



*Facultad
de
Ciencias*

**DESARROLLO DE MATERIALES
CERÁMICOS PARA DETECTORES
GASEOSOS EN HEP**
(Development of ceramic materials for
gaseous detectors in HEP)

Trabajo de Fin de Grado
para acceder al

GRADO EN FÍSICA

Autor: Lucía Olano Vegas

Director: Rocío Vilar Cortabitarte

Co-Director: Diego González Díaz

09 - 2022

AGRADECIMIENTOS

No puedo expresar en palabras lo mucho que aprecio toda la confianza y esfuerzos que has puesto en mí. El alargar las prácticas de verano, permitirme presentar el trabajo a otros miembros de la comunidad científica, ofrecerme hacer el TFG allí, contar conmigo para el paper y la conferencia. Siento que gracias a todo esto he dado pasos de gigante en el desarrollo de mi pensamiento científico, y que me ha facilitado enormemente el camino hacia las siguientes etapas de mi vida. Investigar es lo que siempre he soñado, pero nunca creí que fuera a ser capaz de ello. Ahora sí lo creo.

Por todo esto, mil grazas, Diego.

RESUMEN

En Estados Unidos se halla bajo construcción DUNE, un experimento de física de partículas especializado en la detección de neutrinos que tiene como objetivo la búsqueda de nueva física que pueda ayudar a completar el Modelo Estándar, mediante el estudio de las oscilaciones de neutrinos. Los neutrinos son partículas de baja energía que interactúan débilmente con la materia, por lo que es esencial reducir el umbral de detección actual. Para ello, se plantea implementar la tecnología TPC de doble fase LAr-GAr, tal que pueda amplificarse la señal procedente de la interacción de un neutrino con el medio del detector mediante avalancha electrónica en el gas. Sin embargo, esta avalancha puede desencadenar una chispa que dañe la electrónica de detección y la estructura de multiplicación, por lo que se requiere de una protección resistiva. Para prevenir la chispa pero permitir la multiplicación, la resistividad de este material debe hallarse en el rango $10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$ y debe mantenerse constante en el tiempo. En este trabajo se contempla la posibilidad de implementar materiales cerámicos de YSZ/Fe₂O₃ como protección. Para ello, se estudia el comportamiento de la resistividad de este material en función del campo eléctrico aplicado, de la temperatura y de la concentración relativa entre YSZ y Fe₂O₃, así como se pone a prueba su estabilidad en el tiempo y con la carga transportada.

Palabras clave: protección resistiva, RPC, cerámica de YSZ/Fe₂O₃, resistividad, LN₂T, RT, concentración en %wt.

ABSTRACT

DUNE, a particle physics experiment specialized in the detection of neutrinos, is currently under construction in United States. Its goal is to search for new Physics that can contribute to completing the Standard Model through the study of the oscillation of neutrinos. Neutrinos are low-energy particles which interact weakly with matter. For this reason, it is essential to lower the current detection threshold. In order to achieve this, the implementation of the LAr-GAr dual-phase TPC technology is being considered, such that a signal created by the interaction of a neutrino in the medium of the detector can be amplified by means of an electronic avalanche. However, this avalanche can develop into a spark, damaging the detection electronics and the multiplication structure. Thus a resistive protection is required. In order to prevent the spark whilst allowing the multiplication, the resistivity of this material should be in the range $10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$ and should be constant in time. In this work the use of YSZ/Fe₂O₃ ceramics as protection is proposed. With this purpose, the behaviour of its resistivity has been studied as a function of the applied electric field, temperature and YSZ - Fe₂O₃ relative concentration. Its stability in time and with transported charge has also been explored.

Key words: resistive protection, RPC, YSZ/Fe₂O₃ ceramics, resistivity, LN₂T, RT, concentration in %wt.

Índice general

Índice de figuras	5
Índice de tablas	6
1. Introducción	7
1.1. Objetivos	7
1.2. Underground Neutrino Experiment (DUNE)	8
1.3. <i>Time Projection Chambers</i> (TPCs)	11
1.4. Mecanismos de ruptura dieléctrica en gases	14
1.5. <i>Resistive Plate Chambers</i> (RPCs) y <i>Resistive Plate WELLS</i> (RP-WELLS)	17
2. <i>State-of-the-art</i> de los elementos resistivos en RPCs y RP-WELLS	19
2.1. Propiedades de un buen material	19
2.2. Adaptabilidad de materiales históricamente empleados en RPCs para su operación en LArT	20
2.3. Cerámicas de YSZ/Fe ₂ O ₃	20
2.4. Punto de partida y propuesta	21
3. Desarrollo experimental	23
3.1. Fabricación de las piezas cerámicas	23
3.2. Montaje experimental y medidas realizadas	25
4. Resultados y análisis	27
4.1. Caracterización del <i>skin</i> en cerámicas de 85 %wt Fe ₂ O ₃	27
4.2. Estudio del efecto de diferentes electrodos sobre los valores de resistividad y estimación de errores	30
4.3. Estudio de la uniformidad de la resistividad	33
4.4. Estudio del comportamiento de la resistividad volúmica con el campo eléctrico	35
4.5. Estudio de la dependencia de la resistividad volúmica con la temperatura	36
4.6. Estudio de la dependencia de la resistividad volúmica con la concentración de Fe ₂ O ₃	38
4.7. Tensión de ruptura dieléctrica y test de envejecimiento en muestras seleccionadas	39
4.8. Estudio del apantallamiento en la inducción de señal	41
5. Discusión	43
6. Conclusiones	46
Lista de acrónimos	47
Referencias	48

