JPEG 2000 compression of medical imagery", in *Medical Imaging 2000: Pacs desing and Evaluation: Engineering and Clinical Issues, Image Compression and Presentation*. San Diego, California, USA. (2000)
6. Digital Imaging and Communications in Medicine (DICOM). Available online at:

<http://www.xray.hmc.psu.edu/dicom/>

7. Erickson, B.J., "Irreversible Compression of Medical Images", in *White Paper from Society for Computer Applications in Radiology (SCAR)*, Department of Radiology, Mayo Foundation Rochester, Minnesota. pp. 1-9, (2000).
8. Eskicioglu, A. et al. "Quality measurement for monochrome compressed images in the past 25 years", in *Proceedings of the International Conference on Acoustics Speech (ICASSP)*, (2000).
9. Shnayderman, A., et al., A multidimensional image quality measure using Singular Value Decomposition, Department of Computer and Information Science, CUNY Brooklyn College, 2900 Bedford Avenue, Brooklyn, NY 11210.
10. Delgorge, C., Rosenberger, C., Poison, G., and Vieyres, P., "Towards a New Tool for the Evaluation of the Quality of Ultrasound Compressed Images", *IEEE Trans. on Medical Imaging*, 25 (11), (2006).
11. Wang, Z., et al., "Image Quality Assessment: From Error Visibility to Structural Similarity", *IEEE Transactions on Image Processing*, 13 (4), (2004)
12. Barret, H.H., et al., "Model Observers for assessment of image quality", *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 90, 9758-9765, (1993).
13. Chakraborty, D. P. and Berbaum, K. S., "Observer studies involving detection and localization: Modeling, analysis, and validation", *Med. Phys.* 31 (8), (2004).
14. Yao J., and Barret, H. H., "Predicting human performance by a channelized Hotelling observer model", *Mathematical Methods in Medical Imaging, SPIE*, 1768, 161 - 168, (1992).
15. Zhang, Y. and Eckstein, M. P., "Evaluation of JPEG 2000 Encoder Options: Human and Model Observer Detection of Variable Signals in X-Ray Coronary Angiograms", *IEEE Trans. on Medical Imaging*, 23(5), (2004).
16. Eckstein, M. P., Bartoff, J. L., Abbey C.K., Whiting, J. S., and Bochud, F. O., "Automated computer evaluation and optimization of image compression of x-ray coronary angiograms for signal known exactly detection tasks", *Optic Express*, 11(5), (2003).
17. Zhang, Y., Pham B., and Eckstein, M. P., "Evaluation of internal noise methods for Hotelling observer models", *Med. Phys.* 34 (8), August (2007).
18. Burgess, E., and Colborne, B., *Visual Signal Detection. IV Observer Inconsistency*, *Opt Soc. Am. A*, Vol. 5, No. 4, May (1988).
19. Eckstein, M. P., Abbey C.K., and Bochud, F. O., "Visual Signal Detection in structured backgrounds. IV Figures of Merit for model performance in multiple-alternative forced-choice detection tasks with correlated responses", *J. Opt. Soc. Am. A*, Vol. 17, No. 2, February (2000).
20. Chawla, A. S., "Analyzing the effect of dose reduction on the detection of mammographic lesions using mathematical observer models", *Med Phys.*, 34 (8), pp.3385-98, (2007).
21. Hanley, J. A., McNeil, B. J., "The Meaning and Use of the Area under a Receiver Operating Characteristic (ROC) Curve". *Radiology* 143, 29-36, April (1982).
22. López de Ullibarri, Galparsoro I, Píta Fernández, S., "Curvas ROC", *Cad. Aten. Primaria*, 5(4), 229-235, (2001).

## Análisis de las relaciones señal-ruido y contraste-ruido en imágenes de resonancia magnética a tres intensidades de campo magnético

M. Noda, E. González, C. Cabal

Centro de Biofísica Médica. Universidad de Oriente. Santiago de Cuba. Cuba; mnoda@infomed.sld.cu

Recibido el 1/02/2009. Aprobado en versión final el 09/07/2009

**Sumario.** El análisis cuantitativo de los descriptores de calidad en imágenes de resonancia magnética, así como su información intrínseca, se encuentran afectados por factores físicos e instrumentales. La evaluación de estos factores, mediante la relación señal-ruido, la relación contraste ruido, el contraste entre tejidos y la no uniformidad de la imagen, constituye una herramienta de comparación de las imágenes y sus posibilidades, a bajos y altos campos magnéticos. Para atenuar el efecto de estos factores se aplica una corrección de intensidad del campo de radiofrecuencia. Se estudia el comportamiento de estos descriptores en ocho equipos de imágenes de resonancia magnética a tres intensidades de campo magnético, antes y después de aplicada la corrección de intensidad. La correcta aplicación de la corrección de intensidad mejora el valor de los descriptores, haciendo más comparables sus valores experimentales con el comportamiento teórico. La metodología empleada permite la comparación entre equipos de diferentes intensidades de campo magnético y de diferentes fabricantes.

**Abstract.** The quantitative analysis of quality descriptors in magnetic resonance images, as well as their intrinsic information, is affected by physical and instrumental factors. The evaluation of these factors by means of the signal-to-noise ratio, the contrast-to-noise ratio, tissue contrast and non-uniformity of the image, constitutes a comparison tool for images and their possibilities, at low and high magnetic fields. To attenuate the effect of these factors, a radiofrequency field intensity correction is applied. The behavior of the aforementioned descriptors is studied in eight magnetic resonance machines at three magnetic field intensities, before and after having applied the intensity correction. The correct application of the intensity correction improves the descriptors' value, making their experimental values more comparable to the theoretical behavior. The methodology used permits the comparison among equipments of different magnetic field intensities and different manufacturers.

**Palabras clave.** Imágenes de resonancia magnética 87.61.-c, descriptores de calidad 87.56.Ce, campo magnético 76.60.Jx.

### 1 Introducción

Dadas las posibilidades y potencialidades de la resonancia magnética (RM), el análisis cuantitativo de la información contenida en las imágenes enriquece el diagnóstico y facilita la comparación de resultados obtenidos en condiciones experimentales diferentes: distintos equipos, varias intensidades de campo magnético ( $B_0$ ), bobinas de

radiofrecuencia (RF) de excitación y recepción con variadas configuraciones, y secuencias de impulsos disímiles.

El desarrollo de estudios multicéntricos con protocolos experimentales similares, realizados en equipos diferentes o a lo largo de periodos de tiempos prolongados adquiere relevancia en la actualidad. Dos recientes proyectos: el primero de Wintermark M. y col., establece

procedimientos estándar para obtener información comparable de las imágenes de difusión y perfusión. El segundo es el proyecto multinacional de Mapeo Cerebral Humano, con una serie de artículos publicados en Neuroimage, Evans A.C. y col. se exponen resultados obtenidos del estudio con imágenes por RM de 500 niños entre 7 días y 17 años de edad, a lo largo de 54 meses en condiciones experimentales y protocolos de imágenes semejantes<sup>1</sup>.

Las relaciones señal-ruido (RSR) y contraste ruido (RCR), el Contraste relativo entre dos tejidos A y B cualesquiera ( $C_{AB}$ ) y la no uniformidad de la imagen (NUI) son de los descriptores de calidad más importantes que permiten caracterizar y comparar las instalaciones de RM<sup>2,3</sup>. Sus valores son función del  $B_0$ , debido a su dependencia de la magnetización longitudinal en equilibrio ( $M_0$ ), de las inhomogeneidades de  $B_0$  y RF y de los tiempos de relajación espín-retículo ( $T_1$ ) y en menor medida espín-espín ( $T_2$ )<sup>4</sup>. Existen métodos para su estimación a partir de una imagen de RM<sup>2-5</sup>. Se reportan estudios comparativos de la RSR y la RCR a diferentes  $B_0$ <sup>6,7</sup>, pero no se encuentran referencias del comportamiento del  $C_{AB}$  en función del  $B_0$ .

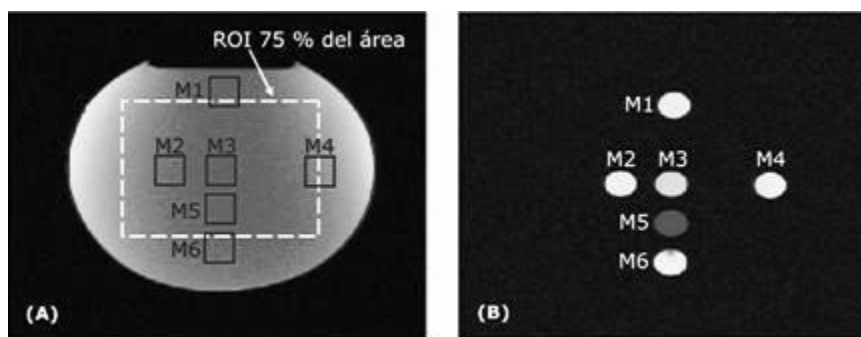
Mc. Robbie y col., a partir de un estudio realizado durante 8 años, demuestran como alguno de los descriptores de calidad de imágenes varía con el tiempo<sup>8</sup>. Existen aspectos que dificultan la comparación experimental de los descriptores a diferentes  $B_0$ , como son el uso de diferentes configuraciones electromagnética y geométrica de bobinas (excitadoras y receptoras), diferencias tecnológicas entre equipos y la dependencia temporal (a corto y largo plazo) de los parámetros técnicos de las máquinas de RM. Por lo que no basta solo con el empleo de proto-

colos y condiciones experimentales similares, ya que tanto los experimentos como los datos obtenidos están afectados por factores físicos e instrumentales. Cuantificarlos, clasificar su naturaleza, eliminarlos o compensarlos es un problema aún no resuelto. La comparación, de estos factores físicos e instrumentales, entre equipos del mismo fabricante, de distintos fabricantes o a diferentes  $B_0$  y configuraciones de bobinas de RF distintas, aporta vías de solución.

Una forma de atenuar el efecto de las imperfecciones producidas por los factores físicos e instrumentales es realizando una corrección de intensidad. Recientemente se reportó el estado del arte de las correcciones de intensidad en base a 60 publicaciones relevantes escogidas por los autores<sup>9</sup>. Se muestra que el 60 % se refieren a estudios realizados con equipos de 1,5 T, muy pocos a campos superiores (13 %) e inferiores (27 %). De los trabajos reportados, solo el 8 % comparan métodos de corrección a más de un  $B_0$ . Siendo insuficientes las comparaciones de más de un método de corrección<sup>9</sup>.

Se presenta un estudio preliminar para evaluar experimentalmente el comportamiento de estos descriptores en 9 equipos de RM: cuatro Panorama de 0.23 T, tres Magnetom C de 0.35 T, un Signa Excite y un Symphony ambos de 1.5 T. Fue empleada una secuencia de pulsos eco de gradiente con pulso spoiled (SPGR). Se simulan S, RSR, RCR y  $C_{AB}$  en función del  $B_0$ , empleando ecuaciones reportadas<sup>4,5</sup> y estimando el  $T_1$  en función del  $B_0$ <sup>4</sup>. Se compara y analiza además, el comportamiento de los descriptores antes y después de aplicada una corrección de amplitud implementada para este trabajo. El cálculo experimental de los descriptores se realizó empleando el software Calimag<sup>®2,3</sup>.

**Figura 1.** (A) Imagen del *phantom* homogéneo (PH-01) con las seis ROI (M1-M6) definidas para las mediciones de los descriptores cuantitativos sobre la imagen. (B) Imagen del *phantom* de tubos (PH-02), la ubicación de los seis tubos coinciden con las ROI marcadas en la figura A. Los tubos 1 y 6 contienen la misma concentración de MnCl<sub>2</sub>.



## 2 Materiales y métodos

**Descripción teórica.** La estimación de la RSR en una imagen se realiza partiendo de la relación entre el valor medio de la intensidad de la señal ( $S$ ) en una región de interés (ROI) centrada en la imagen del *phantom* y el ruido ( $r$ ) tomado en otra ROI en el fondo de la imagen. Es conocido que en ausencia de señal predomina una distribución de Rayleigh, donde  $r = \sigma_{FON} / 0.655$  es la varianza en el fondo de la imagen módulo<sup>2,3</sup>.

La RCR se expresa como,  $RCR = |S_A - S_B| / r$ , la relación entre la diferencia absoluta de las  $S$  tomadas en dos tejidos A y B cualesquiera y el ruido.<sup>2-5</sup> El contraste relativo,  $C_{AB} = |S_A - S_B| / S_A$ , puede ser expresado como la diferencia absoluta de las intensidades de señal de dos tejidos respecto a un valor de intensidad fijo<sup>4</sup>.

Para analizar las distorsiones de amplitud, se determina la NUI de una ROI, que no incluya los bordes de la imagen. La NUI puede ser expresada como la relación, en por ciento, entre la desviación estándar de  $S$  en una



ROI centrada en la imagen y su media luego de aplicado un filtro pasa bajo para disminuir el ruido<sup>2,3</sup>. Los mapas de recepción son calculados siguiendo la metodología descrita en [2,3].

Con el objetivo de disminuir el efecto de las NUI y acercar el valor de los descriptores al comportamiento teórico antes descrito, se realizan las comparaciones de los descriptores antes y después de realizada la corrección de intensidad. Se utiliza para ello el método prospectivo<sup>9</sup> con los siguientes pasos:

1- Obtener el umbral de ruido (umb) del histograma de la imagen del *phantom* homogéneo (IM) usando el 15% del máximo.

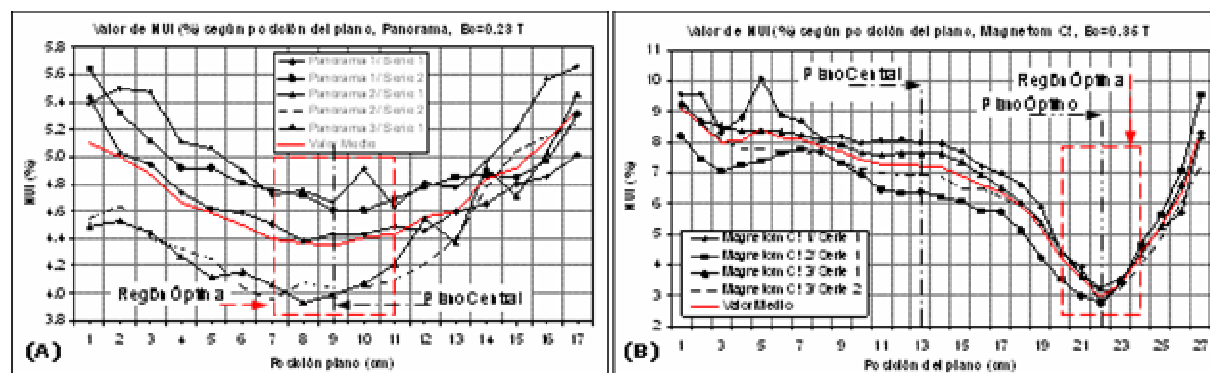
2- Calcular el valor medio (Med) de los valores que no son ruido y rellenar las localizaciones de ruido con este valor.

3- Suavizar la imagen (IM\_smoother) obtenida de la forma antes explicada con un filtro pasa bajo, usando una ventana con la 3/8 parte de las dimensiones de la imagen.

4- Finalmente normalizar con Med y calcular la imagen corregida:  $IM\_cor = Med(IM/IM\_smoother)$ .

**Tabla I**  
Resultado de la estimación de la RSR y la NUI (%), en las 6 ROI (M1-M6) del plano central del *phantom* homogéneo PH-01 y en una ROI 75% del área total de la imagen, antes y después de la corrección de intensidad para los tres  $B_0$ .

$B_0$	0.23 T				0.35 T				1.5 T			
Configuración de la bobina	Montura caballo				Montura caballo combinada				Jaula pájaro			
ROI	Original		Corregida		Original		Corregida		Original		Corregida	
	RSR	NUI	RSR	NUI	RSR	NUI	RSR	NUI	RSR	NUI	RSR	NUI
M1	16.6	4.7	16.8	4.3	46.9	2.2	53.1	2.3	95.4	1.7	90.5	1.0
M2	16.5	4.6	16.8	4.2	49.3	2.3	53.6	2.1	106.5	1.0	91.5	0.8
M3	15.7	4.0	16.7	4.2	47.0	2.2	53.4	2.2	107.3	0.9	91.2	0.8
M4	17.1	4.3	16.8	4.9	54.6	2.5	53.8	1.8	94.3	1.6	91.0	1.1
M5	16.3	4.7	16.6	4.5	48.0	1.9	53.4	1.9	100.3	1.6	91.1	1.1
M6	17.3	4.1	16.9	4.6	50.9	2.0	53.8	1.8	91.6	1.2	90.0	1.0
ROI 75% imagen	16.3	6.2	16.9	4.5	51.9	9.9	53.9	3.3	98.2	6.7	90.8	1.5

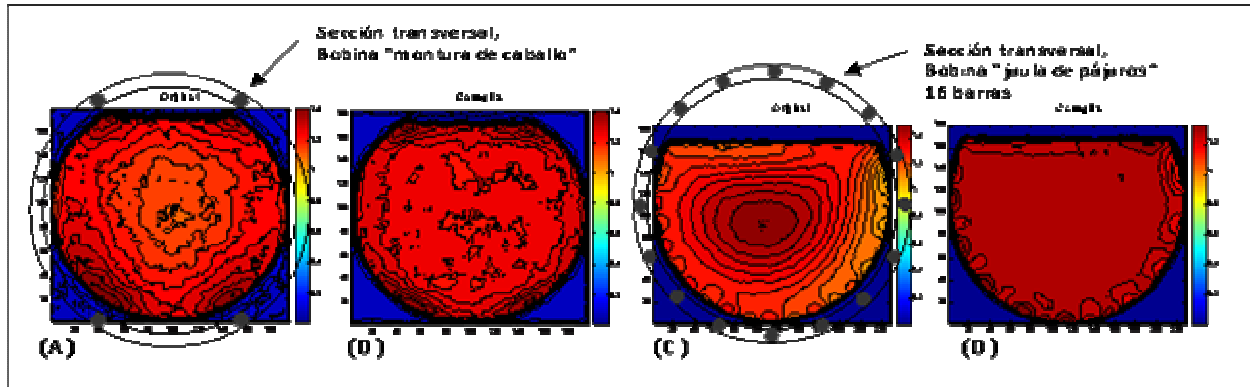


**Figura 2.** Curvas de los valores de la NUI según la posición del plano, correspondiente al estudio temporal para la orientación axial, obtenidas para tres equipos Panorama 0.23 T (A) y tres equipos Magnetom C! 0.35 T (B). La línea discontinua negra señala el plano central en la bobina y la roja el plano de valores óptimos. El cuadro rojo señala la región donde se obtienen los valores óptimos de RSR y NUI en la bobina receptora en ambos casos.

**Descripción experimental.** El estudio experimental de los descriptores se realizó empleando 8 equipos de diferentes  $B_0$ . Tres RM Panorama 0.23 T (Philips), tres Magnetom C! 0.35 T (Siemens), un Symphony 1.5 T (Siemens) y un Signa Excite 1.5 T (General Electric). La excitación de RF se realiza con la bobina de cuerpo completo y la recepción de la señal de RM con la bobina

de cráneo de cada equipo. Se empleó una secuencia de pulsos SPGE con tiempo de repetición,  $TR=500$  ms, tiempo de eco,  $TE=9$  ms, matriz de  $256 \times 256$  píxeles, FOV de  $256 \times 256$  mm<sup>2</sup>, espesor del corte de 5 mm, separación entre cortes de 1mm, ancho de banda 120 Hz/píxel,  $N_{EXP}=1$ . Se usaron diferentes valores de  $\alpha$  ( $15^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $60^\circ$ ,  $90^\circ$  y  $120^\circ$ ). Cada experimento se

repetió cinco veces en cada equipo.



**Figura 3.** Mapas de contorno que muestran la distribución de NUI en el área de imagen del plano central del *phantom* homogéneo. Mapas de la bobina receptora de cráneo del Panorama 0.23 T, configuración “montura de caballo”, (A) antes de la corrección de intensidad y (B) luego de la corrección de intensidad. Mapas de la bobina receptora de cráneo del Signa Excite 1.5 T, configuración “jaula de pájaro”, (C) antes de la corrección de intensidad y (D) luego de la corrección de intensidad

**Tabla II**

Resultado de la estimación de  $C_{AB}$  y RCR antes y después de la corrección de intensidad en el plano central del *phantom* PH-02 para los tres  $B_0$ .

Combinación de Tubos	0.23 T				0.35 T				1.5 T			
	Original		Corregida		Original		Corregida		Original		Corregida	
	$C_{AB}$	RCR	$C_{AB}$	RCR	$C_{AB}$	RCR	$C_{AB}$	RCR	$C_{AB}$	RCR	$C_{AB}$	RCR
M1-M3	1.5±0.3	51.2	1.4±0.2	49.3	1.2±0.4	47.8	1.3±0.3	54.3	1.2±0.5	241.6	1.3±0.3	239.1
M2-M3	0.4±0.1	7.2	0.5±0.1	6.1	0.7±0.3	27.4	0.8±0.1	32.2	0.7±0.4	151.5	0.6±0.3	132.3
M4-M3	1.0±0.4	32.5	0.8±0.3	29.5	1.3±0.6	49.9	1.0±0.6	43.9	1.3±0.5	274.5	1.6±0.5	291.6
M5-M3	1.1±0.5	25.6	1.1±0.6	25.4	1.1±0.5	43.7	1.3±0.4	46.6	0.8±0.3	240.0	0.8±0.2	231.0
M6-M3	1.5±0.2	50.3	1.3±0.3	45.8	1.3±0.5	51.3	1.2±0.4	52.4	1.1±0.6	232.3	1.4±0.4	249.3
M2-M4	0.8±0.3	25.3	0.7±0.2	23.4	0.6±0.3	22.5	0.6±0.1	11.6	0.4±0.1	123.0	0.5±0.1	159.3

S es medida como el valor medio de la intensidad de los píxel de una ROI sobre el área del *phantom* y r como la desviación estándar de la intensidad de los píxeles de otra ROI tomada en el fondo de la imagen, en la dirección de codificación de frecuencia. El valor de cada descriptor se midió cinco veces, reportándose su valor medio en el plano central. Como las imágenes de RM se representan en intensidades de los píxeles, los valores reportados en las tablas y los gráficos están referidos siempre a unidades relativas (UR) a la intensidad de los píxeles.

Las imágenes para estimar la RSR y la NUI, corresponden a un *phantom* homogéneo (PH-01, Figura 1A), dopado con 1.95 g de  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  + 3.6 g de NaCl por litro de  $\text{H}_2\text{O}$ , que garantiza un  $T_1 \approx 210$  ms para 1.5 T<sup>3,10</sup>. El cálculo de la RCR y el  $C_{AB}$ , se realiza empleando imágenes de un *phantom* (PH-02, Figura 1B) consistente de 6 tubos de 20 mm de diámetro, dopados con 5 concentraciones diferentes de  $\text{MnCl}_2$  cuyos tiempos  $T_1$  oscilan entre 87 ms y 699 ms, medidos en un Relaxómetro Universal Giromag 02<sup>®</sup> de RM<sup>10</sup>. El  $T_1$  de estas disoluciones varía poco en este rango de campo magnético<sup>3</sup>.

En el primer experimento se realiza un estudio temporal e interplanos, durante 37 días en cada equipo, caracterizando la RSR y la NUI en las imágenes del PH-01 a

los tres  $B_0$ , antes y después de aplicada la corrección de intensidad. Analizando por separado la contribución de S y r en los descriptores. Para ello se mide S y la desviación estándar de 6 ROI del *phantom* que coinciden geoméricamente con los tubos del *phantom* PH-02, así como de 7 ROI rectangulares resultado de las combinaciones entre las áreas de interés (M1-M3, M2-M3, M4-M3, M5-M3, M6-M3, M2-M4 y M1-M6), ver Figura 1.

En el segundo experimento se realiza el estudio de RSR, RCR y  $C_{AB}$  en el *phantom* PH-02. Se mide S en las 6 ROI que corresponden con los tubos en la imagen del *phantom* y r en el fondo de la imagen, ver la Figura 1B. Se estima la RCR y  $C_{AB}$  para las 7 combinaciones, antes y después de la corrección de intensidad.

Se utiliza el Sistema de funciones Calimag<sup>®</sup> para la estimación de los descriptores de calidad<sup>2,3</sup>. Se empleó un conjunto de funciones desarrolladas en Matlab 7 para la simulación de los descriptores. Se hizo un análisis de varianza simple (ANOVA,  $p < 0.05$ ) para evaluar la significancia entre los valores por orientaciones en cada uno de los descriptores.

### 3 Resultados y discusión

Del análisis por separado del aporte de S y r en los des-

criptores, se puede plantear que no existen diferencias significativas entre las S de los tres cortes y si se evidencian diferencias significativas entre los r en las tres orientaciones del plano. Es el ruido el responsable de las diferencias en la RSR entre equipos y a diferentes  $B_0$ .

En todos los casos, los mayores valores de RSR, se obtienen para el corte axial (16.3, RM Panorama 0.23 T plano central) seguidos del coronal (13.1) y sagital (12.3), comportamiento similar ocurre para la NUI y la RCR.

El análisis de la Tabla I arroja que no hay variabilidad de los valores de RSR entre las 6 ROI (M1-M6) medidas en la imagen original del *phantom*, ni entre estas y la RSR medida sobre el 75% del área de *phantom*. Al aplicar la corrección de intensidad sobre la imagen original, no se obtiene un incremento significativo para la RSR, ni aparecen diferencias significativas de la RSR entre las diferentes ROI, ver Tabla I.

Para el caso de la NUI no ocurre lo mismo, se hace significativamente superior al aumentar el área de medición, ver Tabla I. Con la corrección de intensidad, el valor de la NUI disminuye. Su efecto es global, se hace menos fuerte sobre pequeñas ROI y se intensifica cuando el área de la ROI se hace mayor, ver Tabla I, lo cual se debe a la disminución de la desviación estándar más que al incremento de la señal al aplicar la corrección.

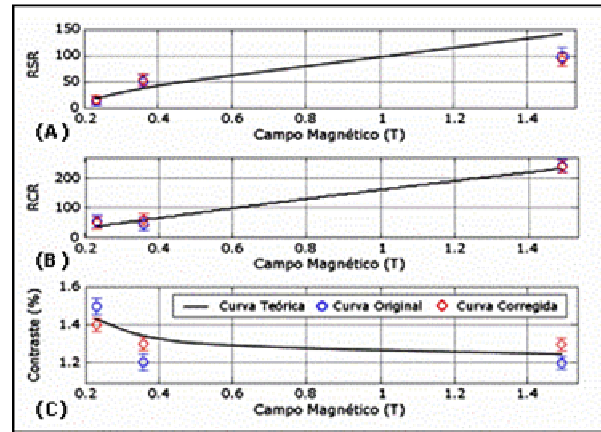
Al comparar las curvas de NUI entre los diferentes equipos de un mismo modelo, Figura 2, encontramos que para el Panorama la región con los valores óptimos de RSR y NUI, coincide con el centro de la bobina receptora de cráneo, ver Figura 2A. Este comportamiento es característico de las bobinas receptoras tipo “montura de caballo” empleada en este modelo de equipo. Sin embargo, en el Magnetom C, la región óptima no corresponde con el centro de la bobina de cráneo, la misma está desplazada del centro 90 cm hacia la parte posterior, ver Figura 2B. En las bobinas tipo “montura de caballo combinada”, que son empleadas en este modelo de equipo, el fabricante consigue una mayor optimización de la RSR y la NUI en la región anatómica del cerebro.

En el mapa de recepción de la bobina de cráneo del Panorama, se localizan cuatro zonas de intensidad hacia los bordes (superior e inferior) de la imagen, coincidentes con los conductores de la bobina, y una zona menos intensa en el centro de la imagen, ver Figura 3A. En este caso al aplicar la corrección de intensidad se logra que la NUI disminuya de 6.2% a 4.5% para una ROI correspondiente al 75% del área de la imagen, ver Tabla I y Figura 3B.

El mapa de recepción para esta configuración “montura de caballo combinada” muestra un comportamiento similar a la “montura de caballo” con una disminución del valor de NUI de 9.9% a 3.3% en el centro del mapa.

Los valores óptimos de RSR y NUI se logran en el Signa Excite, Tabla I, donde se emplea una bobina receptora tipo “jaula pájaro” de 16 barras, configuración con una alta homogeneidad al encontrarse todas las barras distribuidas en todo el diámetro de la bobina. En el

mapa de contorno obtenido, ver Figura 3C, aparece un reforzamiento de la intensidad en el centro de la imagen que se atenúa hacia los bordes. Al aplicar la corrección la intensidad el reforzamiento del centro del mapa se atenúa, haciéndolo homogéneo de manera global, disminuyendo el valor de la NUI, de 6.7% a 1.5%, ver Tabla I y Figura 3D.



**Figura 4.** Comparación de las curvas de RSR (A), RCR (B) y Contraste entre dos tejidos AB (C), medidos experimentalmente en el *phantom* PH-02 para 0.23, 0.35 y 1.5 T respectivamente, con la curva teórica. Los valores medios graficados corresponden a la orientación axial, plano central y  $\alpha = 90^\circ$ . En el caso de la curva C, corresponden a la combinación de tubos M1-M3.

En los diferentes casos analizados, se producen variaciones de la RSR y la NUI para un mismo equipo en diferentes instantes de tiempo, entre equipos de un mismo fabricante y entre equipos de distintos fabricantes. Esta variabilidad de los descriptores, observada en las curvas y mapas, no solo se debe al empleo de diferentes configuraciones electromagnética y geométrica de bobinas receptoras, sino además a las diferencias tecnológicas existentes entre equipos y a la dependencia temporal de los parámetros técnicos en los equipos de RM.

Con el incremento del  $B_0$ , los valores de la RSR y la RCR aumentan, encontrándose que para 1.5 T el valor de la RSR es 5.4 y 1.7 veces mayor que los medidos a 0.23 y 0.35 T respectivamente, ver Tablas I y II, Figuras 4A y 4B. A diferencia de la RSR y la RCR, que aumentan su valor con el  $B_0$ , el comportamiento teórico del  $C_{AB}$  en función del  $B_0$ , considerando condiciones experimentales ideales (bobinas de excitación y recepción, con configuraciones y parámetros iguales para los diferentes  $B_0$ ) disminuye, como se describe en la figura 4C. Si el  $C_{AB}$  se expresa como la diferencia absoluta de intensidades respecto a un valor fijo de intensidad, al aumentar el  $B_0$ , se incrementan los valores de  $M_0$  y  $T_1$  de cada tejido, disminuyendo la diferencia absoluta de intensidades y con ello el  $C_{AB}$ .

En la práctica, cada equipo de RM utiliza una configuración de bobina de RF diferente, que tanto la excitación como en la recepción, causan un comportamiento

diferente de la intensidad de la señal en todo el volumen del phantom para cada configuración de bobina y e intensidad de  $B_0$ . Lo cual constituye la causa por la cual para todas las combinaciones de tubos (phantom PH-02), los valores del  $C_{AB}$  no se ajustan al comportamiento teórico, ver Tabla II. Este constituye un aspecto de importancia a tener en cuenta cuando se realizan comparaciones de los descriptores de calidad entre equipos de diferentes fabricantes e intensidades de  $B_0$ .

Con la corrección de intensidad, los valores experimentales de los descriptores se acercan más a la descripción teórica haciendo más comparables las mediciones, evidenciando los problemas existentes entre equipos del mismo fabricante, de diferentes fabricantes y a diferentes  $B_0$ , y encontrando posibles vías de solución. Tratar los métodos de corrección a varias intensidades de campo  $B_0$ , entre otras ventajas, permite estimar y separar las posibles contribuciones de la inhomogeneidad debido a efectos instrumentales ( $B_0$ ,  $B_{1ext}$ ,  $B_{1rep}$ ,  $\Delta f$ , etc.) y las que aportan el objeto investigado.

## 4 Conclusiones

1. La metodología empleada adquiere importancia, al permitir comparar el comportamiento de los descriptores evidenciando los problemas entre equipos del mismo fabricante, de diferentes fabricantes y  $B_0$ . Parte de los problemas se resuelven, se vislumbra el camino de solución y la necesidad de encontrar funciones de transferencia de datos entre equipos haciendo comparables las mediciones y los estudios que se realizan.

2. La adecuada aplicación de la corrección de intensidad mejora el valor de los descriptores, con un efecto global, haciendo que los resultados experimentales se acerquen lo más posible a los teóricos.

## Agradecimientos

Los autores agradecen al Lic. Roberto Caballero y los Ing. Jorge Selema e Ing. Rafael Llopiz, por la ayuda prestada en la adquisición de los datos experimentales.

## Referencias

1. A. C. Evans. *NeuroImage* 35, 308 (2007).
2. E. González, V. Domínguez, M. Noda, C. Cabal. *Universidad, Ciencia y Tecnología* 5, 65 (2001).
3. E. González. "Quantitative quality descriptors for magnetic resonance tomography". Doctoral Thesis. Orient University. Santiago of Cuba (2003).
4. E. M. Haacke, R. W. Brown, M. R. Thompson, R. Venkatesan. in "Magnetic Resonance Imaging. Physical Principles and Sequence Design", edited by A John Wiley & Sons 1999, pp. 331-378.
5. R. E. Hendrick, J. B. Kneeland, D. D. Stark. *Magn Reson Imaging* 5, 117 (1987).
6. N. Saupe, K. P. Prüssmann, R. Luechinger, P. Bösigler, B. Marincek, D. Weishaupt. *Radiology* 234, 256 (2005).
7. V. A. Magnotta, L. Friedman. *J Digit Imaging* 19, 140 (2006).
8. McRobbie DW, Quest RA. *Br J Radiol* 75, 523 (2002).
9. U. Vovk, F. Pernus, B. Likar. *IEEE Trans. Med Imag.* 26, 3 (2007).
10. M. Noda, E. González, A. Vega. *Universidad, Ciencia y Tecnología* 8, 69 (2004).

## Estudio monte carlo del acelerador clínico elekta SL 5735 para radiocirugía estereotáxica

W. González, A.M. Lallena<sup>a</sup>, R. Alfonso-Laguardia<sup>b</sup> y R. M. Díaz<sup>b</sup>

Facultad de Ciencias, Universidad V. I. Lenin, Cuba; wi12095@yahoo.es†

a) Departamento de Física Atómica, Molecular y Nuclear, Universidad de Granada, España.

b) Departamento de Radioterapia, INOR, Ciudad de La Habana: rogliomanuel@yahoo.es

†autor para la correspondencia

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 25/02/2009.

**Sumario.** La radiocirugía estereotáxica se emplea en el tratamiento de pequeñas lesiones cerebrales. En la radiocirugía estereotáxica basada en aceleradores lineales, el haz de fotones que sale del cabezal es colimado con un microcolimador multiláminas. Con el fin de desarrollar un método preciso de verificación de los planes de tratamiento se ha simulado el acelerador lineal utilizado en el servicio de radioterapia del INOR, con el código Monte Carlo PENELOPE. Primeramente se estudian las variables de más influencia como distribución y energía del haz de electrones incidentes en el blanco y el material del filtro aplanador. Se optimizan los parámetros del código, comparándolo con el código BEAM y empleando el algoritmo de colonias de hormigas para reducir la varianza. Los resultados obtenidos en la simulación para la curva de porcentaje de dosis en profundidad y el perfil difieren de los experimentales en menos del (4 %), con una incertidumbre a  $3\sigma$  del (4%). Con el espacio de fase obtenido se puede proceder a simular el sistema de colimación terciaria.

**Abstract.** Stereotactic radiosurgery is used for the treatment of small brain lesions. In linear accelerator-based radiosurgery, the photon beam produced in the accelerator head is collimated with a micro-multi-leaves collimator. The linear accelerator of the radiotherapy department of the INOR was simulated with the Monte Carlo code Penelope, with the aim of develop a precise method for the verification of the treatment planes. The most influential variables were studied first, such as distribution and energy of the incident electron beam in the target, and the composition of the flattening filter, based upon the information supplied by the manufacturer. The code parameters are optimized, comparing it with the BEAM code and using variance reduction techniques. The results obtained in the simulation for the depth dose percent curve and the profiles differ from the experimentally measured in less than 4 %, with an uncertainty ( $3\sigma$ ) of 4%. It is possible to continue simulating the tertiary collimation system with the phase space obtained.

**Palabras clave.** Monte carlo methods in treatment strategy 87.55.Kh

### 1 Introducción

La Radiocirugía Estereotáxica (RE) se ha convertido en una herramienta clínica muy utilizada en el tratamiento de pequeñas lesiones cerebrales<sup>1</sup>. En esta técnica la deposición de dosis a suministrar se realiza en una sesión única, a diferencia de la radioterapia estereotáxica.

La RE fue desarrollada por Leksell a finales de la dé-

cada de los 40, para destruir disfunciones localizadas en el cerebro, utilizando fuentes de rayos X en el rango de los ortovoltajes. Hoy en día los dispositivos más extendidos en RE son las unidades Gamma Knife y los aceleradores lineales (AL) con modificadores, aunque habría que citar también las unidades CyberKnife<sup>2</sup>.

El uso de los AL en RE fue propuesto teóricamente por Larsson en 1974. En la RE basada en AL, la configu-

ración del cabezal no varía de un tratamiento a otro. El haz que emerge del cabezal es colimado empleando un microcolimador multiláminas o un juego de colimadores circulares.

Los requerimientos específicos para esta técnica son una localización precisa del orden de 1 mm y una exactitud numérica de la dosis entregada mejor que un 5%<sup>3</sup>. La puesta en marcha de un procedimiento de cálculo de dosis para esta técnica implica investigar los límites de aplicabilidad del algoritmo utilizado y validar las distribuciones de dosis calculadas, con mediciones representativas de los casos clínicos<sup>4</sup>. Esto último está bastante limitado en la práctica por ser la medición de las distribuciones de dosis en tres dimensiones un proceso muy laborioso. Es también complicado por las dificultades para obtener de forma precisa y exacta mediciones de dosis para campos pequeños, donde no se establece el equilibrio electrónico<sup>5</sup>.

Para evaluar la dosis en regiones en la que esto no ocurre, es necesario usar detectores con un volumen sensible muy pequeño y películas radiográficas con buena resolución espacial. En este tipo de situaciones la simulación Monte Carlo (MC) permite obtener valores realistas para las distribuciones de dosis porque es posible reproducir las condiciones de irradiación.

En la RE es necesario determinar la dosis en regiones pequeñas, por lo que hemos abordado el problema utilizando la simulación MC. En primer lugar se describe el modelo geométrico usado para las simulaciones del cabezal del acelerador Elekta Precise. Explicamos brevemente el principio de funcionamiento del código PENELOPE<sup>6</sup> y las técnicas de reducción de varianza empleadas, se describe cómo se desarrollan las simulaciones para sintonizar el haz que se obtiene del modelo del cabezal del AL. Estudiamos los parámetros de mayor influencia en el proceso de sintonía del haz, comparamos los resultados de las simulaciones con las medidas experimentales. Nuestro objetivo es obtener un espacio de fase que pueda ser utilizado para simular el sistema de colimación terciaria.

## 2 Descripción geométrica del cabezal del acelerador elekta precise

Los componentes del cabezal del AL para haces de fotones de 6 MV, así como sus composiciones y densidades, según la información suministrada por el fabricante, se muestran en la figura 1 y en la tabla I. El modelo construido contiene los elementos más representativos en la trayectoria del haz de fotones de 6 MV. La distribución de electrones incidentes que impactan el blanco, tiene una forma gaussiana con un ancho a la mitad de la altura de 1 mm, y una energía media de 6 MeV. El blanco está formado por una lámina de W de 1 mm de espesor, incrustado en una base de Cu de 11 mm. A 1 mm de separación debajo de la base del blanco se encuentra el colimador primario, de forma cónica.

El filtro aplanador está diseñado para absorber la ra-

diación diferencialmente y reducir la tasa de dosis en el centro del haz. Está formado por cinco conos truncados, de diferente apertura y de acero inoxidable, y una base de Al.

La cámara monitora, con diámetro interno de 9 cm, está compuesta de seis láminas de Polietileno (mylar), separadas por diferentes espesores de aire. A continuación se encuentra el plato retrodispersor. El espejo es empleado en este tipo de aceleradores, para verificar la posición de las multiláminas. Estudios previos han mostrado que la cámara monitora y el espejo no tienen un impacto significativo en las características del haz de fotones<sup>7</sup> y por eso no se han tenido en cuenta en nuestras simulaciones.

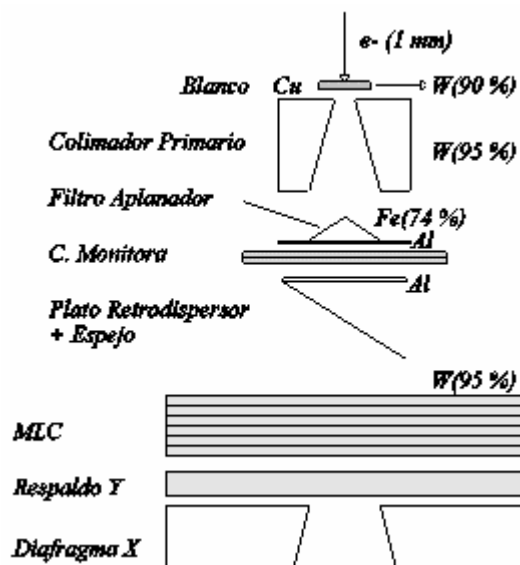


Figura 1. Modelo del cabezal del acelerador Elekta para un haz de fotones de 6 MV.

Elemento	Composición	Densidad (g/cm <sup>3</sup> )
Blanco	W (90%), Re (10%)	19.4
Base del blanco	Cu (100%)	8.96
Colimadores	W (95%), Ni (3.75%), Fe (1.25%)	18.0
Filtro aplanador	Fe (74%), Cr (18%), Ni (8%)	8.03
Base del Filtro aplanador	Al (100%)	2.6989

El sistema de colimación secundaria del Elekta Precise, consiste de un colimador multiláminas (MLC), una mandíbula superior, llamada respaldo en la terminología de Elekta, y una mandíbula inferior. El MLC está formado por 40 pares de láminas de W, con una transmisión por debajo del 2%<sup>8</sup>. La mandíbula superior se encuentra por debajo del MLC y su objetivo es atenuar completamente la radiación transmitida por éste y conformar el

campo en la dirección Y; la mandíbula inferior conforma el campo en la dirección X. Ambas mandíbulas están constituidas de W con un espesor de 30 y 78 mm, respectivamente. En nuestro modelo consideramos el MLC como otra mandíbula superior, al no contribuir en la conformación del campo para nuestro estudio.

### 3 Simulaciones monte carlo

**3.1 El código PENELOPE.** En este trabajo se usó el software PENELOPE<sup>6</sup>, un código MC de propósito general que permite simular el transporte de fotones, electrones y positrones en la materia, realiza una buena descripción en la interfase y proporciona muy buena exactitud a bajas energías. En PENELOPE se desarrolla una simulación detallada para fotones; en el caso de los electrones y positrones se hace un proceso mixto, en el cual las colisiones se clasifican en duras y blandas. Las colisiones duras son simuladas de una forma detallada y caracterizadas por un ángulo de desviación polar o una pérdida de energía mayor que ciertos valores umbrales. Las colisiones blandas se describen en términos de una simulación condensada basada en una teoría de dispersión múltiple. La trayectoria de los electrones es controlada por medio de cuatro parámetros:  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $W_{cc}$ ,  $W_{cr}$ . Los dos primeros se refieren a las colisiones elásticas.  $C_1$ , da la desviación angular promedio producida por dispersión elástica múltiple a lo largo de una longitud igual al recorrido libre medio entre eventos consecutivos de tipo duro.  $C_2$ , representa el valor máximo permitido para el promedio de pérdida de energía fraccional entre eventos consecutivos de tipo duro.

Los parámetros  $W_{cc}$  y  $W_{cr}$  son energías de corte para separar los eventos duros y blandos. Las partículas son simuladas hasta que su energía está por debajo de una energía de absorción dada  $E_{abs}$ , en cuyo caso son absorbidas localmente. Valores óptimos de estos parámetros permiten obtener un tiempo razonable de trabajo del ordenador.

**3.2 Reducción de varianza.** En nuestro problema la magnitud de interés es la dosis depositada en el maniquí de agua. Entonces una forma de reducir la varianza es seguir completamente las historias que den una contribución a la dosis y olvidarnos de las que no lo hacen. La discriminación entre ambos tipos de historias usualmente se hace teniendo presente la geometría de las regiones que ellas atraviesan. Hay dos técnicas de gran utilidad cuando se aplican juntas: *splitting* (Sp) y *Ruleta rusa* (Rr).

La idea básica en estos métodos es favorecer el flujo de la radiación hacia la región de interés e inhibir la radiación que no llega a dicha región. La reducción de varianza se completa modificando los pesos de las partículas simuladas. Se asume que las partículas primarias inician su movimiento con un peso unidad. El peso inicial de cualquier partícula producida es igual al de la partícula que la produjo. Sp, consiste en transformar una partícula, con peso  $w_o$ , en un cierto estado, en un número  $s >$

1 de partículas idénticas con pesos  $w = w_o/s$ , en el mismo estado. Sp, debe ser aplicado cuando la partícula se aproxima a la región de interés. La Rr está relacionada con el proceso inverso: cuando una partícula tiende a moverse fuera de la región de interés, ésta es aniquilada con cierta probabilidad  $r < 1$  y, si sobrevive, su peso se aumenta en un factor  $1/(1-r)$ . De esta forma queda asegurado que los resultados están exentos de sesgo. Después de completar un número  $N$  de historias, el valor esperado  $\langle F \rangle$  de una cierta cantidad de interés  $F$ , es estimado como el promedio

$$\bar{F} = \frac{1}{N} \sum_{ij} w_{ij} f_{ij}, \quad (3.1)$$

donde  $w_{ij}$  y  $f_{ij}$  denotan, respectivamente, el peso y la contribución a la acumulación de la  $j$ -ésima partícula (con  $j=1$ , para la partícula primaria y  $j>1$ , para las secundarias) de la  $i$ -ésima historia.

**Tabla II**

Parámetros de los materiales usados en la simulación.  $E_{abs}(\gamma)(\text{keV})$  y  $E_{abs}(e^-, e^+)(\text{keV})$ , corresponden a la energía de absorción de fotones, electrones y positrones respectivamente.

Material	$C_1$	$C_2$	$W_{cc}$ (keV)	$W_{cr}$ (keV)
Aire	0.05	0.05	1.0	0.1
Agua	0.02	0.02	1.0	0.1
Al	0.1	0.1	10.0	1.0
Cu	0.2	0.2	10.0	1.0
Acero	0.01	0.01	1.0	0.1
W(Blanco)	0.01	0.01	1.0	0.1
W(Col.)	0.15	0.15	10.0	1.0

	$E_{abs}(\gamma)(\text{keV})$	$E_{abs}(e^-, e^+)$ (keV)	$s_{max}(\text{cm})$
Aire	1.0	0.1	$10^{35}$
Agua	1.0	0.1	0.03
Al	10.0	1.0	0.01
Cu	100.0	10.0	$10^{35}$
Acero	1.0	0.1	0.05
W(Blanco)	1.0	0.1	0.01
W(Col.)	10.0	1.0	$10^{35}$

La varianza de este estimador viene dada por:

$$s^2 = \frac{1}{N} \left[ \frac{1}{N} \sum_i \left( \sum_{i,j} w_{i,j} f_{i,j} \right)^2 - \bar{F}^2 \right]. \quad (3.2)$$

La eficiencia de Rr y Sp depende de la estrategia usada para decidir cuando aplicar una u otra.

Nosotros hemos utilizado aquí el algoritmo de colonias de hormigas<sup>9</sup>. El mismo consiste en dividir toda la geometría en un conjunto de paralelepípedos ficticios, los cuales se caracterizan por el valor de un parámetro conocido como importancia,  $I$ .

Este parámetro es formalmente un buen estimador de la contribución a la cantidad de interés de las partículas que alcanzan un paralelepípedo dado. De esta forma, la lógica es aplicar Sp a las partículas cuando pasan de un

paralelepípedo con un valor dado de  $I$  a otro con un valor superior.  $R_r$  es aplicada cuando la importancia se reduce. La razón  $s/r$  es gobernada por la razón de la importancia a ambos lados de la frontera.

**3.3 Sintonía del haz.** Hay muchos trabajos acerca de la simulación MC de un AL (por ejemplo, ref. [10]). Sin embargo los aspectos más importantes a tener en cuenta aún no están totalmente esclarecidos. Diferentes consideraciones han sido sugeridas para sintonizar el ancho del haz y la energía de la distribución de electrones incidentes en el blanco. Algunos estudios realizan una comparación entre las curvas de rendimiento de dosis en profundidad (PDD, del inglés percentage depth dose) medidas experimentalmente y las obtenidas mediante simulaciones<sup>11, 12</sup>. Los autores de la ref. [10] encontraron que es posible ajustar el haz usando un perfil del haz de un campo de 10 cm x 10 cm. Teniendo en cuenta los resultados publicados, se decidió ajustar el haz de electrones incidentes en el blanco a partir de los resultados dosimétricos medidos en condiciones de referencia.

Se modificó el programa PENMAIN de PENELOPE teniendo en cuenta que, como el fabricante reporta, el haz de electrones que impactan en el blanco tiene forma cilíndrica, con diámetro de 1 mm y un espectro de energía gaussiano con  $\sigma = 0.4245$  MeV. Considerar una forma gaussiana en la coordenada espacial no tiene un impacto significativo en la curva de PDD y en la región central del perfil<sup>11, 13</sup>, por lo que no se tendrá en cuenta en nuestras simulaciones.

La geometría se describe mediante el paquete PENGEOM de PENELOPE, que permite generar los elementos requeridos. Hemos utilizado la geometría descrita en la sección 2 (figura 1). A ésta se le incorporó un tanque de agua de 30 cm x 30 cm x 40 cm y una atmósfera de aire, colocada para realizar mediciones en condiciones de referencia. Los parámetros para la simulación se muestran en la tabla II. La simulación se llevó a cabo en dos pasos. Primeramente se obtuvo un espacio de fase a la salida del filtro aplanador. Seguidamente se aplicaron las técnicas de reducción de varianza antes discutidas para simular el resto del proceso y obtener la dosis en el maniquí.

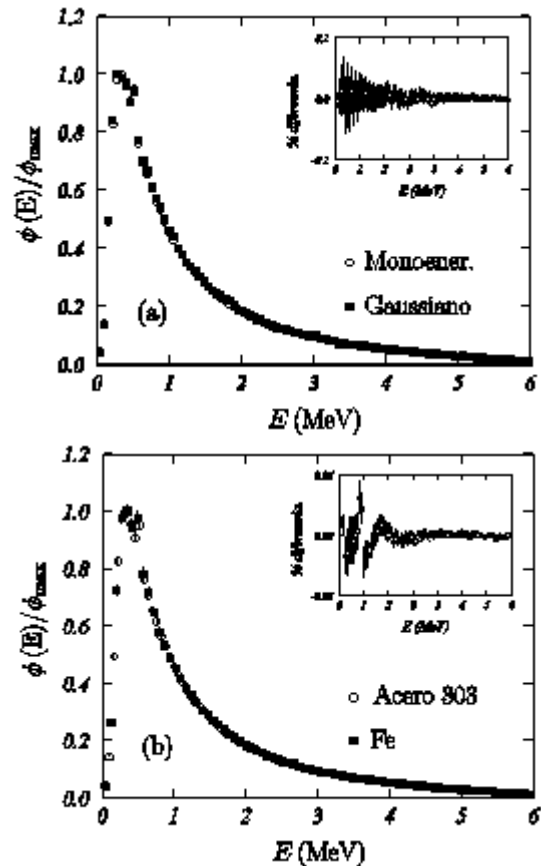
## 4 Resultados y discusión

### 4.1 Ajuste de los parámetros de la simulación.

Antes de proceder a realizar las simulaciones para sintonizar el modelo del cabezal con los valores medidos, decidimos revisar el comportamiento de algunos de los parámetros de mayor influencia en las curvas de PDD y perfiles.