Índice de figuras

1.1.	Representación esquemática de los principales elementos de DUNE.	9
1.2.	Esquema del complejo de aceleradores del Fermilab.	10
1.3.	SP-TPC de DUNE.	13
1.4.	Estructura de una DP-TPC y líneas de campo y potencial en un GEM.	14
1.5.	Característica $V-I$ y etapas de la ruptura dieléctrica en un gas entre placas plano-paralelas, para valores bajos del producto de la presión por la longitud del arco.	15
1.6.	Evolución de una avalancha en streamer.	16
1.7.	Estadio alcanzado por el proceso de ruptura dieléctrica según la resistividad de los electrodos.	17
1.8.	Modelos diferentes de detectores resistivos.	17
2.1.	Curvas de resistividad frente a temperatura y ganancia frente a voltaje de las cerámicas de YSZ/Fe ₂ O ₃ estudiadas por A. Roy, M. Morales et al.	22
3.1.	Fotografías de los instrumentos de mezclado tomadas en el laboratorio de ICG.	23
3.2.	Representación de los bordes que se forman en la barbotina tras la pre-calcinación, y pulido para rebajarlos.	24
3.3.	Ciclo térmico de fabricación de las piezas cerámicas.	24
3.4.	Picoamperímetro, criostato y pinzas con cable de cobre.	25
3.5.	Esquema y fotografía de los pines metálicos empleados en las medidas de resistencia superficial.	26
3.6.	Fotografías del Pt100 antes y después de ser recubierto con resina de epoxi para realizar las medidas de resistividad en función de la temperatura.	26
4.1.	Resistencia superficial de muestras con y sin <i>skin</i> , medidas a RT.	27
4.2.	Método de pulido uniforme.	28
4.3.	Variación de resistencia superficial y espesor en función del tiempo de pulido.	28
4.4.	Resistencia superficial en función del voltaje aplicado para dos muestras post-procesadas a 700°C durante 1 y 6 horas respectivamente.	30
4.5.	Fotografías de los diferentes electrodos con los que se han efectuado las medidas de resistividad volúmica.	31
4.6.	Resultados de resistividad volúmica medidos con cada uno de los cinco electrodos, a LN ₂ T y RT, en muestras de 40 y 70 %wt de Fe ₂ O ₃ respectivamente.	32
4.7.	Desviación estándar relativa al promedio entre medidas con pintura de plata y Cr frente a tensión aplicada para cada muestra.	33
4.8.	Desviación estándar relativa entre los cinco electrodos de plata para cada muestra.	34
4.9.	Resistividad volúmica en función del campo eléctrico en la muestra a LNT.	35
4.10.	Resistividad volúmica en función del campo eléctrico en las muestras a RT.	36
4.11.	Resistividad volúmica en función de la temperatura.	37
4.12.	Comportamiento de la resistividad volúmica en función de la concentración de Fe ₂ O ₃ a diferentes temperaturas.	38
4.13.	Resultados del test de envejecimiento eléctrico a LN ₂ T y RT en muestras de 70 y 40 %wt Fe ₂ O ₃ respectivamente.	40
4.14.	Constante dieléctrica de muestras de 40, 70, 82 y 100 % Fe ₂ O ₃ en función de la frecuencia, medidas a RT y LN ₂ T.	41
5.1.	Estudio de envejecimiento eléctrico en diferentes materiales realizado por M. Morales et al.	45

Índice de tablas

2.1. Propiedades resistivas de algunos materiales empleados en RPCs.	21
4.1. Variación promedio y factores de variación típico y máximo de la resistividad volúmica en una misma muestra, medida en cinco puntos diferentes.	34
4.2. Parámetros de ajuste y resistividad a LArT para cada muestra.	37
4.3. Constante dieléctrica y factor de acoplo de la señal inducida en el electrodo de lectura para cada muestra.	42

Capítulo 1

Introducción

1.1. Objetivos

El Modelo Estándar de física de partículas (*Standard Model*, SM) predice con gran precisión fenómenos que pueden ser observados de manera experimental, pero se sabe que es una teoría incompleta. El ejemplo más conocido es el de la masa de los neutrinos, que en el SM es exactamente cero. Sin embargo, la observación experimental de la oscilación de neutrinos, fenómeno por el cual éstos cambian de sabor de manera espontánea durante su propagación (entre tipo electrón, muón y taón, dependiendo del leptón al que se asocian), se regula teóricamente a través de la diferencia de masas entre los diferentes tipos de neutrinos, lo que pone de manifiesto que deben poseerla.

También existen otras indicaciones indirectas, tanto de carácter experimental como teórico, que apuntan a la incompletitud del SM, como la prevalencia de la materia oscura en el universo o el hecho de que apenas exista antimateria en él, a pesar de haberse producido en la misma cantidad que la materia ordinaria durante el Big Bang.

Por tanto, los experimentos actuales en física de partículas tienen como objetivo la búsqueda de brechas en el SM, con el objetivo de hallar una teoría más completa. Una de las vías más prometedoras de búsqueda de esta física más allá del SM es precisamente el estudio de las oscilaciones de neutrinos, mediante el cual se pretende determinar con precisión la diferencia de masa entre estas partículas, así como los parámetros de la matriz de oscilación (‘mezcla’).

En este contexto, se ha iniciado en Estados Unidos la construcción del experimento *Deep Underground Neutrino Experiment* (DUNE), un gran detector de neutrinos que tiene como objetivo estudiar estas oscilaciones. Como se explicará más adelante, DUNE presenta varios detectores. En concreto, los dos primeros módulos del detector ‘lejano’ (a unos 1300 km de distancia del punto de producción del neutrino y de unas 10 kt cada uno) se basan en la lectura de la ionización y el centelleo liberado por el neutrino al interactuar en el argón líquido que constituye el medio del detector. Estos módulos están en la actualidad en fase de construcción, mientras que la construcción de los módulos tercero y cuarto se iniciará a partir del año 2030.

Estos últimos plantean mejoras técnicas con idea de aumentar el impacto del experimento. Uno de los aspectos de mayor interés es la reducción del umbral de detección, para lo cual se hace necesaria la amplificación de la señal de ionización, aprovechando por ejemplo el fenómeno de avalancha de electrones a alto campo eléctrico. Esto aumentaría enormemente la sensibilidad a la detección de neutrinos de baja energía, como neutrinos solares y del fondo difuso de supernovas. Para alcanzar este objetivo es necesario extraer los electrones del argón líquido a una fase gaseosa, donde el fenómeno de amplificación (avalancha) pueda tener lugar. Sin embargo, la intensidad de las avalanchas de electrones es complicada de controlar, especialmente en elementos nobles puros, y se han reportado daños en la electrónica de lectura y en la propia estructura de amplificación debido a este fenómeno. Como se explicará, ello puede solucionarse implementando

un elemento resistivo de protección, que permita el fenómeno de multiplicación por avalancha, pero controlando su intensidad.

Este estudio evalúa la posibilidad de emplear piezas cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ como protección resistiva en los futuros tercer y cuarto módulos de DUNE, con el objetivo de aumentar su sensibilidad a neutrinos procedentes de reacciones nucleares en el sol y del fondo difuso de supernovas.

Con esto en mente, este documento se ha desarrollado con los propósitos siguientes:

- Introducir el experimento DUNE. En particular, introducir su programa científico y los detectores en los que se divide.
- Comprender el funcionamiento de una TPC, el tipo de detector en que se centra el estudio, y las estructuras de multiplicación empleadas.
- Explorar las etapas de una ruptura dieléctrica en gas para identificar las características que deben poseer los elementos resistivos de protección.
- Revisar estudios previos en este campo para establecer un punto de partida.
- Estudiar el comportamiento de diferentes muestras de YSZ/Fe₂O₃ en función de diversas variables: intensidad de campo eléctrico, frecuencia, carga transportada, temperatura, concentración en peso de Fe₂O₃.
- Identificar las muestras con las características óptimas para su implementación en detectores gaseosos, realizar tests de envejecimiento eléctrico y estudiar su impacto en la inducción de señal en el electrodo de lectura.

1.2. Underground Neutrino Experiment (DUNE)

DUNE es un gran experimento que está actualmente bajo construcción en Estados Unidos, entre el *Fermi National Accelerator Laboratory* (Fermilab), en el estado de Illinois, y *Sanford Underground Research Facility* (SURF), en Dakota del Sur. A grandes rasgos, se trata de un super-detector de neutrinos compuesto fundamentalmente por un haz de protones, un detector cercano (*Near Detector*, ND) y un detector lejano (*Far Detector*, FD) [1]. Como se indica en la imagen 1.1, el haz de protones y el ND se localizan en Fermilab, y el FD en SURF, a 1300 km y 1500 m bajo tierra.

Los objetivos principales que contempla DUNE en su programa científico son:

- **Entender por qué la materia predomina sobre la antimateria**

Tras el Big Bang, se creó materia y antimateria en proporciones idénticas, sin embargo, poco después existió una asimetría que previno la recombinación de las partículas con sus respectivas antipartículas y que generó el predominio de la materia sobre la antimateria [3].

Este fenómeno debe estar asociado a la violación de la simetría carga-paridad (CP), puesto que las antipartículas se obtienen a través de la operación simultánea de conjugación de carga e inversión de paridad de una partícula [4].