**4.1.1 Distribución y espectro de energía del haz de electrones incidentes.** Para evaluar si el espectro de energía del haz de fotones incidentes en el blanco afecta a los resultados, realizamos un estudio del espectro de energía debajo del filtro aplanador (figura 1). En primer lugar hemos considerado el haz de espectro gaussiano descrito en la sección 3.3. Los resultados se comparan

con los correspondientes a un haz monoenergético. La figura 2.a muestra las fluencias obtenidas, normalizadas al valor máximo. Como vemos no existen diferencias significativas entre ambos cálculos, lo que nos permite realizar el resto de las simulaciones asumiendo un haz monoenergético incidente en el blanco.



**Figura 2.** (a) Fluencias  $\phi(E)$  normalizadas al máximo obtenidas a la salida del filtro aplanador. Comparación entre los resultados para un haz monoenergético y uno con espectro gaussiano. (b) Comparación entre filtro de acero 303 y de Fe. En la parte superior de cada una se muestra las correspondientes diferencias relativas.

**4.1.2 Filtro aplanador.** En la información suministrada por el fabricante no se especifica claramente el tipo de acero usado para la construcción del filtro aplanador. En algunos estudios de simulación MC del cabezal de aceleradores Elekta se considera que está compuesto de Fe. Para discernir si existen diferencias en los resultados al considerar éste u otro material, realizamos simulaciones empleando Fe y acero 303. Los resultados se muestran en la figura 2.b Como se aprecia la consideración de Fe o acero 303 como material constitutivo del filtro aplanador, no afecta el espectro de energía obtenido en un plano situado a la salida del mismo. En las simulaciones posteriores hemos usado Fe como material en el filtro aplanador.

**4.1.3 Ajuste de los parámetros de transporte.** Con el fin de ajustar los parámetros para la simulación de partí-



culas cargadas con PENELOPE  $C_1$ ,  $C_2$ ,  $W_{cc}$  y  $W_{cr}$ , realizamos varias simulaciones con distintos valores de esos parámetros. En estas simulaciones se utilizó el espectro de energía reportado por Sheikh-Bagheri (ver ref. [11]), para el acelerador Elekta SL25, y se llevaron a cabo suponiendo una fuente puntual con una distancia de la fuente a la superficie (SSD, del inglés source-surface distance) de 100 cm y un campo de 10 cm x 10 cm en la superficie del maniquí. No se incluyeron, lógicamente, los elementos dispersores antes descritos, ya que el espectro de energía utilizado está determinado a la entrada del maniquí y, por tanto, ya incorpora el efecto de los mismos. Los resultados se comparan con los valores medidos experimentalmente para este acelerador<sup>14</sup>. El resultado (figura 3) demuestra la consistencia de los parámetros utilizados en la simulación que son los que se indican en la tabla II. Para calcular la diferencia relativa entre los resultados realizamos una interpolación de los valores medidos usando un polinomio de cuarto orden a partir de la profundidad de 2 cm.

#### 4.2 Comparación de las simulaciones con las medidas.

En la sintonía de haces de electrones, para encontrar el valor de la energía media de los electrones incidentes, se utiliza la profundidad donde la dosis en agua, referida al máximo, alcanza el 50%. En nuestro caso, para el haz de fotones decidimos emplear el  $TPR_{20,10}$  (del inglés tissue-phantom ratio), que se define como la razón entre las dosis absorbidas a las profundidades de 20 y 10 cm en agua, manteniendo la distancia fuente-detector constante igual a 100 cm). Llevamos a cabo, en primer lugar, simulaciones para electrones incidentes en el blanco con energías de 5, 6 y 7 MeV y, para cada una de ellas, se calcularon los correspondientes cocientes  $TPR_{20,10}$ , cuyos valores respectivos se muestran en la figura 4 y que, como vemos, permiten establecer una recta de calibrado. Dado que el valor experimental de  $TPR_{20,10}$  es 0.679, la recta de calibrado nos permite determinar que la energía que debemos usar en las simulaciones para los electrones incidentes es de 6.3 MeV.

Una vez fijada la energía inicial de los electrones, se realizó una simulación en la que se determinó la curva PDD y el perfil a la profundidad del máximo. Los resultados obtenidos se comparan con las medidas experimentales (que se llevaron a cabo para una SSD de 100 cm y un campo de 10 cm x 10 cm, utilizando una cámara PTW 30004) en la figura 5. Como vemos en el panel (a), la similitud de la curva PDD simulada (cuadrados) y la experimental (círculos) es notable, siendo las diferencias relativas menores del 4% a todas las profundidades. Este resultado garantiza, de nuevo, la validez de las simulaciones realizadas.

Por otro lado, es también destacable la semejanza entre el perfil simulado y el medido a la profundidad del máximo de dosis (panel (b)). Éste es un observable que tiene la característica de no corresponder a medidas en el eje del haz, como son las utilizadas en el proceso de sintonización. Por tanto el resultado obtenido redundará en la fiabilidad de los parámetros de transporte utilizados en la

simulación.

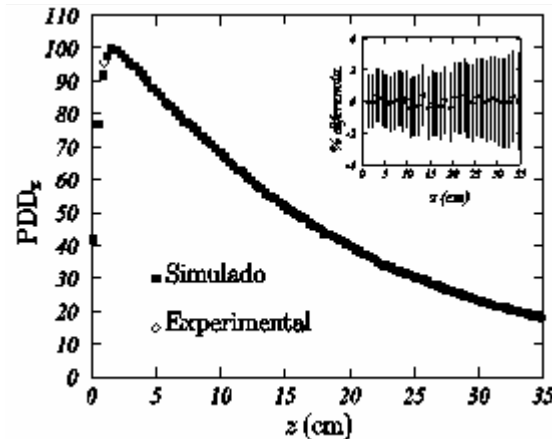
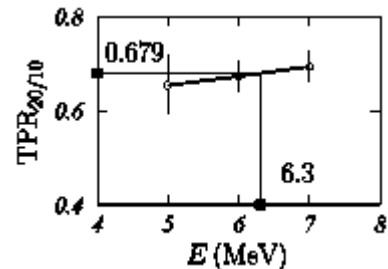


Figura 3. PDD simulado con el espectro de Sheikh-Bagheri (2002) comparado con el experimental (Jatinder et al. 1990).

Figura 4. Recta de calibrado del  $TPR_{20,10}$ .



El cálculo del valor de  $TPR_{20,10}$  mediante la simulación aquí descrita es muy costoso, dado que es

necesario realizar dos simulaciones completas para cada valor. De acuerdo con la ref. [15],

$$TPR_{20,10} = 1.2661PDD_{20,10} - 0.0595 \quad (4.1)$$

expresión que relaciona el  $TPR_{20,10}$  con el valor  $PDD_{20,10}$  que es el cociente entre las dosis medidas a 20 y 10 cm sobre la curva PDD.

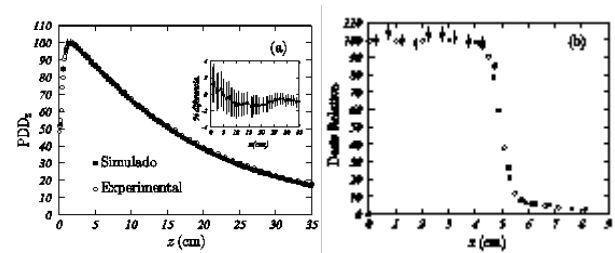


Figura 5. (a) Comparación entre los valores experimentales y simulados para las curvas PDD. (b) Comparación entre los perfiles a la profundidad del máximo. Los resultados se obtuvieron con una incertidumbre a  $3\sigma$  inferior al 4%.

El cálculo de este último sólo requiere realizar una simulación, por lo que parece razonable realizar la sintonía del acelerador utilizando la curva de PDD y, más concretamente, el valor  $PDD_{20,10}$ .

## 5 Conclusiones

Los resultados nos permiten establecer las siguientes conclusiones:

- utilizar un haz de electrones incidentes en el blanco monoenergético o con espectro de energía gaussiano, con un ancho a la mitad de la altura de 1 MeV no influye en el espectro de energía obtenido a la salida del filtro aplanador.

- utilizar Fe o acero 303 como material del filtro aplanador tampoco modifica estos resultados.

- con el fin de reducir el número de simulaciones para el proceso de sintonía se puede emplear el  $PDD_{20,10}$  obtenido directamente de la curva de PDD en lugar del valor  $TPR_{20,10}$ .

La simulación realizada nos permite reproducir con garantías el comportamiento del acelerador Elekta Precise. En particular es posible obtener un espacio de fase a la salida del cabezal para la configuración utilizada en RE que reproduce el comportamiento del haz real. Como esta configuración es fija, podemos usar el espacio de fase para estudios Monte Carlo en el sistema de colimación terciaria.

## Agradecimientos

Al Programa de Becas de Alto Nivel de la Unión Europea para América Latina, beca n° [E06D100777CU].

## Referencias

1. D. Roberge, L. Souhami, Stereotactic radiosurgery in the management of intracranial gliomas, *Technol. Cancer Res. Treat.*, Vol. 2, pp.117-125, (2003).
2. M.C. Schell, F.J. Bova, D.A. Larson, D.D. Leavitt, W.R. Lutz, E.B. Podgorsak, A. Wu, Stereotactic Radiosurgery report. AAPM Report No. 54 (1995).
3. E.B. Podgorsak, M.B. Podgorsak, Stereotactic irradiation. Modern technology of radiation oncology. Ed. J. Van Dyk (Madison: Medical Physics Publishing, 1999).
4. B. Fraass, K. Dopke, M. Hunt, G. Kutcher, G. Starkschall, R. Stern, J.V. Dyke. TG53 Quality assurance for clinical radiotherapy treatment planning, *Med. Phys.*, Vol. 25, pp. 1773-1829, (1998).
5. I.J. Das, G.X. Ding, A. Ahnesjö, Small fields: Nonequilibrium radiation dosimetry, *Med. Phys.*, Vol. 35, pp. 206-215. (2008).
6. F. Salvat, J.M. Fernández-Varea, J. Sempau, PENELOPE - A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. (Paris: NEA, 2006).
7. M.K. Fix, H. Keller, E.J. Born, P. Rügsegger, Simple beam models for Monte Carlo photon dose calculations in radiotherapy, *Med. Phys.*, Vol. 27, pp. 2739-2747 (2000).
8. J. Van de Walle, C. Martens, N. Raynaert, H. Palmans, M. Coghe, W. De Neve, C. DeWagter, H. Thierens, Monte Carlo model of the Elekta SLiplus accelerator: validation of a new MLC component module in BEAM for a 6 MV beam, *Phys. Med. Biol.*, Vol. 48, pp. 371-385, (2003).
9. S. García-Pareja, M. Vilches, A.M. Lallena, Variance reduction techniques in the MC Simulation of clinical electron linear accelerators driven by the ant colony methods, *Proc. Workshop on Nature Inspired Cooperative Strategies for Optimization, NISCO 2006*.
10. S.Y. Lin, T.C. Chu, Simulation of a clinical linear accelerator, *Appl. Radiat. Isot.*, Vol. 55, pp. 759-765, (2001).
11. F. Verhaegen, J. Seuntjens, Monte Carlo modeling of external radiotherapy photon beams, *Phys. Med. Biol.*, Vol. 48, pp. 107-164, (2003).
12. D. Sheikh-Bagheri, D. W. O. Rogers, Sensitivity of megavoltage photon beam Monte Carlo simulations to electron beam and other parameters, *Med. Phys.*, Vol. 29, pp. 379-390 (2002).
13. A. Mesbahi, Development a simple point source model for Elekta SL-25 linear accelerator using MCNP4C Monte Carlo code, *Iran J. Radiat. Res.*, Vol. 4, pp. 7-14., (2006).
14. R. P. Jatinder, A. Komanduri, D. Inder, S. Nagalingam, Characteristics of photon beams from Philips SL25 linear accelerators, *Med. Phys.*, Vol. 17, pp. 106-116, (1990).
15. D.S. Followill, R.C. Taylor, V.M. Tello, W.F. Hanson, An empirical relationship for determining photon beam quality in TG-21 from a ratio of percent depth doses, *Med. Phys.*, Vol. 25, 1202-1205 (1998).

## Efectos de la hidroxiurea sobre la densidad de los eritrocitos de los pacientes drepanocíticos, empleando la relajación magnética protónica

A. A. Fernández<sup>a†</sup> y F. Hernández-Moncada.<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Dpto. de Biofísica. Centro de Biofísica Médica. Universidad de Oriente; adolfo@cbm.uo.edu.cu

<sup>b</sup> Dpto. de Aseguramiento de la Calidad. Banco de Sangre Provincial, Santiago de Cuba.

† Autor para la correspondencia

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 29/10/09.

**Sumario.** La polimerización intraeritrocitaria puede afectar la integridad de los eritrocitos, y causar la deshidratación e incremento de la densidad de estas células. La distribución de los eritrocitos es posible usarla para caracterizar el estado clínico del paciente: basal, en crisis y bajo tratamiento. Nuestro objetivo fue evaluar por RMN-<sup>1</sup>H, el tiempo de demora de la polimerización de la Hb S (td), en eritrocitos y sus perfiles de pacientes no tratados y bajo tratamiento con hidroxiurea. Los perfiles de eritrocitos se separaron en gradientes de Percoll-PBS, y por RMN-<sup>1</sup>H se midieron el tiempo de relajación espín-espín (T2) a 36 °C, y se determinó el tiempo de demora de la polimerización de la Hb S (td). El desarrollo de la polimerización de la Hb S y deshidratación celular causan el decrecimiento de los valores de T2 en el tiempo. Estos efectos se atenúan por la acción de la hidroxiurea. Un análisis más detallado de este estudio será posible en próximos trabajos.

**Abstract.** Intracellular polymerization of sickle haemoglobin can affect the integrity of the erythrocytes, and to provoke the dehydration and increase the cellular density. The distribution of the erythrocytes is possible to use on the characterization of the clinical state of the patients: in conditions steady, in crisis and under treatment. We evaluate by NMR-<sup>1</sup>H, the Hb S polymerization decay time (td), in densest erythrocytes and its profiles. These cells corresponding to patients who don't receive treatment (group 1) and treated with hydroxyurea (group 2). The profiles of the erythrocytes obtained on Percoll-PBS gradients were isolated, and by NMR-<sup>1</sup>H the spin-spin relaxation times (T2) were measured at 36 °C, under conditions of Hb S spontaneous deoxygenating. Moreover, the Hb S polymerization decay time (td), was determined. The evolution of the cellular dehydration and Hb S polymerization provoke the decreasing of the values of T2 on the time. These effects are attenuated for the hydroxyurea. An analysis more detailed will be possible in next works.

**Palabras clave.** 71.15.Mb Density functional theory, 76.60.2k Nuclear magnetic resonance and relaxation.

### 1 Introducción

La Anemia Drepanocítica (AD) o sickleemia, se caracteriza por una alteración estructural de la hemoglobina Hb S<sup>1</sup>. Este tipo de hemoglobina anormal en la forma tensa (desoxigenada) polimeriza dentro del glóbulo, y junto a

la deshidratación de los mismos debido a afectaciones en la membrana celular, cambia la densidad del eritrocito. Esta magnitud depende en gran medida de la concentración de Hb dentro del eritrocito<sup>2</sup> y de la polimerización. Es conocido que en la AD, la distribución por densidad de los eritrocitos es posible emplearla para caracterizar el

estado clínico de los pacientes, en condiciones basal, en crisis y bajo tratamiento. Por otra parte, se ha descubierto que las moléculas de Hb S no copolimerizan con hemoglobinas normales como la fetal (Hb F). Esto se debe a la desestabilización en los contactos intermoleculares de la doble hélice del polímero de Hb S<sup>3</sup>. Un medicamento que induce la producción de Hb F, y disminuye la deshidratación del eritrocito es la hidroxiurea (HU) mejorando el estado de salud del paciente drepanocítico<sup>4</sup>. Debido a que la polimerización de la Hb S, es el evento fisiopatológico primario de la enfermedad, el estudio de la cinética de este proceso refleja los cambios en el estado del paciente. Hasta la actualidad no se han combinado estos dos aspectos para ser empleados en el diagnóstico del estado del paciente drepanocítico. Partiendo de estos dos criterios, el objetivo de este trabajo es evaluar por RMN-<sup>1</sup>H, empleando la variación temporal del tiempo de relajación espín-espín (T2), el tiempo de demora de la polimerización de la Hb S, en soluciones de Hemoglobina S de eritrocitos densos de pacientes con AD en estado basal, no tratados y tratados con HU.

Se ha demostrado que el mecanismo de relajación protónica predominante en la solución de Hemoglobina es el dipolo-dipolo, por lo que en el tiempo de relajación T2 depende inversamente del tiempo de correlación, y en especial del tiempo de correlación rotacional, por lo que en aquellas soluciones de Hb S en que las condiciones fisiológicas o experimentales se favorece la polimerización, aumenta el tiempo de correlación rotacional y disminuyen los valores de T2, constituyendo este fenómeno el criterio de determinación del tiempo de demora en la cinética de la polimerización de la Hb S. La variación del T2 se divide en tres etapas características de la cinética de polimerización: La primera etapa (I) o de inicio donde la Hb se encuentra en estado de solución, la segunda de polimerización (II) y la tercera de terminación de la polimerización (III). Por lo que es de esperar que en soluciones de Hb S provenientes de células de densidad normal (menos densas), la etapa de polimerización se alargue y en consecuencia aumente el tiempo de demora.

## 2 Materiales y métodos

**Preparación de las muestras.** Se colectaron muestras de 10 mL de sangre total heparinizada de un donante sano (D) procedente del Banco de Sangre Provincial de Santiago de Cuba; y de 3 a 4 mL de 6 pacientes drepanocíticos adultos voluntarios en estado basal provenientes del Hospital Clínico Quirúrgico "Juan Bruno Zayas" de Santiago de Cuba. Estos pacientes se dividen en dos grupos (YP, YM y MC, no tratados con HU) y (MB, DD y DG, tratados con HU). Se aislaron los eritrocitos y se lavaron con buffer fosfato salino tres veces<sup>5</sup> (1258 x g, durante 10 minutos, a temperatura ambiente) en la centrífuga de mesa de cabezal oscilante (Tehtnica železniki, Checoslovaquia).

A partir de 1,1295 g/mL de la solución isotónica de Percoll (SIP), se preformaron los gradientes de densidad discontinuos de Percoll-PBS de 1.0614, 1.0841, 1.0954 y 1.1066 g/mL, como se describe previamente.<sup>6</sup>

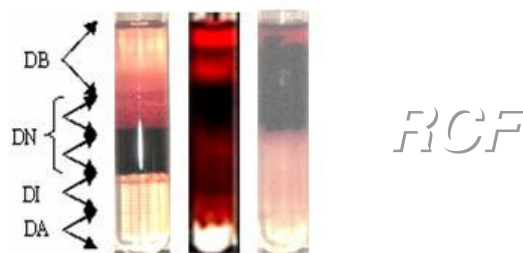
**Tabla I**  
**Perfiles de eritrocitos separados en gradientes de densidad**

M	DB	(DB a DN)	DN	DI	DA
D	0	0	X	0	0
YP	-	X	0	X	0
YM	0	-	0	X	-
MC	X	0	-	-	0
MB	X	X	0	0	0
DD	-	X	0	0	0
DG	0	X	0	0	0

M: Muestra. Los símbolos - y 0, representan el perfil no medible (< 300 µL), y la ausencia del perfil en el sistema de gradientes, respectivamente.

**Tabla II**  
**Frecuencias de los perfiles y sus porcentajes de recuperación.**

Muestras	Perfiles	Frec. Perfil	Frec. Perfil medible	% rec
Donante sano (control)	DN	1	1	100
	<b>Total</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>100</b>
Pacientes no tratados	DB	2	1	50
	(DB a DN)	2	1	50
	DN	1	-	-
	DI	3	2	67
	DA	1	-	-
	<b>Total</b>	<b>9</b>	<b>4</b>	<b>44</b>
Pacientes tratados	DB	1	-	-
	(DB a DN)	3	3	100
	DN	-	-	-
	<b>Total</b>	<b>4</b>	<b>3</b>	<b>75</b>



**Figura 1.** Gradientes de densidad en Percoll-PBS, de un donante sano (D), y de dos pacientes drepanocíticos: YP sin tratamiento y MB tratado con HU. Los gradientes se definen DB (<1.080 g/mL), densidad normal, DN (1.080 a 1.090 g/mL), densidad intermedia, DI (1.090 a 1.114 g/mL), y densidad alta, o hiperdensa, DA (> 1.114 g/mL). En el control se observa un sólo perfil (DN); mientras en el paciente YP se localiza un número mayor de perfiles, el cual supera la cantidad de observada en el paciente MB. En éste hay una tendencia hacia la disminución de la cifra de perfiles, por causa de la acción de la HU.

Los gradientes obtenidos se definen como sigue: den-

sidad baja, DB (<1.080 g/mL), densidad normal, DN (1.080 a 1.090 g/mL), densidad intermedia, DI (1.090 a 1.114 g/mL), y densidad alta, o hiperdensa, DA (> 1.114 g/mL).

Las subpoblaciones de eritrocitos se separaron de acuerdo a sus valores de densidad, en estas fracciones, mediante centrifugación isopónica (404 x g, durante 5 minutos, a temperatura ambiente). Las capas de eritrocitos, se extrajeron de las fracciones, se lavaron cinco veces con PBS, con un valor de hematocrito igual o mayor que 0.96.

**Método de relajación magnética protónica.** A las muestras de eritrocitos colectadas extraídas de los gradientes en volúmenes superiores a 300 µL se depositaron en ampulas de RMN. Las capas que tuvieron un volumen inferior, se desecharon, tomando en cuenta que este es el volumen óptimo de estudio, en este equipo, teniendo presente la relación señal ruido y la homogeneidad de los campos magnéticos a los cuales están sometidas las muestras. La medición del tiempo de relajación espín-espín (T<sub>2</sub>), se realizó a la frecuencia de resonancia de 4 MHz, mediante la serie de pulsos 90°-τ-180°, con un error sistemático inferior a 5 %, en el Relaxómetro Universal Giromag® 01. Las mediciones se ejecutaron durante 13 horas en condiciones de desoxigenación espontánea de la Hb S a 36 °C.

### 3 Resultados y discusión

Teniendo presente la distribución de los eritrocitos en los diversos perfiles se observan diferencias en cuanto a la cantidad de perfiles del control y de pacientes, como se muestra en la Tabla I.

En el control **D**, los eritrocitos se agrupan en un sólo perfil (DN); sin embargo, en los pacientes no tratados (**YP**, **YM** y **MC**) estas células se distribuyen en un número mayor de perfiles, los cuales se extienden en un rango desde DB hasta DA; mientras en los pacientes tratados (**MB**, **DD** y **DG**) la extensión es desde DB hasta (DB a DN).

La Tabla II, muestra la frecuencia de los perfiles, y el porcentaje de recuperación de los mismos (% rec). Este porcentaje consiste en la cantidad de perfiles medibles (pm) respecto al total de los perfiles (tp), y se expresa % rec = (pm/tp) x 100.

El porcentaje de recuperación de los perfiles es mayor en pacientes tratados que en los no tratados, debido a la acción de la HU que atenúa la deshidratación, y reagrupa los eritrocitos hacia las zonas correspondientes a los perfiles de bajas densidades.

Por otra parte, en los pacientes tratados, predomina el perfil (DB a DN) porque la médula ósea produce reticulocitos en sustitución de los eritrocitos afectados por la polimerización, y estas células tienen bajas densidades.

En los gradientes de los pacientes no tratados, el perfil más frecuente es DI. La distribución de los eritrocitos es más amplia hacia los perfiles de mayores valores de den-

sidad, por el aumento de los niveles de deshidratación.

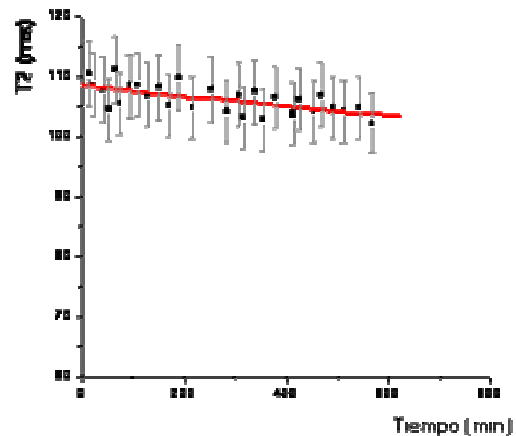
Esta diferencia se representa con un ejemplo, en la figura 1. Los eritrocitos del paciente **YP** se distribuyen en tres perfiles DB, (DB a DN) y DI; sin embargo, en el caso del paciente **MB**, la distribución es en un sólo perfil (DB a DN).

El tratamiento con HU disminuye el número de capas densas e inhibe la deshidratación celular, debido al incremento de la producción de Hb F.

La figura 2, representa la dependencia de T<sub>2</sub> con el tiempo. Esta dependencia es lineal porque la Hb A no polimeriza, ni se evidencian cambios físicos ni químicos que provoquen variaciones significativas en los valores de T<sub>2</sub> respecto al tiempo. La ecuación que caracteriza esta dependencia es:

$$T_2 = T_{2\text{inic}} + B * t \quad (1)$$

donde, T<sub>2</sub><sub>inic</sub> es el valor inicial de T<sub>2</sub>, B es la pendiente (de valor negativo) de la recta, y t es el tiempo que transcurre desde el momento en que se obtiene la muestra biológica y comienza el experimento. El valor de la pendiente de la recta es muy pequeño, B = (-0.008 ± 0.002) ms/min. Esta ligera disminución se debe a la transformación del estado de la hemoglobina, de oxihemoglobina (diamagnética) a desoxihemoglobina (paramagnética)<sup>7</sup>, lo cual produce la disminución de T<sub>2</sub>.



**Figura 2.** Característica lineal de T<sub>2</sub> respecto al tiempo, en solución de hemoglobina de eritrocitos totales de un donante sano (**D**) (control). Ecuación: T<sub>2</sub> = T<sub>2</sub><sub>inic</sub> + B \* t. Parámetros: N = 28; T<sub>2</sub><sub>inic</sub> = (108.5 ± 0.6) ms; B = (-0.008 ± 0.002) ms/min; r = - 0.63. La disminución ligera de la pendiente B, refleja el cambio de estado de la hemoglobina de oxihemoglobina (diamagnética) a desoxihemoglobina (paramagnética), provocando bajas disminuciones de T<sub>2</sub>.

Los resultados presentados sobre la cinética de polimerización de la Hb S, involucran tres procesos moleculares relacionados con la desoxigenación espontánea de este tipo de hemoglobina: los cambios en el magnetismo de la Hb<sup>8</sup>, la polimerización de la Hb S, y la aparición de micro dominios estructurales como resultado de la organización y alineamiento de los polímeros<sup>9</sup>. La transformación de oxihemoglobina (diamagnética) a desoxihe-

moglobina (paramagnética) también ocurre para la Hb S, y produce la disminución de T2. Esta magnitud disminuye con el aumento de la densidad celular (Tabla III). El cambio de estado hemoglobínico no hace variar la característica sigmoïdal de T2, en muestras de glóbulos que contienen Hb S, como muestran las figuras 3 y 4. La curva sigmoïdal que caracteriza el proceso de polimerización de la Hb S tiene por ecuación:

$$T2 = \frac{T2_{\text{inic}} - T2_{\text{fin}}}{1 + \exp\left(\frac{t - t_0}{dt}\right)} + T2_{\text{fin}} \quad (2)$$

donde, T2<sub>inic</sub> es el valor de T2 en la etapa de inicio, en la que predomina la Hb S en forma soluble, y no hay variación significativa de T2 en el tiempo (Etapa I). La Etapa II- caracteriza el equilibrio existente entre las moléculas de Hb S en solución y las que se encuentran formando el polímero. En este caso la disminución es casi lineal. El parámetro T2<sub>fin</sub>, es el valor de T2 al final de la polimerización, donde T2 no varía en el tiempo. Esta es la Etapa III. Se designa por t<sub>0</sub> el punto de inflexión que se encuentra en el centro de la etapa de crecimiento del polímero; dt representa el intervalo de tiempo en el que ocurre el proceso de crecimiento del polímero y t es el tiempo que transcurre desde el momento en que se obtiene la muestra biológica y comienza el experimento (figura 3).

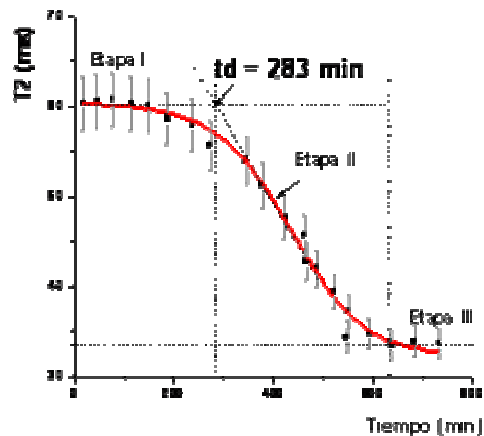
A medida que la polimerización avanza, la deshidratación celular aumenta, y se incrementa el tiempo de correlación que trae como consecuencia la disminución de los valores de T2.

Los paquetes de eritrocitos totales contienen subpoblaciones de eritrocitos de diferentes densidades, por lo que los valores de T2 de las subpoblaciones de los perfiles dependen de los valores de densidad y volúmenes de dichas subpoblaciones, aumentando o disminuyendo T2. Este caso se representa por ejemplo, en el paciente MC (Tabla III).

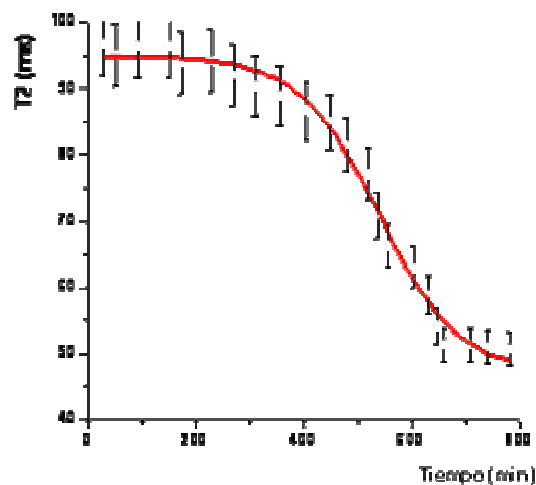
El paquete eritrocitario del paciente DG está conformado por la mezcla de dos subpoblaciones de densidades DB y DN; sin embargo, el valor de T2<sub>inic</sub> del paquete es superior al T2<sub>inic</sub> correspondiente al perfil (DB a DN) porque en el paquete predomina la subpoblación de perfil DB.

Esta diferencia puede ser consecuencia de la desigualdad en el valor del hematocrito, existiendo una dependencia inversamente proporcional entre T2<sub>inic</sub> y el hematocrito. A valores mayores de hematocrito, mayor el nivel de compactación entre los eritrocitos y menor movilidad molecular. En eritrocitos totales y en el perfil (DB a DN) en pacientes tratados los valores medios son 96 ms y 94 ms, y en los pacientes no tratados son 59 ms y 58 ms; respectivamente. De manera que los valores medios de T2<sub>inic</sub> en los pacientes tratados son significativamente superiores a los valores medios de T2<sub>inic</sub> correspondientes a los pacientes no tratados, a un nivel de 0.05. En pacientes tratados el valor de T2<sub>inic</sub> se aproxima al valor del control, 108 ms. El incremento de T2<sub>inic</sub> en

los pacientes tratados se debe a la acción de la HU, la cual atenúa la deshidratación celular. Similarmente ocurre en los perfiles. El tiempo de demora de la polimerización de la Hb S (td), se determinó trazando una línea recta desde la intersección de las rectas de las etapas I y II en las curvas cinética de polimerización. Los valores de td en las muestras de eritrocitos totales y sus perfiles medibles (Tabla IV), de pacientes no tratados no superan los valores pertenecientes a los pacientes tratados.



**Figura 3.** Curva cinética de polimerización de la HbS en eritrocitos totales del paciente YP no tratado con HU. Donde:  $r^2 = 0.99$ ;  $t_0 = (435 \pm 8)$  min;  $dt = (74 \pm 8)$  min;  $T2_{\text{inic}} = (60 \pm 1)$  ms y  $T2_{\text{fin}} = (32 \pm 1)$  ms. Los valores reflejan la presencia de subpoblaciones de altas densidades en el paquete eritrocitario, que causan disminución de T2, por el alto nivel de deshidratación celular.



**Figura 4.** Curva cinética de polimerización de la HbS en eritrocitos totales del paciente MB tratado con HU. Donde:  $r^2 = 0.99$ ;  $t_0 = (539 \pm 6)$  min;  $dt = (60 \pm 5)$  min;  $T2_{\text{inic}} = (95 \pm 1)$  ms y  $T2_{\text{fin}} = (47 \pm 2)$  ms. Los valores revelan la presencia de subpoblaciones de bajas densidades en el paquete eritrocitario, que originan disminución de T2, por el bajo nivel de deshidratación celular, causado por la acción de la HU.

Tabla III			
Valores de T2 <sub>inicial</sub> de eritrocitos totales y sus perfiles medibles, en el control y pacientes no tratados y tratados.			
(T2 <sub>inicial</sub> ± E) ms			
Control (D)			
ET	(108 ± 1)		
DN	(108 ± 1)		
Pacientes no tratados			
	YP	YM	MC
ET	(60 ± 1)	(63 ± 1)	(54.2 ± 0.4)
DB	-	0	(78.4 ± 0.6)
(DB a DN)	(58.2 ± 0.5)	-	0
DI	(55.8 ± 0.4)	(55.9 ± 0.4)	-
Pacientes tratados			
	MB	DD	DG
ET	(95 ± 1)	(98.1 ± 0.3)	(96 ± 1)
DB	0	-	-
(DB a DN)	(94.9 ± 0.5)	(93.3 ± 0.5)	(93 ± 1)

M: muestra. ET: Eritrocitos totales. Los símbolos - y 0, representan el perfil no medible (< 300 µL), y la ausencia del perfil en el sistema de gradientes, respectivamente.

Tabla IV			
Valores de td de eritrocitos totales y sus perfiles medibles, en pacientes no tratados y tratados			
(td ± E) min			
ET	DB	(DB a DN)	DI
Pacientes no tratados			
302 ± 14	(353 ± 17)	(273 ± 13)	(260 ± 12)
Pacientes tratados			
403 ± 20	0	(402 ± 19)	0

En eritrocitos totales y en el perfil (DB a DN) en pacientes tratados los valores medios son 403 ms y 402 ms, y en los pacientes no tratados son 302 ms y 273 ms; respectivamente. Los valores medios de td en los pacientes tratados son significativamente superiores a los valores medios de td que pertenecen a los pacientes no tratados, a un nivel de 0.05. En los pacientes tratados, el td aumenta porque la hidroxurea atenúa la polimerización intracelular de la Hb S.

## 4 Conclusiones

El tratamiento con hidroxurea a pacientes drepanocíticos, causa disminución de la cantidad de fracciones densas conservándose mejor los eritrocitos. La deshidratación se inhibe por la HU, y los tiempos de relajación espín-espín, aumentan en pacientes tratados. Con la continuación de esta línea de investigación, será posible un análisis más detallado sobre la evaluación de T2<sub>inicial</sub> y de td, en subpoblaciones de eritrocitos con la finalidad de conocer cuáles perfiles aportan los mejores datos de interés para la caracterización del estado clínico de los pacientes, en condiciones basal, en crisis y bajo tratamiento.

## Agradecimientos

Los autores agradecemos al Servicio de Hematología Espacial del Hospital Clínico Quirúrgico "Juan Bruno Zayas", por haber facilitado la adquisición de las muestras de eritrocitos de pacientes drepanocíticos.

## Referencias

1. Suárez J, Cruz C, Colina AJR. Laboratorio Clínico. En: Carballo TIT, Colina AJR. Estudio de las anemias. ed. Ciencias Médicas. 2004, pp. 217-263.
2. Lew VL, Bookchin RM. Ion transport pathology in the mechanism of Sick cell dehydration. *Physiol Rev* 85:179-200 (2005).
3. Colombo B, Guernichoff E, Martínez G. Genética y Clínica de las hemoglobinas humanas. ed. Pueblo y Educación, Ciudad de La Habana. 1993, pp. 149.
4. Feliu A, Eandi S, Sciuccati G, Bonduel M. Efecto de la hidroxurea en hemoglobina S. *CASUÍSTICA MEDICINA* (Buenos Aires) 63 (2): 140-142 (2003).
5. Fernández A., Falcón J.. Evaluación por RMN de la influencia del pH en el tiempo de demora (td) de polimerización de la hemoglobina S. *Rev Cub Quim*. XV, (3): 52-55 (2003).
6. Clark MR, Morrison CE, Shohet SB: Monovalent cation transport in irreversibly sickled cells. *J Clin Invest* 62:329 (1978).
7. Meyer M. E., Yu O., Eclancher B., Grucker D., "NMR Relaxations Rates and Blood Oxygenation level" *Magnet. Reson. Med.* 34: 234-241. (1995).
8. Meyer M. E., Yu O., Eclancher B., Grucker D., "NMR Relaxations Rates and Blood Oxygenation level" *Magnet. Reson. Med.* 34: 234-241. (1995).
9. Roufberg, A., Ferrone, F., A., "A Model for the Sick Cell Hemoglobin Fiber Using Both Mutation Sites", *Protein Sci* 19: 1031-1034 (2000).

## Celda solar sensibilizada con estructura de doble capa de TiO<sub>2</sub> nanocrystalino

F. Forcade<sup>a,b</sup>, S. Docteur<sup>a,b</sup>, B. Gonzalez<sup>a</sup>, I Zumeta<sup>a</sup>, E. Vigil<sup>a,b†</sup>

a) Instituto de Ciencias y Tecnología de Materiales (IMRE), Universidad de La Habana

b) Facultad de Física, Universidad de La Habana; evigil@fisica.uh.cu<sup>†</sup>

<sup>†</sup> autor para la correspondencia

Recibido el 02/02/2009. Aprobado en versión final el 25/07/2009.

**Sumario.** Se propone utilizar una estructura de doble capa de TiO<sub>2</sub> en las celdas solares sensibilizadas (DSSC), para lo cual se compara con una estructura tradicional de una sola capa nanocrystalina y porosa. Para obtener la doble capa de TiO<sub>2</sub> se deposita por baño químico activado por microondas (MW-CBD) una primera capa fina, densa y compacta. Todas las estructuras fueron sensibilizadas con un compuesto organo-metálico de rutenio utilizado en estas celdas. Se determina la característica volt-ampérica (I-V) iluminada y el comportamiento de la eficiencia cuántica espectral externa de los dispositivos. Se encontró que el valor de la resistencia serie R<sub>s</sub> de la estructura con doble capa se reduce significativamente respecto al correspondiente a la simple capa.

**Abstract.** A double TiO<sub>2</sub> layer structure is proposed for use in dye sensitized solar cells (DSSC). Comparison is made with a traditional DSSC with one porous-nanocrystalline layer. A dense and compact thin film, in contact with the conducting glass, is deposited using chemical bath deposition activated with microwaves (MW-CBD). A ruthenium organo-metallic compound was used for sensitization. Volt-ampere characteristics and external quantum efficiency are analyzed. Value of series resistance R<sub>s</sub> for the double layer solar cell is significantly reduced with respect to R<sub>s</sub> value for single layer structure.

**Palabras clave.** Celda solar sensibilizada 73.40.Mr, dispositivos nanocrystalinos 85.35.-p

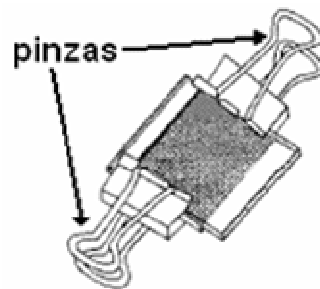
### 1 Introducción

Las celdas solares conocidas como DSSC (dye sensitized solar cell) son muy estudiadas actualmente debido a su gran potencialidad<sup>1</sup>. Su principio de funcionamiento, no completamente claro aún, se basa en la difusión de portadores mayoritarios debido al gradiente de concentración de los mismos que la luz genera y a las posiciones relativas de los niveles energéticos en los distintos componentes de esta celda solar. No presentan una zona con campo eléctrico en la unión o juntura que en las celdas solares tradicionales es responsable de separar a los portadores de carga. Posee las ventajas de ser poco costosa y su tecnología asequible. No obstante posee insuficiencias como son su relativa baja eficiencia y la de-

gradación con el tiempo.

**Figura 1** Esquema de la celda solar estudiada.

Recientemente hemos desarrollado una técnica simple y poco costosa para la deposición de capas de TiO<sub>2</sub> nanoestructurado utilizando baño químico activado por microondas (MW-CBD). Las capas obtenidas por este método tienen alta transparencia; además se adhieren perfectamente al sustrato.<sup>2,4</sup> Las películas así obtenidas se han propuesto para ser utiliza-





das en DSSC debajo de la capa porosa de  $\text{TiO}_2$  con el objetivo de mejorar el contacto eléctrico con el vidrio conductor y además, evitar el contacto del electrolito con el óxido conductor; o sea, reducir la probabilidad de recombinación de los electrones, desde estados en el sustrato conductor, con especies oxidadas en el electrolito. Se ha reportado el empleo de dicha capa en celdas fotoelectroquímicas sensibles al ultravioleta sin utilización del sensibilizador<sup>5</sup>.

En el presente trabajo se estudian estructuras de celdas solares sensibilizadas en las que el par electrón hueco no se crea en el propio  $\text{TiO}_2$ . Se estudia y compara el comportamiento de fotoelectrodos de simple y doble capa de  $\text{TiO}_2$  sensibilizados con un compuesto comercial organo-metálico de rutenio; el cual es tradicionalmente utilizado<sup>6</sup>. Con el objetivo de comparar las celdas con estructura de doble y de simple capa, se obtiene la característica volt-ampérica (I-V) iluminada y se mide la fotocorriente espectral. De estas mediciones se calculan los parámetros que caracterizan a estos dispositivos para la comparación de las estructuras de simple y doble capa.

## 2 Procedimiento experimental

Los sustratos utilizados para depositar las capas son vidrios conductores FTO (capa conductora de  $\text{SnO}_2:\text{F}$ ) con resistividad laminar de  $10\Omega/\text{cuadro}$ . Estos se limpiaron utilizando ultrasonido en sendos baños de agua destilada y acetona durante más de 5 minutos cada uno. Posteriormente fueron secados con flujo de aire a temperatura ambiente. Para la deposición por MW-CBD, se preparó una solución acuosa mezclando volúmenes iguales de solución de hexafluorotitanato de amonio ( $3.4 \times 10^{-2}$  M Ti) y solución  $6.8 \times 10^{-2}$  M de ácido bórico<sup>2,3</sup>. Para la obtención de la capa fina y densa se introdujo un vaso conteniendo 10 ml de la solución precursora y además el sustrato, en la parte central de un horno de microondas modelo MS-71M. La potencia utilizada fue de 630W y el tiempo de exposición a la radiación fue de 15s para cada proceso. En este tiempo se deposita  $\text{TiO}_2$  sobre el sustrato pero no nuclea en la solución. Se repite el proceso para obtener capas más gruesas. El espesor de la capa obtenida es del orden de  $100 \text{ nm}$ <sup>7</sup>. Para la obtención de la capa porosa y más gruesa, se depositó una capa de  $\text{TiO}_2$  por la técnica de “paint-on” o “doctor blade” preparando una suspensión acuosa a partir de  $\text{TiO}_2$  en polvo, siguiendo la técnica descrita anteriormente<sup>6,8</sup>. Con la misma se obtienen tanto espesores como porosidad iguales a los efectos prácticos. El espesor (ca.  $10 \mu\text{m}$ ) se determina por la cinta adhesiva utilizada en la técnica de “doctor blade”<sup>8</sup>. La porosidad (ca. 50%) esta determinada por el polvo nanocrystalino de  $\text{TiO}_2$  tradicionalmente utilizado, Degussa P25<sup>9</sup>.

Una vez que la capa depositada se ha secado al aire, se somete la muestra a un tratamiento térmico a  $450 \text{ }^\circ\text{C}$  durante 1 hora. Inmediatamente después de este proceso, cuando la muestra se ha enfriado a aproximadamente  $70^\circ\text{C}$ , se sumerge a los efectos de sensibilizarla durante

24 horas en la solución alcohólica  $0.2 \text{ mM}$  del complejo organo-metálico de rutenio conocido como N3. Pasado dicho tiempo se extrae, enjuaga en alcohol y se deja secar al aire. El complejo de rutenio tiene fórmula  $\text{RuL}_2\text{Cl}_2$  (L es 2,2' bipiridil- 4,4' dicarboxilato,  $\text{C}_{24}\text{H}_{16}\text{O}_8\text{N}_4\text{Cl}_2\text{Ru}$ )<sup>5,6</sup>. Se obtuvieron celdas con estructura de simple y doble capa omitiendo la capa obtenida por MW-CBD en las estructuras de simple capa.

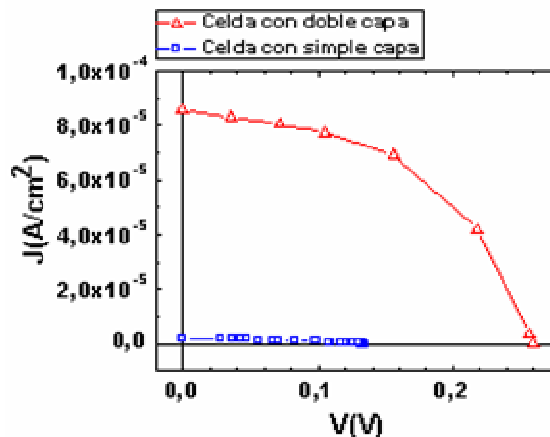


Figura. 2 Característica volt-ampérica.  $\Delta$ -Corresponde a la característica I-V de la celda con doble capa y  $\square$ - corresponde a la I-V de la celda con simple capa

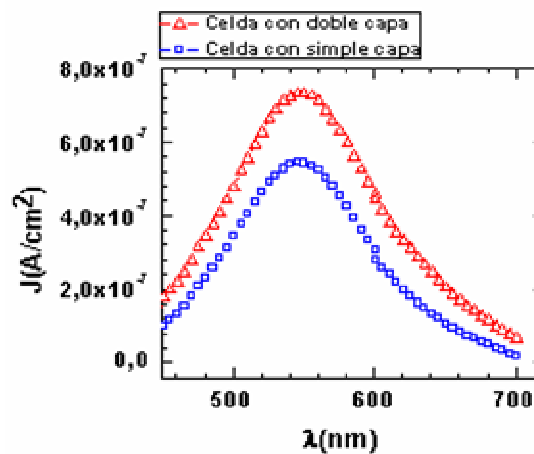


Figura 3 Densidad de fotocorriente de cortocircuito en función de la longitud de onda de la luz con que se ilumina la celda.

celda	$J_{CC}(\text{A}/\text{cm}^2)$	$V_{CA}(\text{V})$	FF(%)
Simple capa	2.0E-06	0.13	36
Doble capa	8.5E-05	0.26	49

Para la obtención final de las celdas se procede con la incorporación del electrolito y montaje. El electrolito empleado es una solución de  $\text{I}^-/\text{I}_3^-$  en etilenglicol ( $[\text{I}^-]=0.5\text{M}$  y  $[\text{I}_2]=0.05\text{M}$ ). Las celdas son semiselladas como se muestra en la Figura. 1. En el contraelectrodo

de vidrio conductor platinado se colocan dos cintas de teflón para evitar el contacto del contraelectrodo con la capa de TiO<sub>2</sub>. Tanto la capa porosa como la finísima cavidad que definen las cintas de teflón se rellenan con electrolito. La celda se mantiene cerrada utilizando pinzas como se muestra en la Figura 1.

A fin de comparar las muestras de simple y doble capa se midió la característica I-V y la fotocorriente espectral. Se obtuvo la característica volt-ampérica variando la resistencia de carga sin aplicar voltaje externo y simulando 1.5 AM (100mW/cm<sup>2</sup>) con una lámpara de halógeno-xenón de 100 W. En estas mediciones de I-V, se usó una máscara para delimitar un área iluminada de 6 cm<sup>2</sup>. Se empleó un filtro de agua para eliminar la parte infrarroja que produce el calentamiento y deterioro de la celda. En las mediciones de I-V se utilizó un multímetro digital doble Fluke-45 acoplado a una PC para el registro de las mediciones.

Para la medición de fotocorriente espectral se utilizó un monocromador LOMO MDR-12 al que se le acopló el multímetro Keithley 2001. Para la determinación de la eficiencia espectral externa o IPCE (incident photon conversion efficiency) se utilizó un fotodiodo de silicio calibrado. En todas las mediciones se empleó una caja metálica apantalladora que actuase como una jaula de Faraday.

### 3 Resultados y discusión

Como en trabajos anteriores, las muestras obtenidas por MW-CBD tienen alta transparencia. Además están perfectamente adheridas al sustrato. En la Figura.2 aparecen las características volt-ampéricas correspondientes a la celda con doble capa y a la celda de simple capa. Se escogieron las celdas con las mejores características para cada uno de los casos mostrados. Los parámetros obtenidos de las curvas se presentan en la tabla I. Fueron empleadas las mismas condiciones de iluminación para ambas mediciones, 100mW/cm<sup>2</sup>. Se observa que se logran mayores valores utilizando la doble capa. En la Tabla II se muestran los valores de eficiencia obtenidos.

Producto de un mejor contacto mecánico (capas perfectamente adheridas), puede esperarse un mejor contacto eléctrico del TiO<sub>2</sub> obtenido por MW-CBD con el FTO respecto al de la capa porosa con el FTO (desprendible en baño ultrasónico). Esto puede verse también reflejado en los valores de resistencia serie. En la Tabla II se observa que efectivamente la doble capa presenta menor resistencia serie.

En la Figura 3 se muestran los resultados correspondientes a la fotocorriente espectral y en la figura 4 se presenta la eficiencia cuántica externa o IPCE. Debe aclararse que en la Figura 3 los valores de fotocorriente disminuyen para las altas energías producto de la característica de la lámpara (cuyo espectro se asemeja al sol). Se seleccionaron los mayores valores obtenidos para cada tipo de dispositivo.

En la Figura 4 se observa que la celda de doble capa

presenta mayores valores IPCE. Estos resultados apoyan la hipótesis de un mejor contacto eléctrico entre la capa obtenida por MW-CBD y el FTO con respecto al contacto entre la capa porosa y el FTO.

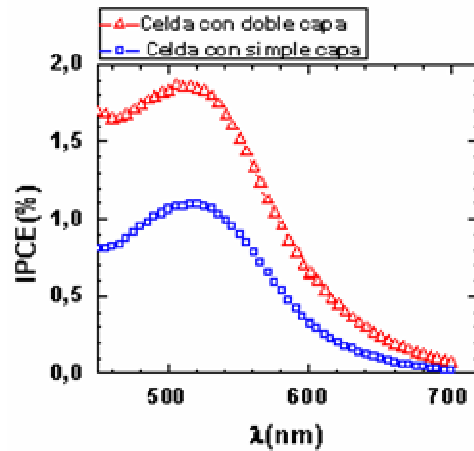


Figura 4 Eficiencia cuántica espectral externa o IPCE. El flujo incidente de fotones se calculó utilizando un fotodiodo calibrado.