La violación CP se ha observado en quarks, pero su valor es demasiado pequeño como para explicar la composición del universo actual, por lo que actualmente se busca una violación CP leptónica. En concreto, en la oscilación de neutrinos: si neutrinos y antineutrinos oscilan de manera diferente, esto podría dar una explicación a la asimetría materia-antimateria [5].

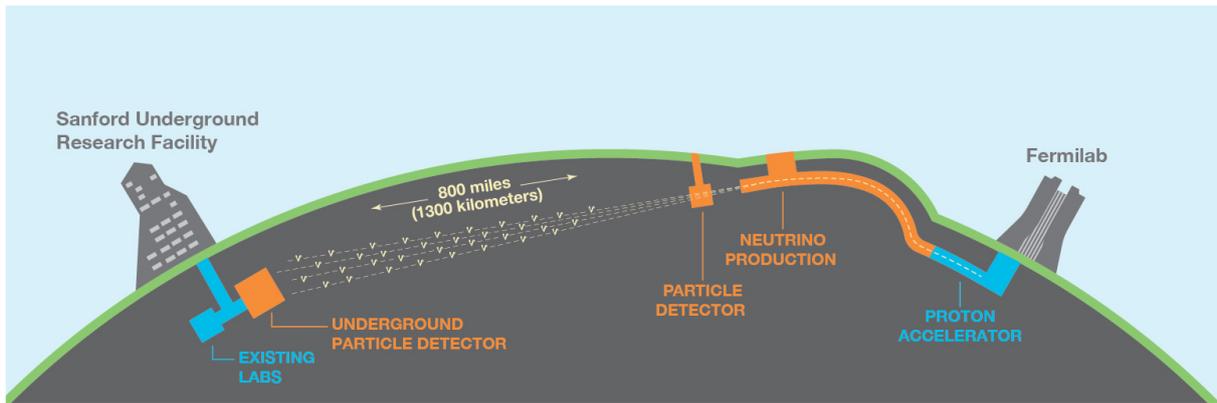


Figura 1.1: Representación esquemática de los principales elementos de DUNE. A la derecha se representan el haz de protones y el ND en Fermilab. A la izquierda, se representa el FD en SURF [2].

- **Intentar comprender mejor las simetrías fundamentales del universo**

En relación con el punto anterior, cada uno de los sabores de neutrinos debe ser una combinación lineal de estados propios de masa (de los cuales al menos dos deben poseer masa no nula), de tal manera que el sabor pueda oscilar [1]. Dichos estados propios de masa dotan a los neutrinos de una masa efectiva que debería poder ser medida en laboratorio.

El fenómeno de oscilación se describe mediante la matriz unitaria de Pontecorvo-Maki-Nakagawa-Sakata (PMNS), que puede parametrizarse mediante tres ángulos de mezcla (ya determinados experimentalmente), y tres fases complejas, una de las cuales regula la violación de simetría CP [4], y que aún no ha sido medida.

Puesto que el proceso de oscilación se regula mediante la matriz unitaria de mezcla, junto con las diferencias cuadráticas de masa, la determinación completa de estas diferencias entre los estados propios de masa y de la matriz unitaria de mezcla podría arrojar luz sobre la existencia de nuevas simetrías relevantes en extensiones del SM.

- **Estudio de modelos de gran unificación**

Las Teorías de Gran Unificación (*Grand Unified Theories*, GUTs) son teorías que buscan unificar las cuatro interacciones fundamentales. Éstas presentan la peculiaridad de que predicen el decaimiento del protón, fenómeno que hasta la fecha no ha sido observado. DUNE buscará canales de desintegración de protones [6].

- **Entender la dinámica de las explosiones de supernova**

Una supernova comienza con el colapso gravitacional del núcleo de una estrella y pasa por fases de contracción, calentamiento, distensión y enfriamiento que afectan a las características de los neutrinos emitidos. Por tanto, analizando estos neutrinos se puede estudiar la evolución del proceso de explosión de supernova.

DUNE pretende observar neutrinos creados en este tipo de explosiones para comprender la dinámica de estos fenómenos. Asimismo, se espera que esto aporte información adicional sobre las propiedades de los neutrinos y otras partículas del SM, así como se espera obtener un mejor entendimiento de la formación de agujeros negros y estrellas de neutrones.

Para abordar los puntos anteriores, DUNE dispone de las siguientes instalaciones:

- **Long-Baseline Neutrino Facility (LBNF)**

Este proyecto de Fermilab generará el haz de neutrinos más intenso del mundo, así como proporcionará las instalaciones e infraestructura necesarias para la instalación del ND [7]. La fuente de neutrinos se originará a partir del acelerador lineal o *linac* de protones del Fermilab, que actualmente se encuentra bajo reformas a través del proyecto *Proton Improvement Plan II* (PIP-II), cuyo objetivo es que éste alcance los 1.2 MW de potencia [6].