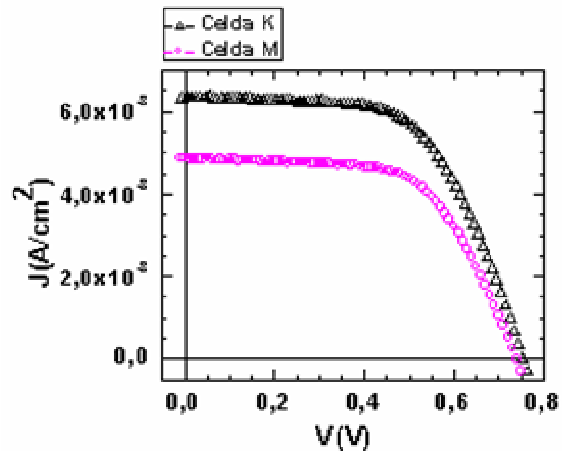


Figura 5 Característica I-V para celdas selladas con estructura de doble capa

Tabla II		
Eficiencia y resistencia serie		
celda	$\eta$ (%)	Rs(K $\Omega$ )
Simple capa	9.7E-05	17
Doble capa	1.1E-02	0.7

Tabla III			
Parámetros obtenidos de las curvas I-V con iluminación de 100 mW/cm <sup>2</sup> .			
Celda sellada	J <sub>CC</sub> (A/cm <sup>2</sup> )	V <sub>CA</sub> (V)	FF(%)
K	6,3E-03	0,754	31
M	4,9E-03	0,740	32

Se puede observar que los valores de eficiencia que se logran son muy pequeños relativos al máximo valor obtenido y reportado superior al 11%<sup>10</sup>; al igual que los valores de voltaje de circuito abierto y fotocorriente de cor-

tocircuito. Debe aclararse que el objetivo de este trabajo era comparar estructuras de doble capa que utilizan la capa fina de TiO<sub>2</sub> obtenida por MW-CBD con las celdas de simple capa en igualdad de condiciones. No se optimizó la celda sellándola y utilizando un captador de huecos en el electrolito pero se aseguraron iguales condiciones de medición para poder comparar ambos tipos de celdas.

Con el objetivo de demostrar que estos bajos valores son superados en condiciones optimizadas, en la Universidad de Bath se obtuvieron celdas selladas (área de 1 cm<sup>2</sup>) utilizando un electrolito con el mismo par redox, menor viscosidad y conteniendo un captador de huecos (terbutilpiridina, TBP). En estas estructuras de doble capa, la capa fina próxima al vidrio conductor fue depositada en nuestro Laboratorio utilizando MW-CBD según la técnica descrita. En las Figuras 5 y 6 se muestran la característica I-V y la eficiencia cuántica espectral de dos de estas celdas selladas. En las Tablas III y IV correspondientes a estas celdas se pueden apreciar valores bastante más altos de la corriente de cortocircuito, voltaje a circuito abierto, factor de llenado y eficiencia. Debe señalarse que aún pudiera optimizarse el espesor de la capa porosa haciéndolo mayor. También existen sensibilizadores con un rango espectral de absorción mayor que cubre todo el visible.

## 4 Conclusiones

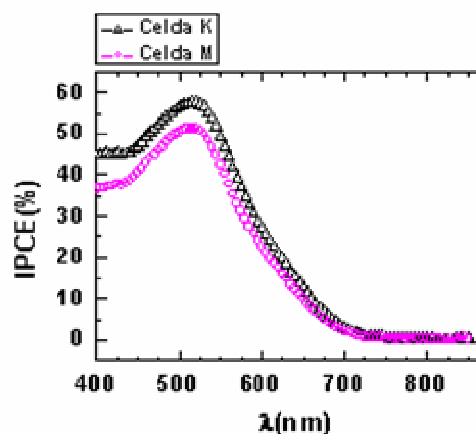
Se fabrican celdas solares sensibilizadas de doble capa en las que la capa fina y compacta, muy bien adherida al vidrio conductor FTO, se deposita con la técnica de MW-CBD utilizando una solución precursora en base a hexafluorotitanato de amonio. El análisis de la eficiencia cuántica espectral demuestra que las celdas son sensibles en el rango del espectro correspondiente al visible, comprobándose que las características fotovoltaicas en esta zona del espectro son debidas a la sensibilización originada por el colorante utilizado. La celda de doble capa presentó mayores valores de eficiencia cuántica espectral que la de simple capa. El análisis y comparación de las características volt-ampéricas arrojó que la estructura de doble capa presenta mayores valores de corriente de cortocircuito  $J_{sc}$ , voltaje de circuito abierto  $V_{oc}$ , factor de llenado FF y eficiencia  $\eta$  que la estructura de simple capa. También la estructura de doble capa presenta menor valor de la resistencia serie  $R_s$ .

## Agradecimientos

Se agradece al Prof. Laurence Peter de la Universidad de

Bath la posibilidad de fabricación de las celdas selladas.

Celda sellada	$\eta$ (%)	$R_s$ (K $\Omega$ )
K	1,47	0,03
M	1,13	0,04



**Figura 6** Eficiencia cuántica espectral externa o IPCE para las celdas selladas. El flujo incidente de fotones se calculó utilizando un fotodiodo calibrado.

## Referencias

1. Brian A. Gregg, J. Phys. Chem. B 107, 4688 (2003)
2. Elena Vigil, Bernardo Gonzalez, Sergilus Docteur, Ana M. Peiro, David Gutiérrez-Tauste, Concepcion Domingo, Xavier Domènech, José A. Ayllon, Journal of Crystal Growth 262, 366 (2004)
3. E. Vigil, A. Ayllon, M. Peiro, R. Rodriguez-Clemente, X. Domenech, y J. Peral, Langmuir 17, 891 (2001)
4. E. Vigil, L. Saadoun, J. A. Ayllon, X. Doménech, I. Zumeta, R. Rodríguez-Clemente, Thin Solid Films 365, 12 (2000)
5. I. Zumeta, B. González, R. Espinosa, J. A. Ayllón, E. Vigil\*, Semicond. Sci. Technol., Vol. 19, L1–L4, 2004
6. Hagfeldt A., Grätzel M., Chem. Rev. 95, 49 (1995)
7. I. Zumeta, R. Espinosa, J. A. Ayllón and E. Vigil, Semicond. Sci. Technol. 17, 1218 (2002)
8. G. P. Smestad, Sol. Energy Mater. Sol. Cells 55, 157 (1998)
9. M.K. Nazeeruddin, A. Kay, I. Rodicio, R. Humphry-Baker, E. Muller, P. Liska, N. Vlachopoulos, M. Graetzel, J. Am. Chem. Soc. 115, 6382 (1993)
10. Henry J. Snaith, Lukas Schmidt-Mend, Advanced Materials 19, 3187 (2007)

## Composito nanocrystalino novedoso de CuO-TiO<sub>2</sub>: inyección de electrones del CuO al TiO<sub>2</sub> iluminando con luz visible sin voltaje de polarización

E. Vigil<sup>a,b</sup>, J.A. Ayllón<sup>c</sup>, S. Sánchez<sup>b,d</sup>, L. Azúa<sup>a,b</sup>

- a) Facultad de Física, Universidad de La Habana; [evigil@fisica.uh.cu](mailto:evigil@fisica.uh.cu) †  
b) Instituto de Ciencia y Tecnología de Materiales  
c) Dpto. de Química, Universidad Autónoma de Barcelona.  
d) Dpto. de Física, ISPJAE

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 01/07/2009

**Sumario.** Capas del composito CuO-TiO<sub>2</sub> fueron preparadas a temperatura ambiente sobre substratos de vidrio conductor utilizando una novedosa técnica de fotodeposición seguida por un tratamiento térmico en aire para oxidar completamente todas las especies de cobre. Las capas fueron depositadas gracias a las propiedades fotocatalíticas del TiO<sub>2</sub>. Se irradiaó con UV cercano a través del vidrio conductor en contacto con una suspensión acuosa de TiO<sub>2</sub>. La misma contenía en solución nitrato de cobre (II) y etanol. Se fabricaron estructuras constituidas por un vidrio conductor (ITO), el composito CuO-TiO<sub>2</sub>, un polímero conductor de huecos y un contacto de Ag. Iluminando esta estructura, sin voltaje de polarización, se obtiene una corriente de cortocircuito cuyo sentido indica que se inyectan electrones del óxido de cobre al TiO<sub>2</sub>. Se analiza la dependencia en el tiempo de esta fotocorriente de corto circuito al interrumpir la iluminación.

**Abstract.** Films of CuO-TiO<sub>2</sub> composite were prepared at room temperature on conducting glass substrates using a novel photodeposition technique followed by temperature annealing in order to completely oxidize all copper species. Films were deposited exploiting TiO<sub>2</sub> photocatalytic properties. Near UV radiation passed through the substrate in contact with an aqueous TiO<sub>2</sub> suspension containing copper(II) nitrate and ethanol in solution. Structures formed by the conducting glass (ITO), the CuO-TiO<sub>2</sub> composite, a hole conducting polymer and a silver contact were assembled. Illuminating this structure, without a bias voltage, a short-circuit photocurrent is produced. Its direction indicates that electrons are injected from the copper oxide to the TiO<sub>2</sub>. This photocurrent dependence with time is analyzed after light is shut off.

**Palabras claves:** Fotodeposición 81.15.-z, CuO-TiO<sub>2</sub> 78.66.-w

### 1 Introducción

Recientemente se ha reportado una técnica de fotodeposición simple que no necesita de calentamiento ni de atmósfera controlada<sup>1</sup>. Se diferencia de la fotodeposición convencional<sup>2</sup> en que se basa en las propiedades fotocatalíticas del dióxido de titanio. Este es un material extensamente estudiado siendo su fotoactividad una propiedad

muy bien conocida<sup>3</sup>. Se debe a la absorción de fotones con energías en la zona violeta y ultravioleta (longitud de onda menor que 410 nm) que provoca el paso de electrones de la banda de valencia a la banda de conducción, quedando en la primera estados vacíos o huecos. Ambos portadores de carga pueden provocar reacciones químicas, bien de oxidación (huecos) o de reducción (electrones), si ellos alcanzan la superficie del TiO<sub>2</sub><sup>3</sup>. Aunque el

TiO<sub>2</sub> es insoluble en agua, utilizando polvo nanocristalino pueden obtenerse suspensiones coloidales del mismo. Esto permite que el TiO<sub>2</sub> al ser iluminado con radiación UV actúe como fotocatalizador de la oxidación y/o reducción de especies disueltas en estas suspensiones, conduciendo así a la nucleación y deposición del compuesto. La reducción de cobre (II) en solución acuosa sobre TiO<sub>2</sub> con radiación UV ha sido bien documentada<sup>4, 5, 6</sup>. La posterior oxidación térmica de capas de Cu-TiO<sub>2</sub> conduce a las capas del compuesto CuO-TiO<sub>2</sub>, el cual tiene aplicación perspectiva en celdas solares incluyendo las nanoestructuradas con absorbente inorgánico<sup>7, 8</sup>. Además, las propiedades fotoelectroquímicas de los compuestos de Cu<sub>x</sub>O-TiO<sub>2</sub> nanoestructurados son ventajosas para la producción de hidrógeno por fotólisis del H<sub>2</sub>O<sup>9, 10, 11</sup>.

Se logra la fotodeposición de Cu/TiO<sub>2</sub> nanoestructurado sobre vidrio conductor con vistas a obtener una estructura de capas sensible a la luz visible. La capa del óxido conductor sobre el vidrio lo hace menos transparente en la zona UV por lo que se introdujeron algunas modificaciones respecto a lo reportado anteriormente<sup>1</sup>. En la Fig. 1 se muestra el esquema utilizado para la fotodeposición en el presente trabajo. El cobre(II) presente en la solución precursora, es reducido por los electrones fotogenerados en la superficie del TiO<sub>2</sub> pero un compuesto fácilmente oxidable debe estar presente en el sistema para garantizar que los huecos sean extraídos, directa o indirectamente, por la formación del radical hidroxilo. Se evita así la acumulación de huecos en la superficie del fotocatalizador; lo cual podría detener la actividad de éste o causar la reoxidación del cobre<sup>12, 13</sup>. En este trabajo, se continúa el estudio de la fotodeposición de capas del compuesto de Cu-TiO<sub>2</sub> anteriormente reportada<sup>1</sup> con posterior tratamiento térmico para formar el compuesto CuO-TiO<sub>2</sub> y se fabrica una estructura formada por el vidrio conductor, el compuesto CuO-TiO<sub>2</sub>, un polímero conductor de huecos y un contacto de plata.

## 2 Detalles experimentales

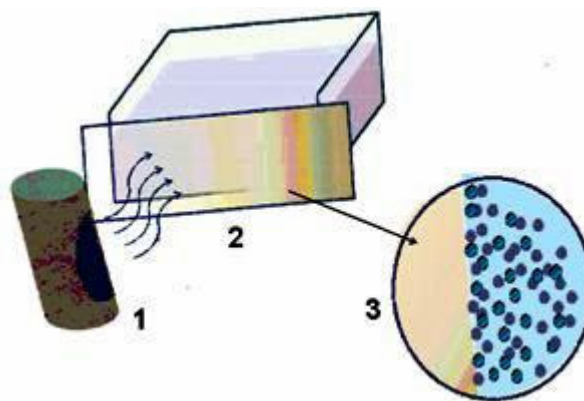
**2.1 Reactivos y substratos.** Se utilizó polvo de dióxido de titanio nanocristalino Degussa P-25 (anatasa 80 %, rutilo 20 %). El etanol y el Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·3H<sub>2</sub>O (grado analítico ambos, suministrados por Fluka y Panreac, respectivamente) fueron utilizados sin purificación ulterior. El nitrato de cobre fue seleccionado como la fuente de cobre (II) porque el anión de nitrato no es generalmente adsorbido en la superficie del óxido; por lo tanto, una capa del compuesto más pura puede esperarse. Como una especie orgánica captadora de "huecos" es necesaria para favorecer la reducción de iones de cobre, se añadió etanol a la solución.

Se empleó para la preparación de la suspensión agua doblemente deionizada en un sistema Milli-Q (Millipore, conductividad < 0.05 μS/cm).

Se utilizaron vidrios conductores con capa de In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Sn (ITO) de 15 Ω/cuadro. Estos se limpiaron apli-

cando ultrasonido a los vidrios sumergidos en etanol durante 5 min y 5 min más en agua.

**2.2 Composición del baño químico.** El polvo nanocristalino de TiO<sub>2</sub> (0.5 g) y el Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·3H<sub>2</sub>O (0.1 g) se dispersaron en 100 ml de agua utilizando ultrasonido durante 30 min con vistas a garantizar que el TiO<sub>2</sub> permaneciera en suspensión durante la realización de los experimentos. Después se agregó etanol (1.0 ml) y se aplicó ultrasonido durante 5 min más. El aspecto de las suspensiones obtenidas es similar al de la leche.



**Figura 1.** Esquema del montaje experimental para la fotodeposición del compuesto. 1.- Lámpara de Hg. 2.- Recipiente conteniendo suspensión precursora y que soporta al vidrio conductor (ITO). 3.- Detalle ampliado de la interfaz entre el ITO y la suspensión precursora.

**2.3 Fotodeposición.** Como se muestra en la Fig. 1, se puso en contacto la superficie del sustrato donde se quiere depositar con la suspensión precursora. Los substratos (vidrio conductor) fueron expuestos a la radiación UV a través de la cara externa, no conductora. Se utilizó una lámpara de mercurio de 125 W manufacturada por Cathodeon (HPK). Se irradió durante 15 minutos con el sustrato situado frente a la lámpara a 5 cm de ella (ca. 1mW/cm<sup>2</sup> en el UVA medido con el fotómetro UVA-365 Lutron). Dado el valor de banda prohibida de la anatasa (3.2 eV) y el rutilo (3.0 eV) basta con el ultravioleta cercano para crear electrones y huecos en el TiO<sub>2</sub>. Con el esquema utilizado que se muestra en la Fig. 1, se logró aumentar la eficiencia del proceso de fotodeposición de Cu-TiO<sub>2</sub> respecto a lo anteriormente reportado colocando el sustrato horizontalmente<sup>1</sup>. Después de la deposición, el sustrato se enjuaga con agua deionizada (Milli-Q). Durante la irradiación no se observó evaporación del solvente; ocurriendo solo pequeños incrementos de temperatura.

**2.4 Tratamiento térmico.** Las muestras fueron introducidas en el horno a temperatura ambiente. Se calentó aumentando la temperatura gradualmente para evitar cambios bruscos que dañaran la muestra y una vez que se alcanzaron 400 C, las muestras fueron dejadas en esta temperatura por 3h. Se esperó para sacar las muestras a que el horno se enfriara lentamente.

**2.5 Estructura analizada.** La estructura analizada está constituida por un sustrato (ITO), el compuesto CuO-TiO<sub>2</sub>, un polímero conductor de huecos (Pedot, Ref. 560596 Aldrich: Poly(3,4- ethylenedioxythiophene)poly(styrenesulfonate), disperso en H<sub>2</sub>O al 2.8%), y contacto de plata sobre este último. El polímero conductor se depositó utilizando la técnica de “paint-on” y el contacto de Ag se realizó con pintura de Ag.

**2.6 Técnicas de caracterización.** La transmitancia óptica de las capas delgadas se midió en un espectrómetro UV-visible marca Helios  $\gamma$  (Thermo Electron Corporation). Un vidrio conductor limpio idéntico a los empleados fue utilizado como “blanco” para eliminar la absorción de la capa conductora.

Las mediciones de fotocorriente producida por la estructura basada en el compuesto depositado sobre ITO se realizaron utilizando un picoamperímetro Keithley 6487 e iluminando con una lámpara de Xenón de 250W. Se registró la disminución de la fotocorriente en el tiempo.

### 3 Resultados y discusión

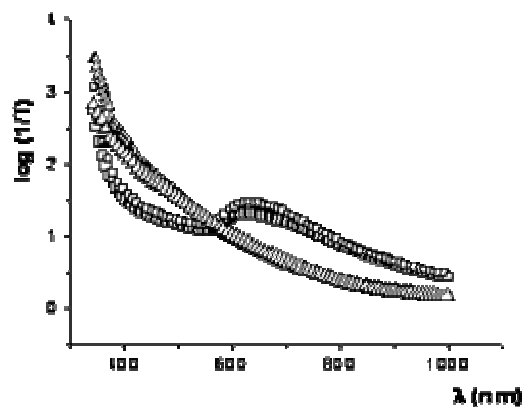
Se comprobó que la dispersión de la radiación en la suspensión coloidal limita su penetración para fotoactivar al TiO<sub>2</sub> suspendido y por consiguiente, solo en el espesor de suspensión más cercano al sustrato el cobre (II) es reducido. El TiO<sub>2</sub> suspendido es codepositado, y un material mezclado (composito) se obtiene. El volumen de solución en el recipiente utilizado puede considerarse prácticamente infinito y garantiza que se repongan tanto el TiO<sub>2</sub> suspendido como el Cu(II) disuelto cuyas concentraciones disminuyen en la región contigua al ITO al pasar a formar la capa depositada. Se comprobó que la capa depositada limita la penetración de la luz por lo que para los tiempos empleados los espesores prácticamente no dependen del tiempo de irradiación. La concentración de nitrato de cobre (II) y etanol, así como también la cantidad de TiO<sub>2</sub> suspendido, determinan las características y cantidad del material depositado<sup>1</sup>.

Las capas depositadas presentan una apariencia uniforme rojo-carmelita. Si bien las capas depositadas no se adhieren fuertemente al sustrato, las películas tratadas térmicamente presentan una buena adhesión. Resisten la prueba con cinta adhesiva aunque no son resistentes a rayaduras. El tratamiento térmico ennegrece las muestras, en concordancia con una oxidación del cobre presente a óxido de cobre (II). El espesor de las capas es de 500 nm medido usando un perfilómetro.

En la Fig. 2 se observan espectros de extinción, o sea, el inverso del logaritmo de la transmitancia que coincidiría con la absorbancia si no hubiera dispersión. No obstante, la dependencia espectral de la absorbancia predomina sobre la de la dispersión y determina la forma del log(1/T) en la Fig. 2. Las dependencias mostradas en esta figura corresponden a muestras típicas calcinadas y no calcinadas del composito. El espectro típico correspondiente a muestras no-calcinadas (fig.2), muestra una disminución rápida con el aumento de longitud de onda

en el rango de 300-400 nm explicable por la forma espectral de la absorción del TiO<sub>2</sub>. Como se conoce, la absorción aumenta para las energías del fotón por encima de la banda prohibida. Como la  $E_{gap} = 3,2$  eV para la anatasa, las energías del fotón superiores a 3,2 eV (o longitudes de onda por debajo de 385 nm) son absorbidas. Además, la fase rutilo presente en menor proporción también provoca absorción por debajo de 415 nm. El espectro de la muestra no-calcinada (Fig. 2) también muestra un máximo alrededor de 600 nm. Este máximo se relaciona con la resonancia plasmónica de nanopartículas de Cu. Según Chan<sup>14</sup> un pico de resonancia plasmónica aparece para las longitudes de onda por encima de 600 nm. Su posición, intensidad y semiancho espectral dependen del tamaño de los nanocrisales. En nuestro caso el máximo no está bien definido (602-606 nm). Esto podría ser debido a una distribución en el tamaño de los nanocrisales. Estos resultados indican la presencia de cobre metálico, o sea, se confirma la reducción del Cu(II) presente en la solución por el TiO<sub>2</sub>.

El espectro típico de muestras calcinadas (Fig. 2) evidencia la desaparición del máximo existente en las no calcinadas debido a la oxidación del cobre metálico. Se observa un aumento de la absorción para el rango 350-580 nm relativo a las muestras no calcinadas. Este incremento se explica por la absorción de luz por el CuO. Estudios anteriores de difracción de rayos X realizados<sup>1</sup> indican que el CuO no está presente en las muestras sin calcar y aparece después por la oxidación que provoca el tratamiento térmico en presencia de aire.



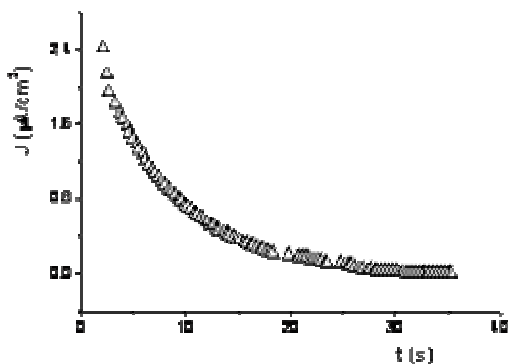
**Figura 2.** Dependencia espectral del log del inverso de la transmitancia correspondiente a 2 muestras no-calcinadas ( $\square$ ) y calcinadas ( $\Delta$ ).

Para comprobar si bajo iluminación son inyectados electrones del óxido de cobre al dióxido de titanio se investigó si se producía una fotocorriente al iluminar la estructura de capas formada por el vidrio conductor (ITO), el CuO-TiO<sub>2</sub>, un polímero conductor de huecos (PEDOT) y un contacto de Ag. Para que haya flujo de electrones hacia el TiO<sub>2</sub>, la banda de conducción del óxido de cobre debe estar por encima de la banda de conducción del TiO<sub>2</sub> al menos cuando se ilumina. Se ha

reportado evidencia anterior de que esto se cumple<sup>10</sup>. Adicionalmente, para el composito obtenido, el transporte de electrones en el TiO<sub>2</sub> hasta el ITO solo sería posible si los nanocristales se auto-organizan uniéndose entre sí nanocristales de TiO<sub>2</sub> o los electrones deben atravesar nanocristales de CuO. La primera alternativa parece ser más plausible que la segunda.

En el experimento se filtró la luz de la lámpara de xenón para eliminar la componente violeta y ultravioleta que pudiera excitar electrones en el TiO<sub>2</sub> y se iluminó a través del ITO para crear pares electrón-hueco en el CuO. Sin aplicar voltaje, se comprobó que se origina una fotocorriente de cortocircuito cuyo sentido corresponde a un flujo de electrones del CuO al TiO<sub>2</sub>.

El que la estructura descrita produzca una fotocorriente solo iluminando implica que en esta estructura donde se mezclan nanocristales de TiO<sub>2</sub> y CuO, los portadores se separan y mueven en diferentes direcciones; los electrones hacia el TiO<sub>2</sub>, los huecos hacia el CuO. Esto está en correspondencia con lo que ocurriría en una heterounión N-p de TiO<sub>2</sub> tipo n y CuO tipo p. Si los nanocristales se auto-organizan durante el proceso de formación del composito de manera que los portadores encuentran un camino hacia los contactos o si los portadores atraviesan las interfaces entre nanocristales diferentes en su recorrido hacia los contactos deberá ser estudiado posteriormente.



**Figura 3.** Caída de la fotocorriente en el tiempo al quitar la iluminación sobre la estructura analizada.

En la Fig. 3 se presenta una variación típica de la fotocorriente de corto circuito en el tiempo al quitar la iluminación, en las estructuras estudiadas. Los transientes de la fotocorriente muestran una dependencia exponencial de la forma  $I(t) = I_0 \exp(-t/\tau)$ . Esta disminución se debe a que los portadores en exceso fotogenerados se desexcitan y la constante  $\tau$  representa un tiempo de vida efectivo de esos portadores. Debe notarse que en el TiO<sub>2</sub> solo existen electrones en desequilibrio, no así huecos que solo son fotogenerados en el CuO. El ajuste de la caída de la fotocorriente a una exponencial arrojó valores de  $\tau$  del orden de 10 s en las muestras analizadas. En las celdas solares sensibilizadas (DSSC) se reportan tiempo de vida de los electrones en el TiO<sub>2</sub> del orden de segundos<sup>15</sup>. El análisis del proceso de transporte de los portadores

será objeto de estudios posteriores. Dadas las dimensiones de los nanocristales, es probable que solo exista corriente de difusión como ocurre en las celdas nanocristalinas sensibilizadas.

## Conclusiones

Se ha utilizado un procedimiento simple y de bajo costo para la fotodeposición sobre ITO de un composito nanocristalino de CuO-TiO<sub>2</sub>. Para su obtención no se utilizan sustancias peligrosas o tóxicas y las especies reactivas son producidas *in situ* por fotocatalisis. La capa del composito obtenido del proceso de fotodeposición se transforma en CuO-TiO<sub>2</sub> después de un tratamiento térmico donde el cobre pasa a cobre (II). La película resultante tiene un espesor aproximado de 500 nm.

Se comprobó que se produce una fotocorriente de cortocircuito al iluminar una estructura formada por el composito sobre vidrio conductor ITO, un polímero conductor de huecos y un contacto de Ag como contraelectrodo. Se observó que el sentido de esta fotocorriente evidencia la inyección de electrones del CuO al TiO<sub>2</sub>.

## Referencias

1. E. Morrison, D. Gutiérrez-Tauste, C. Domingo, E. Vigil, J. A. Ayllón, *Thin Solid Films* 517, 5621–5624 (2009).
2. G. Hodes, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 9, 2181 (2007)
3. X. Chen, S. S. Mao, *Chem. Rev.* 107, 2891 (2007)
4. N. S. Foster, A. N. Lancaster, R. D. Noble, C. A. Koval, *Ind. Chem. Eng. Chem. Res.* 34, 3865 (1995)
5. K. Ramanathan, D. Avnir, A. Modestov, O. Lev, *Chem. Mater.* 9, 2533 (1997)
6. M. I. Litter, *Appl. Catal. B* 23, 89 (1999)
7. E. Vigil, F.A. Fernández-Lima, J.A. Ayllón, E. Pedrero, I. Zumeta, B. González, L. Curbelo, H.D. Fonseca Filho, M.E.H. Maia da Costa, C. Domingo, M. Behar and F.C. Zawislak. *Microporous Mesoporous Mater.* 109, 560 (2008)
8. M. Tripathi, K. Pandey, S. D. Kumar, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 91, 1663 (2007)
9. Z. Jin, X. Zhang, Y. Li, S. Li, G. Lu, *Catal. Commun.* 8, 1267 (2007)
10. E. Vigil, B. González, I. Zumeta, C. Domingo, X. Doménech and J. A. Ayllón *Thin Solid Films* 489, 50 (2005)
11. J. Bandara, C. P. K. Udawatta, C. S. K. Rajapakse, *Photochem. Photobiol. Sci.* 4, 857 (2005)
12. K. Chiang, R. Amal, T. Tran, *Adv. Environ. Res.* 6, 471 (2002)
13. S. Yamazaki, S. Iwai, J. Yano, H. Taniguchi, *J. Phys. Chem. A* 105, 11285 (2001)
14. G.H. Chan, J. Zhao, E.M. Hicks, G.C. Schatz, R.P. Van Duyne, *Nano Lett.* 7, 1947 (2007)
15. G. Boschloo; A. J. Hagfeldt, *Phys. Chem. B* 109, 12093, (2005).

## Instalación para medir el lazo de histéresis y las corrientes de conmutación en láminas delgadas de materiales ferroeléctricos

D. Rivero, L. Pardo<sup>a</sup>, R. Jiménez<sup>a</sup>

Instituto Superior de Ciencias y Tecnologías de Avanzada. CITMA. Cuba; doris@instec.cu †

<sup>a</sup>) Instituto de Ciencia de los Materiales de Madrid, CSIC, España; riqjim@icmm.csic.es, lpardo@icmm.csic.es

†autor para la correspondencia

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 07/07/2009.

**Sumario.** La característica principal de un material con propiedades ferroeléctricas es el lazo de histéresis de la polarización. Por otro lado, en la aplicación de los materiales ferroeléctricos preparados como láminas delgadas en memorias no volátiles de acceso aleatorio (NvFeRAM) el conocimiento de la velocidad de conmutación es necesario. Existen dispositivos comerciales que permiten realizar estas medidas en un amplio rango de frecuencias y campos eléctricos. Por otro lado sistemas de medidas ferroeléctricas flexibles pueden implementarse combinando aparatos específicos controlados por un ordenador. En el presente trabajo se describe la modernización de una instalación para estudiar el lazo de histéresis y el transitorio de conmutación ferroeléctrica en láminas delgadas. La instalación se ha desarrollado utilizando las técnicas de la instrumentación virtual, usando equipamiento de medición convencional acoplado a una computadora personal a través de una interfaz estándar IEE488 y el paquete de programación LabVIEW.

**Abstract.** The main characteristic of a material with ferroelectric properties is the hysteresis loop of its polarization. On the other hand, the information about the switching time is necessary in the application of the ferroelectric materials prepared as thin films in random access non volatile memories (NvFeRAM). On the other hand flexible systems to do ferroelectrics measurements can be implemented combining specific equipments controlled by a computer. In this work is described the upgrading of an installation to measure the hysteresis loops and the switching current transitory in thin films. The installation has been developed using the virtual instrumentation techniques, using conventional equipment of measurements coupled to a personal computer through a standard interface IEE488 and LabVIEW.

**Palabras clave.** Histéresis ferroeléctrica 77.80.Dj, materiales ferroeléctricos, 77.84.Lf

### 1 Introducción

Durante los últimos años, ha atraído mucha atención el uso de láminas delgadas ferroeléctricas para su aplicación en memorias de ordenador de acceso aleatorio no volátiles (NvFeRAM), debido a la habilidad de estos materiales para conmutar la polarización entre dos estados estables<sup>1,2</sup>. La conmutación entre los dos estados estables de la polarización, puede realizarse mediante la aplicación de una onda eléctrica alterna (sinusoidal o triangular) a la muestra, midiéndose la corriente o la car-

ga expulsada. En el caso de la medida de la carga se obtiene el lazo de histéresis que es la característica más importante de los materiales ferroeléctricos<sup>3</sup>. Del lazo de histéresis se obtiene información relevante de la polarización ferroeléctrica y su conmutación, como la polarización a saturación ( $P_{st}$ ) la polarización espontánea ( $P_s$ ), la polarización remanente ( $P_r$ ) el campo coercitivo ( $E_c$ ), y el campo de BIAS d.c. ( $E_b$ ) entre otros parámetros<sup>4</sup>. Esta información es muy útil para conocer las posibilidades de uso en dispositivos de la lámina delgada ferroeléctrica.



El método clásico de medición de estos lazos ha sido empleando el circuito Sawyer – Tower aplicando a las muestras un voltaje alterno y midiendo la polarización correspondiente a cada valor de voltaje<sup>5</sup>. Es también utilizado el método de medir la densidad de corriente del lazo de histéresis usando sistemas de medida de masa virtual<sup>6</sup>. En el caso de láminas delgadas ferroeléctricas y a diferencia de las cerámicas masivas, los lazos de histéresis se suelen trazar a frecuencias relativamente altas (> 100 Hz). La variación del ciclo de histéresis con la frecuencia de la onda de voltaje aplicada da información sobre la cinética de conmutación y la influencia de los campos de despolarización sobre la conmutación (Variación del campo coercitivo con la frecuencia).<sup>7</sup>

Por otro lado la forma más directa de medir la cinética de conmutación ferroeléctrica es la medida del transitorio de corriente de conmutación ( $J_s$ ), mediante la aplicación de pulsos de voltaje a la muestra. El tiempo de conmutación ferroeléctrica se define como el tiempo necesario para que la densidad de corriente de conmutación se reduzca una cierta fracción, casi siempre el 90% de su valor máximo siendo del orden de ns en láminas delgadas<sup>8</sup>. El tiempo de conmutación va a limitar la velocidad de escritura / lectura del dispositivo de memoria NVFeRAM, por lo que su conocimiento es fundamental en la caracterización de láminas delgadas ferroeléctricas. La medida del transitorio  $J_s$  vs  $t$  permite estudiar el mecanismo de conmutación en las láminas, mediante la aplicación de modelos físicos adecuados.<sup>9</sup>

Así la puesta en marcha de técnicas experimentales de medida de lazos de histéresis y corrientes de conmutación es necesaria para la correcta caracterización de las láminas ferroeléctricas con vistas a su posible empleo en memorias RAM no volátiles.

Para llevar a cabo estas medidas existen equipos comerciales como el RT66B de Radiant Technologies y el TF 2000 de AIXACCT. Debido a que el rango de frecuencia empleado debe ser alto y los pulsos cortos (microsegundos ( $\mu$ s)), únicamente los productos de gama más alta de Radiant y AixACCT son adecuados.

Por otra parte la instrumentación virtual, es aquella que se desarrolla utilizando un sistema de adquisición de datos digitales combinado con un programa que garantice su funcionalidad, o dicho de otra forma, un programa y un hardware adicionados a una computadora u ordenador de propósitos generales de tal forma que el usuario puede interactuar con la computadora tal como si esta fuese la instrumentación tradicional diseñada a tal efecto. La instrumentación virtual tiene la ventaja de resultar más económica que la instrumentación especializada y/o tradicional, además tiene la flexibilidad de poder ser reajustada a las necesidades experimentales en cada momento.<sup>10, 11</sup>

Como antecedente a este trabajo, se había desarrollado una instalación para medir el lazo de histéresis en cerámicas utilizando las técnicas de instrumentación virtual y labVIEW, pero con el uso de un sistema de adquisición de datos insertado dentro del ordenador.<sup>12</sup>

El objetivo de este trabajo ha sido la modernización de una instalación de medición de los lazos de histéresis a la que se ha añadido la medición de la densidad de corriente de conmutación en láminas delgadas de materiales ferroeléctricos construida con instrumentación electrónica convencional con interfaz estándar GPIB IEEE 488, para su conexión a los ordenadores y el paquete de programación gráfica LabVIEW.



Figura 1. Esquema general de la instalación.

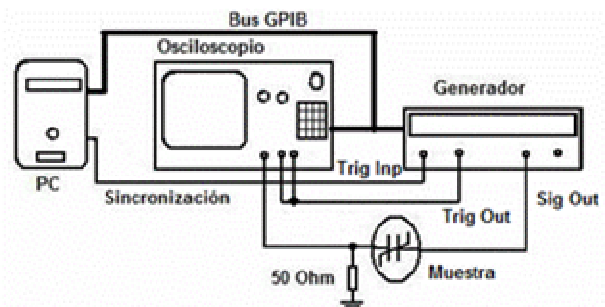


Figura 2. Circuito para medir las densidades de corriente de conmutación y relajación.

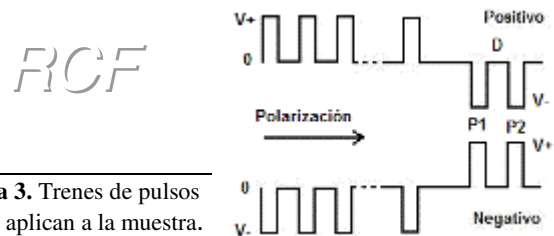


Figura 3. Trenes de pulsos que se aplican a la muestra.

## 2 Descripción de la instalación

Para conformar la instalación se ha usado un osciloscopio digital Tektronic TDS 520, un generador programable de pulsos y funciones HP 8116 A y un amplificador de corriente Keithley K428, conectados a través de la interfaz GPIB IEEE488 a un ordenador (PC) como se muestra en la figura 1. Completan el hardware de la instalación el portamuestras y los circuitos de conexión para cada una de las mediciones.

Para realizar las mediciones de las densidades de corrientes de conmutación y relajación, así como para medir los lazos de histéresis en muestras de láminas delgadas de materiales ferroeléctricos, se han desarrollado un grupo de programas usando el paquete de programación gráfica comercial LabVIEW 8.25 y la tecnología de instrumentación virtual.

**Desarrollo del dispositivo de medida del transitorio de corriente de conmutación.** Cuando se miden las densidades de corrientes de conmutación en función del tiempo así como la densidad de las corrientes de

relajación se aplica a las láminas los trenes de pulsos desde el generador y se miden las respuestas en la muestra con el osciloscopio, usando el circuito mostrado en la figura 2. Para estas mediciones se controla el disparo externo del generador desde la PC a través de su puerto estándar LPT1 con el fin de sincronizar el inicio de las mediciones con el de los trenes de pulsos a generar, ver

figura 3.

El tren de pulsos se usa para polarizar el condensador ferroeléctrico en uno de los sentidos, después se espera un tiempo, donde puede haber una cierta relajación, y se dan dos pulsos del mismo signo  $P_1, P_2$  con una separación entre ellos  $D$ , ver referencia [8].

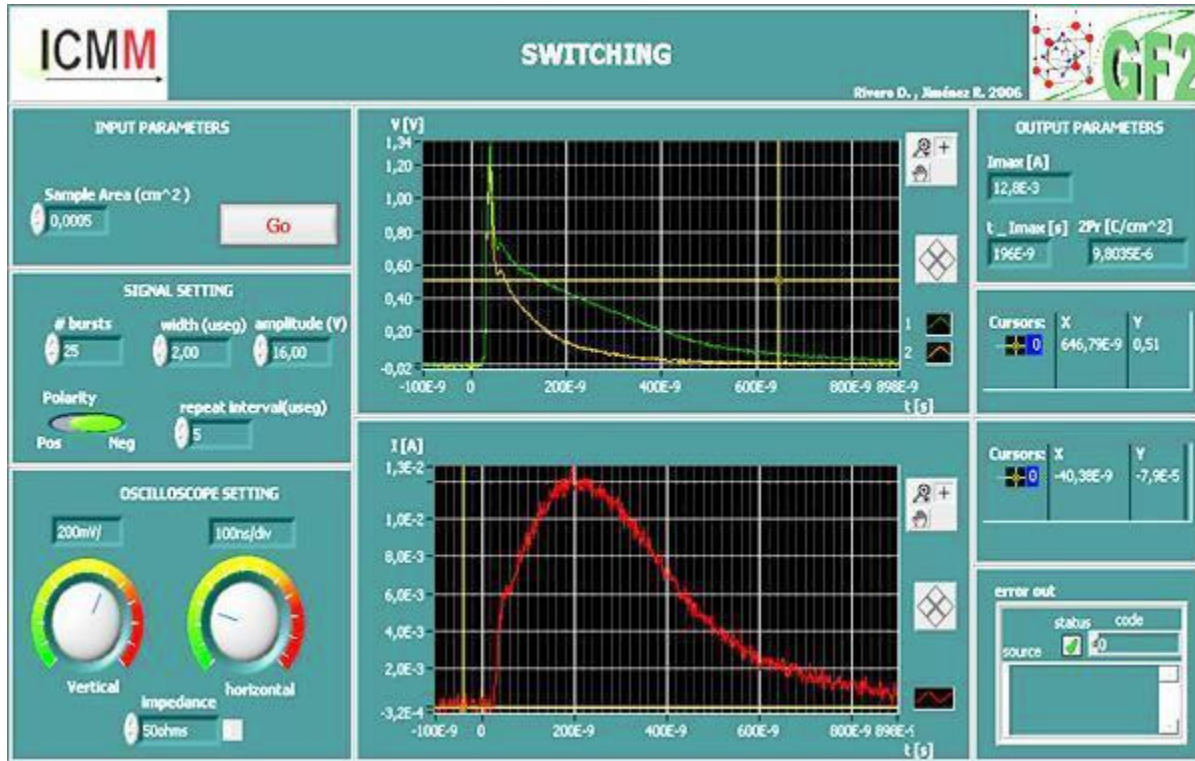


Figura 4. Pantalla principal del instrumento virtual SWITCHING.

El primer pulso conmuta la muestra en sentido contrario y además carga el condensador en el sentido del campo eléctrico aplicado. El segundo pulso vuelve a polarizar el condensador en el sentido del campo aplicado, ya que durante el tiempo de espera ( $D$ ), cuando el voltaje aplicado es cero ( $V=0$ ), se debe haber relajado. Idealmente la corriente de respuesta al primer pulso puede describirse como  $j_1 = j_s + j_{ns}$ ; siendo la del segundo

$j_2 = j_{ns}$ , de lo que se deduce que

$$J_s = j_1 - j_2$$

donde  $j_s$  corriente de conmutación,  $j_{ns}$  corriente de no conmutación.

Cuando el ferroeléctrico no es ideal durante la relajación, ( $V=0$ ), hay una despolarización de manera que el segundo pulso volverá a polarizar el condensador y a volver a conmutar la polarización relajada siendo la corriente del segundo pulso:

$$j_2 = j_{ns} + j_{rs};$$

donde  $J_{rs}$  corriente de reconmutación. Y lo que obtenemos al restar la corriente asociada a los pulsos:

$$j_1 - j_2 = j_s - j_{rs};$$

es decir, menos corriente.

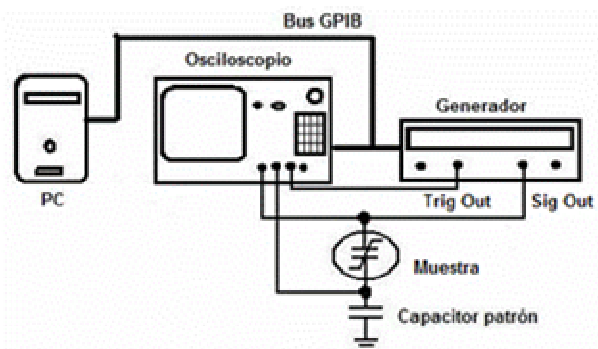


Figura 5. Esquema del dispositivo experimental para medir los lazos de carga.

El experimento de relajación consiste en medir el transitorio a  $V=0$  durante el tiempo  $D$ . De esta medida podemos obtener cuanta polarización ferroeléctrica se relaja o en otras palabras no es remanente.

Con ayuda de la pantalla principal de los instrumentos virtuales desarrollados SWITCHING, figura 4 (al final

del artículo) y **RELAXATION** se escogen los parámetros correspondientes a la muestra de lámina bajo estudio, los trenes de pulsos que se aplicarán a la misma (amplitud y número de pulsos para la polarización; polaridad, duración y distancia entre los pulsos de escritura) y la configuración necesaria para el osciloscopio.

En la misma pantalla se muestran los gráficos de las señales medidas y la corriente de conmutación y relajación calculadas, así como los valores de la corriente máxima, tiempo para la corriente máxima y la polarización remanente correspondiente.

**Desarrollo del sistema de trazado de lazos de histéresis.** Cuando se miden los lazos de histéresis se usan dos tipos de circuitos, el clásico circuito de Sawyer y Tower, con el que se toma la señal del condensador pa-

trón o de referencias y se obtienen los lazos de carga, ver figura 5.

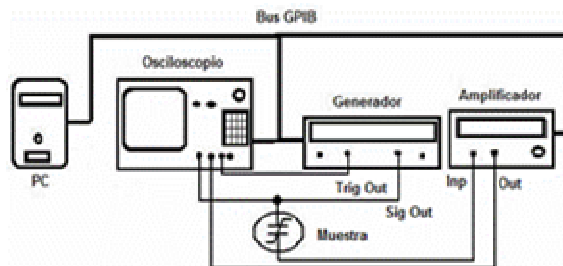


Figura 6. Esquema del dispositivo experimental para medir los lazos de densidad de corriente.

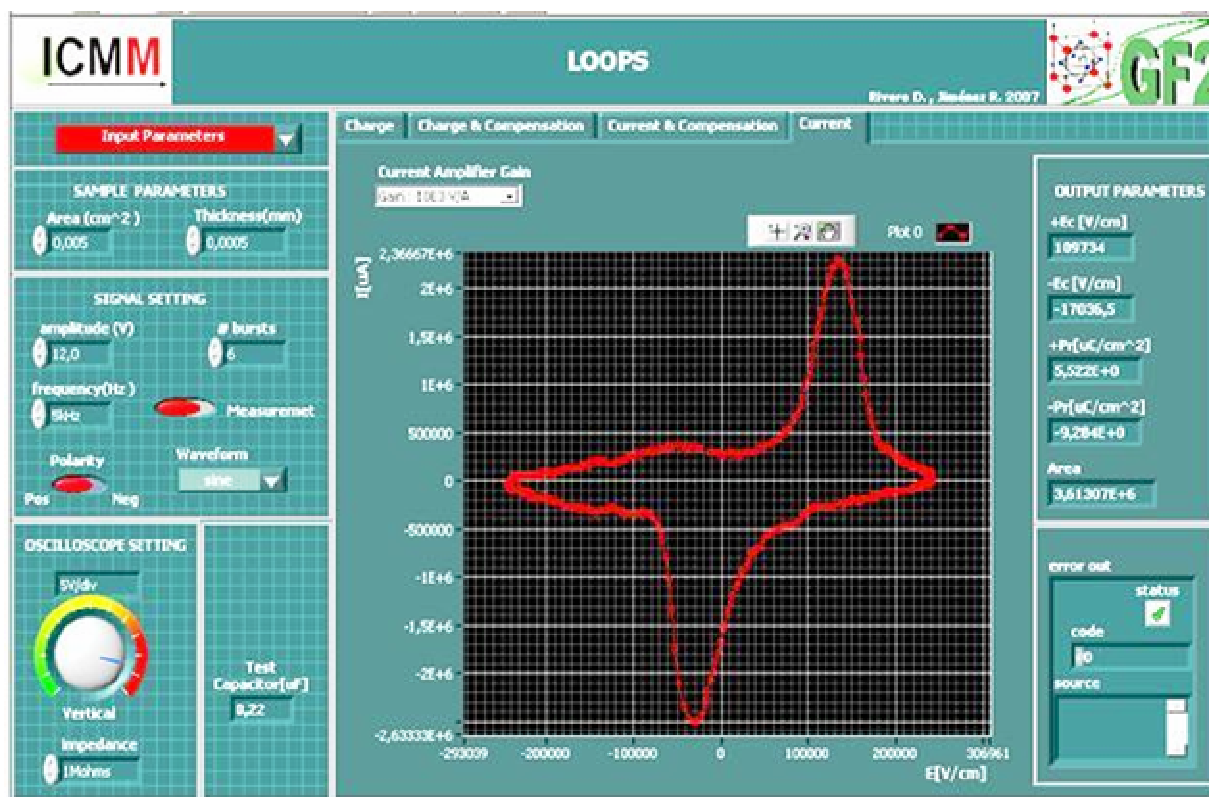


Figura 7. Pantalla principal del instrumento virtual **LOOPS**

### 3 Resultados.

Como resultados del trabajo se cuenta con una instalación funcional y flexible para medir los lazos de histéresis y las corrientes de conmutación y de relajación con características modernas que permite ajustar y cambiar los parámetros según las necesidades del experimento, así como guardar los ficheros de datos para ser analizados usando otros software más especializados y desarrollados al efecto.

La incertidumbre en las mediciones con esta instalación es la típica en mediciones experimentales y hemos tomado para su estimación el método propuesto por Ra-

mos P. en [6]. En el caso de los lazos de histéresis hay que tener en cuenta las desviaciones estándar al medir los voltajes con el osciloscopio, y la de la superficie del electrodo y al medir las corrientes con el amplificador. En el caso de las corrientes de conmutación depende además de la resolución en tiempo del osciloscopio por tanto estimamos nuestras incertidumbres aproximadamente de 6% para  $P_r$  y  $E_c$ , en las medidas de ciclo mientras que en las de conmutación es aproximadamente un 8% para la  $P_r$  y un 10% para el tiempo de conmutación  $t_{sw}$ .

Usando la instalación han sido medidas algunas de estas características en varias muestras de laminas delga-

das de  $\text{Pb}_{0.76}\text{Ca}_{0.24}\text{TiO}_3$  obtenidas por Sol-Gel preparadas en el Departamento de Materiales Ferroelectricos del ICMM. En la figura 8 se muestra un ejemplo de mediciones de transitorio de corriente de conmutación en láminas delgadas realizados con esta instalación. Estas densidades de corrientes son las resultantes de aplicar a una de las muestras pulsos de  $4\mu\text{s}$  y  $12\text{V}$  con una separación de  $10\mu\text{s}$  entre ellos. En la figura 9 se muestra un ejemplo de medidas de lazos de corriente realizados con la instalación.

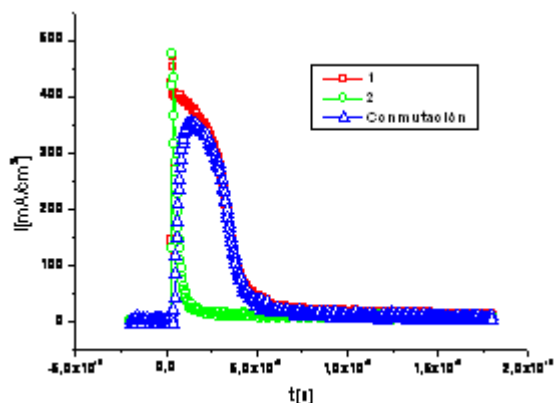


Figura 8. Medición de tiempos de conmutación en láminas delgadas.

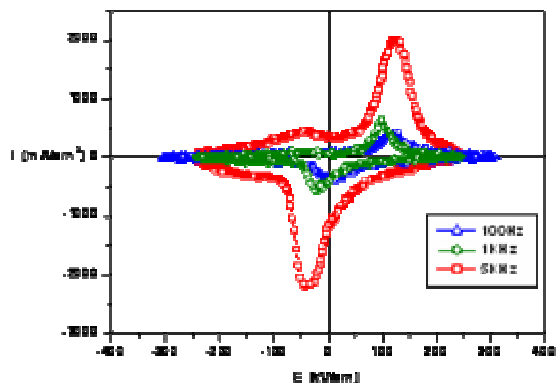


Figura 9. Lazos de corriente en láminas delgadas.