Los protones se aceleran en cavidades superconductoras por acción de electroimanes hasta los $8 \cdot 10^8$ eV [7] y continúan acelerándose según transitan por la cadena de aceleradores del Fermilab, hasta llegar al inyector principal (*Main Injector*), donde alcanzan una energía de $1.2 \cdot 10^{11}$ eV.

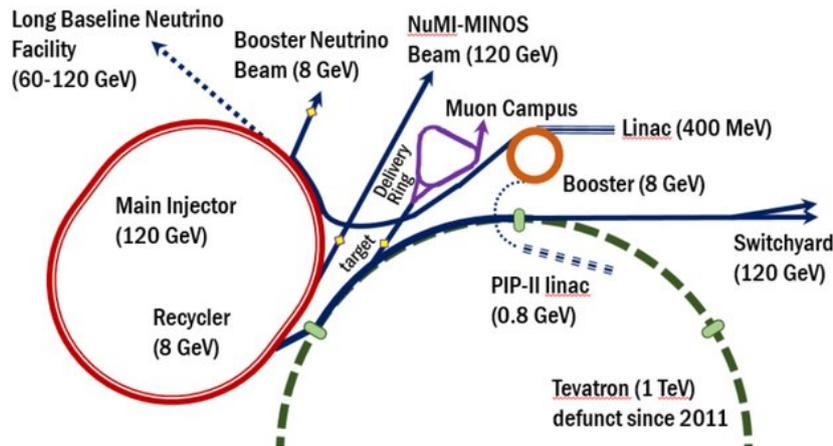


Figura 1.2: Esquema del complejo de aceleradores del Fermilab. Los protones se originan en PIP-II *linac* y son sucesivamente acelerados hasta alcanzar el *Main Injector*, que extrae el haz y lo dirige hacia los detectores [8].

Los protones son entonces extraídos del *Main Injector* y dirigidos linealmente en dirección a los detectores. En el camino colisionan con un blanco de grafito, lo cual libera partículas con carga eléctrica que pueden ser focalizadas en la dirección del haz por medio de imanes. Estas partículas (kaones, piones y muones en su mayor parte) decaen en vuelo generando los neutrinos que finalmente constituyen el haz que incide sobre los detectores. El resto de partículas que no han decaído en neutrinos son retenidas por un ‘absorbente’.

Como se pretende estudiar las oscilaciones tanto de neutrinos como de antineutrinos, será necesario poder generar ambas partículas. Esto se consigue invirtiendo la polaridad de los imanes, de tal manera que focalicen las partículas con carga negativa o bien las partículas con carga positiva.

- **Near Detector (ND)**

El ND se encuentra a la salida del haz de neutrinos, a una distancia de 574 m de la fuente [9]. Se compone de detectores especializados en la detección de las interacciones de neutrinos, de tal manera que pueda estudiarse la composición del haz (fracción de neutrinos tipo electrón y muón, fundamentalmente) y la energía de los neutrinos en su estado inicial, previo a que el fenómeno de oscilación tenga lugar.

La importancia del ND radica en su proximidad al blanco en el que se generan los neutrinos, pues el número de interacciones para analizar es mayor con respecto al FD. Además, el ND es más preciso en la reconstrucción de los eventos.

- **Far Detector (FD)**

El FD, a una distancia de unos 1300 km con respecto al ND y a 1500 m por debajo del nivel del suelo [10], se compone también de detectores especializados en la detección de interacciones de neutrinos. En concreto, constará de cuatro módulos, cada uno de los cuales contendrá unas 10 kt de argón líquido como medio de interacción para los neutrinos.

Este detector estudiará la composición y energía del haz en un estado diferente al estado inicial, de tal manera que, comparando estas composiciones, pueda obtenerse información sobre las oscilaciones de neutrinos. Además, la profundidad a la que se encuentra reduce la contaminación radioactiva natural (rayos cósmicos) facilitando la reconstrucción.

Por otro lado, debido al gran volumen de los módulos, éstos constituyen los principales sistemas de detección dedicados al estudio de neutrinos de supernovas y solares, así como al estudio del decaimiento del protón.

1.3. Time Projection Chambers (TPCs)

Las *Time Projection Chambers* (TPCs) son el tipo de detectores implementados en DUNE. Cuando una partícula cargada atraviesa un medio, éste se ioniza generando pares electrón-ión. Si el medio (gaseoso o líquido, por lo general) está sometido a una diferencia de potencial, estos portadores de carga se desplazan en direcciones opuestas: los electrones derivan hacia el ánodo y los iones hacia el cátodo.

Las cámaras de deriva (*drift chambers*) son detectores basados en este principio: en su interior contienen un gas fácilmente ionizable, de tal manera que cada lectura de carga en el cátodo y en el ánodo corresponde al paso de una partícula con carga eléctrica [11].

Las TPCs son un tipo de cámara de deriva que, además, proporciona información tridimensional de la traza de ionización valiéndose de la relación entre tiempo de llegada y posición, a través de la velocidad de deriva de los electrones en el medio. En algunas implementaciones modernas (y en particular en el caso de las TPCs de DUNE) el centelleo inicial permite determinar el tiempo y posición de la interacción, de manera complementaria.

El centelleo consiste en la emisión de fotones por desexcitación del medio, que ha sido previamente excitado e ionizado por el paso de una partícula cargada [12]. Las TPCs disponen de detectores de fotones que captan la luz del centelleo y establecen entonces un tiempo inicial de detección t_0 . En los tiempos siguientes (t_1, t_2, \dots) se detectan los electrones producidos en la ionización. Para ello, una TPC dispone típicamente de una serie de fotosensores dispuestos en los bordes del volumen activo. La velocidad de deriva promedio de los electrones de ionización se alcanza rápidamente a través del equilibrio estadístico entre la aceleración en el campo eléctrico externo, y el proceso de pérdida de energía por las múltiples colisiones con los átomos del gas. Esta velocidad promedio permite convertir a distancia la diferencia de tiempo entre la señal de los electrones de ionización y el centelleo primario. Así, la detección de los fotones en el tiempo t_0 y de los portadores de carga en los tiempos sucesivos permite la reconstrucción tridimensional de la traza y su posicionamiento dentro de la TPC¹.

Las TPCs de DUNE emplean argón líquido (LAr) y/o gaseoso (GAr) por varios motivos:

- En primer lugar, el Ar es un buen centelleador en el ultravioleta, de tal manera que puede proporcionar t_0 . También es fácilmente ionizable, lo que permite la operación en modo TPC. Este modo de operación permitirá por primera vez la reconstrucción detallada de las trazas de eventos procedentes de las interacciones, algo generalmente imposible en la mayoría de experimentos de neutrinos actuales, que se centran apenas en la identificación de los muones y electrones procedentes de las interacciones de ‘corriente cargada’ (CC).

¹En ausencia de t_0 es posible todavía realizar reconstrucción tridimensional, pero no es posible posicionar la traza dentro del volumen, para lo que haría falta información auxiliar externa

- En segundo lugar, para proporcionar una probabilidad de interacción suficientemente alta, especialmente en los detectores lejanos, es necesario el uso de una fase condensada (líquida). El Ar, al ser un elemento noble, presenta una electro-negatividad muy baja, y ausencia de momento dipolar permanente, lo que reduce la probabilidad de captura de los electrones durante el proceso de deriva. No existen en la actualidad TPCs líquidas operadas en elementos que no sean nobles.
- Además, la necesaria operación a temperatura criogénica reduce convenientemente el ruido electrónico, aunque sufre de la ausencia de amplificación en líquido (un hito no conseguido hasta la fecha). La operación en modo dual (líquido-gas), que se plantea en este trabajo, tiene el potencial de solucionar este segundo problema.

En relación a lo anterior, el FD de DUNE estudia utilizar dos tipos de TPCs: de fase líquida única (*single-phase*, SP); y de fase dual² (*dual-phase*, DP):

- **Single-phase TPCs (SP-TPCs)**

Las SP-TPCs se rellenan solamente de LAr y toda la electrónica se encuentra dentro de este líquido. La tecnología TPC de una fase en DUNE consistirá de hasta cuatro módulos de TPC, de 10 kt cada uno. En el caso del modo de lectura en ‘deriva horizontal’, cada módulo se encuentra dividido en submódulos que se hallan separados por planos alternados ánodo/cátodo, como puede observarse en la figura 1.3.b. La tecnología de ‘deriva vertical’, que instrumenta el segundo módulo, representa una variación de ésta en la que los electrones de ionización derivan en la dirección de la gravedad, pero que es conceptualmente muy similar a la horizontal.