En el caso de láminas delgadas donde la amplitud del voltaje aplicado es baja, en nuestro dispositivo experimental  $V_{\text{max}} = 16\text{V}$ , es posible emplear el método alternativo basado en la medida de la corriente amplificada y convertida en voltaje del lazo, directamente en el osciloscopio. Para la amplificación se emplea un amplificador inversor de banda ancha como se muestra en la figura 6.

En ambos casos se usa la pantalla principal del instrumento virtual **LOOPS** (figura 7) desde donde se selecciona el tipo de lazo a medir (carga o corriente), se in-

troducen los parámetros de la muestra y el condensador de referencia a usar en caso de lazos de carga, y la ganancia para el amplificador en caso de lazos de corriente. Desde la misma se escogen además los parámetros de la señal a aplicar a la muestra y la configuración necesaria para el osciloscopio. En la misma pantalla se muestra el gráfico del lazo medido y algunos parámetros del mismo calculados a partir de las mediciones efectuadas.

Una particularidad especial en el instrumento de los lazos es que se ha programado de tal forma que puede medirse el lazo luego de aplicar el primer tren de ondas, o el llamado primer ciclo, que puede ser empleado para conocer el estado de autopolarización del condensador ferroelectrico. También permite la programación de tratamientos eléctricos a los condensadores ferroelectricos mediante la aplicación de trenes de ondas de duración programable.

## Agradecimientos

Este trabajo fue respaldado por la red de excelencia europea Multifunctional & Integrated Piezoelectric Devices (No-E Mind CE FP6515757-2). Los autores agradecen a la Dr. M.L. Calzada la disponibilidad de muestras.

## Referencias

1. O. Auciello, JF Scott, R. Ramesh. Phys. Today 1998; 51(7) 22.
2. CA-Paz de Araujo, JD Cuchiaro, LD McMillan, MC Scott, JF Scott. Nature (1995); 647, 627
3. E. Fatuzzo and W. J. Merz, in Ferroelectricity, ed. North-Holland (1967).
4. R. Jiménez, C. Alemany, ML. Calzada, A. González, J. Ricote, J. Mendiola. J. Appl phys A, 2002, 75(5), 607.
5. B. Jaffe, W. R. Cook Jr and H. Jaffe Piezoelectric Ceramics, Academic Press (1971)
6. P. Ramos Estudio de la Ferroelectricidad en Láminas Delgadas de Titanato de Plomo modificados, obtenidas por Sol-Gel. Tesis de Doctorado. Facultad de Ciencias UAM (1997)
7. M. Dawber, P. Chandra, PB. Littlewood, JF Scott. J. Phys. Cond. Matt.2003, 15(24), L393.
8. PK. Larsen, GLM. Kampschöer, MJE Ulenaers, GACM Spierings, R. Cuppens. Appl. Phys. Lett. 1991, 59(5), 611.
9. JF. Scott "Ferroelectric memories". (2000) Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH & Co. KG.
10. La Instrumentación Virtual. Nacional Instrument Corp. Traducción al español: Tracnova S. A., www.tracnova.com
11. LabVIEW Measurements Manual. Nacional Instrument Corp. 2000. P.N. 322661A-01.
12. D. Rivero, J. Portelles, J.I. Benavides, M. Hernández, F. J. Quiles, M. Díaz. Rev. Cub. Física vol. 25 No. 2B (2008), 133.

## Efecto de la razón Zr/Ti sobre las propiedades de la cerámica PZT modificada con 0.05 mol de estroncio

J. Costa, A. Suárez<sup>a</sup>, J. Saniger<sup>a</sup> y F. Calderón<sup>b</sup>

Instituto Cibernética, Matemáticas y Física, Ciudad de La Habana, Cuba. jacqueline@icmf.inf.cu†

a) CCADET, UNAM, Circ. Exterior s/n, A.P. 70-186 Ciudad Universitaria, C.P. 04510 México D.F.  
boomer\_stuff@yahoo.com, jose.saniger@ccadet.unam.mx

b) Facultad de Física/Instituto de Ciencias y Tecnología de Materiales, San Lázaro y L, Universidad de la Habana, 10400, Cuba, calderon@fisica.uh.cu

†autor para la correspondencia

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 1/02/2009.

**Sumario.** Las cerámicas correspondientes al sistema cerámico titanato circonato de plomo (PZT) modificado con estroncio en diferentes regiones del diagrama de fase ( $Zr/Ti = 20/80, 40/60, 53/47, 60/40$ ), fueron sinterizadas a 1290 °C durante 70 minutos, régimen óptimo de sinterización según estudios anteriores. Se obtuvo fase tetragonal y romboédrica (la  $Zr/Ti = 53/47$  presentó mezcla de fase tetragonal y romboédrica). Con el aumento de la relación  $Zr/Ti$  la tetragonalidad y la temperatura de Curie decrecen, mientras que el tamaño de grano no mostró variación notable. Las muestras presentaron transición de fase ferroeléctrica-paraeléctrica de tipo normal, mostrando un comportamiento de Curie-Weiss por encima de la transición.

**Abstract.** Ceramics corresponding to the lead titanate zirconate (PZT) ceramic system modified with strontium in different regions of phase diagram ( $Zr/Ti = 20/80, 40/60, 53/47, 60/40$ ), were sinterized at 1290 °C for 70 minutes, the optimal sintering regimen according to previous studies. Tetragonal and rhombohedral phases were obtained (mixed rhombohedral and tetragonal were obtained for  $Zr/Ti = 53/47$ ). As the  $Zr/Ti$  ratio increases, tetragonality and Curie temperature decreases, while the grain size did not show a noticeable variation. Our samples showed normal ferroelectric/paraelectric transitions and a Curie-Weiss behaviour above transition temperature.

**Palabras clave.** Cerámicas PZT, 77.84.Dy, rayos x, 61.05.C-, constante dieléctrica, 78.20.Ci.

### 1 Introducción

Desde el punto de vista tecnológico la mayoría de las cerámicas piezoeléctricas que se producen en el mercado están basadas en electrocerámicas de composición  $Pb(Zr,Ti)O_3$ , conocido como PZT. En la actualidad se realizan modificaciones para buscar estabilidad en las propiedades y eliminar el envejecimiento, dadas las excelentes propiedades que manifiesta como sistema puro y modificado<sup>1,2,3,4,5,6</sup>.

Este sistema presenta la estructura tipo perovskita ( $CaTiO_3$ ) con valores óptimos de las propiedades dieléctricas y piezoeléctricas en la denominada región morfotrópica (FFM) ubicada en  $Zr/Ti = 53/47$  del diagrama de fases clásico de la PZT (Figura 1)<sup>1,2,7</sup>. No obstante en la actualidad algunas propiedades se han modificado por la presencia de la fase monoclinica reportada recientemente por Noheda<sup>8</sup> y colaboradores.

En el presente trabajo hemos estudiado el sistema PZT modificado con 5 % molar de estroncio en diferen-

tes puntos del diagrama de fase

$Pb_{0.95}Sr_{0.05}(Zr_xTi_{1-x})O_3$  donde  $x = 0.20, 0.40, 0.53, 0.60$  denominado como PSZT(Zr/Ti) en el texto. En nuestro caso, como el estroncio posee una valencia estable ( $Sr^{2+}$ ), va hacia los sitios del plomo que posee la misma valencia, por lo tanto no deben surgir defectos ni vacancias en la estructura correlacionados con la compensación de carga de la celda unitaria. Se estudian las propiedades estructurales y eléctricas de dichas cerámicas en diferentes relaciones Zr/Ti del diagrama de fase.

Para garantizar la estabilidad de la estructura perovskita el nivel de dopaje con estroncio debe ser menor del 10 at.%;<sup>1</sup> en nuestro caso hemos usado solamente el 5 % molar de Sr.

La adición de estroncio, con radio iónico inferior al Pb, debe provocar una contracción de la estructura, lo que implica que el dopaje con estroncio debe modificar el punto de Curie e igualmente la permitividad dieléctrica a temperatura ambiente. Resultados experimentales<sup>1</sup> han mostrado que la sustitución de los alcalinos en el sitio del Pb, reducen la temperatura de Curie, realzan la constante dieléctrica a temperatura ambiente; el factor de acoplamiento y el módulo elástico no son afectados grandemente mientras que el coeficiente piezoeléctrico  $d_{33}$  aumenta.<sup>2</sup> Recientemente Zheng<sup>9</sup> reportó que el aumento del contenido de estroncio en el sistema PZT (Zr/Ti = 1.095) dopado con 2.4 mole% de Nb, provoca una disminución de la temperatura de Curie, un ensanchamiento del pico de permitividad y decrecimiento de su valor máximo. Además reportó que el aumento de la relación Zr/Ti provoca una disminución de la tetragonalidad y de la temperatura de transición de fase ferroeléctrica-paraeléctrica. Un resultado similar lo obtuvo Priya<sup>10</sup> en el sistema ternario  $Pb(Zr,Ti)O_3$ - $Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$  modificado con 6 % molar de estroncio. Dimitriu<sup>11</sup> estudió las propiedades piezoeléctricas y ópticas del sistema PT-PZ-Pb( $Mg_{1/3}Nb_{2/3}$ ) $O_3$  dopado con Sr.

El objetivo de nuestro trabajo es reportar el efecto que produce la variación de la relación Zr/Ti en cerámicas PZT modificadas con 0.05 mol de Sr.

## 2 Método de preparación de las muestras

Las cerámicas estudiadas fueron preparadas a partir de óxidos y carbonatos de alta pureza,  $PbCO_3$  (98%, BDH),  $ZrO_2$  (99%, Merck),  $TiO_2$  (99%, Riedel-de-Häen),  $SrCO_3$  (espectralmente puro, Fluka AG) empleando el método cerámico tradicional de mezcla de polvos.

El procedimiento utilizado para la preparación de las muestras ha sido reportado anteriormente<sup>12</sup>. Luego de sinterizados cada uno de los sistemas a estudiar, las muestras fueron cortadas en forma de discos, pulidas sus superficies y sometidas a un tratamiento térmico para eliminar posibles esfuerzos mecánicos que afecten las propiedades de los materiales producto del proceso de preparación (corte y pulido).

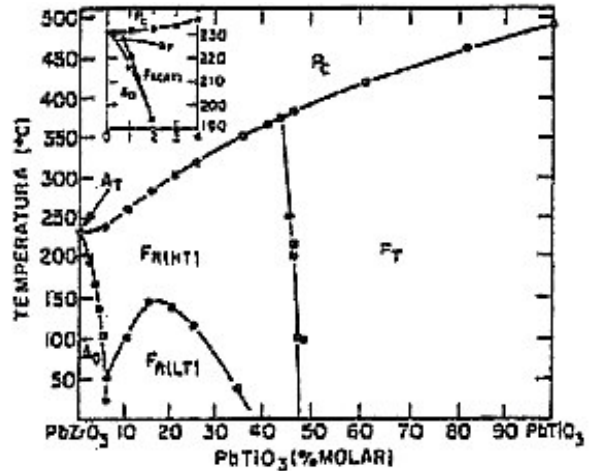


Figura 1. Diagrama de fases del sistema  $PbZrO_3$ - $PbTiO_3$  (PZT). La recta casi vertical ubicada aproximadamente en la relación Zr/Ti = 53/47 es la conocida Frontera de Fase Morfotrópica (FFM).

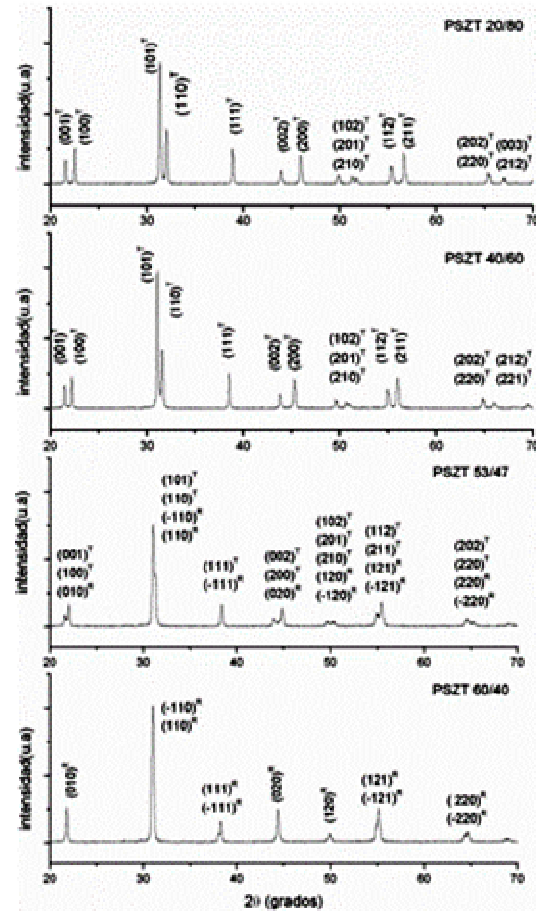


Figura 2. Patrones de difracción de rayos-x a temperatura ambiente en las muestras PSZT para las composiciones estudiadas.

Electrodos de plata se depositaron sobre las caras bajo un tratamiento térmico a 650 °C con el objetivo de pro-

porcionarles contactos eléctricos adecuados para las diferentes caracterizaciones a efectuar.

Las muestras ya sinterizadas fueron analizadas a través de la difracción de rayos-x (DRX) a temperatura ambiente, realizadas sobre muestras en polvo, empleando un difractómetro Philips PW 3710 usando radiación  $\text{CuK}\alpha$ . Se analizó en el intervalo de  $20^\circ$  a  $70^\circ$  en  $2\theta$ , con una velocidad de  $0.10$   $2\theta/\text{s}$ . Estudios de microscopía electrónica de barrido (SEM) fueron efectuados mediante un microscopio JSM-5800 sobre las muestras fracturadas. Se efectuaron además, mediciones dieléctricas mediante un puente RLC QUADTECH desde  $25$  kHz hasta  $200$  kHz, cubriendo un intervalo de temperatura desde la ambiente hasta los  $450^\circ\text{C}$ .

### 3 Resultados y discusión

La Figura 2 muestra los patrones de difracción de rayos x para la PZT dopada con 5% molar de estroncio, en las cuales, se varió la relación Zr/Ti como se relacionó anteriormente. Como se destaca, en la PSZT 20/80 y 40/60 obtuvimos solo fase tetragonal ( $F_T$ ), y en la 60/40 solo fase romboédrica ( $F_R$ ). Por su parte, la PSZT 53/47 presentó mezcla de fase: tetragonal y romboédrica ( $F_{R+T}$ ), siendo mayoritaria en este caso la  $F_T$ . Para afirmar que en la PSZT 53/47, la  $F_T$  es la fase mayoritaria, calculamos el área debajo de los picos de cada fase y con esto, obtuvimos el porcentaje de fases ( $F_T/F_R \sim 77\%/23\%$ ). Con el aumento de la razón Zr/Ti, el doblete del pico (002) va desapareciendo (Figura 2), lo que indica que hay un cambio de fase tetragonal a romboédrica o a una composición con mezcla de fases en la FFM.

El valor de los parámetros de red y la tetragonalidad para las relaciones circonio-titanio estudiadas en el sistema PSZT son reportados en la Tabla I. Con el aumento de la relación Zr/Ti la tetragonalidad disminuye, mientras que el parámetro  $a$  crece,  $c$  no presenta una variación notable; este hecho también podría inferirse de la Figura 2 puesto que los picos  $(002)^T$  y  $(200)^T$  tienden a unirse cuando se aumenta la relación Zr/Ti. Para el caso romboédrico se reportan el parámetro reticular y el ángulo  $\alpha$ .

Los valores mostrados en la Tabla I para nuestro sistema, son similares a lo reportado en la literatura en sistemas PZT<sup>1, 13,14</sup>.

En el análisis de microscopía electrónica de barrido (SEM) realizado a nuestras muestras fracturadas (Figura 3) se observa un comportamiento similar para todas las muestras en estudio en cuanto a morfología granular: se observaron granos redondeados.

La Tabla II refleja que no hay variación notable de los tamaños medios de grano al variar la relación Zr/Ti. Los datos reportados en dicha Tabla fueron calculados a través del programa Scion Image de la Scion Corporation (<http://www.scioncorp.com>), mediante el cual se midió el perímetro ( $P$ ) de los granos, considerando que estos tienen forma esférica, y posteriormente se calculó el diámetro ( $d$ ) de los mismos mediante la relación

$d = P/\pi$ , después obtuvimos la función de distribución del tamaño de grano y así obtener el tamaño promedio de los granos. Los valores obtenidos en la Tabla II nos impide elucidar una posible tendencia del tamaño de grano con la relación Zr/Ti.

**Tabla I**

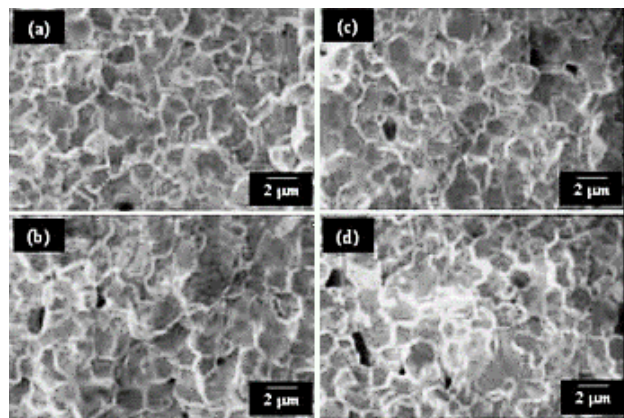
Parámetros de red y tetragonalidad en el sistema PSZT variando la relación Zr/Ti. En la composición PSZT 60/40 se reporta el valor de  $a$  y  $\alpha$  asociado a la fase romboédrica obtenida. El error de  $c/a$  es de  $0.001$ .

PSZT Zr/Ti	a (Å)	c (Å)	c/a
20/80	3.956	4.123	1.042
40/60	4.008	4.134	1.032
53/47 <sup>T</sup>	4.040	4.125	1.021
60/40	4.083	4.083	$\alpha=89.85^\circ$

**Tabla II**

Tamaño medio de granos para las composiciones PSZT Zr/Ti estudiadas.

PSZT Zr/Ti	Tamaño de grano ( $\mu\text{m}$ )
20/80	5.6
40/60	6.2
53/47	6.2
60/40	5.4



**Figura 3.** Fotografías SEM tomadas a las cerámicas PSZT con distintas relaciones de Zr/Ti estudiadas: (a) 20/80, (b) 40/60, (c) 53/47 y (d) 60/40.

En la dependencia de la permitividad dieléctrica ( $\epsilon$ ) con la temperatura ( $T$ ), a una frecuencia fija, obtenemos valor máximo en la temperatura a partir de la cual el sistema pasa del estado ferroeléctrico a un estado desordenado (paraeléctrico), desapareciendo la polarización espontánea característica de estos sistemas.

Se trata de una transición de fase ferroeléctrica a paraeléctrica y la temperatura a la cual ocurre es la conocida temperatura de Curie ( $T_c$ ). La transición de fase ferroeléctrica a paraeléctrica denominada de tipo normal (TFN) presenta las siguientes características: (1) se obtiene un pico bien definido de la permitividad dieléctrica

a la temperatura de transición, (2) el valor máximo de la permitividad ( $\epsilon_{\max}$ ) y la temperatura a la cual ocurre este máximo ( $T_m$ ) no depende de la frecuencia, (3) las pérdidas dieléctricas tienen este mismo comportamiento y la temperatura del valor máximo de las pérdidas dieléctricas ( $T_{\tan\delta\max}$ ) y  $T_m$  coinciden, (4) en este tipo de transición, la dependencia de la constante dieléctrica con la temperatura por encima de la transición está descrita por la ley de Curie-Weiss, dada por  $\epsilon = C/(T - T_C)$ , donde  $C$  es la constante de Curie-Weiss.

La Figura 4 muestra, como ejemplo, la dependencia de la permitividad dieléctrica ( $\epsilon$ ) con la temperatura para las relaciones Zr/Ti de 20/80 y 60/40 para todas las frecuencias estudiadas. En la Tabla III se muestran los valores de  $T_m$  así como la permitividad a temperatura ambiente ( $\epsilon$  a  $T_{\text{amb}}$ ) para todas las composiciones. Con el aumento de la relación Zr/Ti la temperatura de transición decrece y la  $\epsilon$  a  $T_{\text{amb}}$  presenta un valor máximo en la FFM.

Con el aumento de la relación Zr/Ti, al disminuir la tetragonalidad del sistema, se espera una disminución del momento dipolar intrínseco y por tanto un decremento de la temperatura de transición. Este resultado se observa en el experimento (Tabla III) y es congruente además con lo reportado en el conocido diagrama de fases de la PZT (Figura 1).

Los valores de la temperatura de transición ferroeléctrica-paraeléctrica de nuestro sistema son inferiores a los del sistema PZT puro, esto es un efecto de la incorporación del estroncio en la estructura<sup>9</sup>, por lo que podemos afirmar que el estroncio sustituyó al plomo en la estructura perovskita. La permitividad dieléctrica a temperatura ambiente presenta un pico característico en el entorno de la FFM (Tabla III).

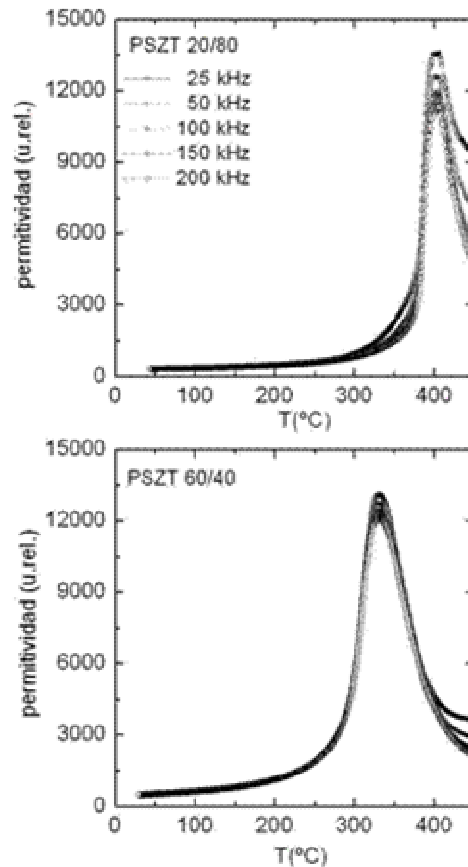
En la dependencia de la permitividad dieléctrica con la temperatura, no se observó corrimiento alguno del máximo de la permitividad con la temperatura al variar la frecuencia (Figura 4). Esto implica que, para las relaciones Zr/Ti estudiadas, no hay relajación. En este tipo de transición se cumple perfectamente la ley de Curie-Weiss en el estado paraeléctrico, tal y como se ilustra en la Figura 5.

En esta Figura podemos observar que las PSZT 20/80 y 40/60 presentan un comportamiento similar en las curvas, todas las curvas tienden a cortarse en un punto en el plano ( $\epsilon^{-1}$ ,  $T$ ). Este comportamiento está asociado a los dipolos efectivos que presenta la muestra durante la medición.

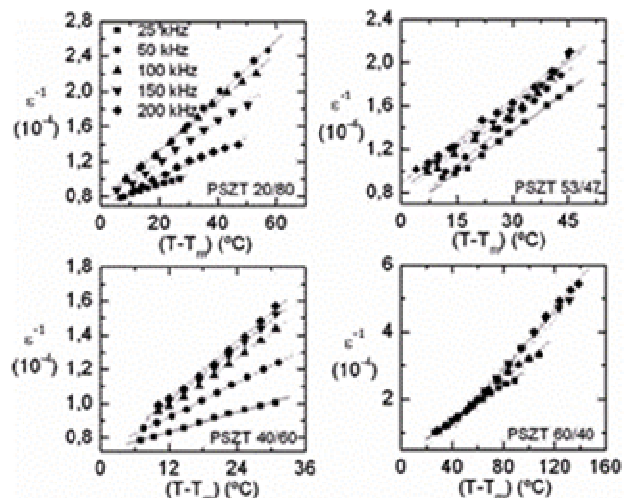
A mayor frecuencia menor permitividad y menos contribución de los dipolos asociadas a la carga espacial. Observar en la figura 5 que las mismas están invertidas respecto a la frecuencia de medición en la figura 4.

La pendiente de la curva está relacionada con la constante de Curie  $C$  ( $T_c = \gamma C$ ), donde  $T_c$  es la temperatura transición y  $\gamma$  es la constante asociado al campo interno. En el caso PSZT 60/40 con la fase romboédrica  $F_R$ , la familia de rectas son una especie de envolvente tangente

a una  $(T - T_m)$  dada. Es decir la permitividad cerca de la transición no cambia apreciablemente con la frecuencia.



**Figura 4.** Dependencia de la permitividad dieléctrica con la temperatura para todas las frecuencias analizadas para el sistema PSZT con las relaciones Zr/Ti de 20/80 y 60/40.



**Figura 5.** Cumplimiento de La Ley de Curie-Weiss para el sistema PSZT para todas las relaciones Zr/Ti estudiadas en todo el rango de frecuencias analizado.

En el caso de la PSZT 53/47 con mezcla de fase ( $F_{T+R}$ ), ocurre un comportamiento similar.

Finalmente el comportamiento de la Ley de Curie



Weiss nos expresa que la transición es normal.

**Tabla III**

Permitividad dieléctrica ( $\epsilon$ ) a temperatura ambiente y temperatura de transición para todas las frecuencias y las relaciones Zr/Ti estudiadas.

PSZT Zr/Ti	$\epsilon$ a $T_{amb}$ (u.rel.)				
	25 kHz	50 kHz	100 kHz	150 kHz	200 kHz
20/80	304	304	305	306	303
40/60	297	297	297	296	296
53/47	858	856	855	855	854
60/40	497	496	494	493	493
PSZT Zr/Ti	$T_m$ (°C)				
	25 kHz	50 kHz	100 kHz	150 kHz	200 kHz
20/80	405	401	403	406	405
40/60	403	403	403	403	403
53/47	363	363	364	364	363
60/40	331	331	331	331	329

## 4 Conclusiones

En las cerámicas estudiadas obtuvimos mezcla de fases tetragonal y romboédrica en la FFM y a medida que nos alejamos de dicha frontera, se observaron fases típicas de cada composición. Los parámetros de red se modifican y la tetragonalidad disminuye con el aumento de la relación Zr/Ti. El estudio SEM arrojó que la morfología granular y el tamaño medio de los granos no presentaron variaciones notables con la relación Zr/Ti. Se detectaron transiciones de fase normales cumpliendo la Ley de Curie-Weiss por encima de la temperatura de transición. La temperatura a la cual se alcanza el máximo de la permitividad dieléctrica ( $T_m$ ) decrece con el incremento de la relación Zr/Ti. El estroncio entró en la estructura perovskita provocando una disminución de la temperatura de transición ferroeléctrica-paraeléctrica con respecto a dicha temperatura en el sistema PZT puro.

## Agradecimientos

Agradecemos el apoyo brindado por los programas ICTP-CLAF y UNAM-DGEP, al proyecto PLVIII 13 CYTED y a la red de Materiales Ferroeléctricos NET 43.

## Referencias

1. Y. Xu, in *Ferroelectric Materials and Their Applications*, Elsevier Science Publishers B.V., The Netherlands (1991).
2. B. Jaffe and W. Cook, in *Piezoelectric Ceramics*, Academic Press. London (1971).
3. L. E. Cross, in *Ferroelectric Ceramics: Tailoring Properties for Specific Applications*, Ferroelectric Ceramics, Birkhäuser Verlag, Basel. Boston, London (1993).
4. D. Damjanovic, F. Chu, D. V. Taylor, H. Demartin, L. Sagalowicz, P. Duran and N. Setter, Engineering of piezoelectric properties in ferroelectric ceramics and thin films, *Boletín de la Sociedad Española de Cerámica y Vidrio*, Vol. 38, No. 6, 538-544 (1999).
5. M. D. Durruthy, M. Hernández, H. Camacho, A. Suárez and D. Mayor, Sustitución de la posición A en la estructura perovskita  $ABO_3$ , *Revista CENIC Ciencias Químicas*, Vol. 32, No. 3, 161-165 (2001).
6. M. D. Durruthy, A. Suárez and D. Mayor, Sustitución de las posiciones A y B en la estructura Perovskita por dopaje simultáneo con Lantano y Niobio, *Reporte de Investigación del ICIMAF*, 157 (2001).
7. X. H. Du, J. Zheng, U. Belegundu and K. Uchino, Crystal orientation dependence of piezoelectric properties of lead zirconate titanate near the morphotropic phase boundary, *Applied Physics Letter*, 72, 2421-2423 (1998).
8. B. Noheda, D. E. Cox, G. Shirane, R. Guo, B. Jones and L. E. Cross, Stability of the monoclinic phase in the ferroelectric perovskite  $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$ , *Physics Review B*, 63, 014103 (2001).
9. H. Zheng, I. M. Reaney, W. E. Lee, N. Jones and H. Thomas, Effects of strontium substitution in Nb-doped PZT ceramics, *Journal of the European Ceramic Society*, 21, 1371-1375 (2001).
10. S. Priya, H.-W. Kim and K. Uchino, Low temperature coefficient of resonance frequency composition in the system  $Pb(Zr,Ti)O_3$ - $Pb(Mn_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ , *Journal of the American Ceramic Society*, 87, 10, 1907-1911 (2004).
11. E. Dimitriu, R. Ramer, C. Ghica, A. Iuga and V. Ghiordeanu, Piezoelectric and optical properties of Sr-doped PT-PZ-Pb( $Mg_{1/3}Nb_{2/3}$ ) $O_3$ , *Journal of the European Ceramic Society*, 24, 1703-1708 (2004).
12. J. Costa Marrero, Influencia del estroncio y cromo sobre la ferroelectricidad y conductividad del sistema PZT, Tesis de maestría, Facultad de Física, Universidad de la Habana, Cuba, (2007).
13. J. Joseph, T. M. Vimala, V. Sivasubramanian, V. R. K. Murthy, Structural investigations on  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  solid solutions using the X-ray Rietveld method, *Journal of Materials Science*, 35, 1571-1575 (2000).
14. J. Frantti, J. Lappalainen, S. Eriksson, V. Lantto, S. Nishio, M. Kakihana, S. Ivanov and H. Rundlof, Neutron diffraction studies of  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  ceramics, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 5697-5703 (2000).

## Influencia del desorden cristalino en los espectros Mössbauer del $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$

Yamiel Abreu Alfonso<sup>†</sup>, Carlos M. Cruz Inclán, Ibrahin Piñera Hernández, y Antonio Leyva Fabelo

Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear (CEADEN), Cuba; yabreu@ceaden.edu.cu

<sup>†</sup> autor para la correspondencia

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 4/02/2009

**Sumario.** En este trabajo se analiza la interpretación de los espectros Mössbauer del  $^{57}\text{Fe}$  en el  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  partiendo de una descripción más detallada del desorden estructural existente en su plano basal. Para lo cual se consideraron las fluctuaciones en la orientación espacial de los átomos situados en la vecindad de las posiciones que ocupa el  $^{57}\text{Fe}$ , referidas, aproximadamente, como cúmulos de aniones de oxígenos situados en la vecindad atómica más próxima al sitio de referencia. El algoritmo de cálculo aplicado permite estimar el tensor gradiente del campo eléctrico efectivo, en los núcleos de interés, como la suma de una contribución del cúmulo analizado y otra proveniente del resto de las posiciones atómicas situadas en una red cristalina ideal. Este esquema de cálculo permitió reproducir todo el conjunto de las líneas experimentales; así como estudiar el efecto del aumento del contenido de oxígeno y del cambio de simetría en las muestras de este material.

**Abstract.** In the present work the  $^{57}\text{Fe}$  Mössbauer spectra interpretation on regard to doped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  samples has been analyzed starting from a more detailed description of the structural disorder existing in its basal plane. Thus, possible fluctuations in the spatial orientation of atomic positions located in the  $^{57}\text{Fe}$  isotope neighborhood were considered by introducing oxygen clusters located in the reference site neighborhood. The applied calculation algorithm estimate the effective electric field gradient tensor at the reference nuclear positions as the sum of a contribution from the analyzed cluster and another arising from the rest of the atomic positions located in an ideal crystalline lattice. This algorithm allows to reproduce all the observed experimental lines; as well as to study the oxygen content increase and the symmetry change effects in this material samples.

**Palabras clave.** YBCO 74.78.Bz, Tensor Gradiente del Campo Eléctrico 74.62.Dh, Desdoblamiento Cuadrupolar Eléctrico 76.80.+y.

### 1 Introducción

En fecha reciente ha cobrado marcado interés científico el estudio de los espectros Mössbauer (EM) de muestras superconductoras de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  sinterizadas a alta presión.<sup>1,2</sup> En dichos estudios se han observado cambios significativos en los EM producto del aumento del contenido de oxígeno en las muestras, lo cual provocó la total extinción del doblete principal de 1,97 mm/s que se

observa comúnmente en las muestras sinterizadas a presión normal.<sup>3</sup> Este hecho incentiva el reanálisis de las estructuras atómicas locales que se crean en estos compuestos dopados y que pueden dar lugar al fenómeno observado.

Dentro de este contexto, es necesario tener en cuenta, que las diferentes contribuciones al desdoblamiento cuadrupolar eléctrico ( $\Delta E_q$ ) observadas en los EM del  $^{57}\text{Fe}$ , medidos en el  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  con bajo grado de sustitución

ción por este dopante, se deben esencialmente a la existencia de entornos localmente desordenados alrededor de los sitios Cu(1) sustituidos por este isótopo.<sup>3,4</sup> Estos sitios se diferencian entre sí por la cantidad y posiciones que ocupan los aniones de oxígeno. Sin embargo, una asignación inequívoca del tipo de cúmulo de oxígeno que preferentemente rodea a los sitios de ocupación del <sup>57</sup>Fe no ha podido ser alcanzada hasta el momento para todos los valores medidos de  $\Delta E_q$ . Las metodologías empleadas para ello no han sido conclusivas, en particular aquellas que se basan en relacionar los resultados experimentales con los parámetros hiperfinos de otros materiales de estructura cristalina (EC) conocida.<sup>3</sup>

En el presente trabajo se introducen nuevas consideraciones metodológicas que permiten evaluar sistemáticamente las variaciones a las que están expuestos los valores del tensor gradiente del campo eléctrico (TGCE) efectivo en los núcleos atómicos embebidos en una sustancia cristalina en el límite de bajas concentraciones de defectos puntuales. Para este tipo de desorden estructural localizado se justifica en el presente trabajo la aplicación de la aproximación de distribuciones multipolares puntuales de cargas eléctricas, anteriormente aplicada con este fin en un sentido más restringido.<sup>5</sup>

Utilizando la metodología propuesta se realiza una interpretación cualitativa del comportamiento del  $\Delta E_q$  en los sitios ocupados por el <sup>57</sup>Fe para diferentes vecindades o cúmulos de iones de oxígeno que caracterizan el desorden local que se induce en la EC del YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> al ser dopada con <sup>57</sup>Fe. Sobre esta base, se propone una identificación de las contribuciones fundamentales correspondientes a los EM reportados en la literatura<sup>1-3</sup> y la influencia sobre los mismos de la simetría de la EC. Los resultados obtenidos son consistentes con la interpretación de los cambios observados en EM en el <sup>57</sup>Fe reportados recientemente.<sup>1,2</sup>

## 2 Materiales y métodos

El TGCE total efectivo ( $G_{i,j}$ ) en los núcleos atómicos se calcula como la suma<sup>5,6</sup>:

$$G_{i,j} = (1 - \gamma_\infty)G_{i,j}^{ret} + (1 - R)G_{i,j}^{val} \quad (1)$$

donde  $\gamma_\infty$  y  $R$  son los factores de antiapantallamiento y apantallamiento de Sternheimer respectivamente. Siendo  $G_{i,j}^{ret}$  y  $G_{i,j}^{val}$  las contribuciones al TGCE de la red cristalina o reticular y la de los electrones de valencia del átomo, respectivamente.

En el caso que nos ocupa se reporta que el hierro se encuentra en estado de oxidación Fe<sup>3+</sup> con alto espín<sup>3</sup>, el cual posee el estado básico <sup>6</sup>S<sub>5/2</sub>. Sobre esta base y considerando como nula la contribución al TGCE por parte de los 5 electrones de valencia del estado 3d debido a la simetría esférica de la nube electrónica para un átomo aislado, se justifica que en el miembro derecho de la Ec. (1) se pueda desprestigiar, en primera aproximación, la

contribución de los electrones de valencia, de manera que  $G_{i,j}^{val} = 0$ , quedando:

$$G_{i,j} = (1 - \gamma_\infty)G_{i,j}^{ret} \quad (2)$$

Usualmente, aplicar la Ec.(2) al caso de EC con defectos es una tarea difícil, dado que el término  $G_{i,j}^{ret}$  representa el aporte de todas las contribuciones atómicas individuales al TGCE, una parte importante de las cuales están referidas a posiciones espaciales que no corresponden con la EC ideal y en general permanecen desconocidas. Sin embargo, en el caso de existir una concentración de defectos puntuales baja, la influencia de éstos sobre las componentes del TGCE ( $G_{def}$ ) puede ser estimada mediante el algoritmo que se describe a continuación. Esto representaría en forma adecuada varias situaciones que surgen en los sitios Cu(1) y Cu(2) con desorden local en muestras de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> dopadas con <sup>57</sup>Fe, como resulta en particular por la formación primaria de defectos de Frenkel inducidos por la radiación gamma.<sup>7,8</sup>

En este caso se puede considerar que la distancia media entre dos defectos puntuales es mucho mayor que los valores de las constantes de la red ( $l_{def} \gg a'_i$ ), existiendo pequeñas regiones cristalinas deformadas ( $V_{def}$ ) distribuidas de forma aleatoria, denotadas como “subregiones defectuosas”, que rodean a cada defecto puntual. Estas últimas están delimitadas por regiones cristalinas ideales ( $V'_{ideal}$ ), con un orden cristalino aproximadamente perfecto y sometidas a una deformación elástica uniforme y con constantes de red deformada  $a'_i$ .

Esto significa que todas las posiciones atómicas  $\bar{x}_\alpha \in V'_{ideal}$  coinciden con las posiciones de los  $\alpha$ -ésimos átomos en la EC ideal deformada. Por el contrario, si  $\bar{x}_\alpha \in V_{def}$ , entonces  $\bar{x}_\alpha = \sum_{i=1}^3 n_i \bar{a}_i + \bar{\rho}'_\alpha$ , con  $\alpha = [1, \dots, s']$ ,  $n_i$  es un número entero y  $\bar{\rho}'_\alpha$  representa un vector aleatoriamente distribuido dentro de la región de una celda unitaria deformada. En general,  $s'$  difiere del número de átomos en la base atómica de la estructura ideal y el vector  $\bar{\rho}'_\alpha$  expresa el desorden cristalino localmente introducido con respecto a la EC en  $V_{def}$ .

De acuerdo con las suposiciones anteriores es posible entonces separar  $G_{def}$  en dos términos:

$$(G_{def})_{i,j} = (1 - \gamma_\infty) \left[ (G_{V'_{ideal}})_{i,j} + (G_{V_{def}})_{i,j} \right], \quad (3)$$

donde  $G_{V'_{ideal}}$  y  $G_{V_{def}}$  denotan las contribuciones al TGCE provenientes de aquellas posiciones atómicas pertenecientes a  $V'_{ideal}$  y  $V_{def}$  respectivamente. El factor de Sternheimer  $\gamma_\infty$  se tomó como  $-9.14$ , valor reportado para el YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>7-x</sub>.<sup>5,9</sup>

En lo adelante consideraremos que el desorden estructural existente en el material es debido únicamente a la sustitución del Cu por el  $^{57}\text{Fe}$  en los sitios cristalinos correspondientes. En el límite de bajos contenidos de dopante, se puede justificar entonces el cálculo del TGCE y del  $\Delta E_q$  en estos sitios a partir de la Ec. (3).

En consecuencia, se asumirá que el origen de coordenadas está ocupado por el sitio del  $^{57}\text{Fe}$ , cuyo entorno cercano en el material lo constituye una subregión defectuosa que la denominaremos de referencia. Su distribución atómica es aleatoria, caracterizada alternativamente por diferentes configuraciones o cúmulos de los átomos vecinos que se apartan del ordenamiento cristalino en la EC ideal. En los cálculos que siguen, se desprecia la influencia de otras subregiones defectuosas que contienen a los restantes isótopos de  $^{57}\text{Fe}$ . De esta forma, el término  $G_{V_{def}}$  de la Ec.(3) contendrá solo las contribuciones debido a las posiciones atómicas ocupadas en la región defectuosa de referencia donde se encuentra ubicado un átomo de  $^{57}\text{Fe}$ , ( $\bar{x}_\alpha \in V'_{ideal}$ ).

En este caso,  $\rho'_\alpha(n)$  no necesariamente coincide con las posiciones ideales de la base atómica y su naturaleza aleatoria debe ser considerada, induciendo esto una distribución estadística de valores de  $G_{V_{def}}$ . El desorden local que provoca la sustitución del Cu por el  $^{57}\text{Fe}$  en las posiciones ocupadas por el oxígeno en su entorno cercano será analizado dentro del marco de una matriz cristalina con posiciones definidas, que pueden ser ocupadas o no por los aniones de oxígeno. Esta aproximación permite reducir drásticamente el muestreo estadístico de los valores de  $G_{V_{def}}$ , limitándose a la consideración e introducción de un número reducido de configuraciones relevantes de las vecindades de oxígeno, las que nombraremos configuraciones de oxígeno estándares (COE).

En base a todo el análisis anterior, el miembro derecho de la Ec.(3) puede ser expresado como:

$$(G_{def})_{i,j} = (1 - \gamma_\infty) \left[ (G_{ideal})_{i,j} + (G_{COE})_{i,j} \right], \quad (4)$$

donde  $(G_{ideal})_{i,j}$  incluye las contribuciones al TGCE provenientes de la región  $V'_{ideal}$  exterior a la región defectuosa de referencia. El segundo término  $(G_{COE})_{i,j}$  del miembro derecho en la Ec.(4) encierra la adición de las contribuciones provenientes de la subregión defectuosa de referencia, expresadas alternativamente mediante diferentes COE seleccionadas a tales efectos.

En el marco de esta aproximación, la aplicación directa de la Ec. (4) al cálculo del TGCE permite una substancial reducción y simplificación de los cálculos en comparación a la Ec. (3), dado que el término  $(G_{ideal})_{i,j}$  es calculado por separado para una EC ideal de referencia. Así, la presencia de diferentes configuraciones de defectos puntuales es contemplada solo mediante el tér-

mino  $(G_{COE})_{i,j}$ . Por tanto, según la Ec. (4), para un tipo de EC dada del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  dopado con  $^{57}\text{Fe}$ , las variaciones de las componentes del TGCE van a depender solo de los cambios que se presenten en las componentes de  $(G_{COE})_{i,j}$ , motivado esto fundamentalmente por las diferencias en la cuantía y la distribución espacial de los aniones de oxígeno asociados a cada COE. Este hecho justifica la aplicación de la aproximación de distribuciones multipolares puntuales de carga para calcular las componentes de  $(G_{COE})_{i,j}$ , dado que este método permite reflejar de manera adecuada los cambios globales que se operan en las distribuciones de cargas eléctricas que caracterizan cada COE.

Limitando la consideración anterior al caso de la aproximación de cargas puntuales<sup>5, 6</sup>, las contribuciones  $G_{ideal}$  y  $G_{COE}$  al TGCE en los sitios que ocupa el  $^{57}\text{Fe}$  son calculadas mediante la siguiente ecuación:

$$(G_{ideal/COE})_{ij} = \sum_{\beta} \frac{q_{\beta}}{4\pi\epsilon_0 R_{\beta}^3} [\delta_{ij} - 3\cos\alpha_i \cos\alpha_j] \quad (5)$$

donde  $q_{\beta}$  es la carga eléctrica del  $\beta$ -ésimo ión en cada región, ubicado a una distancia  $R_{\beta}$  del origen,  $\cos\alpha_i$  son los cósenos directores.

El TGCE es descrito completamente a través de dos parámetros independientes,  $G_{ZZ}$  y el parámetro de asimetría  $\eta$ , el cual se define tomando como convenio que  $|G_{ZZ}| > |G_{YY}| > |G_{XX}|$ , de la siguiente forma<sup>5</sup>:

$$\eta = \frac{G_{YY} - G_{XX}}{G_{ZZ}} \quad (6)$$

Los cálculos se realizaron siguiendo las siguientes premisas. Primeramente, los datos cristalográficos del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  disponibles<sup>1-3</sup> contemplan niveles de dopaje superiores a los aquí considerados, para los que la EC es tetragonal. Por esta razón se decidió realizar los cálculos del TGCE de la EC ideal deformada de acuerdo con la Ec.(5), partiendo de los datos de la EC del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  encontrados en la literatura<sup>4,5</sup>, considerándose los casos  $x=0$  (ortorrómbica con  $a=3.821\text{\AA}$ ,  $b=3.885\text{\AA}$ ,  $c=11.676\text{\AA}$ ) y  $x=1$  (tetragonal con  $a=b=3.869\text{\AA}$ ,  $c=11.723\text{\AA}$ ). Estos cálculos fueron hechos con un orden de precisión de al menos  $10^{-6}$  considerando la contribución de los átomos ubicados dentro de una esfera de radio  $R \approx 380\text{\AA}$ .

Los valores de las cargas eléctricas de los iones en la EC del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  fueron tomados asumiendo las asignaciones  $\text{Y}^{3+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{O}^{2-}$ ; y para los iones de cobre se consideraron diferentes alternativas en dependencia del tipo de EC ideal y del sitio cristalográfico considerado, tal como se muestra en la Tabla I.

Como se puede apreciar en la Tabla I se tomó una distribución de cargas para el caso de la EC tetragonal y dos para la ortorrómbica, en las dos primeras se asumieron

sus valores nominales mayormente reportados<sup>3,5</sup>. En el caso de la ortorrómbica II se consideró además que en el sitio Cu(2) se pueden producir fluctuaciones temporales del estado de carga eléctrica  $q$  de los iones Cu(2)<sup>q+</sup> entre los valores de  $+2e$  y  $+3e$  asociados al proceso de la conducción de carga eléctrica que se observa en esta fase; tomándose para los cálculos una carga promedio de  $+2.5e$ . Esta situación podría corresponder, hipotéticamente, a un proceso de conductividad eléctrica debido a saltos electrónicos rápidos que podrían establecerse entre los iones Cu(2)<sup>q+</sup>, producto de los cuales estos en promedio se encontrarían en sitios equivalentes desde el punto de vista cristalográfico. Como un antecedente importante de este tipo de comportamiento, aunque no ha podido ser confirmado en el caso del YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>, se ha tomado como referencia el comportamiento análogo observado y bien establecido por medio de la Espectroscopía Mössbauer del Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>.<sup>10</sup>

Como el trabajo se ha dirigido a realizar una descripción cualitativa de los valores de  $\Delta E_q$  observados en el <sup>57</sup>Fe mediante la Espectroscopía Mössbauer en muestras de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>7-x</sub>, los cálculos del TGCE fueron realizados solo con respecto a los sitios cristalinos que son ocupados por el <sup>57</sup>Fe, considerándose tanto el Cu(1) como el Cu(2).

Para poder evaluar de una manera sencilla la posible incidencia sobre el TGCE del desorden estructural en los aniones de oxígeno situados en la vecindad a la posición que ocupa el <sup>57</sup>Fe, el término  $(G_{COE})_{i,j}$  se ha limitado *a priori* solo a la primera esfera de coordinación de aniones de oxígeno que rodea a los sitios del Cu que han sido substituidos por el <sup>57</sup>Fe, y ubicados éstos, en primera aproximación, en una matriz de puntos con simetría y sitios disponibles idéntica a la fase cristalina en consideración. Para ello, se han tenido en cuenta reportes experimentales previos<sup>3</sup>, incluyéndose cúmulos sobredopados de oxígeno. Estos últimos presentan una significación particular en la discusión que sigue, dado que su presencia es consistente con una presumida tendencia a la formación de una simetría local octaédrica en la vecindad del sitio Cu(1) dopado con Fe<sup>3+</sup>.

En la figura 1 se muestran las COE estudiadas, representando COE. 5a, COE. 5b y COE. 6 los cúmulos enriquecidos en oxígeno. En general por COE. N $\alpha$  se designará un COE con un número de coordinación N de oxígeno y una orientación cristalográfica “ $\alpha$ ” de estos.

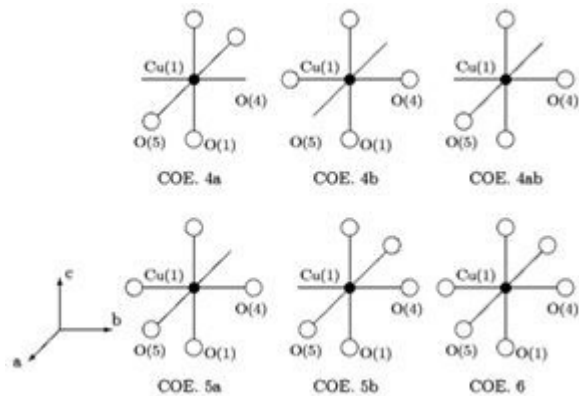
Finalmente, el cálculo del  $\Delta E_q$  referido al <sup>57</sup>Fe en el nivel nuclear de  $I=3/2$  fue realizado mediante la expresión<sup>5,10</sup>:

$$\Delta E_q = \frac{1}{2} e G_{ZZ} Q \left( 1 + \frac{1}{3} \eta^2 \right)^{1/2} \quad (7)$$

donde  $e$  es la carga del electrón,  $Q$  es el momento cuadrupolar nuclear del <sup>57</sup>Fe, cuyo valor aceptado actualmente es de  $0.16 b$ .<sup>11</sup>

### 3 Resultados y discusión

**3.1 Análisis de los resultados para las estructuras ideales.** En la Tabla II se muestran los resultados del TGCE calculados para las EC ideales tetragonal y ortorrómbicas estudiadas. Se muestran también, a manera de referencia, los valores de  $\Delta E_q$  calculados con anterioridad según el modelo de las cargas puntuales.<sup>5</sup>



**Figura 1:** Cúmulos (COE) de oxígeno en la vecindad del sitio Cu(1) ocupado por el Fe considerados en los cálculos.

**Tabla I**

Valores de las cargas eléctricas consideradas en las EC ideales tetragonales y ortorrómbicas del YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>

Sitios Cristalinos	Cargas eléctricas[e] <sup>a</sup> de las EC		
	tetragonal	ortorrómbica I	ortorrómbica II
Cu(1)	+1e	+3e	+2e
Cu(2)	+2e	+2e	+2.5e

<sup>a</sup>e=1.602\*10<sup>-19</sup> C (carga eléctrica del electrón).

**Tabla II**

Valores del TGCE ( $G_{ZZ}^{ideal}$  (10<sup>21</sup> V/m<sup>2</sup>) y  $\eta$ ) y del  $\Delta E_q$  (mm/s) de las EC ideales (1) ortorrómbica I, (2) ortorrómbica II y (3) tetragonal.

Estructura	Parámetro	Cu(1)	Cu(2)	Cu(1) <sup>4</sup>	Cu(2) <sup>4</sup>
(1)	$G_{ZZ}^{ideal}$	1.628	1,074	1.678	1.009
	$\eta$	0.301	0,111	0.397	0.123
	$\Delta E_q$	2,784	1,814	3.650	2.150
(2)	$G_{ZZ}^{ideal}$	1.511	0.924	-	-
	$\eta$	0.101	0,125	-	-
	$\Delta E_q$	2,551	1,557	-	-
(3)	$G_{ZZ}^{ideal}$	-1.879	1,060	-2.007	1.057
	$\eta$	0.0	0,0	0.0	0.0
	$\Delta E_q$	3,166	1,786	3.850	2.100

<sup>4</sup>Reportado en [5].