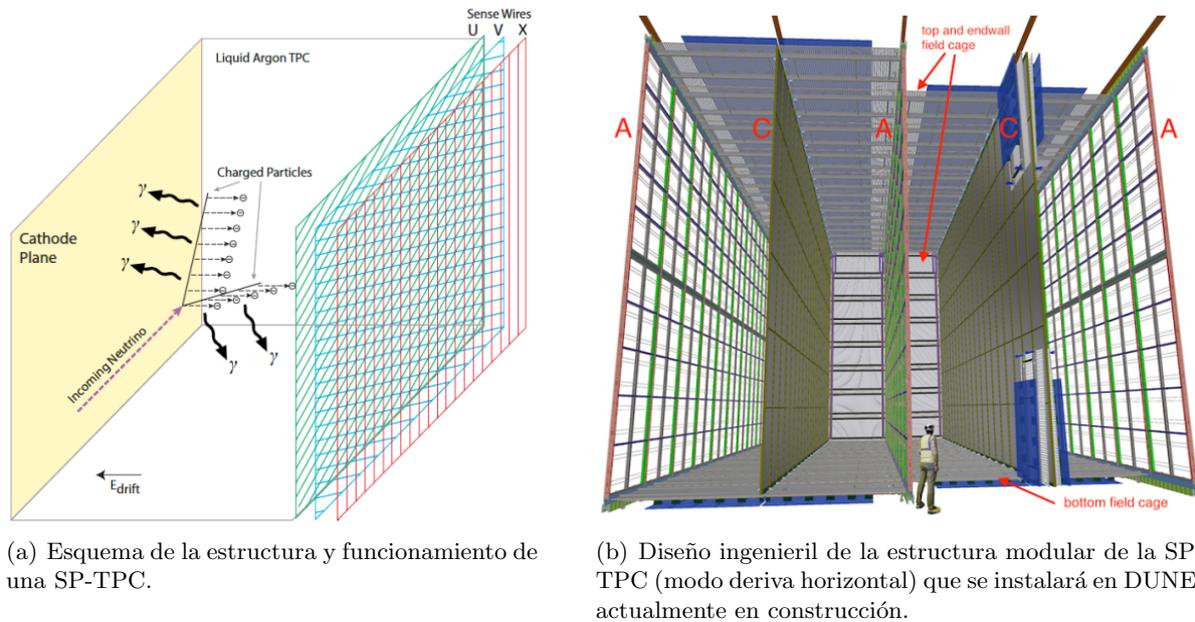
El principio de funcionamiento se esquematiza en la subfigura 1.3.a. Ésta representa un submódulo, disponiendo a la izquierda un plano que actúa de cátodo, y a la derecha otro que actúa de ánodo, donde se registra la señal de los electrones. Como puede observarse en la figura, una partícula cargada que atraviesa el LAr ioniza el medio y produce a su vez centelleo. Los electrones de ionización se desplazan hacia el ánodo por acción de un campo eléctrico aplicado. El ánodo se compone de tres capas de hilos activos denominadas en conjunto como *Anode Plane Assemblies* (APAs), cada una dispuesta en un ángulo diferente para mejorar la reconstrucción 3D del evento. La luz de centelleo es recogida en esta configuración por los fotodetectores localizados detrás del ánodo.

- **Dual-phase TPCs (DP-TPCs)**

Las DP-TPCs se caracterizan por presentar dos regiones, una primera región de LAr donde se producen la ionización y el centelleo, y una segunda región de GAR donde se amplifica la señal por medio de, por ejemplo, multiplicadores de electrones gaseosos (*gas electron multipliers*, GEMs). El detector opera en condiciones de equilibrio líquido-vapor ($T = 87.5$ K, $P = 1$ bar), con el campo eléctrico a lo largo de la dirección de la gravedad, y los electrones se extraen con la ayuda de rejillas adicionales que generan un alto campo local, desde donde pasan a la zona de amplificación.

En la figura 1.4.a se muestra un esquema de una DP-TPC. En esta configuración, los tubos fotomultiplicadores (*photomultiplier tubes*, PMTs) encargados de la detección de los fotones de centelleo se encuentran bajo el cátodo. El campo eléctrico se establece de tal manera que los electrones de ionización derivan verticalmente hacia la parte superior de la zona de LAr, donde se coloca la rejilla de extracción (*extraction grid*) que los transfiere al GAR. Es aquí donde se encuentran las estructuras de multiplicación.

²El ND emplea también la tecnología TPC en configuración SP, basada en líquido y gas respectivamente, si bien son conceptualmente muy diferentes a las del FD. En este estudio se describen solamente los detectores que instrumentan el FD.



(a) Esquema de la estructura y funcionamiento de una SP-TPC.

(b) Diseño ingenieril de la estructura modular de la SP-TPC (modo deriva horizontal) que se instalará en DUNE, actualmente en construcción.

Figura 1.3: SP-TPC de DUNE [1].

Estas estructuras son por lo general GEMs, pero es posible emplear otras estructuras de la familia de los detectores gaseosos. Los GEMs son láminas de metal delgadas separadas por un material aislante, agujereadas de manera regular. Los electrones procedentes del LAr derivan hacia los orificios del GEM por acción del campo eléctrico local de los propios orificios, mucho más intenso que el campo externo. Aquí los electrones adquieren una energía igual o mayor a la energía de ionización del GAR. Consecuentemente, los electrones comienzan un proceso de ionización en forma de avalancha, mediante el cual cada electrón liberado por ionización, ioniza otra vez el medio. Estos electrones derivan hacia el ánodo, donde son leídos como corriente. La amplitud de esta señal es proporcional al número de electrones recogidos en el ánodo, que a su vez es proporcional a la energía depositada en el LAr por la partícula detectada.

Cuántos electrones secundarios se producen en la avalancha se cuantifica por medio de la ‘ganancia’. Ésta se define como la razón entre la corriente final e inicial, es decir, entre el número de electrones previo y posterior a la multiplicación [10]. Valores típicos de ganancia en GEMs se encuentran en el rango $10^4 - 10^6$ electrones [11]. A grandes rasgos, se busca conseguir la máxima ganancia posible, de tal manera que puedan reconstruirse eventos de neutrinos poco energéticos, como de neutrinos solares y procedentes de supernovas.