En lo que sigue, y para facilitar la comparación de los resultados aquí obtenidos, con los reportados por otros autores, se ha seguido la nomenclatura tomada por Bool-

chand *et al.*<sup>3</sup> para designar los dobletes observados experimentalmente. Conforme a [3], los EM pueden ser deconvolucionados en cuatro dobletes principales denotados como: A( $\Delta E_q = 1.97$  mm/s), B( $\Delta E_q = 0.40$  mm/s), C( $\Delta E_q = 1.10$  mm/s) y D( $\Delta E_q = 1.60$  mm/s); además de dos dobletes que son de muy baja intensidad, el B'( $\Delta E_q = 0.78$  mm/s) y el E( $\Delta E_q < 0.2$  mm/s).

En la Tabla II no se aprecian variaciones significativas en los valores de TGCE para las diferentes EC estudiadas en comparación con los resultados reportados con anterioridad de estudios similares.<sup>5</sup>

Los valores de  $\Delta E_q$  aquí calculados son ligeramente inferiores ya que los reportados fueron calculados para  $Q=0.2$  b. Sin embargo, se observa que los valores de  $\Delta E_q$  obtenidos para el sitio Cu(1) se encuentran muy distantes de cualquiera de las líneas reportadas experimentalmente. Por otro lado, los valores obtenidos para el sitio del Cu(2) son cercanos solamente a los valores de los dobletes experimentales A y D; no concordando esta asignación con la que se reporta en la literatura.<sup>1-3</sup>

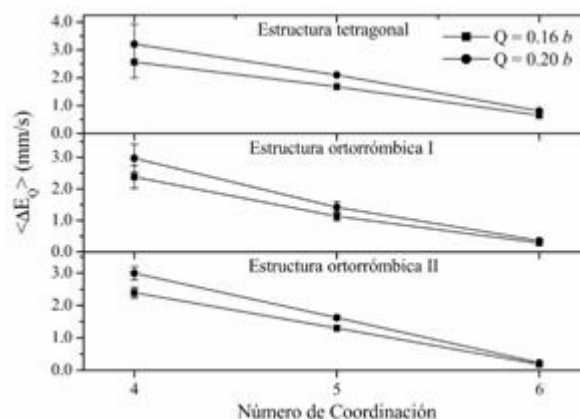
Los resultados obtenidos en la estructura ideal indican claramente que, siendo el sitio Cu(1) el que preferentemente es sustituido por el hierro para bajas concentraciones de este dopante, la configuración ideales de los aniones de oxígeno en el entorno más cercano dista grandemente de la correspondiente cuando el Cu es sustituido por el Fe. Por otro lado, la similitud observada entre el valor obtenido aquí para el sitio Cu(2) con los dobletes A y D, podrían estar mostrando que estas componentes de los EM del  $^{57}\text{Fe}$  se relacionarían presumiblemente con cúmulos centrados en el sitio Cu(1) sustituido por el  $^{57}\text{Fe}$  que posee coordinaciones con un número mayor de aniones de oxígeno que la correspondiente a la estructura ortorrómbica ideal, caso típico de la estructura tetragonal del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  dopado con Fe.<sup>1,2</sup>

**3.2 Valores de  $\Delta E_q$  calculados en la aproximación de las COE.** Partiendo de la suposición anterior, se consideró primeramente la influencia de la sustitución de los iones de Cu por los de Fe en el sitio Cu(1), teniendo en cuenta para ello los diferentes cúmulos de oxígenos que comprenden las COE introducidas anteriormente en la Figura 1.

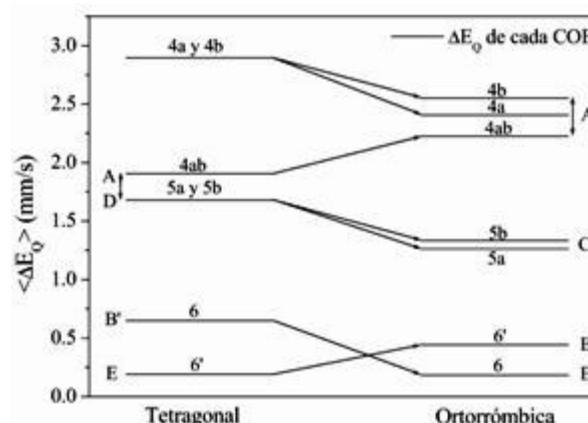
En segundo lugar, al tener en cuenta las características de los EM y la clasificación de los dobletes<sup>3</sup>, se consideró que el  $^{57}\text{Fe}$  podría estar eventualmente también ubicado en el sitio cristalino del Cu(2) con dos configuraciones. La primera en forma de pirámide recta, (estructura ideal, caso analizado en la Tabla II y que será designada como COE. 5'c) y la segunda formando una configuración casi octaédrica por la presencia de un átomo de oxígeno extra en la posición  $(0,0, \frac{1}{2})$ . Esta última configuración se ha referido como COE. 6' por su similitud con la del COE. 6 que presenta el sitio Cu(1).

Antes de pasar a exponer y discutir los resultados obtenidos, es necesario establecer el significado físico de las magnitudes aquí calculadas. Debe tenerse presente que para cada una de las COE estudiadas, existe una dis-

persión de valores del TGCE, situándose los  $\Delta E_q$  calculados en una posición cercana a sus valores máximos. Esto está dado por el elevado peso relativo de la contribución del término  $(G_{COE})_{i,j}$  en el valor del TGCE total calculado. Este puede resultar ser mayor del 50%, mientras que la contribución individual de un defecto situado a partir de la segunda esfera de coordinación no rebasa el 10% del valor total. En segundo lugar, estas contribuciones más distantes del punto de referencia presentan valores cada vez menores en la medida que se encuentran más alejadas y con una frecuencia de ocurrir mayor. La combinación de estos dos factores condicionan, que la ocurrencia de desorden en la segunda y tercera esfera de coordinación se manifieste solo en la magnitud y forma de la dispersión de los  $\Delta E_q$  alrededor de un valor cercano al aquí determinado y que está condicionado directamente por el desorden en la vecindad más cercana.



**Figura 2:** Dependencia de los valores medios y la dispersión del  $\Delta E_q$  con el número de aniones de oxígeno en la primera esfera de coordinación para el sitio Cu(1) en el  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ .



**Figura 3:** Evolución de los valores del  $\Delta E_q$  con los cambios de simetría y del contenido de oxígeno en las muestras de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  en relación con valores experimentales.

La figura. 2 muestra claramente que existe una correlación prácticamente lineal entre los valores medios calculados de  $\Delta E_q$  con la cantidad de oxígeno presentes en

los cúmulos, con una manifiesta tendencia a disminuir su valor en la medida que dicha cantidad aumenta. En las dos configuraciones de cargas estudiadas para la fase ortorrómbica (FO) se observa que los valores promedios de  $\Delta E_q$  son muy cercanos y presentan un comportamiento con el grado de coordinación muy similar; por lo que en lo adelante se hará referencia solo a una de ellas (ortorrómbica I). Se aprecia también que los valores medios de  $\Delta E_q$  para la coordinación  $N=4$  coinciden parcialmente con el valor experimental del doblete A. Por otro lado, las COE con  $N=5$  y 6 presentan valores de  $\Delta E_q$  cercanos a los reportados en los EM.

Dado que el rango de variación de los valores medios de  $\Delta E_q$  con  $N$  cubre bien el correspondiente al de los experimentales, una asignación de estos últimos en función, primero, del número de coordinación y finalmente en base a la distribución espacial de los aniones de oxígeno en la aproximación de las COE, es posible, como se muestra en la figura 3. Con ello se logra dar una explicación consistente y coherente a la evolución que sufren los EM al pasar de la fase tetragonal (FT) deficiente en oxígeno a la ortorrómbica como se expondrá más abajo.

En general, los  $\Delta E_q$  para la FT son superiores a los correspondientes a las ortorrómbicas. Esto podría estar motivado por el hecho de que las distancias  $R_b$  de los aniones de oxígeno de las COE.  $N\alpha$  podrían resultar ser mayores a las aquí aplicadas, dado que la FT no posee aniones de oxígeno ubicados en el plano basal de su estructura y los estudios por Difracción de Rayos X muestran claramente que la adición de oxígeno provoca un aumento de  $R_b$  en la dirección cristalográfica (0,1,0) donde preferentemente estos se sitúan.

Se puede observar también en la figura 3, que los valores de  $\Delta E_q$  para el número de coordinación 4 presentan una dispersión mucho mayor en la FT que en FO. Las COE.  $4\alpha$  y  $5\alpha$  presentan una degeneración parcial para  $\alpha = a, b$  debido a la equivalencia de ambas configuraciones para la simetría tetragonal. Sin embargo, como se aprecia en la figura 3, la dispersión en las COE.  $4\alpha$  es mayor que las que estas configuraciones presentan en las estructuras ortorrómbicas, para la cual esta degeneración parcial se rompe. Esto está asociado al hecho de que la estructura tetragonal presenta una simetría superior a las ortorrómbicas; siendo mucho más sensible el resultado final a las variaciones de la orientación y disposición espacial de los cúmulos de oxígeno.

Conforme a la figura 3, la ruptura de la degeneración en los subniveles energéticos de las COE al pasar de la simetría tetragonal a la ortorrómbica influye en las diferencias observadas en los EM entre la FT y la FO. En adición a lo ya observado para las COE.  $4\alpha$ , este comportamiento adquiere una significación especial para las COE.  $5\alpha$ , ya que puede dar lugar a la aparición de una nueva línea (C) en el EM de esta muestra en la FO. Además esta correspondencia entre las COE  $4\alpha$  y  $5\alpha$  con los dobletes A y C concuerda con el comportamiento ob-

servado experimentalmente en las muestras sinterizadas a alta presión<sup>1,2</sup>; donde ocurre la total extinción del doblete A y se refuerza el C, poniendo en evidencia que con el aumento del contenido de oxígeno observado en estas muestras son predominantes los sitios de coordinación 5 con respecto a los de coordinación 4.

## 4 Conclusiones

La descripción del desorden en el plano basal de la EC del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  mediante la aproximación de las COE ha permitido estudiar de la influencia en los EM del desorden local existente en el plano basal de la estructura del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$ . Este concepto, unido a la forma particular en que se aplicó la aproximación de cargas puntuales, permitió simplificar los cálculos de  $\Delta E_q$  en cuanto a las fluctuaciones en la orientación espacial de las posiciones atómicas situadas en la vecindad de la posición que ocupan los isótopos del  $^{57}\text{Fe}$ .

Una nueva interpretación estructural más refinada de los EM del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  referida a diferentes cúmulos de aniones de oxígeno en el entorno más cercano al sitio que ocupa el  $^{57}\text{Fe}$ , es posible. En contraste con la forma en que habitualmente se aplica la clasificación de Boolchand *et al.*<sup>3</sup>, la correspondencia entre las líneas de las contribuciones principales observadas en los EM del  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-y}\text{Fe}_y\text{O}_{7-x}$  y las COE estudiadas, es múltiple y dependiente también del tipo de estructura cristalina.

Sobre esta base, fenómenos espectroscópicos conocidos como son la ocurrencia de solapamiento, de ruptura de la degeneración y la aparición de nuevas líneas en los EM debido al cambio de simetría de la EC y su influencia en los COE al aumentar el contenido de oxígeno en las muestras se pueden hacer corresponder con los hechos reportados experimentalmente, incluidos los reportados recientemente para la FT rica en oxígeno.<sup>1,2</sup>

## Agradecimientos

El presente estudio ha sido financiado por la Agencia de Energía Nuclear y Tecnologías de Avanzada del Ministerio de Ciencia Tecnología y Medio Ambiente de Cuba mediante el proyecto PRN/7-2/9.

## Referencias

1. Y. H. Liu, G. C. Che, K. Q. Li, and Z. X. Zhao, "Superconductivity and Mössbauer effect of  $\text{Fe}_x\text{Cu}_{1-x}\text{Ba}_2\text{YCu}_2\text{O}_{7-x}$  superconductors synthesized by high pressure", *Phys. Rev. B* 71, 104503 (2005).
2. Y. H. Liu, G. C. Che, K. Q. Li, Z. X. Zhao, Z. Q. Kou, N. L. Di, and Z. H. Cheng, "The influence of local structure on superconductivity in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ba}_2\text{YCu}_2\text{O}_{7.41}$ ", *Physica C* 418(1-2), 63 (2005).
3. P. Boolchand and D. McDaniel, "Progress in Mössbauer Spectroscopy of High-Temperature Superconductors", *Hyperfine Interactions* 72, 125 (1992).
4. A. Santoro, *Chemistry of Superconductor Materials*

(Noyes Publications, USA, 1991).

5. I. S. Lyubutin, V. G. Terziev, T. V. Dmitrieva, and V. P. Gor'kov, "Lattice Sum Calculation and Electric Field Gradients for Orthorhombic and Tetragonal Phases of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ", *Phys. Lett. A* 137(3), 144 (1989).

6. Z. M. Stadnik, "Electric Field Gradient Calculations in Rare-Earth Iron Garnets", *J. Phys. Chem. Solids* 45(3), 311 (1984).

7. B. I. Belevtsev, I. Volchok, N. D. Dalakova, V. I. Dot-senko, L. G. Ivanchenko, A. V. Kuznichenko, and I. I. Lagvi-nov, "Effect of  $\gamma$ -irradiation on superconductivity in polycrys-talline  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ ", *Phys. Stat. Sol. (a)* 181, 437 (2000).

8. I. Pinera, C. M. Cruz, Y. Abreu, and A. Leyva, "De-termination of Atomic Displacements Distribution on YBCO superconductor induced by Gamma Radiation", *Phys. Stat. Sol. (a)* 204, 2279 (2007).

9. A. Saul and M. Weissmann, "Calculation of nuclear quadrupole splitting in high-Tc superconductors", *Phys. Rev. B* 42, 4196 (1990).

10. D. Barb, *Gundlagen and Inwendenger der Mössbauer-spektroskopie* (Akademie-Verlag; Berlin, 1980).

11. P. Dufek, P. Blaha, and K. Schwarz, "Determination of the Nuclear Quadrupole Moment of  $^{57}\text{Fe}$ ", *Phys. Rev. Lett.* 75, 3545 (1995).



## Una experiencia en la elaboración de los trabajos de laboratorio “circuitos RC y RL” con equipos docentes de la R.P.Ch.

Santiago García Dally, Félix Martínez Oliva<sup>†</sup> y Mercedes Navarro Fernández.

Departamento de Física Aplicada, Facultad de Física, Universidad de la Habana, fmartinez@fisica.uh.cu

<sup>†</sup> autor para la correspondencia

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 12/10/2009.

**Sumario.** Gracias a los esfuerzos del Ministerio de Educación Superior (MES), las diferentes universidades de nuestro país han incrementado el número de equipos de laboratorio relacionados con la disciplina Física General adquiridos en la Republica Popular China. Dada su diversidad y ventaja de comunicación con un equipo de cómputo a través de una interfaz, amplían las posibilidades de creatividad de los docentes para su posterior empleo en la docencia, ya sea sustituyendo prácticas de laboratorio ya establecidas en los programas de las asignaturas, o como nuevas prácticas que anteriormente no se realizaban. En el presente trabajo se describen las prácticas de laboratorio correspondientes a los circuitos RC y RL elaboradas por los autores empleando los equipos antes mencionados, así como sus experiencias tanto en el montaje como en su inserción en el proceso docente. Se describen las prácticas montadas y se evalúan los resultados obtenidos.

**Abstract.** Thanks to the efforts of the Cuban Ministry of Higher Education (M.E.S), the different universities of our country have increased the laboratory equipment related with the discipline General Physics for different careers. The diversity of these equipment and their communication facilities by using a personal computer through a digital interface, enlarge the possibilities of the professors' creativity for their later use in laboratory classes, either substituting laboratory works already settled down in the programs or as new practices that previously were not carried out in courses. Present work describes the laboratory tasks corresponding to the functioning of RL and RC circuits connected to a DC source, prepared by the authors using the equipment before mentioned as well as its experiences in the preparation of the practice and in the insertion as laboratory practice.

**Palabras clave.** Laboratorios de física (01.50.Pa), Mediciones eléctricas (84.37.+q), procesamiento de datos (07.05.Kf)

### 1 Introducción

Dentro del conjunto de aplicaciones de las TICs (Tecnologías de la Informática y las Comunicaciones), en la enseñanza de la Física, se encuentra su empleo en los laboratorios docentes mediante la incorporación de dispositivos automatizados para la recogida y elaboración de datos experimentales que son introducidos en una computadora.

Las prácticas de laboratorio controladas mediante una computadora responden a una tecnología cuyo aprove-

chamiento en el proceso de enseñanza-aprendizaje resulta muy conveniente tal como se refleja en diferentes artículos relacionados con el tema<sup>1,2,3</sup> y que a nuestro juicio se pueden resumir en los siguientes aspectos:

- La calidad de las mediciones resulta de esta forma superior respecto de las tradicionales.
- Se logra mayor rapidez, facilidad, cantidad y seguridad en la adquisición de datos experimentales.
- Se logra registrar en un tiempo mínimo tablas de valores y gráficos, para su valoración posterior.

- Es posible conservar en soporte digital los registros experimentales. Esto viabiliza la comunicación y comprobación de los resultados.
- Se amplían las posibilidades de alcanzar una mayor motivación de los alumnos.

Estos señalamientos y el hecho de que al ejecutar esta práctica con la computadora, el estudiante se puede concentrar en el análisis de la Física del problema<sup>4</sup>, sin distraerse por tener que utilizar equipos que tienen elementos que distraen su atención y no son de interés en el trabajo concreto a realizar, hacen más útil y deseable el empleo de estos equipos para la realización de este tipo de prácticas en el Laboratorio de Electromagnetismo.

## 2 Aspectos tomados en cuenta en el diseño de las prácticas

A partir de los argumentos dados anteriormente y las ventajas que puede tener la forma tradicional de realizar estas prácticas, al diseñar el trabajo que deben desarrollar los estudiantes, se tuvieron en cuenta varios criterios que influyen en la duración de la práctica, los objetivos que se le señalan a ellas y la forma en que se escribió el documento teórico-práctico que recibe el estudiante para prepararse y ejecutar la práctica. Estos fueron:

- Que la estructura y contenido den cumplimiento a los objetivos planteados en los planes de estudio D para las diferentes especialidades.
- Que combinen aspectos de la práctica tradicional con la automatizada para que el alumno adquiriera una noción clara de las magnitudes medidas y una capacitación básica en la manipulación de instrumentos tradicionales de laboratorio
- Aprovechar la rapidez de la adquisición de datos para realizar nuevas acciones que conlleven una mayor complejidad y/o modificación de los parámetros medidos
- Que sea el alumno quien realice el montaje del circuito y manipule la computadora.
- Que se efectúen mediciones de los componentes (R, L y C) utilizados en los tableros mediante equipos de precisión.
- Proporcionar, a los docentes encargados de realizar las prácticas, un material en el que se contemplen los detalles técnicos y metodológicos de las mismas.
- Concebir las prácticas de forma tal que al concluir estas, el estudiante se encuentre con el informe de laboratorio prácticamente hecho y, por ende, tenga mayor tiempo disponible para la comprensión, análisis de los resultados obtenidos y posibilidades de análisis de las situaciones problemáticas que se le planteen.

El documento que recibe el estudiante como folleto de prácticas debe contener una breve introducción teórica del tema de la práctica, una explicación de lo que es necesario realizar en el laboratorio y las principales indicaciones operacionales del equipo a emplear y del software a usar para el manejo de los datos e indicaciones sobre el contenido del informe a presentar en la siguiente sesión de prácticas. Este documento elaborado no resulta ser la

simple traducción del material que traen los equipos adquiridos porque las concepciones de los dos documentos son diferentes.



**Figura 1.** Interfase y tablero de circuitos RC o RL empleados, acoplados a una PC con el software montado.

## 3 Práctica de laboratorio ‘circuito RC’

Para el desarrollo de la práctica se emplean los siguientes equipos

- Interfase experimental (HPCI -1 01) con su cable de conexión (HPCI-1 19)
- Circuito RLC (HPCI-1 07)
- Computadora en la que previamente se haya instalado el programa “CAE”
- Multímetro UT55

La práctica consta de 3 actividades o ejercicios.

1. Circuito RC formado por una resistencia y un capacitor.
2. Circuito RC formado por una resistencia y dos capacitores en serie
3. Circuito RC formado por una resistencia y dos capacitores en paralelo.

En la Figura 1 se muestra la vista general de la instalación usada. Para el trabajo se forman grupos pequeños de estudiantes, preferiblemente de no más de 3 alumnos por puesto de trabajo, con el fin de permitir la participación de todos los integrantes en la realización directa de la práctica. A los estudiantes se les suministra una guía para realizar la práctica, donde se les explican, además de las cosas ya enumeradas en el punto 2 de este trabajo, las diferentes tareas a realizar que incluyen.

- a. El montaje de los circuitos correspondientes a cada uno de los ejercicios mencionados anteriormente
- b. Medir las capacidades y resistencia eléctrica involucrada en cada actividad.
- c. El cálculo de las capacidades equivalentes que se emplearan en las actividades 2 y 3
- d. Medir el voltaje y el tiempo ( $\cong 25-30$  mediciones) en las curvas obtenidas en cada ejercicio.
- e. Realizar los cálculos teóricos de las constantes de tiempo para cada actividad y por cada método usado y descrito.
- f. Exportar los datos experimentales a un programa de análisis como el Origin y en la tabla de valores calcular la carga ( $q$ ) para cada instante de tiempo a través de

la expresión  $q = CV$  empleando en cada caso los valores de la  $C_{equivalente}$  calculados

g. Obtener la curva  $q$  vs  $t$  que mejor ajusta a los datos obtenidos determinando de la ecuación de ajuste el valor de la constante de tiempo (parámetros de ajuste). (Método 2)

h. Seleccionar en la tabla de valores cuál es  $q_{max}$  y calcular con él, el valor  $q = 0,63q_{max}$  seleccionando en la tabla el tiempo para el cual se alcanza este valor hallado y obtener, de esta forma, la constante de tiempo (Método 1)

i. Haciendo el cálculo de  $q/t$  para cada punto, hallar y graficar  $i$  versus  $t$ . El punto de inicio de ese gráfico da el valor que se pide posteriormente para  $i_o$  (Método 3)

j. Discusión de las diferencias encontradas entre los distintos métodos empleados en la práctica y entre los valores de las constantes de tiempo halladas mediante los métodos empleados en la práctica.

Es importante señalar que se determina la constante de tiempo por tres vías diferentes, que permiten discutir cuáles son las alternativas más precisas en esta determinación. De esas vías debemos puntualizar el modelo 3 que aprovecha la idea siguiente: La expresión de la cantidad de carga que almacena el condensador al cargarse es y su derivada da:

$$q(t) = \varepsilon C \left[ 1 - e^{-\frac{t}{\tau_{RC}}} \right] \Rightarrow \frac{dq}{dt} = i = \frac{\varepsilon C}{\tau_{RC}} e^{-\frac{t}{\tau_{RC}}}$$

Se halla el gráfico de  $i$  vs  $t$  y la corriente para el instante inicial es:

$$i_o = \frac{q_M}{\tau_{RC}} \Rightarrow \tau_{RC} = \frac{q_M}{i_o}$$

que nos da el valor de la constante de tiempo. El valor de  $q_M$  se halla de los datos procesados. Esta alternativa de determinación de la constante de tiempo no es usualmente estudiada en laboratorios tradicionales y es, en sí misma, novedosa. En todos los casos se determina la incertidumbre de este valor hallado y se comparan los mismos.

En la Figura 2 se muestran los resultados experimentales calculados y los ajustes realizados con Origin de los tres ejercicios planteados. Se observa que el número de puntos experimentales no es pequeño, lo que garantiza un buen resultado de las mediciones y magnitudes halladas.

Los resultados hallados se muestran en la tabla 1.

En el análisis de los resultados se usó que los valores de la capacidad y la resistencia tienen un 10% de error relativo. Los valores dan diferente y los modelos 1 y 3 son los más cercanos al valor nominal.

#### 4 Práctica de laboratorio ‘circuito RL’

Para el desarrollo de la práctica se emplean los siguientes equipos

- Interfase experimental (HPCI -1 01) con su cable de conexión (HPCI-1 19)
- Circuito RLC (HPCI-1 07)
- Computadora en la que previamente se haya instalado el programa “CAE”
- Multímetro UT55

Modelo	$\tau_{RC}$ (s)	$\Delta \tau_{RC}$ (s)	Observaciones
1	0.100	0.020	Se halla del gráfico de $q$ vs $t$ en la PC
2	0.113	0.002	Se halla del ajuste exponencial
3	0.104	0.036	Se halla de la curva de $i$ vs $t$

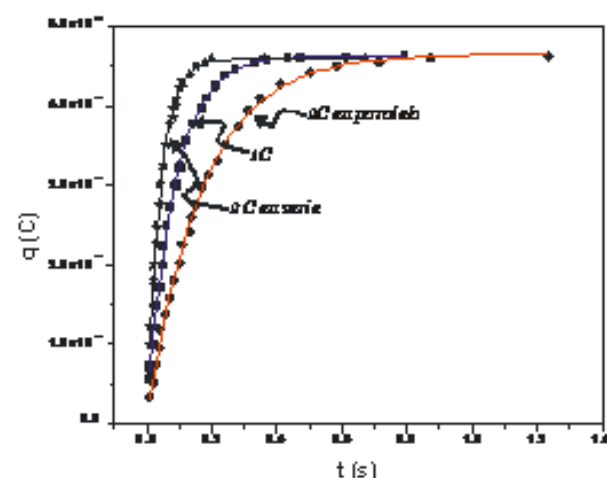


Figura 2. Resultados experimentales obtenidos por los estudiantes en una sesión de trabajo.

La práctica consta de 2 actividades o ejercicios

1. Circuito RL considerando todo el inductor.
2. Circuito RL considerando la mitad del inductor.

Al igual que para la práctica RC, aquí se forman grupos pequeños de estudiantes por puesto de trabajo, con el fin de permitir la participación de todos los integrantes en el trabajo experimental. A los estudiantes se les suministra una guía donde se les explica el fundamento teórico y se les proponen las diferentes tareas a realizar que incluyen.

- 1) Montaje de los circuitos correspondientes a cada uno de los ejercicios
- 2) Medir la resistencia eléctrica involucrada en cada actividad.
- 3) Mediciones de voltaje y tiempo en las curvas obtenidas en cada ejercicio
- 4) Realizar los cálculos teóricos de las constantes de tiempo para cada ejercicio.
- 5) Exportar los datos experimentales al Origin y en la tabla de valores calcular la intensidad de la corriente  $i$  para cada instante de tiempo a través de la ley de Ohm.

6) Obtener la curva  $i$  vs  $t$  que mejor ajusta a los datos obtenidos en cada ejercicio, determinando de la misma el valor experimental de la constante de tiempo.

7) De la tabla de valores hallar en cada caso el valor de  $i = 0,63i_{m\acute{a}x}$  y en ella seleccionar el tiempo en que se alcanza este valor, que es la constante de tiempo.

8) Discutir las diferencias encontradas en los valores de las constantes de tiempo halladas mediante los dos métodos empleados en la práctica.

9) Determinar la inductancia  $L$  empleada en cada actividad práctica a partir de los valores de las constantes de tiempo determinadas.

En la Figura 3 se observa una vista del puesto de trabajo y en la 4 se muestra la curva de voltaje versus tiempo en el circuito RL planteado en la práctica. El comentario de la cantidad de puntos hallados es aquí válido también.

## 4 Perfeccionamiento del trabajo

Con el fin de obtener información acerca de las deficiencias y dificultades que pudieran presentar los materiales elaborados para estas dos prácticas, así como la ejecución de las actividades a realizar, en los dos semestres del presente curso escolar, se seleccionaron al azar tres estudiantes en cada semestre, a los que se les incluyeron estas dos prácticas dentro del conjunto de trabajos de laboratorio a realizar.

Los resultados alcanzados fueron muy positivos ya que a partir de las deficiencias observadas durante la manipulación de los equipos y de los criterios vertidos por los estudiantes se pudo:

- Enmendar la redacción de los materiales que se les entregaron a los estudiantes.
- Constatar que las actividades programadas en cada práctica se ajustan al tiempo establecido.
- Establecer que existen deficiencias al trabajar con el programa Origin, lo que motivó la elaboración de un material adicional para orientar mejor el procesamiento de los datos obtenidos.
- Obtener mejores resultados en la discusión de los informes de laboratorio presentados.
- Desarrollar y evaluar un multimedia de Power Point donde se les muestran fotos de resistencia y capacitores similares a los empleados en la práctica, se les indican las páginas del texto que deben estudiar y se les incluyen animaciones Flash que simulan acciones que deben desarrollar durante la práctica

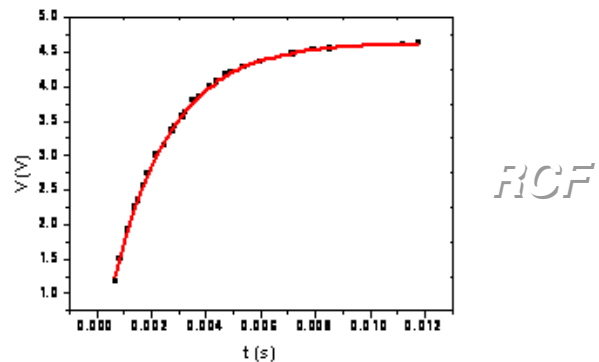
## 6 Conclusiones

Se han incorporado a los Laboratorios Docentes de nuestro Departamento, dos nuevas prácticas automatizadas, a partir del equipamiento adquirido recientemente. En ellas, se combina la actividad experimental con la simulación y el uso de programas de ajuste, con lo cual se favorece el cumplimiento de algunos de los objetivos planteados en los nuevos planes de estudio de la Disciplina

Física General. Hemos discutido aquí los resultados alcanzados con ellas y hemos constatado sus ventajas.



**Figura 3.** Estudiantes realizando el montaje y preparación de la práctica



**Figura 4.** Resultado experimental obtenido por los estudiantes en la sesión de trabajo.

## Referencias

- H. A. Kofman, E. J. Tozzi, P. A. Lucero, IE04- Experimentación y Simulación con circuitos RC, RL y RLC, 6° Jornadas de Informática Educativa, UNL Santa Fe, Argentina, (2001).
- F.J. Marcos, E.R.Bouchet, O.E.DiLissa, C.E.Freyre, D.E.Martinez, D.M. Berman, Modelización Computarizada De Sistemas Físicos. Su Incidencia En El Proceso Educativo, Ciencia, Docencia y Tecnología, Vol XVI # 030, PP 157-178, Universidad Nacional Entre Ríos, Argentina, (2005)
- R. A. C. González, El Desarrollo De La Actividad Experimental En Física General y El Uso De Las Tics En Las Prácticas De Laboratorio., Revista Pedagogía Universitaria Vol. XII No. 5 (2007 )
- C A. A. Alfonso, J. A. Mederos y V. M. Marcelo, El Laboratorio de Física desde su PC, Revista Iberoamericana de Educación ISSN 1681-5653, (2003)
- U-star Sensor Technology Co, L., 2004. Computer Aided Physics Laboratory. Experiment manual. v 4.0. HPCI-1. única ed, M.d.E.o.d. China. Vol. único., Shangai: Ministerio de Educación de China. 135.

## Vinculación de las asignaturas de física y diseño a través el desarrollo de productos

A. Berzaín, S. Díaz<sup>a</sup>

Departamento de Diseño Industrial, Instituto Superior de Diseño (ISDi), Cuba; antoniob@isdi.co.cu,

a) Estudiante de la carrera de Diseño Industrial, Instituto Superior de Diseño.

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 15/07/2009.

**Sumario.** Como un ejemplo de la vinculación de las asignaturas de Física y Diseño en el ISDi, se desarrolló un proyecto de diseño de productos utilitarios, lúdicos u ornamentales, para colocar sobre una superficie horizontal y que manifestasen efectos como desequilibrio, levitación o movimiento perpetuo.

**Abstract.** As an example of the entailment of the subjects of Physics and Design in the ISDi, was developed a project of utilitarian, playful or ornamentals product design, to place on a horizontal surface and that showed effects like imbalance, levitation or perpetual movement.

**Palabras clave.** Physics education, 01.40.-d, educational aids, 01.50.-I, teaching methods, 01.40.gb, audio and visual aids, 01.50.F-

### 1 Introducción

Aunque de alguna manera todos los productos basan su funcionamiento en principios físicos, en algunos objetos esta relación puede ser mucho más evidente y espectacular, por lo que resultan extremadamente interesantes y atractivos<sup>1</sup>.

Efectos como el desequilibrio y el movimiento perpetuo (aparentes, por supuesto) o la levitación son sumamente llamativos a las personas, despertando la curiosidad y en no pocos casos el deseo de indagar el por qué.

Algunos de de estos artilugios en un inicio eran equipos utilizados en los laboratorios de Física para demostraciones experimentales que tras un rediseño se comercializan y hoy aparecen en casas y oficinas, como es el caso de las bolas de Newton<sup>2</sup> y el radiómetro<sup>3</sup>.

Una clase importante de estos objetos son los llamados juguetes científicos que poseen un tono esencialmente lúdico<sup>4,5</sup> como el caso del patico bebedor

que se muestra en la figura 1.



**Figura 1.** Patico bebedor, un ejemplo de un producto lleno de física y que aparentemente es un móvil perpetuo.

Siguiendo estas ideas, como parte de la vinculación de

las asignaturas de Física y Diseño en la carrera de Diseño Industrial en el ISDi, se desarrolló un proyecto a cargo de un estudiante en su práctica laboral, relativo al diseño de productos utilitarios, lúdicos u ornamentales, para colocar sobre una superficie horizontal y que expresen de alguna manera desequilibrio, levitación o movimiento perpetuo.

Como resultado del proyecto se diseñaron y construyeron los respectivos prototipos con las características ya mencionadas, para lo cual fue necesario profundizar por parte del alumno en los principios de la Mecánica y el Electromagnetismo, así como en las diferentes etapas del proceso de diseño<sup>6</sup>.

## 2 Física de los productos

La asignatura Física de los Productos se imparte en el primer semestre del tercer año de la carrera de Diseño Industrial con el objetivo general de brindar al futuro diseñador los principios y conceptos de la Física que le permitan comprender el funcionamiento de determinados productos<sup>7</sup>.

Coincide con el semestre de la asignatura Diseño dedicada al desarrollo de productos por lo que se precisa una estrecha relación horizontal.

Un ejemplo de vinculación ha sido el proyecto realizado por un estudiante durante su práctica laboral del curso 2007 – 2008.

## 3 El proyecto

Ya en años anteriores se habían hechos algunos proyectos realizados por estudiantes de objetos de este tipo, como posible oferta a empresarios para ser colocados sobre sus mesas de trabajo, toda vez que estos productos despiertan la comunicación y transmiten inteligencia y buen gusto de parte de quien los posee. Sin embargo estos proyectos no fueron ejecutados.

Con esta experiencia previa y tras una fase de investigación bibliográfica, se planteó el problema de diseño en los siguientes términos: el diseño y construcción de objetos en los que los principios de funcionamiento físicos se evidencie de forma interesante y atractiva, pudiendo ser utilitarios, lúdicos u ornamentales, para colocar sobre una superficie horizontal y que manifiesten efectos como desequilibrio, levitación o movimiento perpetuo.

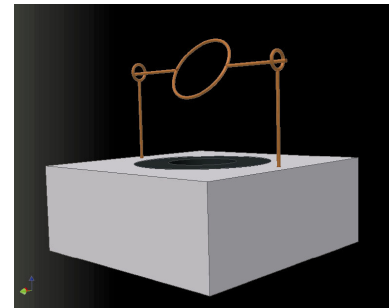
Los materiales para la realización serían en lo posible materiales reutilizados y de bajo presupuesto. La tecnología sería la disponible en los talleres de madera y metales del ISDi.

## 4 Resultados

Como resultado se diseñaron y construyeron los respectivos prototipos de los proyectos, apoyados en los principios de la Mecánica y el Electromagnetismo.

Un producto fue un motor eléctrico que formalmente es en extremo sintético, a base de pilas AA. Se estudió la

posibilidad de alimentarlo mediante una conexión USB y así dar la facilidad de colocarlo junto a una computadora y aprovechar el contraste entre ambos, pero finalmente esto no fue posible. El diseño puede observarse en la figura 2.



**Figura 2.** Diseño de un motor eléctrico que funciona con pilas AA.



**Figura 3.** Réplica del famoso huevo de Colón. Como quiera que se coloque este huevo terminará colocado en la posición que se muestra.

Siguiendo el mismo principio del conocido dominuguín o tentempié, se realizó un pisapapel que semeja una réplica del famoso huevo de Colón, que aunque sea colocado en cualquier posición, termina apoyado por la punta. Aquí se aprovecha la idea prefijada de las personas de lo difícil que resulta colocar un huevo real de esa manera, de ahí la aceptación entre aquellos que han podido apreciarlo.

También se confeccionó el producto que aparece en la figura 4, en que un bloque de madera flota en el aire sujetado a la base por una fina cuerda de nylon. Se trata de dos imanes dentro de la madera y enfrentados por sus polos opuestos. El hecho de estar ocultos dentro de un material sin propiedades magnéticas, provoca la sensación de algo que levita sin ninguna razón evidente.

Los proyectos relacionados con este tipo de objeto contribuyen desde el diseño a consolidar los conceptos y principios físicos por parte del estudiante que los desarrolla.

Además, posibilita que los diseñadores en formación puedan en muchos casos, dada la relativa sencillez de fabricación, completar el proceso de diseño.

Tampoco se puede desestimar la contribución de este tipo de producto en cuanto a la divulgación científica, pues siempre habrá quien desee saber su funcionamiento y alguien que pueda o intente explicarlo.

Este trabajo abre la posibilidad de continuar la línea de diseño y construcción de objetos de este tipo.



**Figura 4.** Uno de los prototipos realizados. El bloque de madera flota en el aire atado a la base por una fina cuerda de nylon.

## 5 Conclusiones

Los proyectos relacionados con este tipo de objeto contribuyen desde el diseño a consolidar los conceptos y principios físicos por parte del estudiante que los desa-

rolla.

Además, posibilita que los diseñadores en formación puedan en muchos casos, dada la relativa sencillez de fabricación, completar el proceso de diseño.

Tampoco se puede desestimar la contribución de este tipo de producto en cuanto a la divulgación científica, pues siempre habrá quien desee saber su funcionamiento y alguien que pueda o intente explicarlo.

Este trabajo abre la posibilidad de continuar la línea de diseño y construcción de objetos de este tipo.

## Referencias

1. Campos E., Física más que divertida, Editora UFMG, Minas Gerais, 2002.
2. Gran M. F., Elementos de Física General y experimental, Edición revolucionaria, Tomo I, La Habana 1974.
3. Sears F. W., Termodinámica, Editorial Reverté, S.A. Barcelona, 1974.
4. López V., La Física de los juguetes, Revista Eureka sobre Enseñanza y Divulgación de las Ciencias, Vol. 1, N° 1, pp. 17-30, 2004.
5. Varela M. P. y Martínez J.L., Jugando a divulgar la Física con juguetes, Revista Eureka sobre Enseñanza y Divulgación de las Ciencias, Vol. 2, N° 2, pp. 234-240, 2005.
6. Löbach B., Diseño industrial. Bases para la configuración de productos industriales, Editorial G. Gili, Barcelona, 1981.
7. Berazaín A., Enfoque profesional de la asignatura Física de los Productos para la carrera de Diseño Industrial, Tesis de Maestría, Instituto Superior Pedagógico Enrique J. Varona, La Habana, 2000.

## Estudio del aporte de electrones y positrones a la distribución de $dpa$ en materiales sólidos

I. Piñera<sup>†</sup>, C. M. Cruz, Y. Abreu, A. Leyva

Centro de Aplicaciones Tecnológicas y Desarrollo Nuclear, La Habana, Cuba; ipinera@ceaden.edu.cu

<sup>†</sup>autor para la correspondencia:

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 03/07/2009.

**Sumario.** Se presentan los resultados del cálculo de la distribución de desplazamientos atómicos ( $dpa$ ) inducidos por la radiación gamma en muestras del material superconductor YBCO, aplicando el método introducido por los autores, que se apoya en las expresiones de la teoría de la dispersión elástica y en la simulación por Monte Carlo de los procesos físicos involucrados en la misma, haciendo uso del código MCNPX. Se tiene en cuenta el aporte de electrones y positrones, así como el de las diferentes especies atómicas presentes en el material de estudio. Los resultados obtenidos muestran que cuando se consideran los positrones también en el cálculo, el valor total de  $dpa$  casi se duplica a los 10 MeV de radiación gamma incidente, en relación a cuando solo se tienen en cuenta los electrones. Y se pudo observar que a esa energía incidente los positrones contribuyen en un 7% más que los electrones al total de  $dpa$ , aunque los electrones mantienen un aporte predominante hasta alrededor de los 8 MeV de radiación gamma incidente.

**Abstract.** The contribution from positrons to the displacements per atom ( $dpa$ ) distribution induced by the gamma irradiation on YBCO superconducting slabs is presented. The procedure implemented previously by the authors was adapted to take into account the contribution from positrons to  $dpa$  induced by the gamma radiation. The results show that, when positrons are considered in the atom displacement process, the total  $dpa$  almost doubles at 10 MeV of incident gamma radiation. At that energy positrons contribute 7% more to the total  $dpa$  than electrons, although electrons maintain having the highest contribution up to about 8 MeV.

**Palabras clave.** Daño por radiación gamma 61.80.Ed, simulación por Monte Carlo 02.70.Uu, YBCO 74.72.-h.

### 1 Introducción

En trabajos previos se reporta un procedimiento para el cálculo de la distribución de los desplazamientos atómicos inducidos por la radiación gamma en materiales sólidos, el cual fue aplicado en láminas superconductoras de  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  (YBCO) [1, 2]. Es bien conocido que los desplazamientos atómicos son producidos por las partículas cargadas muy enérgicas (electrones y positrones) producidas durante la interacción de los rayos gamma con el material. A bajas energías de la radiación gamma solamente los electrones juegan un papel, pero al aumentar la energía de los fotones, la producción de positrones se hace importante y por lo tanto el papel de los positro-

nes en la formación de desplazamientos atómicos también es trascendente.

Un primer intento en evaluar el aporte de los positrones a la distribución de  $dpa$  fue reportado por Fukuya y Kimura [3], donde usaron las expresiones teóricas de los diferentes procesos de interacción de los fotones con el material para estimar los desplazamientos inducidos en el hierro.

En el presente trabajo se aplica el Método Clásico asistido por Monte Carlo (MCMC) introducido anteriormente [1], extendido para evaluar también la contribución de los positrones al valor total de  $dpa$  en el YBCO. En este sentido fue usada la simulación por Monte Carlo para obtener las distribuciones de flujo de



los electrones y positrones secundarios, las cuales son usadas para calcular los perfiles de  $dpa$  para diferentes energías incidentes. El rango de energías seleccionado va desde 1.25 MeV (para asegurar la producción de positrones) hasta 10 MeV. Cada uno de los cuatro átomos que constituyen el material de estudio fue analizado.

## 2 Procedimiento de cálculo

La simulación involucra todos los procesos físicos que tienen lugar en los procesos de interacción de la radiación gamma el material. Fue usado el sistema de códigos MCNPX - 2.6b [4], teniendo en cuenta que da directamente la distribución energética de flujo a través de su salida \*F4, separando inclusive las contribuciones de electrones y positrones con el uso de la opción ELC de la card FT.

La muestra fue definida con una geometría en forma de lámina de YBCO con dimensiones 1.5 cm x 1.5 cm x 1.5 mm (subdividida en celdas con 1.0 mm x 1.0 mm x 0.1 mm). El proceso de irradiación fue simulado con un flujo de  $2 \times 10^7$  fotones incidiendo perpendicularmente sobre la cara más grande de la muestra. En las simulaciones la energía de los fotones incidentes fue variada de 1.25 a 10.0 MeV. En todos los casos, los resultados mostrados están normalizados al número total de historias.

Como se mencionó antes, el MCMC es la base del procedimiento de cálculo usado en este trabajo, introduciendo un pequeño cambio para el caso de los positrones. Este consiste en un cambio parcial en la fórmula de McKinley-Feshbach [5] para la sección transversal, usada originalmente para la dispersión elástica de los electrones con los átomos. Este cambio afecta la sección eficaz de  $dpa$  y la energía cinética promedio de los átomos desplazados, a través del término  $\pi\alpha\beta$ . A continuación se muestra la expresión final para la sección eficaz de  $dpa$ , en la cual el signo positivo del ( $\pm$ ) corresponde a los electrones y el negativo a los positrones.

$$\sigma_{dpa}(E) = \nu(T) \cdot \frac{\pi Z_a^2 r_0^2}{\beta^4 \gamma^2} \left[ \tau - 1 - \beta(\beta \pm \pi\alpha) \ln \tau \pm 2\pi\alpha\beta(\sqrt{\tau} - 1) \right] \quad (1)$$

$E$  es la energía cinética de los electrones o positrones y  $T$  es la energía cinética promedio transferida a los átomos desplazados.

La función de daño  $\nu(T)$  es calculada usando el modelo de Kinchin-Pease [6],  $Z_a$  es el número atómico del átomo en cuestión,  $r_0$  el radio clásico del electrón,  $\alpha = Z_a/137$ ,  $\beta$  la fracción de la velocidad del electrón (positrón) a la velocidad de la luz,  $\gamma^2 = 1/(1 - \beta^2)$ ,  $\tau = T_m / T_d$ , siendo  $T_d$  la energía de desplazamiento y  $T_m = 2E(E + 2mc^2)/Mc^2$  la energía cinética máxima de los átomos desplazados, cuya masa es  $M$ .

## 3 Análisis de los resultados

Aplicando el procedimiento del MCCM fue calculado

el número del desplazamiento por átomo ( $N_{dpa}$ ), como una suma extendida por toda la distribución de flujo de electrones y positrones calculada a una profundidad  $z$  dada  $\Phi(E, z)$  (Ec. (2)), donde  $n_k$  es la fracción relativa del átomo  $k$  en su sitio cristalino. Esta expresión fue aplicada para todos los átomos en el YBCO, tomando los siguientes valores: átomos de oxígeno ( $k = O$ ) con  $T_d = 20\text{eV}$  y  $n_O = 4/7$ , átomos de cobre ( $k = Cu$ ) con  $T_d = 25\text{eV}$  y  $n_{Cu} = 2/3$ , átomos de ytrio ( $k = Y$ ) con  $T_d = 25\text{eV}$  y  $n_Y = 1$  y átomos de bario ( $k = Ba$ ) con  $T_d = 25\text{eV}$  y  $n_{Ba} = 1$ . Estos resultados son mostrados en la figura 1 para el caso de los electrones y en la figura 2 para el caso de los positrones.

$$N_{dpa} = \sum_k \left( n_k \sum_i N_{dpa,k}^s(E_i) \Phi(E_i, z) \Delta E_i \right) \quad (2)$$

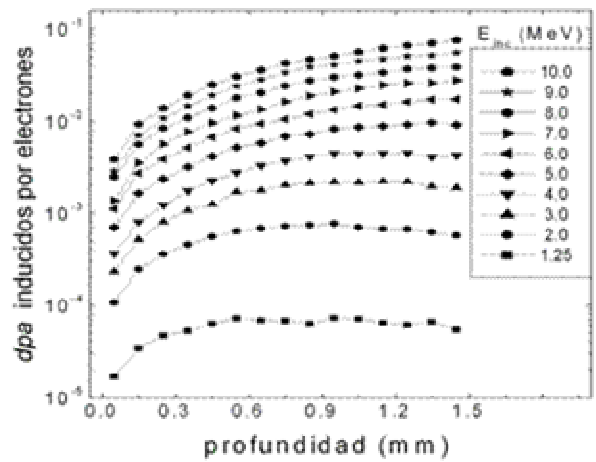


Figura 1. Distribuciones de  $dpa$  inducidos por los electrones para diferentes energías incidentes. Las líneas continuas son guías visuales.

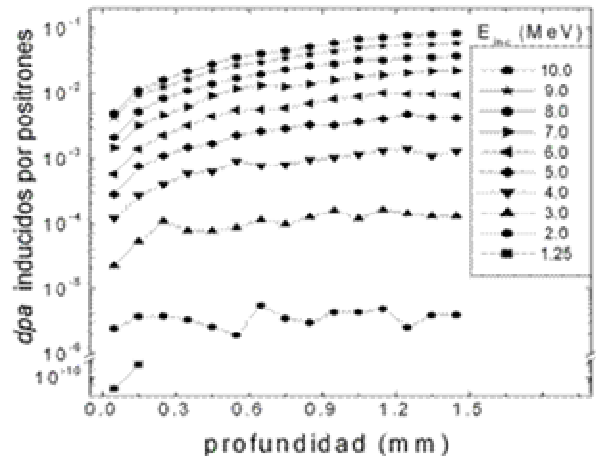


Figura 2. Distribuciones de  $dpa$  inducidos por los positrones para diferentes energías incidentes. Las líneas continuas son guías visuales.

Es importante notar la similitud en estos perfiles y en la forma de los mismos: los valores de  $dpa$  son siempre más altos a mayor energía gamma incidente en todo el

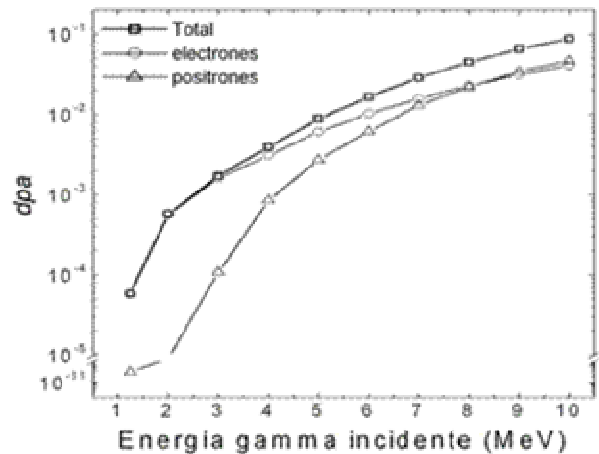
volumen de la muestra y el daño incrementa drásticamente con la profundidad a medida que la energía incidente se incrementa. También se puede observar que a bajas energías gamma son mayores los desplazamientos producidos por los electrones, pero a medida que aumenta dicha energía se va haciendo menor la diferencia, llegando incluso a ser un poco mayor el aporte de los positrones para 10 MeV de radiación gamma incidente. Esto se puede notar mejor si tomamos los valores totales de *dpa* para cada energía, promediando por todo el espesor de la muestra, lo cual se puede ver en la figura 3. Los electrones tienen una contribución mayor al total de *dpa* hasta alrededor de los 8 MeV de radiación incidente, a partir de la cual los *dpa* inducidos por positrones comienzan a predominar, llegando a aportar un 53.4 % al total de *dpa* para una energía incidente de 10 MeV, casi un 7 % más que el aporte correspondiente de los electrones a esa energía.

De aquí la importancia de considerar también los positrones cuando se haga un cálculo de este tipo. Nótese que el valor total ( $e^- + e^+$ ) de *dpa* para una energía gamma incidente de 10 MeV (0.0869) duplica al valor correspondiente cuando solo son considerados los electrones en el cálculo (0.0405), más exactamente, cuando son incluidos los positrones en el cálculo, el valor total de *dpa* aumenta en un 115 %.

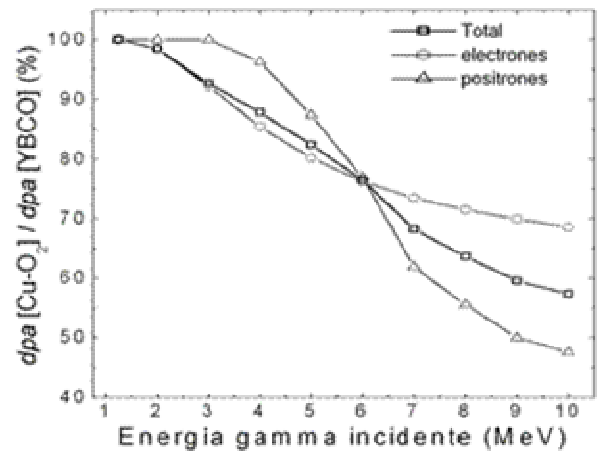
También fue estudiado el aporte de cada átomo al valor total de *dpa*. Fue considerado el aporte de los planos Cu-O<sub>2</sub> tomando juntos los efectos de los átomos de oxígeno y de cobre en estos sitios, para una mejor comparación con trabajos previos. Los resultados muestran que en el caso de los positrones el aporte de los átomos de ytrio y de bario al daño total es menor que el de los planos Cu-O<sub>2</sub>. Estos átomos tienen un aporte máximo del 12.8 % (Y) y 39.6 % (Ba) para 10 MeV de radiación incidente, aunque estos aportes son mayores que en el caso de los electrones a esa misma energía (10.5 % para el Y y 20.9 % para el Ba). Además, los desplazamientos de Y producidos por positrones empiezan a tener lugar para una radiación incidente de 4 MeV y los de Ba a partir de los 6 MeV. Este resultado podría respaldar el hecho de que los desplazamientos de Y y Ba no son decisivos en los posibles cambios provocados en este material a bajas y medias energías [7, 8].

Luego, el aporte principal al daño total viene de los sitios planares Cu-O<sub>2</sub>, tanto para los electrones como para los positrones. La figura 4 muestra el aporte de los planos Cu-O<sub>2</sub> al total de *dpa*, para los casos separados de electrones y positrones, así como para el total de ambas partículas. Es claramente observado que bajo irradiación de hasta 3 MeV, los *dpa* de positrones solamente tienen lugar en los planos Cu-O<sub>2</sub>, e incluso estos predominan sobre los *dpa* planares producidos por electrones hasta aproximadamente los 6 MeV, cuando representan alrededor del 77 % del total. Al aumentar la energía incidente, el aporte de los positrones a los *dpa* planares es superado por el correspondiente de los electrones, siendo cercano al 48 % a los 10 MeV contra el 69 % en el caso de los electrones. Todo esto resulta en que los *dpa* planares

aporten un 57.4 % al total de *dpa* en la muestra a esa energía.



**Figura 3.** Valores totales de *dpa*, así como los aportes de electrones y positrones, para diferentes energías incidentes. Las líneas continuas son guías visuales.



**Figura 4.** Aporte de los planos de Cu-O<sub>2</sub> al total de *dpa* inducido por los electrones, por los positrones y por ambos juntos. Las líneas continuas son guías visuales.

Los aportes individuales de los átomos de oxígeno y de cobre a los *dpa* planares se muestran en la figura 5 para los electrones y positrones. De esta figura es posible observar que el comportamiento en ambos casos es muy similar, el aporte de los átomos de oxígeno disminuye al incrementar la energía incidente mientras que el aporte de los átomos de cobre aumenta. Este comportamiento es más notable en el caso de los positrones, en el cual el aporte de los átomos de O disminuye (aumenta el de Cu) en un 74 % en el rango de energía estudiado contra solamente un 55 % para el caso de los electrones. Otra observación interesante es que para los positrones los *dpa* de Cu comienzan a predominar a una energía cercana a los 3 MeV, que es más baja que para el caso de los electrones (cerca de los 6 MeV). Se nota también que el aporte máximo de los átomos de Cu (mínimo de los de

O) es alcanzado alrededor de los 6 MeV en el caso de los positrones, mientras que en el caso de los electrones dicho máximo se alcanza al final del rango energético estudiado (10 MeV). Por lo tanto, el aporte principal de los positrones a los *dpa* planares proviene completamente de los desplazamientos de O hasta los 2 MeV de radiación incidente. A energías más altas, es observado un comportamiento creciente de los desplazamientos de Cu, prevaleciendo hasta los 3 MeV y alcanzando un máximo de aproximadamente el 78 % cerca a los 6 MeV, con un perfil casi invariable hasta los 10 MeV.

## 4 Conclusiones

El procedimiento del MCCM, implementado por los autores, fue adaptado para tener en cuenta el aporte de los positrones a los *dpa* inducidos por la radiación gamma en materiales sólidos. Con este fin, fue estudiado el aporte de los electrones y positrones a los *dpa* en el superconductor YBCO para un amplio rango de energías de la radiación gamma incidente.

Fue posible concluir que, cuando los positrones son considerados, el total de *dpa* incrementa por casi un factor de dos para fotones incidentes con energías de 10 MeV. A esta energía, los positrones aportan un 7 % más que los electrones al total de *dpa*, aunque los electrones mantienen un aporte superior hasta aproximadamente los 8 MeV. Por otro lado, fue encontrado un predominio del aporte de los sitios planares Cu-O<sub>2</sub> al total de *dpa* sobre el aporte de los átomos de ytrio y bario, siendo del 100 % hasta los 3 MeV e incluso aún predominando a los 10 MeV con casi un 48 %. Ahora, los *dpa* de O prevalecen a energías bajas y los de cobre a energías más altas para ambas partículas. Pero en el caso de los positrones, los *dpa* de Cu empiezan a ser dominantes a una energía relativamente baja, de aproximadamente 3 MeV y alcanzan su aporte máximo (de ~78 %) cercano a los 6 MeV.

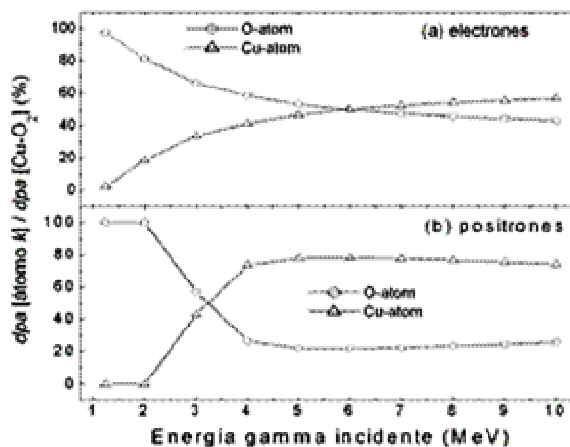


Figura 5. Aporte de los átomos de oxígeno y de cobre a los *dpa* planares inducidos por los electrones (a) y por los positrones (b). Las líneas continuas son guías visuales.

## Referencias

1. I. Piñera, C. Cruz, Y. Abreu, A. Leyva, Phys. Stat. Sol. (a) 204/7, 2279 (2007).
2. I. Piñera, C. Cruz, A. Leyva, Y. Abreu, Nucl. Instrum. Meth. B 265/2, 536 (2007).
3. K. Fukuya, I. Kimura, J. Nucl. Sci. Technol. 40/6, 423 (2003).
4. J. S. Hendricks, G. W. McKinney, H. R. Trelue, J. W. Durkee, J. P. Finch, M. L. Fensin, M. R. James, D. B. Pelowitz, L. S. Waters, F. X. Gallmeier, J. C. David, MCNPX<sup>TM</sup> Version 2.6.B, Los Alamos National Laboratory report, LA-UR-06-3248 (June 2006).
5. W. A. McKinley, H. Feshbach, Phys. Rev. 74/12, 1759 (1948).
6. G. H. Kinchin and R. S. Pease, Report on Progress in Physics 18, 1 (1955).
7. A. Legris, F. Rullier-Albenque, E. Radeva, P. Lejay, J. Phys. I France 3, 1605 (1993).
8. B. I. Belevtsev, I. V. Volchok, N. D. Dalakova, V. I. Dotsenko, L. G. Ivanchenko, A. V. Kuznichenko, I. I. Lagvinov, Phys. Stat. Sol. (a) 181, 437 (2000).

## Fenómenos del tiempo de fase y la conductancia en el tunelaje de huecos desacoplados

S. Arias-Laso y L. Diago-Cisneros

Facultad de Física, Universidad de La Habana; sariaslazo@gmail.com<sup>†</sup>, ldiago@fisica.uh.cu.

<sup>†</sup> Autor para la correspondencia

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 08/10/2009

**Sumario.** Se presentan cálculos del comportamiento de la conductancia a través de una doble barrera resonante ( $n = 2$  celdas) y para una superred ( $n > 2$  celdas), para el *momentum* paralelo a las intercaras igual a cero. Los cálculos numéricos se realizaron usando semiconductores de los grupos III y V, tales como GaAs y AlAs como sistema físico. Como modelo teórico para obtener e interpretar los resultados se utilizó la Aproximación Dispersiva Multicomponente. En el marco de esta aproximación se calculan la conductancia de doble electrodo de Landauer y el tiempo de fase. Se observa un comportamiento oscilatorio de la conductancia para  $n \geq 2$  celdas en ausencia de mezcla de los huecos, como era de esperar. Este modelo aporta evidencias de la predicción clásica de Hartman para valores de la energía incidente por debajo de la altura de la barrera para huecos pesados y ligeros desacoplados en la doble barrera y en la superred, mientras que se observa una dependencia no lineal del tiempo de fase con el espesor de la barrera, que son las oscilaciones de Ramsauer – Townsend, para energías por encima de la barrera.

**Abstract.** A calculation of the behavior of the conductance through resonant double barrier ( $n = 2$  cells) and superlattice ( $n > 2$  cells), for systems with uncoupled channels is presented. The numerical calculation was done using III and V semiconductors, such as GaAs and AlAs physical systems. Based on the Multicomponent Scattering Approach the two-probe Landauer conductance and the phase time are calculated and interpreted. An oscillatory behavior of the conductance for a superlattice for uncoupled holes is observed, as we expected. This model provides evidences of the classical Hartman prediction for energies under the barrier height for uncoupled heavy and light holes, while a non linear dependence of the phase time with the barrier width, the Ramsauer – Townsend oscillations, for energies above the barrier is observed.

**Palabras clave.** Tunneling 73.43.Jn, Elastic scattering 34.80.Bm

### 1 Introducción

No pocos trabajos teóricos han sido publicados que estudian las oscilaciones de la conductancia y el efecto Hartman<sup>1,2</sup>. Este trabajo ha estado motivado por el creciente interés en las propiedades de transporte cuántico en el marco de los modelos  $\kappa.p$ . El modelo del hamiltoniano de Kohn-Luttinger nos permite expresar todas las magnitudes físicas relevantes en términos de las funciones envolventes, y ha sido particularmente útil para el es-

tudio de las sub-bandas de huecos en heteroestructuras formadas por materiales III-V y II-VI<sup>2</sup>.

El formalismo de la matriz de transferencia (TM: *transfer matrix*, en inglés) ha sido usado frecuentemente en varios intentos para describir el espectro electrónico y los procesos de transporte, a través de sistemas desordenados y ordenados. Aplicamos la Aproximación Dispersiva Multicomponente como formalismo teórico. Este modelo combina los hamiltonianos  $N \times N$   $\kappa.p$  de varias bandas, con el formalismo de la TM y con la teoría de la

matriz de dispersión (SM: *scattering matrix*, en inglés), válido para los sistemas periódicos finitos multicomponentes<sup>3</sup>. Recientemente se publicó un modelo que establece una combinación apropiada del formalismo de la TM con la teoría de la SM<sup>3</sup>.

La propagación superlumínica y la evaluación del tiempo de tunelaje, son tópicos conocidos y controversiales<sup>4,5</sup>. Existe un reservorio de experimentos y proposiciones teóricas dirigidas a estos temas, fundamentalmente para electrones y pulsos ópticos<sup>6,7,8</sup>. En el caso de los huecos, el problema es más complicado y ha sido mucho menos estudiado, tanto experimental como teóricamente. Sin embargo, la respuesta de los dispositivos de tunelamiento de baja dimensionalidad, donde están involucrados los electrones y los huecos, depende de los tiempos de travesía de los portadores de carga más lentos<sup>9</sup>, lo que constituye una relevancia del transporte de huecos en aplicaciones electrónicas y optoelectrónicas. Entonces es importante estudiar las propiedades del transporte de los huecos. Entre las diferentes definiciones que existen para evaluar el tiempo de tunelaje, el tiempo de fase, que se define como la derivada de la fase respecto de la frecuencia, es una de las que se consideran bien establecidas<sup>3,6</sup>. Las manifestaciones de los eventos superlumínicos fueron descubiertas como consecuencia de la pregunta sobre cuánto tiempo toma a una partícula atravesar una barrera de potencial<sup>4,5</sup>. Estos eventos se consideran anómalos, porque dentro de la aproximación de los paquetes de onda<sup>4</sup> para calcular el tiempo de tunelaje, aparentemente se viola el principio de causalidad.

La predicción clásica de Thomas E. Hartman<sup>10</sup>, la cual se relaciona con el fenómeno de transmisión superlumínica, establece la autonomía del tiempo de tunelamiento en dependencia del espesor de la barrera. Han sido representadas evidencias teóricas de este paradójico efecto<sup>11,12</sup> y mediciones experimentales para diferentes potenciales en sistemas de microondas, fotones y ondas electromagnéticas<sup>6,13</sup>. La predicción de Hartman fue observada en anillos cuánticos con flujo Aharonov-Bohm y en el transporte cuántico de huecos pesados (*hh*) y ligeros (*lh*) desacoplados<sup>3,14,15</sup>.

En este trabajo nos proponemos hacer un estudio de las propiedades del tiempo de fase y de algunas facetas anómalas como el efecto Hartman relacionado intrínsecamente con la propagación superlumínica. Estudiaremos también el comportamiento de la conductancia de *hh* y *lh* desacoplados a través de la doble barrera y la superred de AlAs/GaAs, aplicando el modelo de Kohn-Luttinger y el formalismo de la matriz de transferencia.

El resto del trabajo está organizado de la siguiente forma: En la sección 2 nos dedicamos a recordar algunas definiciones básicas y se presentan resultados numéricos. Finalmente en la sección 3 subrayamos algunos comentarios a modo de conclusión.

## 2 Nociones teóricas de la aproximación y discusión de los resultados

**2.1 Sistema Físico.** En la Fig.1 se muestra un esquema de los procesos físicos bajo estudio. Se muestran los cuatro modos propagantes de *hh* y *lh*, que son etiquetados por el valor de la proyección del momentum angular, que en el caso bajo estudio se consideran los canales de entrada y salida. Se indican las transiciones directas (línea discontinua) y cruzadas (línea continua) en la barrera (*Layer A*) y los estados cuasi-estacionarios en el pozo (*Layer B*). En nuestros cálculos de conductancia y tiempo será necesario el concepto de celda, que sería como el período de la heteroestructura que estamos considerando. Aunque existen diferentes maneras de definirla, tomaremos la celda como la estructura que hay entre los puntos  $z_L$  y  $z_3$  (ver Fig.1), la cual se repite periódicamente formando la superred<sup>2,3</sup>.

**2.2 Modelo Teórico.** En este reporte se presenta un estudio teórico del transporte cuántico de huecos pesados y ligeros a través de un número arbitrario de capas alternantes de semiconductores III-V. Los eventos de las oscilaciones de la conductancia y el efecto Hartman son analizados como propiedades generales en el tunelaje de huecos.

Como formalismo teórico se utiliza la Aproximación Dispersiva Multicomponente (MSA: *Multicomponent Scattering Approach*, en inglés) para un sistema  $N$  – componente acoplado como solución a varias insuficiencias de modelos anteriores. La esencia de la MSA es la siguiente:

Sea un problema descrito por un sistema de ecuaciones diferenciales lineales, acopladas y de segundo orden. La ecuación de auto-valores para un sistema  $N$  – componente con simetría traslacional en el plano transversal  $[x, y]$  se puede escribir en la forma del sistema matricial siguiente:

$$\frac{d}{dz} \left[ \mathbf{B}(z) \frac{d\mathbf{F}(z)}{dz} + \mathbf{P}(z)\mathbf{F}(z) \right] + \mathbf{Y}(z) \frac{d\mathbf{F}(z)}{dz} + \mathbf{W}(z)\mathbf{F}(z) = \mathbf{0}_N \quad (1)$$

Donde el vector  $N \times 1$   $\mathbf{F}(z)$  es la función de onda envolvente de estados de huecos. En general  $N$ , es el número de componentes asociadas al sistema de ecuaciones (1) que describe la dinámica de huecos. En lo adelante, tomaremos el caso en que el número de componentes  $N = 4$ , que se corresponde en el problema bajo estudio con la cantidad de modos propagantes de *hh* y *lh* que consideramos los canales de entrada y salida del sistema. Las propiedades de los coeficientes matriciales  $\mathbf{B}(z)$ ,  $\mathbf{P}(z)$ ,  $\mathbf{Y}(z)$  y  $\mathbf{W}(z)$  son tales que se cumplen las siguientes relaciones:

$$\mathbf{B}^+(z) = \mathbf{B}(z)$$

$$\mathbf{Y}(z) = -\mathbf{P}(z)$$

$$\mathbf{P}^+(z) = \pm \mathbf{P}(z)$$

$$\mathbf{W}^+(z) = \mathbf{W}(z) = \mathbf{V}(z) - E\mathbf{I}_N.$$

Siendo  $\mathbf{I}_N$  la matriz identidad y  $\mathbf{0}_N$  la matriz nula, ambas de orden  $N$ . En el problema bajo estudio  $\mathbf{B}(z)$  contiene

los parámetros semiempíricos de banda, en  $Y(z)$  y  $P(z)$  están contenidos los términos del acoplamiento entre los  $hh$  y  $lh$ .  $V(z)$  es el potencial periódico, y  $E$  representa la energía (auto-valor).

Si consideramos a los coeficientes matriciales continuos y seccionalmente constantes en cada capa, se puede proponer la solución en la forma:

$$\mathbf{F}(z) = \sum_{j=1}^{2N} \alpha_j \Gamma_j e^{i\lambda_j z}, \quad (2)$$

donde  $\alpha_j$  contiene a los coeficientes de la combinación lineal y las correspondientes constantes de normalización de las  $\mathbf{F}_j(z)$  en el espacio de configuración,  $\lambda_j$  es real o complejo y  $\Gamma_j$  es un spinor ( $N \times 1$ ), y sustituyendo en (1) se obtiene el siguiente problema cuadrático de valores propios<sup>3</sup>, asociado a (1):

$$\mathbf{Q}(\lambda) = \{\lambda^2 \mathbf{M} + \lambda \mathbf{C} + \mathbf{K}\} \Gamma = \mathbf{0}_N, \quad (3)$$

donde  $\lambda$  es el auto-valor ( $k_z$  en nuestro caso) y los spinores  $\Gamma$  son los auto-vectores.

Cuando se obtienen los auto-valores de (3), se hallan los auto-spinores  $\Gamma_j$  y se orto-normalizan para formar luego las funciones (2) y sus derivadas. A partir de  $\mathbf{F}(z)$  y su derivada  $\mathbf{F}'(z)$  se construye la TM:  $\mathbf{M}_{fd}(z_R, z_L)$ , donde en subíndice *fd* significa *function and derivate*. Esta TM relaciona las soluciones linealmente independientes (2) y sus derivadas entre dos puntos cualesquiera  $z_R$  y  $z_L$  de la heteroestructura<sup>2,3</sup> (ver Figura 1). Igualmente se introduce la TM  $\mathbf{M}_{sv}(z_R, z_L)$  de vectores de estado, que conecta los vectores de estado en la representación de modos propagantes entre dos puntos de la heteroestructura<sup>2,3</sup>. Los bloques de esta matriz están relacionados con los bloques de la SM. Existe una transformación crucial que conecta las dos TM, de función y derivada y de vectores de estado, que nos permite por tanto relacionar las soluciones linealmente independientes del problema con las amplitudes de dispersión que nos interesan calcular<sup>2,3</sup>, comenzando por la amplitud de transmisión  $t = \alpha - \beta \delta^{-1} \gamma$ , donde  $\alpha$ ,  $\beta$  y  $\delta$  son los bloques de la TM de vectores de estado.

Los elementos de la matriz  $(N \times N)t$  de amplitudes de transmisión:

$$t_{ij} = t_{ij_{\text{Re}}} + i t_{ij_{\text{Im}}}, \quad (4)$$

que en general son complejos, corresponden a la transición desde el canal de entrada  $j$ -ésimo al de salida  $i$ -ésimo. Luego, teniendo  $t_{ij}$ , la probabilidad de transmisión hacia la derecha desde  $j$  hacia  $i$ , a través de  $n$  celdas se define como:

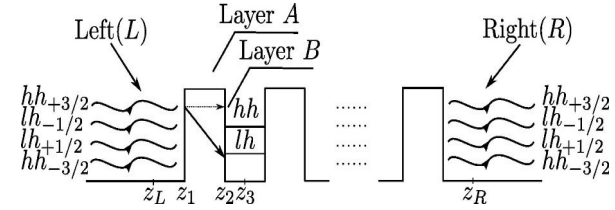
$$T_{ij} = t_{ij}^* t_{ij}. \quad (5)$$

La conductancia hacia el canal  $i$  (probabilidad total de transmisión) es:

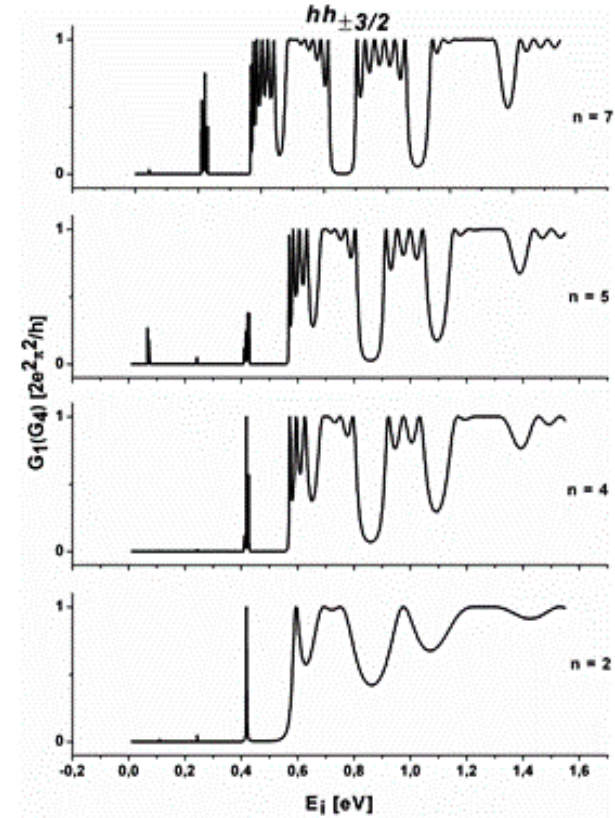
$$G_i = \sum_{j=1}^N T_{ij}, \quad (6)$$

y la conductancia de Landauer de doble electrodo de todo el sistema formado por  $n$  celdas:

$$G = \sum_{i=1}^N G_i = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N T_{ij}. \quad (7)$$



**Figura 1.** Esquema del proceso de transporte cuántico de  $hh$  y  $lh$  a través de una superred de GaAs - electrodo (L) / (AlAs / GaAs)<sup>n</sup> / GaAs - electrodo (R). Los sub-índices de los  $hh$  y  $lh$  representan la proyección del *momentum* angular total.



**Figura 2.** Conductancia de los canales de salida  $hh_{\pm 3/2}$  como función de la energía incidente y del número de celdas a  $\kappa_r \approx 0$  con  $L_b = 20 \text{ \AA}$  y  $V_b = 0.498 \text{ eV}$ .

Ya cuando se tienen las amplitudes de transmisión, de fases:

$$\theta_{nij} = \arctan \frac{(t_{nij})_{\text{Im}}}{(t_{nij})_{\text{Re}}}, \quad (8)$$

podemos evaluar el tiempo de transmisión de la fase:

$$\tau_{nij} = \hbar \frac{\partial}{\partial E} (\theta_{nij}) \quad (9)$$

Cuyas ventajas y criterios de aplicabilidad han sido ampliamente debatidos<sup>3,13,17</sup>. Las ecuaciones (8) y (9) son para la estructura periódica de  $n$  celdas. Las expresiones (5)-(9) son las magnitudes físicas relevantes de la teoría del transporte cuántico<sup>3</sup>.

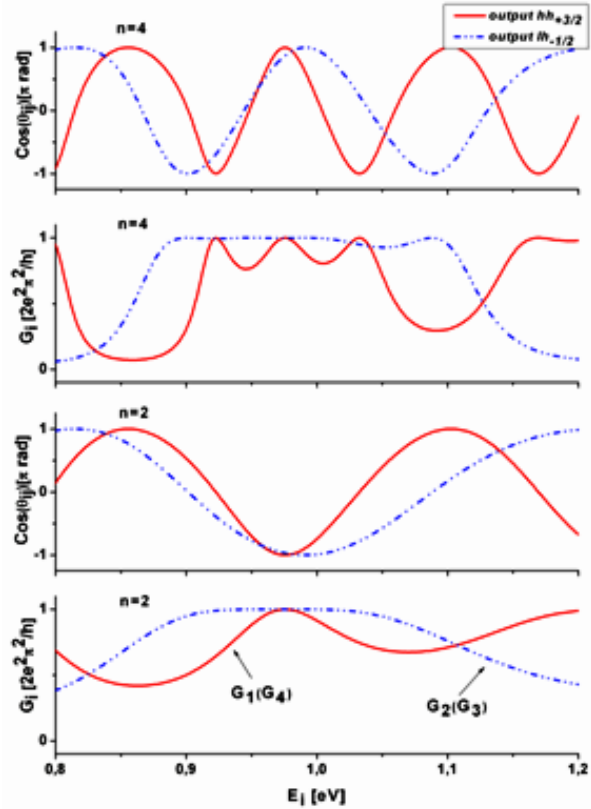
**2.3 Resultados numéricos.** Se presentan y se discuten los resultados obtenidos para las oscilaciones de la conductancia (6) por un canal, así como las oscilaciones del coseno de la fase (8) respecto de la energía incidente a  $\kappa_T \approx 0$ , o sea, para ausencia de mezcla, con una barrera de potencial  $V_b = 0.498 eV$ , de espesor  $L_b = 20 \text{ \AA}$ , para los casos de  $n = 2$ , que es la doble barrera resonante (DBRT: *double barrier resonant tunnelling*, en inglés), y  $n = 4, 5, 7$ , que es la superred. Se analizan las dependencias obtenidas del tiempo de fase (9) con el espesor de la barrera, para valores de energía fijos,  $E = 0.475 eV$  y  $E = 0.551 eV$ , a  $\kappa_T \approx 0$  para la DBRT y una superred de  $n = 4$  celdas.

**2.3.1 Oscilaciones de la conductancia. Minibandas.** En la Fig.2 mostramos el comportamiento de la conductancia de doble electrodo de Landauer como función de la energía incidente del flujo de huecos. Se observan los desdoblamiento de las resonancias intra-subbanda de huecos pesados y la definición paulatina de las minibandas prohibidas (este mismo comportamiento se obtuvo para los canales de salida  $lh \pm 1/2$  aunque no se muestra la correspondiente figura en el trabajo).

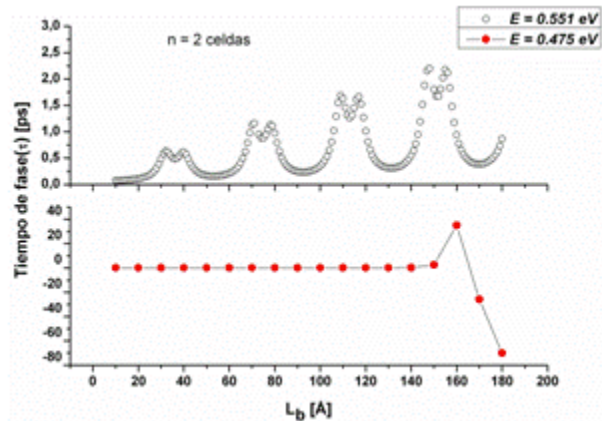
La estructura de mini-bandas ya está bien definida cuando  $n$  es del orden de 5 para  $hh$ , como ha sido reportado<sup>3</sup>, y cuando  $n$  es del orden de 4 para  $lh$ . Esta estructura emerge debido al desdoblamiento que es consecuencia de la coherencia de fase y surge una vez que ella y la periodicidad se combinan. En este caso en que las transiciones cruzadas están prohibidas ( $\kappa_T \approx 0$ ) la conductancia por el canal 1 ( $G_1$ ) coincide con la conductancia por el canal 4 ( $G_4$ ), esto sucede porque se escogió el potencial de la barrera como constante ( $V(z) \equiv cte$ ). Para energías por debajo de la altura de la barrera se observan las resonancias tipo Fano<sup>3</sup>, que reproducen adecuadamente los estados cuasi-estacionarios de cada pozo embebido en la heteroestructura a capas.

En la Fig.3 se muestra el comportamiento de la conductancia por los cuatro canales y del coseno de la fase en dependencia de la energía incidente, para el caso en que esta es mayor que la altura de la barrera. Se observa que a  $\kappa_T \approx 0$  (canales cruzados cerrados) los picos del coseno de la fase, como era de esperar, coinciden con los extremos de  $G_i$ , que tiene un comportamiento oscilante en función de la energía. Las oscilaciones de  $G_i$  a  $E > V_b$  son una manifestación del carácter cuántico del fenómeno bajo estudio; y son más evidentes en los  $hh$

( $G_{1,4}$ , línea continua), que en los  $lh$  ( $G_{2,3}$ , línea de trazos y puntos). Dada la menor masa efectiva de los  $lh$ , el comportamiento mostrado por  $G_{2,3}$ , es similar al de sistemas más sencillos, tal como se reporta para el modelo de Kronig-Peney en electrones<sup>18</sup>.



**Figura 3.** Conductancia y coseno de la fase de transmisión por los cuatro canales *versus* energía incidente a  $\kappa_T \approx 0$  para  $n = 2, 4$  celdas en el rango de energías  $[0.8 - 1.2] eV$ .



**Figura 4.** Tiempo de fase en función del espesor de la barrera para la transición  $hh_{+3/2} \rightarrow hh_{-3/2}$  con energía incidente menor que la altura de la barrera (círculos rojos llenos) y mayor que la altura de la barrera (círculos vacíos) a  $\kappa_T \approx 0$  para  $n = 2$  celdas.

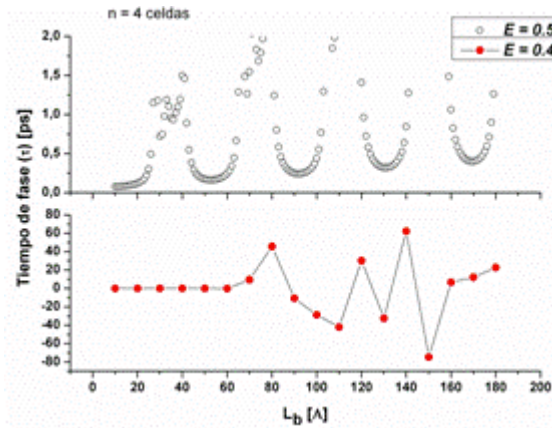
Obsérvese que tanto en la DBRT ( $n = 2$ ), como en la superred ( $n = 4$ ), las contribuciones de los  $hh$  y los  $lh$  a la conductancia  $G(7)$ , alternan convenientemente. Por ejemplo, en el entorno de  $E \approx 0.9eV$ ,  $G$  es mayoritariamente debida a los  $lh$ , mientras que en el entorno de  $E \approx 1.18eV$ , es mayoritaria la transmisión de  $hh$ . En esos rangos, la heteroestructura se comporta como un filtro, según la masa efectiva de los portadores.

**2.3.2 Oscilaciones de Ramsauer - Townsend y Efecto Hartman.** Como anteriormente se definió, el efecto Hartman consiste en la autonomía del tiempo de fase respecto del espesor de la barrera a partir de cierto valor de este parámetro, cuando la energía incidente es menor que la altura de la barrera. En las figuras 4 y 5, utilizando una altura para la barrera de  $V_b = 0.498eV$ , se muestra el comportamiento del tiempo de fase como función del espesor de la barrera para los casos de  $n = 2, 4$  celdas. Se observan evidencias de la predicción clásica de Hartman para  $hh$  y  $lh$  desacoplados en el caso de la doble barrera y la superred. Vea los paneles inferiores de las Fig. 4 y 5.

Estas figuras muestran que existen dos comportamientos distintos para el tiempo de transmisión de la fase, en dependencia de la energía del flujo incidente. Para  $E < V_b$  se observa la predicción clásica de Hartman, ya que el tiempo de fase se hace independiente del espesor de la barrera<sup>10</sup>, aunque también se puede apreciar que la robustez de este efecto pierde estabilidad cuando aumenta  $n$ , lo que también se puede comprobar comparando las Figuras 4 y 5 con el comportamiento predicho para el tiempo de fase en el caso de una sola celda<sup>3</sup>.

Una posible interpretación a la pérdida de estabilidad del efecto Hartman con el aumento de la dimensión del sistema, puede ser que cuando aumenta el número de celdas, va a existir un mecanismo competitivo entre el aumento de los tiempos de vida de las partículas en las regiones permitidas (pozos) bajo condiciones de coherencia de fase; y el aumento simultáneo de los anchos de las regiones prohibidas (barreras). En relación con lo anterior, nótese que en la DBRT, la inestabilidad aparece a  $L_b \approx 150 \text{ \AA}$ , mientras que para  $n = 4$ , el fenómeno es inestable a partir de  $L_b \approx 50 \text{ \AA}$ . Para  $E > V_b$  el tiempo de fase se comporta de una manera relativamente oscilante, estas oscilaciones se conocen con el nombre de oscilaciones de Ramsauer-Townsend, que corresponden a la interferencia de la onda reflejada con los estados del continuo<sup>3</sup>. De estas figuras se puede comprobar que la suavidad de las oscilaciones, no se deteriora sensiblemente con el aumento del número de celdas, como si pasa a  $\kappa_T \neq 0$ <sup>19</sup>. Estas oscilaciones del tiempo de fase en función del espesor de la barrera ya han sido observadas también a  $\kappa_T \approx 0$  en el caso de una celda<sup>3</sup>. Es posible apreciar que para  $E > V_b$  se confirma la ausencia del comportamiento cuasilineal<sup>1,3</sup> que fue reportado experimentalmente por Heberle y *et al.*<sup>17</sup>.

También, de estas dos figuras se observa que el tiempo de fase toma valores negativos, en el caso de la DBRT estos valores aparecen a aproximadamente al doble de los anchos de barrera que aparecen para  $n = 4$  celdas.



**Figura 5.** Tiempo de fase en función del espesor de la barrera para la transición  $hh_{+3/2} \rightarrow hh_{+3/2}$  con energía incidente menor que la altura de la barrera (círculos rojos llenos) y mayor que la altura de la barrera (círculos vacíos) a  $\kappa_T \approx 0$  para  $n = 4$  celdas.

Este comportamiento es conocido y ha sido reportado anteriormente en la literatura como un evento anómalo<sup>21</sup> [Ref.5 (y las referencias que allí se dan)]. Aunque no ha sido el propósito en este trabajo establecer las condiciones bajo las cuáles el tiempo de fase alcanza valores negativos, es posible proponer algunas ideas especulativas al respecto. Algunos autores consideran al efecto Hartman como un preámbulo de eventos superlumínicos<sup>6</sup>; mientras otros condicionan los eventos superlumínicos a la posibilidad de que el tiempo de fase alcance valores menores que cero y que las principales componentes de la frecuencias de los modos incidentes estén confinadas en un *gap* de frecuencias, donde la densidad de estados de los modos propagantes decrece<sup>20,21</sup>.

Esta podría ser una posible causa de la presencia de valores negativos en los paneles inferiores de las Figuras 4 y 5, dado el evidente hecho de la presencia de tales valores en el entorno del rango de energías, donde los huecos reproducen la predicción clásica de Hartman. Adicionalmente a los reportes conocidos en el tópic<sup>4,5,20</sup>, existen evidencias recientes de esta anomalía, en el tunelaje de electrones a través de una superred magnética<sup>22</sup>.

En cualquier caso, todavía no se tienen respuestas definitivas, inclusive para sistemas de partículas más simples. Este comportamiento, se encuentra sujeto a investigación por los autores para ser publicado más adelante.

### 3 Conclusiones

En el estudio del tiempo de fase de huecos desacoplados, encontramos que este tiene dos comportamientos inde-



pendientes entre sí. Para  $E < V_b$ , encontramos evidencias teóricas de la predicción clásica de Hartman para ondas electrónicas<sup>10</sup>, que consiste en la autonomía del tiempo de fase con respecto del espesor de la barrera. En el análisis de los resultados sobre la robustez del efecto Hartman encontramos que si mantenemos próximo a cero el valor de  $\kappa_T$  y aumentamos el número de celdas, la pérdida de este efecto se hace bastante evidente. Mientras que para  $E > V_b$ , hallamos que el tiempo de fase tiene un comportamiento oscilante que aumenta lentamente con  $L_b$ . Estas oscilaciones son del tipo Ramsauer-Townsend, y sólo en ciertos intervalos de valores de  $L_b$ , el tiempo de fase crece exponencialmente con este parámetro. Estos resultados, discrepan con el comportamiento de  $\tau$  reportado por Heberle para electrones<sup>17</sup>.

El comportamiento oscilatorio y no resonante de  $G$ , con variaciones más evidentes en los  $hh$ , constata el carácter cuántico del fenómeno de la transmisión de flujos de huecos desacoplados a  $E > V_b$ , como una propiedad general del transporte de estas cuasi-partículas, a través de heteroestructuras periódicas semiconductoras.

## Referencias

1. H. Rodríguez-Coppola, L. Diago-Cisneros y *et.al* (en preparación 2008).
2. L. Diago-Cisneros, "Tunelaje multicanal y simetría de los huecos en heteroestructuras semiconductoras", Universidad de La Habana, La Habana, 2005.
3. L. Diago-Cisneros, H. Rodríguez-Coppola, R. Pérez-Álvarez y P. Pereyra, Phys. Rev. B 74, 045308 (2006).
4. E. H. Hauge y J. A. Stovng, Rev. Mod. Phys 61, 917 (1989).
5. R. Landauer, Nature 341, 567 (1989).
6. A. M. Steinberg, P. G. Kwiat y R. Y. Chiao, Phys. Rev. Lett 71, 708 (1993).
7. S. Chu y S. Wong, Phys. Rev. Lett 48, 738 (1982).
8. S. Bosanac, Phys. Rev. A 28, 557 (1983).
9. H. Schneider, H. T. Granh, K. V. Klitzing y K. Ploog, Phys. Rev. B 40, 10040 (1985).
10. T. E. Hartman, J. App. Phys 33, 12 (1962).
11. Th. Martun y R. Landauer, Phys. Rev. A 45, 2611 (1992).
12. P. Pereyra y H. P. Simanjutak, Phys. Rev. E 75, 1 (2007).
13. Ch. Spielman, A. Stingl y F. Krausz, Phys. Rev. Lett 73, 2308 (1994).
14. S. Bandopadhyay y M. Jayannavar, arXiv CondMat, (2003).
15. S. Bandopadhyay y M. Jayannavar, arXiv CondMat, (2007).
16. H. Rodríguez-Coppola, L. Diago-Cisneros y R. Pérez-Álvarez, J. App. Phys 102, 094315 (2007).
17. A. P. Heberle, X. Q. Zhon, W. W. Rühle y L. Köhler, Semicond. Sci. Technol 9, 519 (1994).
18. P. Pereyra y E. Castillo, Phys. Rev. B 65, 205120 (2002).
19. S. Arias-Laso, L. Diago-Cisneros (en preparación 2009).
20. V. Romero Rochín, R. P. Duarte-Zamorano, S. Nilsen Hofseth y R. G. Barrera, Phys. Rev. E 63, 027601 (2001).
21. P. Singha Neo y S. Bandopadhyay, arXiv CondMat, (2004).
22. P. Pereyra, V. G. Ibarra-Sierra y J. L. Cardoso, Microelectronics Journal 40, 779 (2009).

## Desarrollo de un modelo teórico para superconductores policristalinos anisótropos utilizando la aproximación del medio efectivo

A. Cruz-García, P. Muné y E. Govea-Alcaide

Dpto. de Física, Facultad de Ciencias Naturales, Universidad de Oriente, Patricio Lumumba s/n, Santiago de Cuba, CP 90500.acruz@cnt.uo.edu.cu†, mune@cnt.uo.edu.cu, egovea@cnt.uo.edu.cu

Recibido el 15/07/2008. Aprobado en versión final el 03/04/2009.

**Sumario.** Se realiza un estudio de las propiedades de transporte en superconductores policristalinos anisótropos sólo para la conducción eléctrica en el estado normal. La presencia de cierto orden de orientación de los granos en superconductores policristalinos de  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$ , se modela introduciendo un factor de probabilidad de orientación  $\gamma$ . Además, se incluye en el modelo la concentración  $p$ , la cual caracteriza la contribución de la porosidad a la disminución de la conductividad del policristal. Se asume que los poros y los granos son elipsoides achatados con dimensiones similares y se tiene en cuenta los valores de la conductividad de los granos en cada dirección. El cálculo se basa en la aplicación de una generalización de la aproximación del medio efectivo al estudio de medios heterogéneos, la cual se denomina Aproximación del Potencial Coherente (APC). Los resultados se comparan con un modelo empírico desarrollado recientemente para muestras de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) con baja orientación de sus cristales, lo cual enriquece su empleo y se aplica a cerámicas superconductoras en general.

**Abstract.** A study of the transport properties in the normal-state of the anisotropic polycrystalline superconductors have been developed. The presence of certain orientation order of the grains in polycrystalline  $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  superconductors is modeled taking to account a probability factor of the grain's orientation  $\gamma$ . In addition, the concentration of the pores  $p$ , which characterizes the contribution of the porosity to the conductivity's decrease in the polycrystalline superconductor have been introduced. The pores and grains are assumed as oblate ellipsoids with similar dimensions, regarding the value of conductivity in each direction in the case of the grains. The calculation is based on the application of a generalization of the effective-medium theory to the heterogeneous mediums which is denominated Coherent-Potential Approximation (CPA). The results are compared with a current empiric model to low oriented  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO) samples, this enriches their employment and is applied to superconductor ceramics in general.

**Palabras clave.** Compuestos superconductores de Bi, 74.72.H, textura, 74.80.B, conductividad eléctrica, 74.25.F

### 1 Introducción

Las propiedades de transporte en materiales heterogéneos, siempre han sido de gran interés para los investigadores, incluso desde los tiempos de Maxwell. La razón del mismo se debe a la enorme variedad de sistemas físicos en los cuales se presentan heterogeneidades. Los compuestos policristalinos son sistemas heterogéneos, ya

que los cristales pueden presentar diferencias en su forma, tamaño u orientación, además de poseer impurezas, porosidad y otros defectos; estos sistemas son descritos por modelos que contemplan una variación espacial en el tensor de conductividad eléctrica  $\hat{\sigma}(\vec{x})$ . Uno de los métodos de cálculo basados en la Teoría del Medio Efectivo (TME) es la Aproximación del Medio Efectivo (AME), la cual intenta obtener la conductividad efectiva del me-

dio como un todo, conociendo el tensor conductividad eléctrica de cada constituyente del medio heterogéneo, y también la ley estadística presente en la variación espacial de la conductividad. Este método fue introducido originalmente por Bruggeman<sup>1</sup> y estudiado cuantitativamente por Landauer<sup>2</sup>. La AME logra asociar las propiedades de transporte de dicho material con parámetros microestructurales<sup>3</sup>, y la generalización de ella para el estudio de medios heterogéneos con cristales que se diferencian en su tamaño, forma, orientación y además el tensor de conductividad eléctrica de simetría arbitraria; permite definir la Aproximación Potencial-Coherente (APC)<sup>4</sup>. La APC tiene gran aplicación para el tratamiento de las propiedades de transporte en Superconductores de Alta Temperatura Crítica (SAT)<sup>5, 6</sup>. La misma ofrece la posibilidad de caracterizar dichas propiedades eléctricas para el estado normal de estos compuestos. Además se conoce que la existencia de las fronteras en los contornos de los granos, controlan las propiedades macroscópicas de los SAT policristalinos y diferencian su comportamiento al de los monocristales<sup>7</sup>. Es importante el estudio y la caracterización de los SAT policristalinos en el estado normal, ya que un mejoramiento de sus propiedades eléctricas en este estado, produce mejoras en las propiedades superconductoras para realizar la transición<sup>5-7</sup>. Es por eso que estos materiales SAT se someten a una deformación mecánica para mejorar sus propiedades de transporte<sup>6-8</sup>, esta técnica ha probado ser muy efectiva en lograr el incremento de la densidad de corriente crítica superconductor  $\bar{J}_c$ <sup>8-11</sup> debido a un marcado incremento de la textura del material<sup>12</sup>. Algunos autores han descrito como influye la presión de compactación uniaxial en las propiedades superconductoras generales de muestras policristalinas de  $\text{Bi}_{1.65}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  (Bi-2223)<sup>6, 13, 14</sup>.

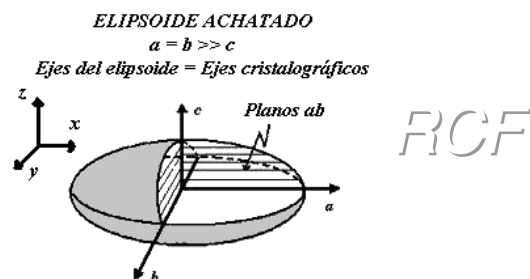
Según un modelo de percolación desarrollado recientemente para muestras de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (YBCO)<sup>5</sup>, se plantea que durante la conducción eléctrica en el estado normal de muestras granulares, la frustración del camino de la corriente puede ocurrir por dos mecanismos diferentes, uno está asociado con el desorden en la orientación de los granos anisótropos caracterizados por cierto factor  $f$  ( $0 < f \leq 1$ ) y el otro se debe a la influencia de los defectos estructurales en el intergrano como lo es la porosidad o la separación de los granos, microgrietas o impurezas; estos efectos se caracterizan por cierto factor  $\alpha_{str}$  ( $0 < \alpha_{str} \leq 1$ )<sup>5,8</sup>. Luego ambas propiedades se ven caracterizadas por un factor descrito como  $\alpha_n = f\alpha_{str}$ <sup>5</sup>. Los factores  $\alpha_n$ ,  $f$  y  $\alpha_{str}$  de dicho modelo fueron introducidos de manera empírica, del mismo modo que no han sido suficientemente discutidos desde el punto de vista teórico. Estas ideas aunque válidas en casos particulares, carece de generalidad, ya que las mediciones realizadas en muestras cerámicas de Bi-2223, revela la existencia de un grado de textura diferente de cero, o sea, que los granos presentan cierto grado de orientación<sup>6</sup>.

El objetivo de este trabajo consiste en presentar un es-

tudio teórico para el caso general de que exista cierto orden en la orientación de los granos y otro para la influencia de la porosidad en estos tipos de materiales SAT sólo cuando ellos se encuentran en el estado normal. Para lograrlo se debe partir de la APC en la cual se incluya el factor de probabilidad de orientación  $\gamma$  y la contribución de la influencia de poros de concentración  $p$ , asumiendo que sus dimensiones son similares a las de los granos. Para esto, primero se debe obtener una expresión analítica para la conductividad efectiva de los materiales SAT policristalinos anisótropos, en la cual estén presentes los efectos de la presencia de cierto orden de orientación de los granos, luego se debe obtener otra donde intervenga la influencia de los defectos estructurales como la porosidad; y después se realizará una comparación de estas dos expresiones con las del modelo de percolación que fue desarrollado por A. Díaz y colaboradores<sup>5</sup>; por último se establecerán las discusiones de los resultados.

## 2 Planteamiento general de la APC según las propiedades de los SAT

La TME es una aplicación del estudio de los medios heterogéneos, la cual intenta encontrar un medio homogéneo que tenga las mismas propiedades que el medio compuesto original. Existe la formulación general de la TME para medios anisótropos, por lo que la aplicación de esta puede ser la manera de encontrar la solución para el problema del cálculo de la conductividad efectiva del compuesto cuando se encuentra en el estado normal.



**Figura 1.** Esquema de la forma elipsoidal a la cual se aproximan los granos, así como los sistemas de ejes coordenados utilizados en los cálculos.

Observando la forma que presentan los granos de estas muestras cerámicas, se pueden modelar en primera aproximación como elipsoides achatados (ver Figura 1), donde sirve de soporte a esta elección, el hecho de que el crecimiento de los granos es mucho mayor en el plano  $ab$  que en la dirección  $c$ , esto se observa en monocristales de SAT, y en fotografías de microscopía electrónica de barrido (MEB) de muestras policristalinas<sup>6</sup>.

Se considera un grano elipsoidal, inmerso en un medio SAT heterogéneo sólo en el estado normal, rodeado por los demás granos con propiedades equivalentes a él; cuya conductividad efectiva desconocida viene dada por el tensor de segundo orden  $\hat{\sigma}_e$ . Se representa un sistema de referencia externo para el medio, conjuntamente con

el sistema de referencia del grano (ver Figura 1). Luego la dirección en la cual esta aplicada la presión de compactación uniaxial se esta considerando dirigida a lo largo de la dirección de  $z$ .

El modelo a desarrollar, parte de los resultados planteados en la APC<sup>4</sup>, la cual se define a través de la ecuación promedio siguiente:

$$\left\langle \frac{(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}_e)}{[1 - \hat{\Gamma}(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}_e)]} \right\rangle = 0 \quad (1)$$

donde  $\hat{\sigma}$  y  $\hat{\sigma}_e$  son los tensores de conductividad eléctrica del grano y del material respectivamente,  $\hat{\Gamma}$  es un tensor que se define en una matriz diagonal cuyos elementos son

$$\Gamma_{xx} = \Gamma_{yy} = -\frac{n_x}{\sigma_e^{xx}} = -\frac{n_y}{\sigma_e^{yy}}; \Gamma_{zz} = -\frac{n_z}{\sigma_e^{zz}} \quad (2)$$

siendo  $n_x = n_y$  y  $n_z$  los llamados coeficientes de despolarización eléctrica<sup>15</sup>. Es válido destacar que debido a las características anisotrópicas del sistema que se estudia, existe una relación de dependencia de estos coeficientes con la anisotropía del compuesto, por eso el sistema trae aparejado consigo no sólo una simetría elipsoidal en las coordenadas espaciales, sino que también posee esta misma simetría en las magnitudes que caracterizan sus propiedades eléctricas, lo cual se debe en gran medida al carácter tensorial de la conductividad efectiva del compuesto<sup>3,4,16</sup>, naturalmente que cuando el material es anisótropo las propiedades geométricas están estrechamente relacionadas con las propiedades eléctricas del medio<sup>3,16</sup>, por eso se hace necesario introducir un cambio de variables por las razones de la anisotropía, este cambio de variables es

$$x' = \frac{x}{\sqrt{\sigma_e^{xx}}}; y' = \frac{y}{\sqrt{\sigma_e^{yy}}}; z = \frac{z}{\sqrt{\sigma_e^{zz}}} \quad (3)$$

Que al utilizar estas expresiones entonces los coeficientes de despolarización toman la forma

$$n_x = n_y = \frac{1}{2}(1 - n_z); n_z = \frac{e^2 + 1}{e^3}(e - \arctan e) \quad (4)$$

siendo  $e$  la excentricidad del elipsoide que para el caso de un sistema compuesto por cristales tomados en forma esférica esta excentricidad se expresa como  $e = \sqrt{\mu - 1}$ <sup>3, 4, 16</sup>, donde  $\mu$  es el coeficiente de anisotropía externa del material que se define como  $\mu = \sigma_e^{xx} / \sigma_e^{zz}$ .

Para este trabajo se utiliza la ecuación (1), en la cual se introducen parámetros que describen la probabilidad de orientación de los cristales, así como la influencia de la porosidad; además se introduce la existencia de anisotropía externa en el material, la cual está reflejada en el carácter tensorial de la conductividad efectiva. El fenómeno del estado de orientación de los granos se puede cuantificar bajo cierta probabilidad de orientación de los granos  $\gamma_j$ . Esto se debe a que los granos presentan mucho menos resistividad en las direcciones de los planos  $ab$ ,

por lo tanto, la corriente siempre fluirá a través de ellos al atravesar el material, de aquí que el estado de orientación de ellos tenga una vital importancia. El factor  $\gamma_j^i$ , donde  $j=(a, b, c)$  e  $i=(x, y, z)$ ; expresa la probabilidad de encontrar los granos orientados con cualquiera de sus tres coordenadas  $a, b$  ó  $c$  en las direcciones  $x, y$  ó  $z$  respectivamente. Las direcciones  $x$  e  $y$  son equiprobables por razones de la simetría del tensor  $\hat{\sigma}_e$ . Para los cálculos de la promediación se tendrá en cuenta un caso límite en el que se considera que dicho material no presenta porosidad, o sea, que todo el incremento o disminución de la conductividad del material se debe sólo al efecto de la manera en que estén orientados los cristales, siendo así entonces si se utiliza la ecuación (1) y se introducen esta definición descrita para la solución más general de este problema de los SAT quedaría

$$\left\langle \frac{\gamma_j^i(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}_e)}{[1 - \hat{\Gamma}(\hat{\sigma} - \hat{\sigma}_e)]} \right\rangle = 0 \quad (5)$$

donde  $\hat{\sigma}$  y  $\hat{\sigma}_e$  son los tensores de conductividad eléctrica del grano y del material respectivamente, los cuales para los SAT policristalinos anisótropos estos tensores se pueden representar a través de matrices diagonales, cuyos elementos son  $\sigma_a, \sigma_b, \sigma_c$  que representan las conductividades del grano en las direcciones cristalográficas  $a, b, c$  y se cumple que  $\sigma_a = \sigma_b \gg \sigma_c$ <sup>5</sup>, y para el caso de la conductibilidad efectiva del material se definen sus elementos como  $\sigma_e^{xx}, \sigma_e^{yy}, \sigma_e^{zz}$  cumpliéndose que  $\sigma_e^{xx} = \sigma_e^{yy} > \sigma_e^{zz}$ <sup>6</sup>;  $\hat{\Gamma}$  se representa en la ecuación (2) donde se utiliza también la ecuación (3) relacionándose con  $n_x, n_y$  y  $n_z$  que se calculan a través de la ecuación (4) salvo que para este caso de granos tomados con simetría esferoidal (elipsoide achatado) la excentricidad relacionada se expresa como  $e = \sqrt{\mu(a/c)^2 - 1}$  siendo  $\mu = \sigma_e^{xx} / \sigma_e^{zz}$ . Para los granos que son altamente anisótropos, también se define un factor de anisotropía que se expresa como  $\tau = \sigma_c / \sigma_{ab}$ , donde en experimentos con monocristales de SAT se obtuvo su valor de  $\tau \approx 10^{-4}$ .

### 3 Desarrollo y obtención de los parámetros de incremento de la conductividad efectiva

En el desarrollo de las expresiones, se parte de las definiciones antes descritas pero teniendo en cuenta que para cada dirección de incidencia de la corriente, ya sea  $x, y$  ó  $z$ ; existirán las tres orientaciones posibles de los semi-ejes de los granos  $a, b$  y  $c$ ; por lo tanto se tendrán nueve factores de probabilidad  $\gamma_j^i$  donde  $i=(x,y,z)$ ;  $j=(a,b,c)$ ; estos nueve factores bien podrían estar o no relacionados entre si. Por eso van a existir tres promedios iguales al

definido en la ecuación (1) por cada una de las direcciones  $x$ ,  $y$  ó  $z$ . Debido a la igualdad  $\sigma_e^{xx} = \sigma_e^{yy}$ , las promediaciones en las direcciones  $x$  e  $y$  son iguales, por lo tanto sólo será necesario realizar dos, una para estas direcciones y otra para la dirección  $z$ . También se conoce que  $\sigma_a = \sigma_b = \sigma_{ab}$  por lo que entonces se puede designar a  $\gamma_a^x = \gamma_a^y = \gamma_b^x = \gamma_b^y$  como  $\gamma_{ab}^{xy}$  y  $\gamma_c^x = \gamma_c^y$  como  $\gamma_c^{xy}$ . Aplicando estas definiciones en la ecuación (5) entonces se obtiene

$$\frac{2\gamma_{ab}^{xy}(\sigma_{ab} - \sigma_e^{xx})}{\left[1 + \frac{n_x}{\sigma_e^{xx}}(\sigma_{ab} - \sigma_e^{xx})\right]} + \frac{\gamma_c^{xy}(\sigma_c - \sigma_e^{xx})}{\left[1 + \frac{n_z}{\sigma_e^{xx}}(\sigma_c - \sigma_e^{xx})\right]} = 0 \quad (6)$$

que considerando a  $\sigma_c \approx 0$  y utilizando la condición de normalización de las probabilidades  $2\gamma_{ab}^{xy} + \gamma_c^{xy} = 1$ , entonces se obtiene para las direcciones  $x$  e  $y$  la ecuación

$$\sigma_e^{xx} = \frac{(6\gamma_{ab}^{xy} - 1)(n_z - 1)}{(6\gamma_{ab}^{xy} - 1)n_z - (2\gamma_{ab}^{xy} + 1)} \sigma_{ab} \quad (7)$$

que haciendo

$$f_{xy} = \frac{(6\gamma_{ab}^{xy} - 1)(n_z - 1)}{(6\gamma_{ab}^{xy} - 1)n_z - (2\gamma_{ab}^{xy} + 1)} \quad (8)$$

Entonces la ecuación (6) se transforma en

$$\sigma_e^{xx} = f_{xy} \sigma_{ab} \quad (9)$$

donde el factor  $f_{xy}$  puede llamarse factor de incremento de la conductividad debido a la orientación de los cristales, o simplemente factor de orientación de las direcciones  $x$  e  $y$ . A medida que la presión de compactación uniaxial se aumenta<sup>13</sup>, se puede pensar que en las direcciones  $x$  e  $y$  los granos tienden a orientarse con una mayor cantidad de sus planos  $ab$  paralelos a estas direcciones, de manera que en la dirección  $z$  disminuirá la probabilidad de encontrar a los granos orientados de esta manera.

Para realizar la promediación en la dirección  $z$  se puede partir de la misma manera como en lo anterior, pero teniendo en cuenta que ahora los factores de probabilidad de orientación son los  $\gamma_j^z$  donde  $j = a, b, c$ ; entonces para la dirección  $z$  se obtiene

$$f_z = \frac{(2 - 3\gamma_c^z)(n_z - 1)}{(2 - 3\gamma_c^z)n_z - (2 - \gamma_c^z)} \quad (10)$$

que si se analiza de que encontrar un cristal orientado con su plano  $ab$  de mayor conductividad paralelo al plano  $xy$  del compuesto, es igualmente probable que encontrar ese mismo cristal orientado con su plano  $ab$  perpendicular a la dirección de  $z$ , entonces se puede asumir que  $\gamma_{ab}^{xy} = \gamma_c^z$  y  $\gamma_c^{xy} = \gamma_{ab}^z$ ; esto al sustituirlo en la ecuación (10) el factor  $f_z$  se transforma en

$$f_z = \frac{(2 - 3\gamma_{ab}^{xy})(n_z - 1)}{(2 - 3\gamma_{ab}^{xy})n_z - (2 - \gamma_{ab}^{xy})} \quad (11)$$

que finalmente se obtiene

$$\sigma_e^{zz} = f_z \sigma_{ab} \quad (12)$$

donde  $f_z$  es el factor de orientación en la dirección  $z$ .

Para estudiar la influencia de los defectos en la conducción eléctrica, se considerará sólo la existencia de porosidad en estos materiales. Para realizar esto, primeramente se asumirá el caso límite de que dicho material posee un total ordenamiento en la orientación de sus cristales, entonces sólo los efectos de la porosidad tendrán influencia sobre las fluctuaciones de la corriente eléctrica al recorrer el material; donde así ya no existen influencias por la manera que estén orientados los mismos. Por tanto bajo estas condiciones el material verá afectada su conductividad sólo por los efectos de la porosidad. En el cálculo, los poros se consideran como elipsoides achatados con iguales dimensiones a la de los granos en primera aproximación, los mismos tienen una conductividad nula, ya que son cavidades donde sólo existe aire o vacío. Su influencia en las propiedades eléctricas del material estará caracterizada por su concentración  $p^3$ . Además se asumirá que existe una alta densidad de ellos por lo que los elementos del tensor  $\hat{\Gamma}$  tendrán la forma<sup>3</sup>

$$\Gamma_{xx}^p = \Gamma_{yy}^p = -\frac{n_{xx}^p}{\sigma_a} = -\frac{n_{yy}^p}{\sigma_b}; \Gamma_{zz}^p = -\frac{n_{zz}^p}{\sigma_c} \quad (13)$$

aquí  $n_{xx}^p = n_{yy}^p$  y  $n_{zz}^p$  son los coeficientes de des-polarización de los poros<sup>15</sup> con la excentricidad  $e = \sqrt{1/\tau(a/c)^2 - 1}$ . Visto así entonces la ecuación general de la APC para este caso tendrá la forma

$$\frac{(1-p)(\sigma_{ii} - \sigma_{ii}^e)}{\sigma_{ii}} + \frac{p(\sigma_{ii}^p - \sigma_{ii}^e)}{1 + \frac{n_{ii}^p}{\sigma_{ii}}(\sigma_{ii} - \sigma_{ii}^e)} = 0 \quad (14)$$

donde  $\sigma_{ii}^p$  son los elementos del tensor conductividad del poro,  $\sigma_{ii}$  los del tensor conductividad de los cristales y  $\sigma_{ii}^e$  los del tensor conductividad efectiva donde  $i=(x, y, z)$ . Desarrollando la ecuación matricial (14) y teniendo en cuenta que  $\sigma_{ii}^p = 0$  entonces se obtiene una ecuación de segundo grado en  $\sigma_{ii}^e$  que resolviéndola se logra finalmente la única solución válida físicamente que es

$$\sigma_{ii}^e = \frac{n_{ii}^p + 1 - \sqrt{(1 - n_{ii}^p)^2 + 4n_{ii}^p p}}{2n_{ii}^p} \sigma_{ii} \quad (15)$$

que haciendo

$$(\alpha_{str})_{ii} = \frac{n_{ii}^p + 1 - \sqrt{(1 - n_{ii}^p)^2 + 4n_{ii}^p p}}{2n_{ii}^p} \quad (16)$$

entonces la ecuación (15) queda de la forma

$$\sigma_{ii}^e = (\alpha_{str})_{ii} \sigma_{ii} \quad (17)$$

donde  $(\alpha_{str})_{ii}$  es el factor de incremento de la con-

ductividad por efecto de la porosidad del material.

Luego, es posible construir una teoría completa y general para los SAT de óxido de cobre granulares, utilizándose el modelo fenomenológico que aparece en la ref. [5]. Comparando todo lo antes expuesto con dicho modelo, se puede asumir que el parámetro de incremento de la conductividad para el estado normal  $\alpha_n$  de estos SAT<sup>5</sup>, puede expresarse según la combinación de las ecuaciones (8), (11) y (16), teniendo en cuenta la dirección de aplicación de cada una de ellas y a la vez de la incidencia de la corriente eléctrica, se obtiene para las direcciones  $x$  y  $y$

$$\alpha_n^{xx} = \alpha_n^{yy} = f_{xy}(\alpha_{str})_{xx} = f_{xy}(\alpha_{str})_{yy} \quad (18)$$

y análogamente para la dirección  $z$

$$\alpha_n^{zz} = f_z(\alpha_{str})_{zz} \quad (19)$$

Después de esta comparación, se puede decir que las ecuaciones (18) y (19), representan las expresiones teóricas que caracterizan a los efectos combinados de la orientación de los granos y la existencia de porosidad en los SAT cerámicos. Ampliando ideas se puede decir que en general el factor  $f$  no sólo depende de las dimensiones del grano, sino que también depende de la probabilidad de orientación  $\gamma_j^i$ .

## 4 Cálculos y discusiones

Ahora se analizan las expresiones obtenidas según el comportamiento de los parámetros definidos; primero se estudia el caso en el cual los granos están totalmente desalineados en su orientación respecto a las direcciones de incidencia de la corriente eléctrica, esto se manifiesta para materiales isotrópicos. En esta situación el factor de anisotropía  $\mu$  será igual a la unidad y todas las orientaciones posibles serán equiprobables ( $\gamma_{ab}^{xy} = \gamma_c^z = \frac{1}{3}$ ). Si se supone que no existe porosidad en el material ( $p \cong 0$ ) entonces el valor del coeficiente  $(\alpha_{str})_{ii}$  será igual a la unidad para cualquier dirección; dicho así el incremento de la conductividad efectiva del material sólo dependerá de las expresiones (9) y (12) que serán iguales

$$f_{xy} = f_z = \frac{3n_z - 3}{3n_z - 5} \quad (20)$$

La ecuación (20) es idéntica a la que se publicó en el trabajo que aparece en la ref. [5], lo cual da evidencias de la generalidad de las expresiones desarrolladas.

Para un análisis más detallado en el estudio del comportamiento de cada uno de los parámetros definidos en este trabajo, y a su vez, para un conocimiento de cómo influyen estos en la anisotropía del material, se requiere de una expresión que relacione al coeficiente de anisotropía externa  $\mu$  con todos estos parámetros; lo que para lograrlo se utiliza la definición  $\mu = \sigma_e^{xx} / \sigma_e^{zz}$  la cual se combina con las ecuaciones (9), (12), (15), (18) y (19) obteniéndose que

$$\mu = \frac{\alpha_{str}^{xx}(p)f_{xy}(\mu)}{\alpha_{str}^{zz}(p)f_z(\mu)} \quad (21)$$

siendo esta expresión una ecuación trascendente de cuyas soluciones se conocerá el comportamiento de las propiedades de transporte de estos materiales. Esta ecuación trascendente indica que se debe utilizar el método numérico correspondiente al cálculo de los ceros de esta función, por eso se tomó el método de iteraciones sucesivas el cual se puede implementar muy fácilmente en cualquier ordenador a través de cualquier programa de cálculo computacional. Aquí se usó el programa MATLAB versión R-2006<sup>a</sup>, lográndose obtener los distintos valores de  $\mu$  con respecto a variaciones de los parámetros  $\gamma_{ab}^{xy}$ ,  $p$ , y la razón  $a/c$  de los semiejes del elipsoide al que se aproximan los granos y poros. Es válido recordar que el factor de probabilidad  $\gamma_{ab}^{xy}$  sólo tomará valores entre  $\frac{1}{3}$  y  $\frac{1}{2}$  ( $\frac{1}{3} \leq \gamma_{ab}^{xy} \leq \frac{1}{2}$ ) ya que son los que toma este factor en los dos casos extremos por los que transitan estos sistemas y que ya se analizó uno, el otro se hará a continuación.

**Tabla I**

Valores escogidos de los parámetros  $\gamma_{ab}^{xy}$ ; y  $a/c$  para el cálculo de la ecuación (22)

$\gamma_{ab}^{xy} = 1/2$					
Indicador	V1	V2	V3	V4	V5
$a/c$	20	25	30	35	40

**Tabla II**

Valores escogidos de los parámetros  $p$  y  $a/c$  para el cálculo de la ecuación (21) con  $\gamma_{ab}^{xy}$  como argumento.

$a/c = 40$						
Indicador	R1	R2	R3	R4	R5	R6
$p$	$10^{-5}$	$10^{-4}$	$10^{-3}$	$10^{-2}$	$10^{-1}$	$5 \times 10^{-1}$

El otro caso extremo a analizar se tiene cuando todos los cristales estén totalmente orientados, que siendo así se considerará que los granos tienen sus planos  $ab$  de mayor conductividad, orientados a lo largo de las direcciones  $x$  e  $y$  del material (caso de total orientación), en esta situación el factor  $\gamma_{ab}^{xy} = \frac{1}{2}$  y por ende  $\gamma_c^z = 0$ , que al sustituirlo en la ecuación (8) el factor  $f_{xy}$  se iguala a la unidad. Y si también se sustituye esta condición en la ecuación (21) se obtiene

$$\mu = \frac{[n_z(\mu) - 3] \alpha_{str}^{xx}(p)}{[n_z(\mu) - 1] \alpha_{str}^{zz}(p)} \quad (22)$$

En la expresión anterior se observa que para materiales que cumplan con la condición de total orientación, la anisotropía de ellos va a depender sólo de la porosidad y del tamaño de los cristales. Esto se encuentra en total acuerdo con la situación física en cuestión.

Si se calcula la ecuación (22) con respecto a la concentración de poros  $p$  tomados como argumentos, y esta dependencia se grafica para cinco valores de  $a/c$  distin-

tos, entonces se obtienen los gráficos representados en la Figura 2, cuyos valores escogidos se exponen a continuación en la Tabla I

En el gráfico de la Figura 2 se observa como el material se vuelve mucho más anisótropo a medida que sea más poroso, ya que se muestra el gran aumento del coeficiente de anisotropía  $\mu$  cuando aumenta la concentración de poros  $p$ , sin embargo matemáticamente cuando  $p$  alcanza el valor de la unidad, se obtiene en la ecuación una indeterminación del tipo  $0/0$  la cual no tiene sentido físico. De igual manera obsérvese el amplio desplazamiento de las curvas de este gráfico hacia un aumento del coeficiente  $\mu$  a medida que la razón del tamaño de los granos  $a/c$  aumenta, de aquí se interpreta que para la condición de total orientación la anisotropía del compuesto esta estrechamente ligada al tamaño que presentan los cristales, y de ahí que esta aumente considerablemente a medida de que los granos sean mayores en proporción.

Ahora, si se considera que el compuesto en estudio prácticamente no presenta porosidad, o sea que  $p \approx 0$ , los factores  $\alpha_{str}^{xx}$  y  $\alpha_{str}^{zz}$  serán iguales a la unidad, por lo cual la ecuación (22) tomará la forma

$$\mu = \frac{[n_z(\mu) - 3]}{[n_z(\mu) - 1]} \quad (23)$$

Expresión de la cual se interpreta que para materiales que cumplan con la condición de total orientación y que a su vez no tengan defectos, entonces la anisotropía de ellos va a depender única y exclusivamente del tamaño de los cristales.

Se analizaron los dos casos extremos posibles, uno es el estado de total desalineación de los cristales o total desorden de orientación, donde el parámetro  $\gamma_{ab}^{xy} = 1/3$ , y el otro estado es el de total orientación con  $\gamma_{ab}^{xy} = 1/2$ . Si la muestra está en estados intermedios, o sea que  $\gamma_{ab}^{xy}$  se encuentra en un intervalo limitado por estos valores, entonces se hace necesario estudiar el comportamiento de la anisotropía del material con el cambio de los parámetros  $\gamma_{ab}^{xy}$ ,  $p$  y la razón de  $a/c$ . Para realizar esto se utiliza la expresión (21) la cual es lo suficientemente general como para realizar estos análisis.

Primeramente se procede al cálculo de la ecuación (21) tomando al factor  $\gamma_{ab}^{xy}$  como argumento de esta función, y se repite el cálculo para seis valores de  $p$  distintos manteniéndose a  $a/c$  constante, estos valores aparecen en la Tabla II. En la Figura 3 se presenta el gráfico correspondiente, en el cual se muestra el aumento de la anisotropía del material a medida de que el factor de probabilidad  $\gamma_{ab}^{xy}$  se acerca al valor que condiciona el total ordenamiento de orientación de los cristales, por lo que se interpreta de que el compuesto se vuelve más anisótropo a medida que los granos mejoran su alineación, esto es lógico de pensar, ya que una total orientación de los granos dispone que las propiedades eléctricas de la muestra tienden a ser semejantes o iguales a las del monocristal.

En la Figura 4 se observa también que la influencia de la porosidad se hace casi imperceptible mientras la concentración  $p$  se encuentra entre los valores menores

del orden de  $10^{-2}$ , pues se ve que el coeficiente  $\mu$  varía muy poco para el intervalo  $10^{-5} \leq p \leq 10^{-2}$ .

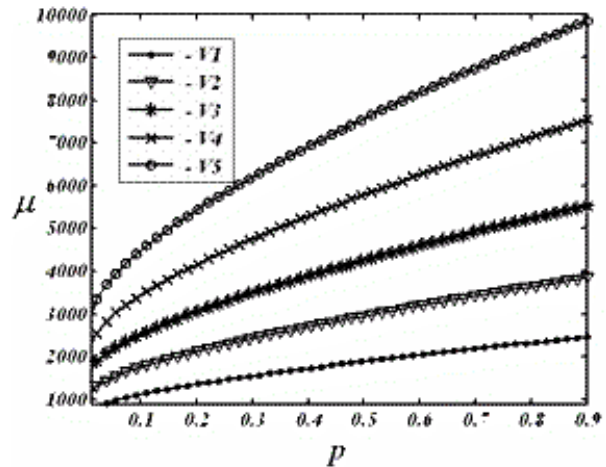


Figura 2. Gráfico correspondiente a la variación de la ecuación (29) en función de la concentración de poros para cinco valores distintos de  $a/c$ , y  $\gamma_{ab}^{xy} = 1/2$ .

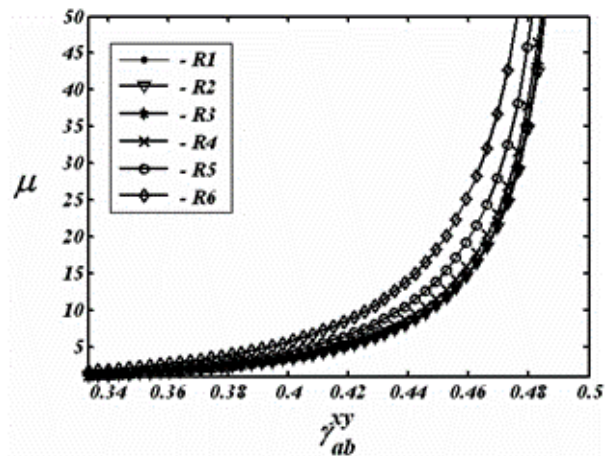


Figura 3. Gráfico correspondiente al cálculo de la ecuación (21) tomando a  $\gamma_{ab}^{xy}$  como argumento, variando a  $p$  seis veces y manteniendo constante a  $a/c=40$ .

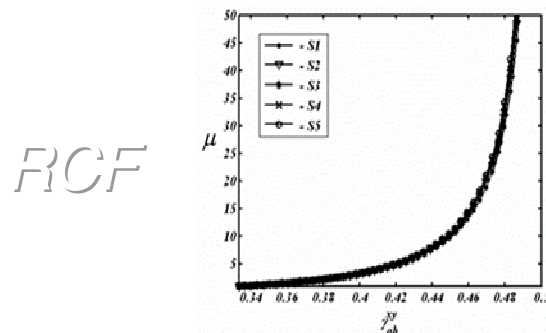


Figura 4. Gráfico correspondiente al cálculo de la ecuación (21) tomando a  $\gamma_{ab}^{xy}$  como argumento, variando a  $a/c$  cinco veces y manteniendo constante a  $p=0$ .

Esto quiere decir que la anisotropía del material para valores de concentración de poros en este orden es ma-

yormente debida a la manera en que estén orientados los cristales que debido a la existencia de poros, sin embargo ya para valores mayores que  $10^{-1}$ , se observa como la porosidad comienza a cobrar influencia sobre la anisotropía del material, pues para  $p = 10^{-1}$  y  $p = 5 \times 10^{-1}$  el valor de  $\mu$  comienza a aumentar, esto es lo que sucede en el gráfico de la Figura 3 cuando las curvas R5 y R6 se separan del resto, por lo que para estos valores de concentración de poros es que la anisotropía del material depende de la existencia de ellos y además de la manera en que estén orientados los granos.

Otro análisis se realiza al calcular nuevamente la expresión (21) en función de  $\gamma_{ab}^{xy}$ , pero ahora se considera que el material no tiene poros, o sea que  $p=0$ , pero con el interés de saber como varían estas curvas con un aumento de la razón  $a/c$ . En la Tabla III se exponen los valores escogidos para el cálculo y en la Figura 4 el resultado de los cálculos.

En los gráficos de la Figura 4 se puede ver nuevamente el aumento de la anisotropía del material con el aumento de la probabilidad  $\gamma_{ab}^{xy}$ , sin embargo a pesar de no poseer porosidad, se observa muy poca variación de la anisotropía con relación al aumento del tamaño de los cristales.

Comparando estos resultados con los resultados obtenidos en el análisis de la dependencia de la anisotropía del material con respecto al tamaño de los granos pero en el estado de total orientación, se puede decir que sólo en este estado es que las dimensiones de los cristales ejerce gran influencia sobre el aumento de la anisotropía del compuesto, no así para el estado donde existe cierto orden de orientación de los granos distinto al ordenamiento completo.

## 5 Conclusiones

Se realizó el estudio teórico correspondiente al caso general del comportamiento de la conductividad efectiva de los materiales SAT policristalinos anisótropos, donde se obtuvo una expresión analítica en la cual están presentes los efectos de la presencia de cierto orden de orientación de los granos caracterizados por el factor  $\gamma$ ; y se desarrolló otra donde interviene la influencia de la porosidad del material. Luego ambas expresiones se relacionaron utilizando el modelo empírico de percolación publicado en la literatura, del cual se logró combinar ambos efectos y quedó establecida una deducción teórica de los parámetros empíricos definidos en él, cosa que no existía hasta el momento. Esta expresión analítica donde aparecen reflejados ambos efectos combinados, contiene como caso particular la descripción de los materiales con isotropía ante la presencia de la incidencia de la corriente eléctrica. Finalmente se tiene un modelo más completo del cual se pueden estimar parámetros de la microestructura a través de mediciones de transporte en estos compuestos.

**Tabla III**

Valores escogidos de los parámetros  $a/c$  para el cálculo de la ecuación (21) con  $\gamma_{ab}^{xy}$  como argumento

$p=0$					
Indicador	S1	S2	S3	S4	S5
$a/c$	20	25	30	35	40

## Referencias

1. D. A. G. Bruggeman, "Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen", Ann. Phys. (Leipzig.) 24. 636 (1935).
2. R. Landauer, "The Electrical Resistance of Binary Metallic Mixtures", J. Appl. Phys. 23, 779 (1952).
3. J. Garner and D. Stroud, "Influence of macroscopic defects on transport in anisotropic conductors", Phys. Rev. B 25. 3199 (1982).
4. D. Stroud, "Generalized effective-medium approach to the conductivity of an inhomogeneous material", Phys. Rev. B 12. 3368 (1975).
5. A. Díaz, J. Maza, Félix Vidal, "Anisotropy and structural-defect contributions to percolative conduction in granular copper oxide superconductors", Phys. Rev. B 55. 1209 (1997).
6. E. Govea-Alcaide, P. Muné, R. F. Jardim, "Normal-State Properties of Uniaxially Pressed  $\text{Bi}_{1.65}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\Delta}$  Ceramics". Brazilian Journal of Physics, 35. 680 (2005).
7. H. Hilgenkamp and J. Mannhart, "Grain boundaries in high- $T_c$  superconductors", Rev. Mod. Phys. 74. 485 (2002).
8. J. W. Ekin, A. I. Braginski, A. J. Panson, M. A. Janocko, D. W. Capone, N. J. Zaluzec, B. Flandermeyer, O. F. de Lima, M. Hong, J. Kwo, and S. H. Liou, "Evidence for weak link and anisotropy limitations on the transport critical current in bulk polycrystalline  $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ ", J. Appl. Phys. 62. 4821 (1987).
9. H. K. Liu, Y. C. Guo, and S. X. Dou, "Effect of uniaxial pressing on  $J_c$  in Ag-sheathed Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O tapes", Physica B 194. 1931 (1994).
10. H. K. Liu, W. M. Chen, A. Poluianski, Y. C. Guo, G. MacCaughy, S. X. Dou, D. Larbalestier and M. Apperley, "The effect of intermediate deformation processing on  $J_c$  of Ag/Bi-2223 tapes", Physica C 341. 2547 (2000).
11. W. M. Chen, Y. C. Guo, G. MacCaughy, M. Apperley, H. K. Liu, and S. X. Dou, "Effect of various mechanical deformation techniques on critical current densities of Ag/Bi-2223 tapes", Physica C 354. 349 (2001).
12. T. T. Tan, S. Li, H. Cooper, W. Gao, H. K. Liu and S. X. Dou, "Characteristics of micro-texture and meso-texture in  $(\text{Bi}, \text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$  superconducting tapes", Supercond. Sci. Technol. 14. 471 (2001).
13. P. Mune, E. Govea-Alcaide, and R. F. Jardim, "Influence of the compacting pressure on the dependence of the critical current with magnetic field in polycrystalline  $(\text{Bi}-\text{Pb})_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  superconductors", Physica C 384. 491 (2003).
14. M. Gurvitch and A. T. Fiory, "Resistivity of  $\text{La}_{1.825}\text{Sr}_{0.175}\text{CuO}_4$  and  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  to 1100 K: Absence of saturation and its implications", Phys. Rev. Lett. 59. 1337 (1987).
15. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Course of Theoretical Physics* (Pergamon, Oxford, 1963), Vol. 8 Chap. 1, Sec.4. pp. 25-33.
16. David J. Bergman and David G. Stroud, "High-field magnetotransport in composite conductors: Effective-medium approximation", Phys. Rev. B 62. 6603 (2000).



## Interacción dipolar magnética en películas ultradelgadas

H. León\* y E. Estévez Rams

Instituto de Ciencia y Tecnología de Materiales. Universidad de La Habana. Zapata e/ Mazón y G. Vedado. 10400 La Habana. Cuba; hleon@imre.oc.uh.cu

\* autor para la correspondencia:

Recibido el 15/7/2008. Aprobado en versión final el 08/10/2009.

**Sumario.** Las películas ultradelgadas son importantes para la comprensión de las interacciones magnéticas en cristales cuasibidimensionales. Para calcular la energía de anisotropía dipolar se emplea un formalismo que tiene presente el carácter discreto de la distribución de capas atómicas a lo largo de la dirección de crecimiento. Se presentan resultados numéricos para estructuras con empaquetamientos compacto y no compacto. Se investigan los efectos estructurales y de tamaño. Se comparan estos resultados con la anisotropía efectiva, verificando así el papel de la interacción dipolar en la reorientación de la magnetización al cambiar el espesor de la película.

**Abstract.** Ultrathin films are an important testing ground of our understanding of magnetic interactions in quasi-two-dimensional systems. A formalism that takes into account the discreteness of atomic layer distribution along the growth direction is employed to calculate the dipolar anisotropy energy. Numerical results are presented for close-packed and non-close packed structures. Structural and size effects are investigated. Comparison with effective anisotropy energy allows verify the role of the dipolar interaction in the magnetization switching when the film thickness is changed.

**Palabras clave.** Magnetic anisotropy, 75.30.Gw; Magnetic films properties of, 75.70.-i

### 1 Introducción

Las películas ultradelgadas de materiales magnéticos tienen aplicaciones tecnológicas entre las que se destacan las asociadas con dos configuraciones: la plana, con magnetización paralela a sus caras, y la perpendicular, con magnetización perpendicular a sus caras. Por otra parte, estas películas son importantes para la comprensión de las interacciones magnéticas en cristales cuasibidimensionales (Q2D), donde solo hay simetría bidimensional (2D) de la estructura. Un estudio fundamental requiere al menos de un Hamiltoniano clásico<sup>1</sup>, que refleje el aporte de las interacciones de intercambio, magneto-cristalina y dipolar al establecimiento del estado básico de tales sistemas. La interacción dipolar ha sido objeto de tales estudios en varios trabajos<sup>2,3</sup>, pero aspectos como la correcta separación entre los aportes de la estruc-

tura y de la forma del sistema a la energía quedan aún sin resolver.

En este trabajo se tiene presente el carácter discreto de la distribución de capas atómicas a lo largo de la dirección de crecimiento empleando un formalismo introducido anteriormente<sup>4</sup>. De esta manera se consigue una clara distinción entre los llamados efectos estructurales y efectos de tamaño en la interacción dipolar magnética, así como se explica la dependencia de ambos efectos del espesor de las películas. Se presentan resultados numéricos de la anisotropía dipolar en películas de pocas capas atómicas con empaquetamientos compacto y no compacto, analizando el papel de la relación entre la distancia entre capas y la constante de la red bidimensional. Se estudia la influencia de la relación entre el tamaño lateral y el espesor de películas con una geometría de amplio uso en experimentos. Se comparan estos resultados con la

anisotropía efectiva, que incluye la interacción espín-órbita y otras de origen no dipolar, en películas de níquel y de cobalto, donde tienen lugar reorientaciones de la magnetización al cambiar sus espesores.

## 2 Fundamento teórico

Consideramos que cada capa atómica está compuesta por dipolos de momentos magnéticos  $\mathbf{m}$  localizados en los nodos  $\boldsymbol{\tau}$  de una red 2D con vectores base  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}$ . La magnetización se define como  $\mathbf{M} = \mathbf{m}/V_d$ , donde el volumen de una celda que encierra a cada dipolo es  $V_d = \mathbf{a} \times \mathbf{b} \cdot \mathbf{c}$ , siendo  $\mathbf{c}$  un vector perpendicular a las capas cuyo módulo es igual a la separación entre ellas.

Cuando la magnetización es homogénea, la densidad media de energía dipolar está dada por:

$$U = -\frac{\mu_0}{2N} \sum_{n=0}^{N-1} \mathbf{M} \cdot [\mathbf{L}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_n) - D_{av}(\mathbf{c}_l - \mathbf{c}_n)] \mathbf{M},$$

donde  $\mu_0$  es la permeabilidad magnética del vacío y  $N$  el número de capas atómicas. Aquí  $\mathbf{R}_n = \mathbf{c}_n + \mathbf{r}_{sn}$ , siendo  $\mathbf{c}_n$  la posición de la capa  $n$ , cuyos nodos están desplazados lateralmente  $\mathbf{r}_{sn}$  respecto a los de la de referencia. Se han introducido los tensores Q2D de Lorentz y de demagnetización definidos como:

$$\mathbf{L}(\mathbf{r}) = \frac{V_d}{4\pi} \nabla \nabla \sum_{\boldsymbol{\tau}} \left[ |\mathbf{r} - \boldsymbol{\tau}|^{-1} - A_d^{-1} \int_{A_d} |\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}|^{-1} d^2 \boldsymbol{\rho} \right],$$

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}) = \frac{V_d}{4\pi} \nabla \nabla \left[ A_d^{-1} \int_A |\mathbf{r} - \boldsymbol{\rho}|^{-1} d^2 \boldsymbol{\rho} \right],$$

donde  $A_d = |\mathbf{a} \times \mathbf{b}|$  es el área de la celda 2D que encierra a cada dipolo. El subíndice "av" indica que se ha tomado el valor medio de  $\mathbf{D}(\mathbf{r})$  en el área  $A$  de la capa atómica.

La energía de anisotropía dipolar se calcula como:

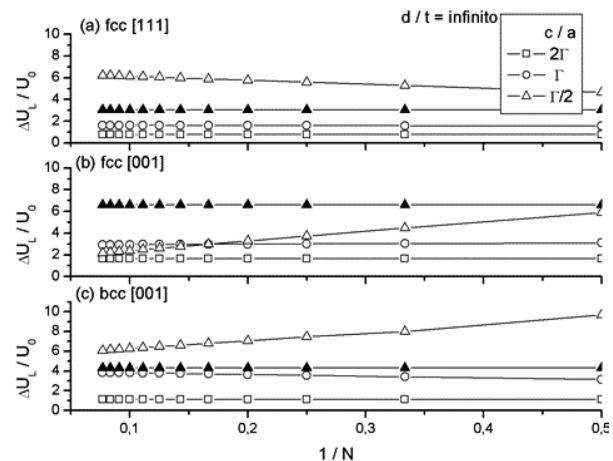
$$\Delta U = U_{out} - U_{in},$$

donde  $U_{out}$  corresponde a la magnetización perpendicular y  $U_{in}$  a la paralela a las caras de la película. Así, cuando  $\Delta U$  es positiva, el sistema tiene una configuración plana, mientras que cuando es negativa, el sistema tiene una configuración perpendicular. Fácilmente se entiende que hay un aporte  $\Delta U_L$  relacionado con la estructura cristalina de la película, dado por el tensor Q2D de Lorentz y otro  $\Delta U_D$  debido a la forma lateral de la misma, dado por el tensor Q2D de demagnetización, el cual se hace nulo cuando las dimensiones laterales son infinitas. Los llamados efectos estructurales tienen que ver con el primer aporte, y se observan fácilmente cuando la razón estructural  $c/a$  es suficientemente pequeña; mientras que los efectos de tamaño tienen que ver con la relación  $d/t$  entre la dimensión lateral característica  $d$  (lado de un cuadrado, diámetro de una circunferencia u otro) y el espesor  $t$  de la película.

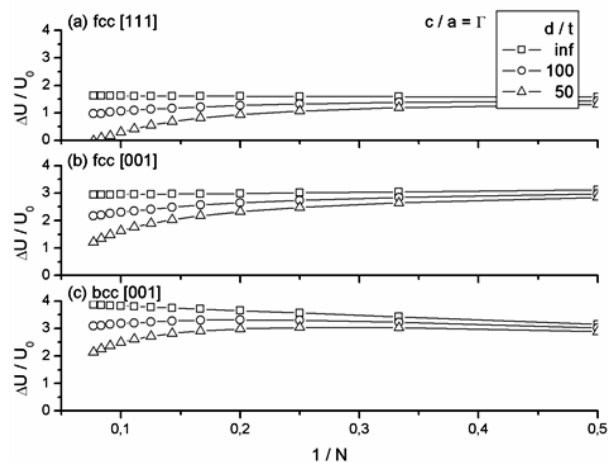
## 3 Resultados numéricos

Consideraremos capas atómicas apiladas siguiendo un

empaquetamiento compacto, en el cual la red 2D en cada una de ellas tiene simetría hexagonal; a su vez estas capas pueden estar desplazadas respecto a una de referencia solo en tres posiciones distintas A, B y C. Así, la secuencia ABAB... no es más que el cristal hexagonal con empaquetamiento compacto (hcp) crecido en la dirección [0001]; mientras que la secuencia ABCABC... corresponde al cristal cúbico centrado en las caras (fcc) crecido a lo largo de la dirección [111]. También simularemos capas atómicas apiladas siguiendo un empaquetamiento no compacto, en el cual la red 2D en cada una de ellas tiene simetría cuadrada; a su vez estas capas pueden estar desplazadas respecto a una de referencia también en tres posiciones distintas, pero con corrimientos diferentes entre sí y distintos a los del empaquetamiento compacto. Así, el cristal fcc y el cúbico centrado en el cuerpo (bcc) crecidos a lo largo de la dirección [100] son secuencias del tipo ABAB....



**Figura 1.** Energía de anisotropía dipolar (símbolos abiertos) en función del inverso del número de capas cuando las dimensiones laterales son infinitas ( $\Delta U_D = 0$ ). El aporte intracapa se muestra para  $c/a = \Gamma/2$  (triángulos rellenos).



**Figura 2.** Energía de anisotropía dipolar en función del inverso del número de capas, cuando las dimensiones laterales son infinitas o finitas en películas de geometría cuadrada.

Los cálculos se hacen para la relación ideal correspondiente a esferas rígidas  $c/a=\Gamma$  (en cualquier empaquetamiento compacto  $\Gamma = (2/3)^{1/2}$  y en las secuencias no compactas consideradas  $\Gamma=1/2$ ), así como para múltiplos o fracciones de ésta. Las energías están normalizadas por  $U_0 = \mu_0 M_0^2 / 2$ , donde  $M_0 = m / (A_d a)$ . Los valores obtenidos resultan del aporte intracapa, debido a la interacción de dipolos pertenecientes a la misma capa exclusivamente, y del aporte intercapa, debido a la interacción de dipolos que se encuentran en distintas capas.

En la Figura 1 aparece  $\Delta U_L$  vs.  $1/N$  (símbolos abiertos) para  $c/a = 2\Gamma, \Gamma, \Gamma/2$ . Los resultados se muestran para películas con estructuras fcc [111] (a), fcc [100] (b), y bcc [100] (c). Se aprecia una dependencia lineal, cuya pendiente depende de  $c/a$ . Si se compara con el aporte intracapa (línea de pendiente nula, sólo representada para  $c/a=\Gamma/2$ ), se comprende que el aporte intercapa es responsable de la pendiente en tal dependencia. Los efectos estructurales se revelan al comparar las líneas para diferentes estructuras, detectando distintas pendientes para un mismo valor de  $c/a$ .

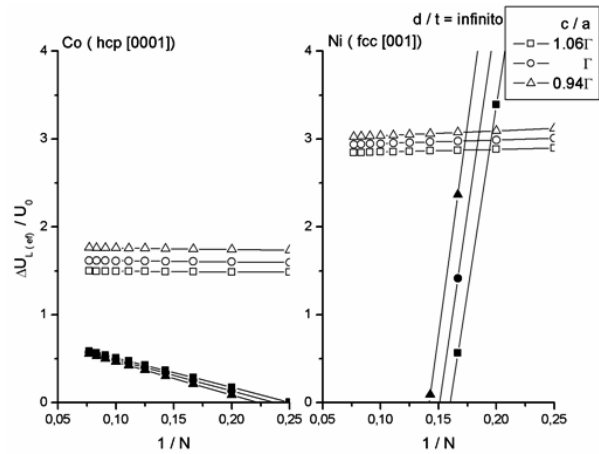
La Figura 2 muestra  $\Delta U$  vs.  $1/N$  para  $d/t = \infty, 100, 50$ . Los resultados aparecen para películas con las mismas estructuras que en la Fig. 1. Se tomó  $c/a = \Gamma$  para saber su influencia, ya discutida, y distinguir los efectos de tamaño. Se aprecia una separación de la dependencia lineal, la cual se hace más pronunciada mientras más pequeña es la relación  $d/t$ .

En la Figura 3 se muestran  $\Delta U_L$  (símbolos vacíos) y la energía de anisotropía efectiva  $\Delta U_{ef}$  (símbolos rellenos) en dependencia de  $1/N$  para películas de cobalto (a) y níquel (b). Los cálculos de  $\Delta U_{ef}$  se hicieron de acuerdo a las expresiones empíricas y los datos de magnetización de saturación y otros de las refs. [5,6], así como valores realistas de la razón estructural. El cambio de configuración magnética ocurre cuando  $\Delta U_{ef}=0$ . Nuestros resultados coinciden con los experimentales cuando  $c/a = 0.94\Gamma$ , valor que corresponde a las distorsiones tetragonales reportadas en esos trabajos. Así, a medida que el número de capas aumenta, tiene lugar la reorientación de la magnetización de perpendicular a plana cuando  $N=4.5$  en el Co, como en la ref. [5], y de plana a perpendicular cuando  $N=7$  en el Ni, como en la ref. [6], lo cual avala nuestro modelo para la influencia de la razón  $c/a$ .

## 4 Conclusiones

Los efectos estructurales demuestran que a pesar del largo alcance de la interacción dipolar, el número de ca-

pas con un aporte significativo a la anisotropía dipolar, convencionalmente llamadas capas acopladas, es limitado y depende de la razón estructural. Los efectos de tamaño se hacen más pronunciados a medida que disminuye la relación entre la dimensión lateral característica y el espesor de la película. Se verifica que la interacción dipolar contribuye a la anisotropía efectiva, pero la pendiente de la dependencia lineal, que fija en definitiva los valores a los que ocurre la reorientación de la magnetización, es debida a otras contribuciones de origen distinto, en concordancia con conclusiones anteriores que atribuyen a los efectos superficiales en la interacción espín-órbita y otras la responsabilidad por el cambio de configuración magnética.



**Figura 3.** Energías de anisotropía dipolar (símbolos abiertos) y anisotropía efectiva (símbolos rellenos) en función del inverso del número de capas cuando las dimensiones laterales son infinitas.

## Referencias

1. K. De'Bell, A.B. MacIsaac, and J.P. Whitehead, Rev. Mod. Phys. **72**, 225 (2000)
2. H.J.G. Draaisma and W.J.M. de Jonge, J. Appl. Phys. **64**, 3610 (1988)
3. E. Y. Vedmedenko, H. P. Oepen and J. Kirschner, J. Magn. Magn. Mater., **256**, 237 (2003)
4. E. Estevez-Rams, J. Martinez-Garcia, J. Martinez-Garcia, J. Hiram-Espina, and H. Fuess, Rev. B **68**, 184410 (2003)
5. R. Allenspach, M. Stampanoni, and A. Bischof, Phys. Rev. Lett. **65**, 3344 (1990)
6. B. Schulz and K. Baberschke, Phys. Rev. B **50**, 13467 (1994)

## Ondas acústicas en un fluido viscoso y rotatorio; difracción en una ranura

José Marín Antuña<sup>a</sup>, Javier Pardo Vega<sup>b</sup>

a) Facultad de Física, Universidad de La Habana. marin@fisica.uh.cu†

b) Facultad de Física, Universidad de La Habana

†autor para la correspondencia

Recibido el 1/02/2009. Aprobado en versión final el 20/07/2009

**Sumario.** Se describe la obtención de una ecuación no clásica en derivadas parciales de séptimo orden para describir las oscilaciones pequeñas en un fluido viscoso, rotatorio y compresible. A partir de las relaciones de dispersión de las ondas planas en tal fluido se sacan conclusiones sobre las características físicas de la propagación de las ondas en ese medio. Para un caso particular de fluidos ideales rotatorios, se estudia la difracción de una onda estabilizada en una ranura sumergida en el fluido.

**Abstract.** We describe the deduction of a non-classical seventh order partial differential equation to describe small oscillations in a viscous rotating compressible fluid. Starting from the dispersion relations of plane waves in such a fluid we conclude the physical characteristics of the wave propagation in that fluid. For a particular case of ideal rotating fluids we study the diffraction of a steady-state wave in a slot in the fluid.

**Palabras clave.** Hydrodynamics, applied fluid mechanics, 47.85.Dh, Partial differential equations, 02.30.Jr, Diffraction acoustical, \*43.20.Fn.

### 1 Introducción

En la Hidrodinámica ha aparecido en los últimos tiempos un creciente interés por el estudio de los fluidos rotatorios<sup>1</sup>, asociados a los modelos de estrellas y otros cuerpos celestes, así como también a modelos del propio universo<sup>2</sup>. En el artículo que aquí presentamos se hace un estudio físico matemático de ecuaciones no clásicas para la descripción de ondas de pequeña amplitud en fluidos rotatorios viscosos e ideales. La complejidad de las ecuaciones, que resultan ser ecuaciones en derivadas parciales de séptimo orden para los fluidos viscosos rotatorios compresibles y de cuarto orden para los ideales rotatorios compresibles, respectivamente, hace pensar inicialmente en dificultades insalvables para su solución analítica, o siquiera para el estudio de las propiedades

esenciales de las ondas en tales medios, que pueden abordarse a partir del estudio de las relaciones de dispersión.

Sin embargo, con la ayuda de operaciones matemáticas convenientemente aplicadas se logra estudiar los procesos de propagación de ondas en tales medios y describir adecuadamente incluso los procesos de difracción ante determinadas barreras. En el artículo presentamos un análisis de las relaciones de dispersión en fluidos viscosos rotatorios compresibles y un ejemplo de la difracción de Fraunhofer de una onda plana en una ranura sumergida en un fluido ideal rotatorio compresible. El tema tratado en este artículo tiene importancia en la actualidad, debido a la posibilidad de modelación de problemas relacionados con la física de las estrellas y del

cosmos. Algunas ideas para un desarrollo ulterior de esta línea se esbozan al final del trabajo.

## 2 Ecuación de las ondas acústicas

Consideremos un fluido viscoso y compresible rotando como un todo con velocidad angular constante  $\alpha/2$  alrededor de un eje dado. El movimiento del fluido está referido a un sistema cartesiano de coordenadas  $(x_1, x_2, x_3)$  que rota junto con el fluido. El eje  $Ox_3$  está dirigido a largo del eje de rotación, y se consideran pequeñas oscilaciones de la presión y la densidad alrededor de su valor de equilibrio cuando el fluido está en reposo, que representan las ondas acústicas.

Las ecuaciones que gobiernan los movimientos en tal fluido son:

La ecuación de Navier Stokes:

$$\frac{\partial \bar{v}}{\partial t} + (\bar{v} \cdot \nabla) \bar{v} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{\eta}{\rho} \nabla^2 \bar{v} + \frac{1}{\rho} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) \nabla (\nabla \cdot \bar{v}) + \bar{f} \quad (1)$$

La ecuación de continuidad:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \bar{v}) = 0 \quad (2)$$

La ecuación de estado:

$$p = p(\rho, s) \quad (3)$$

Considerando procesos isentrópicos, se puede obtener para la ecuación de continuidad la expresión

$$\frac{1}{c^2} \frac{dp}{dt} + \rho \nabla \cdot \bar{v} = 0 \quad (4)$$

donde

$$c^2 = \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_s \quad (5)$$

y  $c$  tiene el sentido físico de la velocidad del sonido en el fluido. Expresamos la presión y la densidad como la suma de su valor en ausencia de la onda sonora ( $p_0$  y  $\rho_0$ ), más las pequeñas perturbaciones ( $p'$  y  $\rho'$ ) debido a esta

$$p = p_0 + p', \quad \rho = \rho_0 + \rho'$$

con  $p' \ll p_0$  y  $\rho' \ll \rho_0$ . Se tomarán como cantidades de primer orden de pequeñez a  $p'$ ,  $\rho'$  y  $\bar{v}$ , y se despreciarán los términos de orden superior. Además, para poder despreciar el término no lineal en la ecuaciones de Navier-Stokes, se exige que la velocidad de las partículas del fluido en la onda sea mucho menor que la velocidad de fase de la onda.

Se obtiene el sistema de ecuaciones linealizadas que describen las oscilaciones pequeñas en el fluido viscoso rotatorio compresible:

$$\frac{\partial \bar{v}}{\partial t} + \bar{\alpha} \times \bar{v} + \frac{1}{\rho_0} \nabla p' - \frac{\eta}{\rho_0} \nabla^2 \bar{v} - \frac{1}{\rho_0} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) \nabla (\nabla \cdot \bar{v}) = 0 \quad (6)$$

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial p'}{\partial t} + \rho_0 \nabla \cdot \bar{v} = 0 \quad (7)$$

En lo adelante se denotará a  $p'$  y  $\rho_0$  como  $p$  y  $\rho$  para simplificar la notación.

Operando con estas ecuaciones se llega a la expresión

$$\frac{1}{c^2} \hat{O}^3 \frac{\partial p}{\partial t} - \hat{O}^2 \hat{N} \nabla^2 p + \frac{\alpha^2}{c^2} \hat{O} \frac{\partial p}{\partial t} - \alpha^2 \hat{N} \frac{\partial^2 p}{\partial x_3^2} = 0 \quad (8)$$

donde los operadores que aquí aparecen son:

$$\hat{O} = \left[ \frac{\partial}{\partial t} - \frac{\eta}{\rho} \nabla^2 \right] \quad \text{y} \quad \hat{N} = \left[ 1 + \frac{1}{\rho c^2} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) \frac{\partial}{\partial t} \right] \quad (9)$$

La ecuación (8) también la satisface las pequeñas variaciones de la densidad.

## 3 Casos particulares

Como casos particulares de la ecuación (8) tenemos que, si consideramos un fluido ideal rotatorio, es decir, si despreciamos los coeficientes de viscosidad ( $\xi=0$ ,  $\eta=0$ ), (8) se reduce a

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \left[ \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} - \nabla^2 p + \frac{\alpha^2}{c^2} p \right] - \alpha^2 \frac{\partial^2 p}{\partial x_3^2} = 0 \quad (10)$$

La cual coincide con la ecuación cuya deducción fue publicada en la referencia [1]. Como se aprecia, es una ecuación no clásica de cuarto orden en derivadas parciales que satisfacen tanto la presión dinámica del fluido, como las componentes de la velocidad de las partículas del fluido. Para fluidos viscosos no rotatorios ( $\alpha=0$ ) la ecuación (8) se transforma en la ecuación

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \left[ \frac{\partial p}{\partial t} - M \nabla^2 p \right] - \nabla^2 p = 0 \quad (11)$$

donde  $M$  es el parámetro fundamental de viscosidad y lo definimos como

$$M = \frac{1}{\rho} \left( \xi + \frac{4\eta}{3} \right) \quad (12)$$

La ecuación (11) fue publicada por J. Marín y O. Sotolongo<sup>3</sup>. En el caso de un fluido ideal en ausencia de rotación ( $\alpha=0$ ,  $\xi=0$ ,  $\eta=0$ ), (8) se transforma en la conocida ecuación de las ondas en un medio:

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} - \nabla^2 p = 0 \quad (13)$$

como era de esperar.

## 4 Relaciones de dispersión

A fin de estudiar las características de la propagación de las ondas acústicas en un fluido viscoso rotatorio cuyos movimientos se describen mediante la ecuación (10), propongamos una solución en forma de una onda monocromática plana

$$p = \tilde{p} \exp \left[ i(\vec{k} \cdot \vec{r}) - \omega t \right] \quad (14)$$

donde  $\vec{k}$  es el vector de onda,  $\omega$  es la frecuencia y  $\tilde{p}$  es la amplitud.

La relación de dispersión que se obtiene es

$$\frac{\omega}{c^2} O^3 + ik^2 O^2 N + \omega \frac{\alpha^2}{c^2} O + i\alpha^2 N k^2 \cos^2 \theta = 0 \quad (15)$$

donde  $O$  y  $N$  se expresan por

$$O = \left[ \frac{\eta}{\rho} k^2 - i\omega \right] \quad \text{y} \quad N = \left[ 1 - \frac{i\omega}{\rho c^2} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) \right]$$

Hemos llamado  $\theta$  al ángulo que forma el vector de onda con el eje de rotación del fluido.

La ecuación (15) es una ecuación algebraica de tercer grado en  $k^2$  por lo que tiene 6 raíces, tres de las cuales dan resultados sin sentido físico, pues en un medio viscoso la amplitud de la onda que se propaga no puede ser creciente, por lo que las desechamos. De esta manera tenemos tres modos posibles  $k = k(\omega)$  de propagación de las ondas en el fluido viscoso rotatorio compresible. La ecuación (15) debe tratarse numéricamente porque su solución analítica es de difícil interpretación.

La relación de dispersión (15) contiene como casos particulares la relación de dispersión de fluido ideal rotatorio [1] y de un fluido viscoso sin rotación [3]. La rotación del fluido ejerce su mayor influencia en la propagación de la onda sonora para frecuencias del orden de velocidad angular de rotación y menores, y es despreciable cuando  $\omega \gg \alpha$ . Mientras que la viscosidad es despreciable para frecuencias tales que  $\omega \ll \frac{\rho c^2}{\xi}$  y  $\omega \ll \frac{\rho c^2}{\eta}$ ,

y su influencia es notable para frecuencias que cumplan  $\omega \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) \sim \rho c^2$  o  $\omega \eta \sim \rho c^2$ , y mayores.

La razón entre los parámetros del fluido, determinará su comportamiento cualitativo en la propagación de las ondas acústicas. El segundo coeficiente de viscosidad  $\xi$  es usualmente del mismo orden de magnitud que el coeficiente de viscosidad, lo cual se tendrá en cuenta para el análisis de la relación de dispersión. Entonces, puede suceder que  $\frac{\alpha \eta}{\rho c^2} \ll 1$ ,  $\frac{\alpha \eta}{\rho c^2} \sim 1$  o  $\frac{\alpha \eta}{\rho c^2} \gg 1$ . Sea  $\tau$  el tiempo característico de propagación de la onda sonora y se define las magnitudes adimensionales  $\kappa = kc\tau$  y  $\gamma = \omega\tau$ .

Para  $\frac{\alpha \eta}{\rho c^2} \ll 1$  (Figuras 1 y 2) tenemos que para ondas con frecuencias tales que  $\frac{\omega \eta}{\rho c^2} \sim 1$  o mayores, la rotación deja de ser importante, y predomina una de las relaciones  $k = k(\omega)$  que tiene un comportamiento similar al de un fluido viscoso no rotatorio. En caso de frecuencias que cumplan  $\omega/\alpha \gg 1$  y  $\frac{\omega \eta}{\rho c^2} \ll 1$  tanto la rotación como la viscosidad son poco relevantes y prevalece una relación del tipo  $k = \omega/c$ . Si  $\omega/\alpha > \cos \theta$  y  $\omega/\alpha$  no es mucho mayor que 1, impera una de las funciones  $k = k(\omega)$  con las características de un fluido ideal rota-

torio (las otras dos se amortiguan rápidamente).

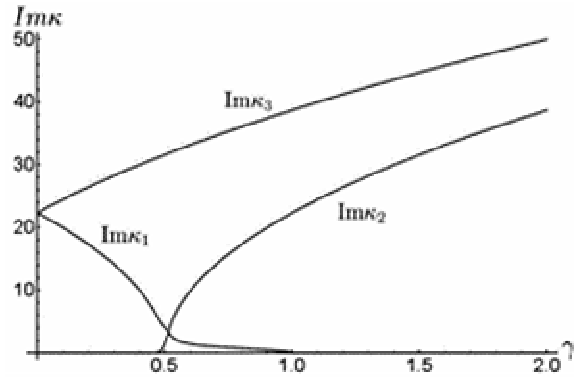


Figura 1. Parte real de los modos  $k = k(\omega)$  para

$$\frac{1}{\rho c^2 \tau} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) = 4 \cdot 10^{-3}, \quad \frac{\eta}{\rho c^2 \tau} = 3 \cdot 10^{-3}, \quad \alpha \tau = 1 \quad \text{y} \quad \theta = \frac{\pi}{3}$$

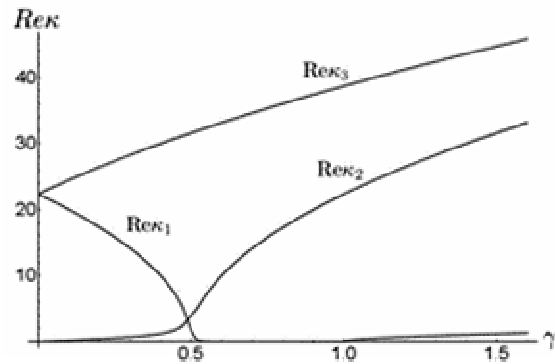


Figura 2 Parte imaginaria de los modos  $k = k(\omega)$  para

$$\frac{1}{\rho c^2 \tau} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) = 4 \cdot 10^{-3}, \quad \frac{\eta}{\rho c^2 \tau} = 3 \cdot 10^{-3}, \quad \alpha \tau = 1 \quad \text{y} \quad \theta = \frac{\pi}{3}$$

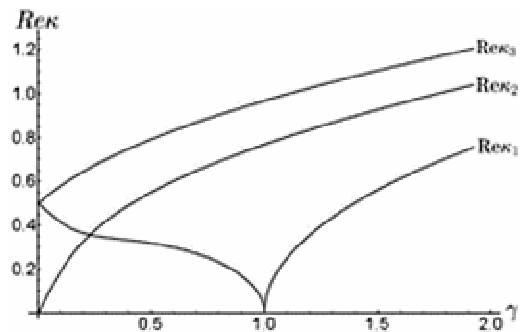


Figura 3 Relación de dispersión (parte real) para

$$\frac{1}{\rho c^2 \tau} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) = 4/3, \quad \frac{\eta}{\rho c^2 \tau} = 1, \quad \alpha \tau = 1 \quad \text{y} \quad \theta = \frac{\pi}{6}$$

Para  $\omega/\alpha \sim \cos \theta$ , principalmente con  $\omega/\alpha < \cos \theta$  la propagación de las ondas acústicas es distintiva de un fluido viscoso y rotatorio. En los fluidos ideales rotatorios se observa que para estas frecuencias la curva  $k = k(\omega)$  presentaba una divergencia [1]. Pero esto no

ocurre aquí, porque incluso para viscosidad muy pequeña, esta ejerce una influencia notable en esta región de frecuencias. No puede existir esta divergencia porque ello implicaría gradientes demasiado pronunciados, lo cual es contrarrestado por la viscosidad. Por último, si  $\omega/\alpha \ll \cos \theta$  prepondera una de las funciones  $k = k(\omega)$  con las características de un fluido ideal rotatorio.

Cuando  $\frac{\alpha\eta}{\rho c^2} \sim 1$  (Figuras 3 y 4) o  $\frac{\alpha\eta}{\rho c^2} \gg 1$ , resulta que para frecuencias que satisfacen la condición  $\omega/\alpha \gg 1$ , el medio se comporta como un fluido viscoso no rotatorio, aunque estas ondas se amortiguan rápidamente. Para frecuencias que cumplan  $\frac{\omega\eta}{\rho c^2} \ll 1$  y  $\omega/\alpha \ll \cos \theta$  la viscosidad no ejerce mucha influencia. Las ondas con las frecuencias restantes presentan el comportamiento propio de un fluido viscoso y rotatorio.

En general la onda sonora será una superposición de las tres relaciones  $k = k(\omega)$ .

## 5 Difracción de una onda plana en una ranura en un fluido ideal rotatorio

Como una aplicación sencilla de las ecuaciones estudiadas, proponemos el estudio de la difracción de una onda del tipo

$$u(\bar{x}, t) = \theta(t - x_1) e^{i(kx_1 - \alpha t)}$$

en donde  $\theta(t)$  es la función de Heaviside de paso unitario que define un frente de onda que viaja de izquierda a derecha en el fluido rotatorio cuyos movimientos se describen por la ecuación (10). Aquí  $u(x, t)$  tiene el sentido físico de la componente del vector de velocidad de las partículas del fluido en la dirección del eje  $Ox_1$ , además se supone que  $\omega > \alpha$ . Coloquemos en el fluido una barrera  $\Gamma_1 \Gamma_2$  que definen una ranura en ella de ancho  $l$ , como se muestra en la figura 4.

A fin de simplificar los cálculos consideraremos el estado estacionario de la onda, cuando  $t \rightarrow \infty$ . Es posible ver que en el régimen estabilizado que se obtiene la onda adopta la expresión estabilizada

$$u(\bar{x}, t) = u(\bar{x}) e^{i\alpha t} \quad (16)$$

y la ecuación (10) se convierte para este régimen estabilizado en

$$\nabla^2 u - \frac{\alpha^2}{\omega^2} \frac{\partial^2 u}{\partial x_3^2} + \frac{\omega^2 - \alpha^2}{c^2} u = 0 \quad (17)$$

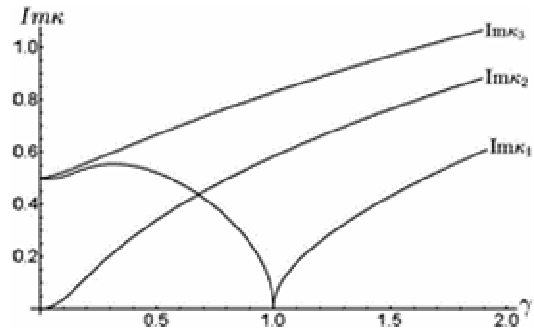
donde  $u$  es aquí la amplitud de las ondas estabilizadas.

La ecuación (17) permite un tratamiento sencillo mediante el cambio de variables siguiente:

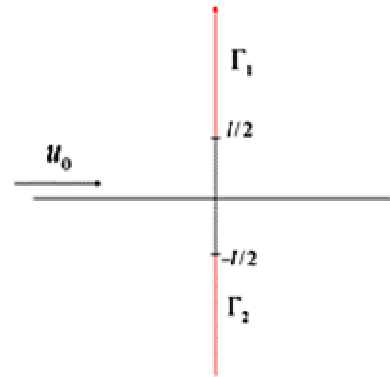
$$x'_1 = \sqrt{1 - \frac{\alpha^2}{\omega^2}} x_1, \quad x'_2 = \sqrt{1 - \frac{\alpha^2}{\omega^2}} x_2, \quad x'_3 = x_3$$

Entonces la ecuación en las variables primadas adopta la forma de la siguiente ecuación de Helmholtz:

$$\nabla'^2 u + \frac{\omega^2}{c^2} u = 0 \quad (18)$$

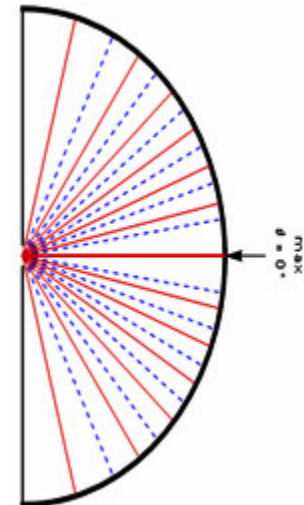


**Figura 4** Relación de dispersión (parte imaginaria) con parámetros  $\frac{1}{\rho c^2 \tau} \left( \xi + \frac{\eta}{3} \right) = 4/3$ ,  $\frac{\eta}{\rho c^2 \tau} = 1$ ,  $\alpha \tau = 1$  y  $\theta = \frac{\pi}{6}$



**Figura 4.** Ranura de ancho  $l$  en la pared  $\Gamma_1 \Gamma_2$  sumergida en el fluido ideal rotatorio compresible.

**Figura 5** Cuadro de difracción en la ranura de ancho  $l$ . Nótese el patrón en forma de elipse ►



En la ecuación (18) el laplaciano primado significa que las derivadas son calculadas con respecto a las variables  $x'_i$  con  $i=1,2,3$ . Un patrón típico de difracción dado por la solución del problema de difracción en la ranura puede verse en la figura 5.

Donde se aprecia que, a diferencia del cuadro de difracción en una ranura en un fluido no rotatorio, en el que se obtendría un cuadro de difracción esférico, aquí se obtiene un cuadro de difracción sobre una elipse detrás de la ranura, lo que se explica fácilmente por el cambio de variables realizado.

## 6 Conclusiones

En el tratamiento de los problemas de propagación de ondas en fluidos rotatorios nos enfrentamos a ecuaciones diferenciales en derivadas parciales no clásicas de cuarto y séptimo orden. Para determinadas geometrías y condiciones de régimen de ondas estabilizadas obtuvimos con facilidad el cuadro de difracción de tales ondas. En barreras de menor complejidad, tales como paredes simples sumergidas en el fluido hemos podido obtener los cuadros de difracción para etapas tempranas de la excitación de las ondas, bien lejos del estado estabilizado, lo que ha sido publicado en varios artículos anteriores<sup>6</sup> y otros. En trabajos futuros incluiremos campos magnéticos en los procesos descritos por estas ecuaciones a fin de lograr un acercamiento mayor al tema de la modelación de estrellas.

## Agradecimientos

Queremos agradecer a la Sociedad Cubana de Física y su revista la posibilidad de exponer estos resultados. Igual-

mente queremos agradecer a los colegas del Departamento de Física Teórica de la Facultad de Física de la Universidad de La Habana las interesantes discusiones sobre el tema durante las presentaciones del segundo autor de este trabajo en sus defensas de trabajo de curso y en la Jornada Científica Estudiantil de la carrera de Física.

## Referencias

1. J. Marín-Antuña, R. L. Hall, N. Saad, *Physics Letters A* 362 (2007) 57.
2. Y. D. Chashechkin, *International Conference on Boundary and Interior Layers BAIL 2004*, Toulouse, France, July 2004.
3. J. Marín, O. Sotolongo, *RCF* 11, 1 (1991) 11.
4. L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Fluid Mechanics*, second ed., Butterworth-Heinemann, 1987.
5. L. M. Brekhovskikh, V. Goncharov, *Mechanics of Continua and Wave Dynamics*, second ed., Springer Series on Wave Phenomena, Vol. 1, Springer-Verlag, New York, 1994.
6. S. A. Gabov, J. Marín-Antuña. *Moscow Univ. News*, 3, 26 (1985).



## Optimización de los patrones de campo cercano y lejano en láseres de $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$

Juan A. Martín, Elis Mon<sup>a</sup> y M. Sánchez<sup>b</sup>

Facultad de Informática, Universidad de Ciego de Ávila “Máximo Gómez Báez”, Carretera a Morón, Km 9, Ciego de Ávila, Cuba.

a) Universidad de Ciencias Informáticas, Carretera San Antonio, Km 2½ Torrens, Boyeros, La Habana, Cuba.

b) Facultad de Física, Universidad de La Habana, Cuba; maruchy@fisica.uh.cu†

†autor para la correspondencia

Recibido el 02/02/2009. Aprobado en versión final el 25/07/2009.

**Sumario.** En este trabajo se analiza la influencia del espesor de las capas  $n$  y  $p$ -GaN sobre los patrones de campo cercano y lejano de estructuras láser de  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  con pozos cuánticos múltiples (MQW). Se estudiaron estructuras con dos cavidades ópticas diferentes, la convencional de confinamiento separado con variación tipo escalón del índice de refracción (SCH-recta) y otra de índice gradado con variación parabólica del contenido de Al en las capas de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  (GRIN-SCH). Se encontró que con combinaciones adecuadas de los espesores de las capas de GaN las oscilaciones que aparecen en los patrones de campo cercano y lejano debido al insuficiente espesor de las capas cladding de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  pueden ser eliminadas, lo que representa una solución alternativa al problema tecnológico que existe para crecer capas anchas de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  con alto contenido de Al ( $x > 0.13$ ).

**Abstract.** In this work, the influence of the thickness of the  $n$  and  $p$ -GaN layers over near and far field patterns is analyzed for  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  multiquantum well (MQW) laser structures. Two different optical cavities were considered, the conventional step separate confinement heterostructure (SCH-recta) and a graded-index (GRIN-SCH) structure with a parabolic variation of the Al content in the  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  guide layers. We found that for specific combinations of the thicknesses of the GaN layers the undesired ripples in the near and far-field patterns due to the insufficient  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  cladding layer thickness can be eliminated, being this an alternative solution to the problem to growth thick  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  cladding layers with higher aluminium content ( $x > 0.13$ ).

**Palabras clave.** Diode lasers, 42.55.Px, Optical waveguides, 42.82.Et

### 1 Introducción

La entrada al mercado de láseres en base a  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  que emiten en la región de longitudes de onda corta (violeta-azul), ha permitido aumentar considerablemente la densidad de almacenamiento de datos en los discos ópticos. Sin embargo, estos dispositivos todavía están lejos de ser optimizados. Uno de los problemas es la dificultad para crecer capas *cladding* de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  con contenido de Aluminio  $x > 0.13$ <sup>1</sup> y lo suficientemente anchas para ga-

rantizar el confinamiento óptico necesario. Esto se debe a la diferencia de constante de red entre el  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  y el GaN. La utilización de capas *cladding* estrechas unida al uso de capas de contacto de GaN con alto índice de refracción provoca la aparición de modos transversales de orden superior indeseables en los patrones de campo lejano<sup>1,2</sup> y altas pérdidas ópticas debido a la penetración del campo óptico dentro del sustrato y la capa de contacto p-GaN.

La influencia del ancho de las capas *cladding* en los patrones de campo cercano (NFPs) y de campo lejano

(FFPs) ha sido estudiada por varios autores<sup>1, 3-6</sup> comprobándose que el aumento del ancho de estas mejora considerablemente las características de ambos al disminuir los efectos de las anti-guías que se forman en las capas de GaN<sup>1, 3</sup>, pero como se señaló con anterioridad debido a la diferente constante de red del AlN y del GaN no se pueden crecer capas anchas de Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N con altos contenidos de aluminio porque se relajan y aparecen dislocaciones<sup>1</sup>.

En [6] mediante simulación numérica demostramos que con pequeñas variaciones de los espesores del MQW es posible atenuar los efectos negativos de las anti-guías, siendo esta una de las formas de evitar crecer capas cladding muy gruesas. Sin embargo de esta manera puede variar la longitud de emisión de la estructura desviándose del valor deseado.

En este trabajo, se analiza mediante simulación numérica la influencia del espesor de las capas exteriores a la guía de ondas sobre los patrones de campo cercano y lejano en estructuras MQW de In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N con dos tipos de cavidad óptica, la típica con variación escalonada de índice de refracción (SCH-recta) y otra con variación gradual de este parámetro (GRIN-SCH). La comparación se hace en cuanto a factor de confinamiento y los patrones de campo cercano y lejano.

## 2 Estructura del diodo láser; parámetros usados en la simulación

En la figura 1 se representan esquemáticamente las estructuras simuladas, junto a los perfiles de índice de refracción correspondientes. Estas son, la estructura SCH-recta y la GRIN-SCH. La zona activa (ZA) está formada por 3 pozos de In<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N confinados por 4 barreras de In<sub>0.02</sub>Ga<sub>0.98</sub>N, en la tabla I se dan los espesores L<sub>w</sub> de los pozos y las barreras L<sub>B</sub>. La ZA está embebida en la guía formada por dos capas simétricas n y p de GaN de 0.1 μm para la estructura recta, mientras que para la GRIN son de Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N con 0 ≤ x ≤ 0.15. A ambos lados de la guía se encuentran las capas *cladding* o barreras ópticas n y p-Al<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N de 0.4 μm de ancho, rodeadas por una capa buffer n-GaN de 6 μm y otra p-GaN de 1 μm para facilitar el contacto ohmico. La estructura se completa con un sustrato de zafiro y metalización p, que se asumen infinitas.

Para hacer los cálculos es necesario conocer la dependencia de la energía de la banda prohibida E<sub>g</sub> y el índice de refracción con la composición de las soluciones sólidas de Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N y e In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N. En el caso del In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N calculamos el valor de E<sub>g</sub> según la expresión reportada por Wu<sup>7</sup> válida en el rango 0 ≤ x ≤ 1:

$$E_{g\text{InGa}}(x) = 0.77x + 3.42(1-x) - 1.43x(1-x) \quad (1)$$

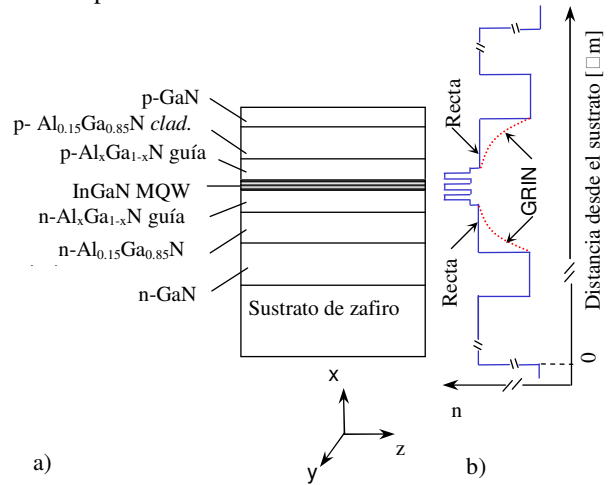
Para el Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N ajustamos los datos experimentales<sup>8-15</sup> según la siguiente expresión:

$$E_{g\text{AlGa}}(x) = 6.2x + 3.42(1-x) - b(x)x(1-x), \quad (2)$$

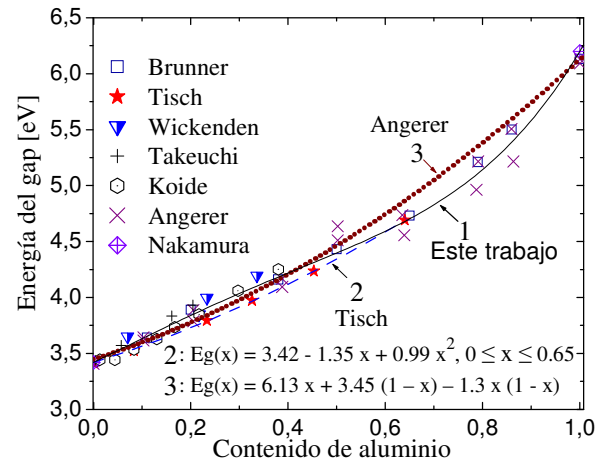
con b(x) = 0.7 + 3.8x<sup>2</sup>.

Esta expresión se obtuvo considerando variable el pa-

rámetro de curvatura y es válida para 0 ≤ x ≤ 1. En la figura 2 esta expresión se compara con datos y otros ajustes reportados<sup>8, 9</sup> observándose que reproduce mejor los datos experimentales.



**Figura 1.** a) Esquema de la estructura analizada junto al sistema de coordenadas empleado, b) índices de refracción en cada capa para las estructuras SCH-recta y GRIN.



**Figura 2.** Ajuste de E<sub>g</sub> del Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N según 1 (línea sólida). Los símbolos corresponden a datos reportados en las referencias 8-15 y las líneas a ajustes propuestos en 8 y 9.

Para determinar los niveles de energía en el MQW se asumió la razón de desacople entre bandas de Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N / In<sub>y</sub>Ga<sub>1-y</sub>N como: ΔE<sub>c</sub> / ΔE<sub>v</sub> = 0.7 / 0.3<sup>16</sup>. Las masas efectivas de electrones, huecos pesados y ligeros se calcularon mediante las expresiones<sup>16</sup>:

$$m_{e, \text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}} = m_{e, \text{GaN}} + x(m_{e, \text{InN}} - m_{e, \text{GaN}}) \quad (3)$$

$$m_{hh, \text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}} = m_{hh, \text{GaN}} + x(m_{hh, \text{InN}} - m_{hh, \text{GaN}}) \quad (4)$$

$$m_{hh, \text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}} = m_{hh, \text{GaN}} + x(m_{hh, \text{InN}} - m_{hh, \text{GaN}}) \quad (5)$$

donde m<sub>e, InN</sub> = 0.1m<sub>0</sub>, m<sub>e, GaN</sub> = 0.151m<sub>0</sub>, m<sub>hh, InN</sub> = 1.449m<sub>0</sub>, m<sub>hh, GaN</sub> = 1.595m<sub>0</sub>, m<sub>lh, InN</sub> = 0.157m<sub>0</sub> y m<sub>lh, GaN</sub> = 0.261m<sub>0</sub>

El índice de refracción del In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N se calculó según la expresión dada por Bergmann y Casey Jr<sup>17</sup>:

$$n_{InGaN}(x, E) = n_{GaN} (E - [E_g(x) - E_g(GaN)]) \quad (6)$$

donde  $x$  es el contenido de Indio,  $n_{GaN}(E)$  es el índice del GaN<sup>18</sup> y  $E_g$  es la energía del *gap* del In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N calculada según (1). El índice de refracción del Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N se obtuvo por la expresión reportada para  $0 \leq x \leq 1$ <sup>6</sup>:

$$n(x, \lambda) = \sqrt{a(x) + \frac{b(x)\lambda^2}{\lambda^2 - c^2(x)}}, \quad (\lambda \text{ en nm}) \quad (7)$$

donde:  $a(x) = 4.875 - 4.175x + 10.92x^2 - 24.528x^3$ ,  $b(x) = 0.545 + 2.144x - 9.997x^2 + 27.571x^3$  y  $c(x) = 326.24 - 366.687x^2 - 2174.196x^3$  [nm].

Con estos datos se calcularon, el factor de confinamiento y los patrones de campo cercano y lejano de las estructuras en estudio. El patrón de campo cercano  $E_y(x)$ , de los modos transversales eléctricos se obtiene de la solución de la ecuación de onda<sup>19</sup>:

$$\frac{d^2 E_y}{dx^2} + [k_0^2 n^2(x) - \beta_m^2] E_y = 0 \quad (8)$$

donde  $n(x)$  es la dependencia el índice de refracción con  $x$ ,  $\beta_m = k_0 Nm$  es la constante de propagación,  $Nm$  es el índice efectivo del modo  $m$ ,  $k_0 = 2\pi/\lambda$  es el número de onda y  $\lambda$  la longitud de onda. La ecuación 8 se resuelve de manera exacta en las capas de índice constante y por métodos numéricos en las capas de índice variable.

El campo lejano es el producto de la transformada de Fourier del campo cercano y un factor oblicuo y su intensidad relativa al ángulo  $\theta = 0$  está dada por<sup>19</sup>:

$$\frac{I(\theta)}{I(0)} = \frac{\cos^2 \theta \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_y(x) \exp[ik_0 x \sin \theta] dx \right|^2}{\left| \int_{-\infty}^{+\infty} E_y(x) dx \right|^2} \quad (9)$$

Como parámetro de comparación utilizamos el ancho a la mitad de la intensidad máxima del campo lejano:  $FWHM = 2\theta_{1/2}$ , donde  $\theta_{1/2}$  es la solución de la ecuación  $I(\theta) = 1/2 I_{max}$ .

### 3 Resultados de la simulación

En la tabla I se presentan las longitudes de onda de emisión obtenidas para una estructura de 3QW-In<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>N/In<sub>0.02</sub>Ga<sub>0.98</sub>N, con diferentes combinaciones de ancho de pozo ( $L_w$ ) y barrera ( $L_B$ ). Como se observa los valores de  $\lambda$  tienen una dependencia más fuerte con el valor de  $L_w$  que con  $L_B$ . En la tabla I también se muestran los valores del índice de refracción en las capas obtenidos con las expresiones (6) y (7) para cada  $\lambda$ . El índice de refracción del sustrato de zafiro se fijó en 1.785 y el del electrodo metálico  $p$  en 0.9.

En cada caso se calcularon el Factor de confinamiento y el FWHM del patrón de campo lejano, valores que se reportan en la tabla II. Como se observa hay combinaciones de  $L_w$  y  $L_B$  que conducen a un valor más favorable (mayor) de  $\Gamma$  tanto para la estructura SCH-recta como para la GRIN-SCH. Un comportamiento similar se

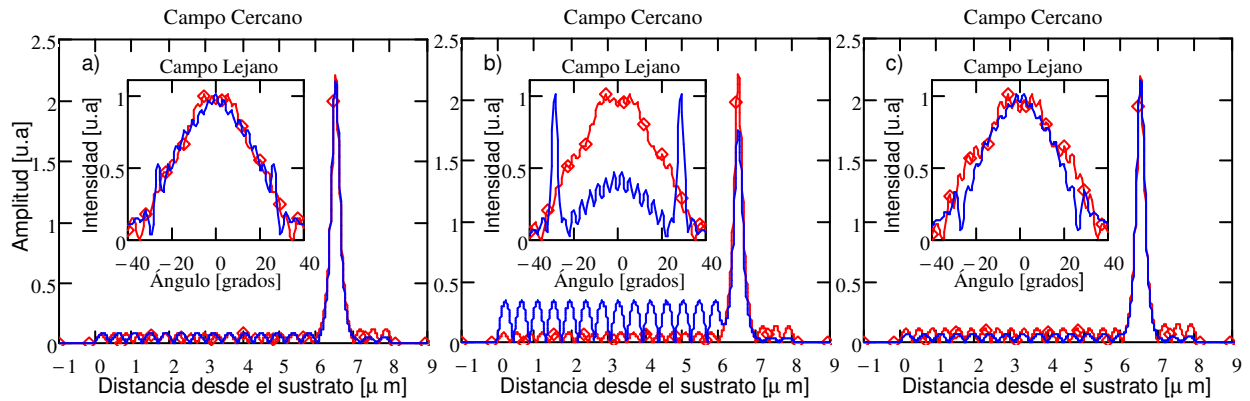
aprecia con los valores del FWHM que en este caso se desean sean lo mas pequeño posible. El dominio de una estructura sobre la otra también depende de la combinación de anchos de pozo y barreras que se utilice.

Caso	Espesor (nm)		$\lambda$ [nm]	Índice de refracción			
	$L_w$	$L_B$		pozo	barrera	guía	cladd.
a	2	5	408	2.631	2.575	2.547	2.427
b	2	6	408	2.631	2.575	2.547	2.427
c	2	7	408	2.631	2.575	2.547	2.427
d	2.5	5	414	2.65	2.56	2.535	2.419
e	2.5	6	414	2.649	2.56	2.535	2.419
f	2.5	7	414	2.649	2.56	2.535	2.419
g	3	5	418	2.667	2.55	2.527	2.413
h	3	6	418	2.666	2.55	2.527	2.413
i	3	7	418	2.665	2.551	2.527	2.414

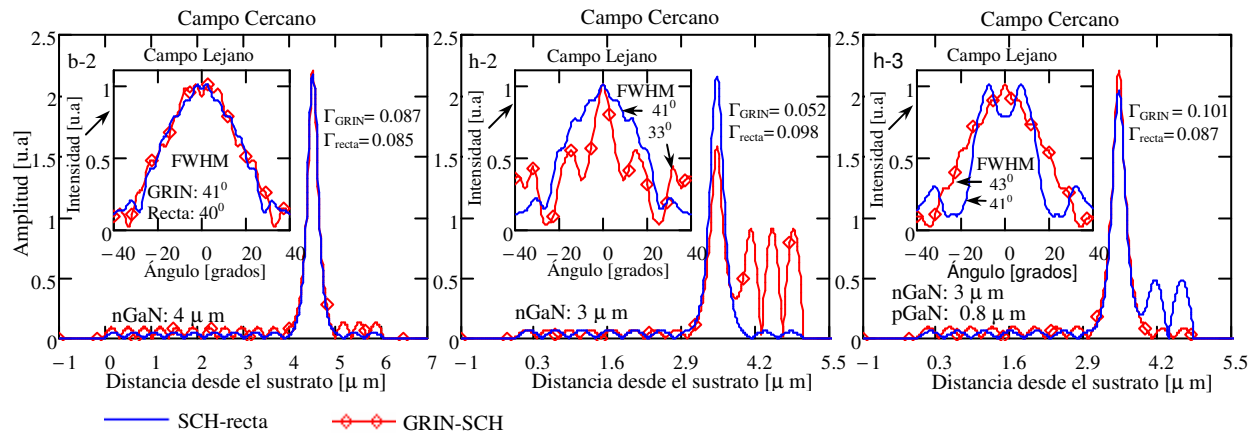
Caso	Espesor (nm)		$\Gamma$		FWHM [grados]	
	$L_w$	$L_B$	Recta	GRIN	Recta	GRIN
a	2	5	0.074	0.077	53	42
b	2	6	0.055	0.087	61	48
c	2	7	0.093	0.095	41	50
d	2.5	5	0.081	0.050	41	74
e	2.5	6	0.091	0.086	42	53
f	2.5	7	0.099	0.094	49	56
g	3	5	0.088	0.072	51	62
h	3	6	0.089	0.050	53	67
i	3	7	0.103	0.070	39	67

En la figura 3 se comparan los NFPs de ambas estructuras correspondientes a la serie a)–c) y en los insertos se comparan los FFPs. Se observa que la forma del FFP en las dos estructuras depende fuertemente de la amplitud del NFP en las anti-guías que se forman sobre las capas  $n$  y  $p$  de GaN. Este comportamiento del NFP también influye sobre el valor que alcance  $\Gamma$  y el FWHM. Lo más significativo que se aprecia en esta figura es la existencia de combinaciones de espesores de pozos y barreras que forman el MQW que permiten optimizar las estructuras sin tener que aumentar el ancho de las capas *cladding*.

En la figura 4 se compara el NFPs de ambas estructuras, para los casos b) y h), en este caso se varió el ancho de las capas  $n$  y  $p$  de GaN, en b-2) y h-2) se tomaron de 4  $\mu\text{m}$  y 3  $\mu\text{m}$  respectivamente, mientras que en h-3) la capa  $n$  es de 3  $\mu\text{m}$  y la  $p$  de 0.8  $\mu\text{m}$ . En los insertos se comparan los correspondientes FFPs. Como puede observarse el espesor de estas capas exteriores a la guía de ondas tiene una influencia significativa en los NFPs y los FFPs, y consecuentemente sobre  $\Gamma$  y el FWHM.



**Figura 3.** NFPs y FFPs (inserto) para las estructuras SCH-recta y GRIN-SCH correspondientes a los casos a)-c) de la tabla I

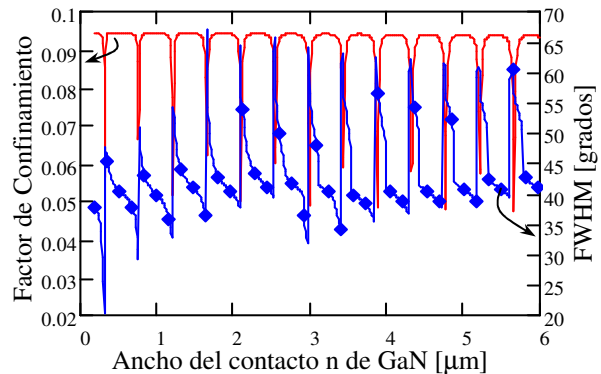


**Figura 4.** NFPs y FFPs (inserto) de las estructuras SCH-recta y GRIN-SCH correspondiente a los casos b) y h) de la tabla I, con diferentes espesores de la capa n de GaN b-2) y h-2) y con ambas capas modificadas h-3)

Para evaluar en detalle la influencia del espesor de la capa n-GaN sobre  $\Gamma$  y el FWHM en la estructura SCH-recta correspondiente al caso c) de tabla I este se varió entre 0.2 y 6  $\mu\text{m}$ . En la figura 5 se presentan los resultados observándose que existen valores para los que se alcanzan valores muy bajo de  $\Gamma$  y muy elevados del FWHM, estos se localizan en  $0.34 + n \cdot 0.443 \mu\text{m}$  ( $n = 0, 1, \dots, 12$ ) aproximadamente. En la estructura GRIN se observó un comportamiento similar pero con una mayor cantidad de puntos con valores inaceptables para  $\Gamma$  y el FWHM. A partir de estos resultados Podemos concluir que en el diseño de una estructura hay que tener en cuenta el espesor de las capas buffer de contacto de GaN pues tiene una influencia significativa sobre los patrones de campo cercano y lejano y consecuentemente sobre los valores de  $\Gamma$  y el FWHM, existiendo valores que se repiten periódicamente que son desfavorables para optimizarlos.

## 4 Conclusiones

En este trabajo se reporta una expresión para la energía del gap del  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ , considerando el parámetro de curvatura variable con  $x$ , que ajusta mejor los datos experimentales reportados.



**Figura 5.** Dependencia de  $\Gamma$  y el FWHM con el espesor de la capa de contacto n-GaN en la estructura SCH-recta correspondiente al caso c) de la tabla I.

A partir de las simulaciones numéricas realizadas se concluye que fijando el espesor de las capas *cladding* en 0,4  $\mu\text{m}$  (valor realizable en la práctica para estas estructuras) se pueden encontrar combinaciones del ancho de las capas n-GaN y p-GaN que optimizan la estructura en cuanto factor de confinamiento y patrones de campo lejano y cercano. Se encontró que existen espesores de la capa de contacto p-GaN que minimizan  $\Gamma$  y maximizan el valor del FWHM por lo que deben ser evitados al di-

señar las estructuras. Se observó que la superioridad de una estructura sobre la otra (SCH-recta y GRIN-SCH) depende de la combinación de los espesores de las diferentes capas de la estructura.

## Referencias

1. M. Onomura, S. Saito, K. Sasanuma, G. Hatakoshi, M. Nakasuji, J. Rennie, L. Sugiura, S. Nunoue, J. Nishio and K. Itaya, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 5(3), 765 (1999).
2. D. Hofstetter, D. P. Bour, R. L. Thomson and N. M. Johnson, *Appl. Phys. Lett.*, 70(13), 1650 (1997).
3. G. Hatakoshi, M. Onomura, S. Saito, K. Sasanuma, and K. Itaya, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38 1780 (1999).
4. J. A. Martín and M. Sánchez, *Semicond. Sci. Technol.*, 20, 290 (2005).
5. J. A. Martín and M. Sánchez, *phys. stat. sol. (b)*, 242(9), 1846 (2005).
6. J. A. Martín, F. García, B. J. García and M. Sánchez, *Superlattices and Microstructures*, 43, 575 (2008).
7. J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, H. Lu and W. J. Schaff, *Appl. Phys. Lett.*, 80(25), 4741 (2002).
8. H. Angerer, D. Brunner, F. Freudenberg, O. Ambacher, M. Stutzmann, R. Höppler, T. Metzger, E. Born, G. Dollinger, A. Bergmaier, S. Karsch, and H.-J. Körner; *Appl. Phys. Lett.*, 71(11), 1504 (1997).
9. U. Tisch, B. Meyler, O. Katz, E. Finkman and J. Salzman, *J. Appl. Phys.* 89(5), 2676 (2001).
10. D. Brunner, H. Angerer, E. Bustarret, F. Freudenberg, R. Höppler, R. Dimitrov, O. Ambacher and M. Stutzmann, *J. Appl. Phys.* 82(10), 5090 (1997).
11. U. Tisch, B. Meyler, O. Katz, E. Finkman and J. Salzman, *J. Appl. Phys.*, 89(5), 2676 (2001).
12. D. K. Wickenden, C. B. Barger, W. A. Bryden, J. Miragliotta, and T. J. Kistenmacher, *Appl. Phys. Lett.*, 65, 2024 (1994).
13. T. Takeuchi, H. Takeuchi, S. Sota, H. Sakai, H. Amano and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* 36, L177 (1997).
14. Y. Koide, H. Itoh, M. R. H. Khan, K. Hiramatu, N. Sawaki, and I. Akasaki, *J. Appl. Phys.*, 61, 4540 (1987).
15. S. Nakamura, S. Pearton, and G. Fasol, "The Blue Laser Diode: The Complete Story", Edit. Springer-Verlag, ISBN: 3540665056 (2nd edition September 2000) 368p
16. Y-K. Kuo and Y-A. Chang, *IEEE J. Quantum Electron.*, 40(5), 437 (2004).
17. M. J. Bergmann and H. C. Casey Jr., *J. Appl. Phys.*, 84(3), 1196 (1998).
18. T. Kawashima, H. Yoshikawa and S. Adachi, *J. Appl. Phys.*, 82 (7), 3528 (1997).
19. H.C. Casey, M.B. Panish, *Heterostructure Lasers*, (Academic Press, New York, Part A, 1978).

(viene de la página 105)

Las otras conferencias fueron de temas diversos relacionados con el quehacer del profesor universitario. Hubo información de las actividades que se realizan en países concretos pero que pueden ser utilizados por todos los asistentes al Taller, como fueron las conferencias relacionadas con “LAPEN” (Red Latinoamericana para la Educación en Física) y con el concurso “Ciencia en Acción”. La Profesora Carreras invitó a todos los participantes a presentar sus trabajos en la 10ª edición de dicho concurso, que se celebrará este año en el Parque de las Ciencias de Granada (España).

Se expuso también la experiencia llevada a cabo por la Universidad Nacional de Educación a Distancia de España (UNED) para virtualizar todas las materias de las titulaciones que se imparten en ella, así como la utilización que de dichos cursos virtuales hacen los estudiantes.

Las otras conferencias trataron de aplicaciones actuales de la Física y la forma en que se debe conducir el trabajo de la Enseñanza de la Física.

La organización del V Taller estuvo a cargo de los siguientes Comités:

### Comité científico internacional

- S. Aguilera Morales. Universidad Católica del Norte. Antofagasta (Chile)
- N. Arias Ávila. Universidad Distrital de Bogotá (Colombia)
- O. Calzadilla Amaya. Universidad de La Habana (Cuba)
- C. Carreras Béjar. UNED (España)
- J. Fuentes Betancourt. Universidad de La Habana (Cuba)
- J. Granados Samaniego. UAM-A (México)
- F. Herrmann. Universidad de Karlsruhe (Alemania)
- M. Michelini. Universidad de Udine (Italia)
- E. Moltó Gil. Instituto Superior Pedagógico “Enrique José Varona” (La Habana, Cuba)
- C. E. Mora Ley. IPN (México)
- A. Pérez Perdomo. Universidad de La Habana (Cuba)
- V. Tricio Gómez. Universidad de Burgos (España)
- M. Yuste Llandres. UNED (España)

### Comité local

- Josefina Barrera Kalhil. Universidad del Estado de Amazonas (Brasil)
- O. Calzadilla Amaya. Universidad de La Habana (Cuba)
- A. del Cueto Inastrilla. Universidad de La Habana (Cuba)
- A. Fornés Coujil. Universidad de La Habana (Cuba)
- J. Fuentes Betancourt. Universidad de La Habana (Cuba)

- A. González Arias. Universidad de La Habana (Cuba)
- A. Pérez Perdomo. Universidad de La Habana (Cuba)
- J. Vidal Larramendi. Universidad de La Habana (Cuba) .

### Patrocinadores

- Universidad de La Habana, Cuba
- Sociedad Cubana de Física
- Universidad Nacional de Educación a Distancia, España
- Universidad de Burgos, España
- Fundación Eduard Job, Alemania
- Centro Latino Americano de Física
- Ministerio de la Ciencia Tecnología y Medio Ambiente, Cuba
- CICATA-LEGARIA, Instituto Politécnico Nacional, México.



*Entrega de las primeras Medallas LAPEN en el Acto Inaugural del V Taller.*

### Resumen

— El Taller ha abierto posibilidades de colaboración entre profesores de diferentes países en el desarrollo de la Enseñanza de la Física y, especialmente en esta ocasión, en el conocimiento de una nueva representación de la Termodinámica, presentado por los profesores de la Fundación Job y colaboradores, colaboración que puede mantenerse activa utilizando las facilidades que brinda Internet.

— Se abrió un espacio en el sitio “Aula en Red” de la Universidad de La Habana, soportado por la plataforma Moodle, para el intercambio de experiencias en la enseñanza de la Física entre los participantes y nuevos interesados.

Estos aspectos pueden ser de alta relevancia para mejorar la calidad de la Enseñanza de la Física y aumentar el intercambio y la divulgación de las experiencias al-

canzadas.

Además, el lunes 26 de enero de 2009, durante la inauguración del V Taller, el Dr. César E. Mora Ley, Presidente de Latin American Physics Education Network (LAPEN, [www.lapen.org.mx](http://www.lapen.org.mx)), con sede en la ciudad de México, entregó la primera preseña LAPEN a los profesores: Verónica Tricio de la Universidad de Burgos (España), Carmen Carreras de la UNED (España), Octavio Calzadilla de la Universidad de La Habana (Cuba) y Manuel Yuste de la UNED (España), por su destacada labor como promotores de la Educación en Física en Latinoamérica a través del renombrado Taller Iberoamericano de Enseñanza de la Física Universitaria, del cual los premiados son miembros fundadores en el año de 1997.

## Aciertos del taller

— El lugar elegido, los salones del Capitolio Nacional, resultaron un marco ideal para el desarrollo de las actividades del V Taller, lográndose un ambiente favorable para el intercambio de opiniones entre los participantes. A esto último contribuyó también el personal especializado de la Agencia Empresa de Convenciones del Capitolio de La Habana.

— Una vez más se pudo reunir a un gran número de participantes en las actividades sociales del evento (brindis, comidas, café...), lo que contribuyó a aprovechar el tiempo para compartir ideas y proyectos.

— Se realizó la entrega del Libro de Actas y Resúmenes en el momento de la inscripción de los participantes, en formato digital.

— Se entregó un DVD con el “Curso de Física de Karlsruhe” y otro, con 5 programas de la Televisión Educativa de la UNED sobre el concurso “Ciencia en Acción”.

— Se mantuvo un servicio de correo electrónico para los participantes durante el evento.

## Retos a superar

— No se logró una participación previa por parte de los profesores preinscritos al V Taller en los foros abiertos para conocer de la nueva representación de la Termodinámica y de la virtualización de la enseñanza.

## Acto de clausura

Estuvo presidido por el Dr. Osvaldo de Melo, Presidente de la Sociedad Cubana de Física, compartiendo mesa con los Dres. Timothy Read, Vicerrector de Nuevas Tecnologías de la UNED, Aimé Peláez, Vicedecana Docente de la Facultad de Física, y por el Comité Organizador, Octavio Calzadilla y Manuel Yuste.

Después de unas palabras del Dr. de Melo, en las que se comprometió a publicar una selección de los mejores trabajos presentados en el V Taller en un número de la Revista Cubana de Física, tomó la palabra el Dr. Calza-

dilla para presentar los resultados del Taller, que se recogen en este informe. A continuación, y a modo de conclusiones, el Dr. Yuste, analizó las actividades realizadas y los trabajos pendientes:

— El uso de las TIC’s sigue siendo un tema de interés que deberá seguir formando parte de los temas a debatir en los próximos Talleres.

— La importancia de la enseñanza experimental a través de laboratorios virtuales, remotos, presenciales, etc., seguirá siendo esencial en la formación de un físico y, por lo tanto, seguirá siendo uno de los temas de los siguientes talleres.

— El análisis de los primeros resultados de la implantación de las nuevas titulaciones según las directrices del espacio Europeo de Educación Superior ha de ser presentado también en el próximo Taller, con objeto de evaluar conjuntamente la validez del nuevo modelo educativo, en el que la evaluación continua y completa de todo el trabajo realizado por los alumnos, así como de las competencias que han de adquirir, son parte esencial del mismo.

— La nueva presentación de la Termodinámica presentada por los profesores de la Fundación Job, y en cuyos debates ha participado una mayoría de los asistentes a este Taller, ha abierto una línea de discusión que se mantendrá abierta a través de la red desde este momento hasta el siguiente Taller, donde nuevamente se presentarán los resultados obtenidos con esta nueva vía.

— Las incertidumbres en las medidas experimentales llevadas a cabo por los alumnos en los laboratorios tienen ahora un planteamiento diferente con un carácter fundamentalmente estadístico. Su presentación a los alumnos y su discusión entre el profesorado será también un tema a debatir de aquí al próximo Taller.

— Y, por último, los temas relacionados con la forma de introducir los trabajos de investigación actuales en los primeros cursos de la titulación en Física, e incluso en la enseñanza preuniversitaria, a través de cursos presenciales o de cursos virtuales, debe ser una preocupación a tener en cuenta para próximos talleres.

Durante el acto se proyectaron las fotografías que a lo largo de la celebración del Taller habían realizado los participantes. Finalizó el Taller con una comida de despedida en el Hotel Florida, que resultó ser un colofón de oro.

## Próxima convocatoria

Dentro de dos años, en el edificio rehabilitado de nuestra Facultad. No podemos todavía fijar la fecha, pero...

*¡Os esperamos a todos!*