No obstante, en los detectores que amplifican la señal por medio de avalancha pueden generarse chispas que causen daño temporal o permanente en la electrónica. Para prevenirlo, se emplean por lo general aditivos moleculares que inhiben la producción de luz ultravioleta, para evitar que ésta genere descargas por efecto fotoeléctrico al impactar en el cátodo. Este método, sin embargo, no es válido en los detectores de DUNE por las razones expresadas al comienzo del apartado. Por un lado, la luz de centelleo es necesaria en la determinación de t_0 . Por otro, los detectores deben operar en elementos nobles puros donde la presencia de aditivos sea mínima, pues su empleo en condiciones criogénicas representa una importante dificultad técnica. Debido a sus altas temperaturas de congelación comparadas con el Ar, interfieren con el proceso de purificación y pueden causar congelación e inhomogeneidades en el conjunto líquido-gas, limitando la deriva de la carga.

Por tanto, con objeto de evitar la presencia de chispas, se opta por la optimización de la

geometría del detector, así como por su protección a través de elementos resistivos en Ar puro. Estos últimos consiguen evitar las chispas y estabilizar la multiplicación limitando la máxima ganancia que una avalancha aislada puede alcanzar. Estos conceptos se exploran brevemente en los apartados siguientes.

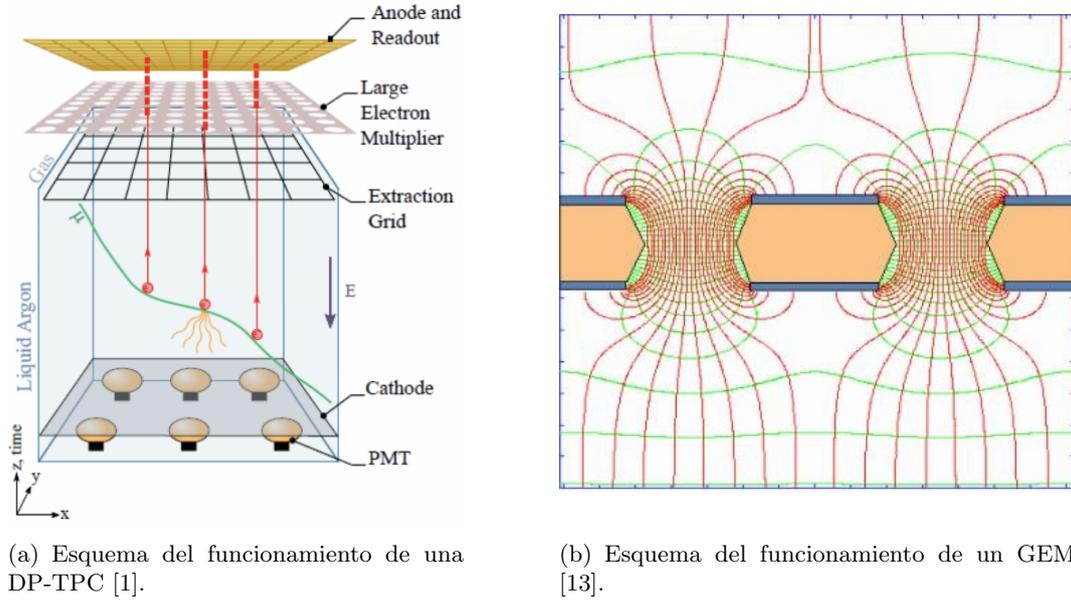


Figura 1.4: Estructura de una DP-TPC en configuración vertical y líneas de campo (en rojo) y potencial (en verde) en un GEM.

1.4. Mecanismos de ruptura dieléctrica en gases

La amplificación de la señal por medio de una avalancha de electrones es un paso crucial en la detección de la ionización liberada por las partículas cargadas producidas en la interacción de los neutrinos. Sin embargo, estas avalanchas pueden resultar demasiado intensas y desembocar en procesos de multiplicación no lineales, provocando en última instancia una chispa y dañando el detector.

En esta sección se exploran las diferentes etapas de la ruptura dieléctrica de un gas en las condiciones típicas de operación de detectores gaseosos. Esto permitirá entender cómo se produce el proceso de avalancha y cómo ésta evoluciona hasta generar una chispa, lo cual hará posible establecer las características que un elemento de protección resistivo debe tener para permitir la multiplicación previniendo los daños en el detector.

En condiciones típicas de operación, se considera que la ruptura dieléctrica del gas se inicia cuando la carga total de la avalancha supera el límite de Raether de 10^8 electrones [14]:

$$n_{crit} = A_{max} \cdot n_0 \approx 10^8 \quad (1.1)$$

donde n_{crit} es el número de electrones crítico, a partir del cual se inicia el proceso de ruptura, A_{max} es la ganancia máxima y n_0 el número electrones primarios, es decir, el número de electrones creados por la interacción entre la partícula detectada y el medio. Por tanto, un detector gaseoso debe siempre operar por debajo del límite de Raether, lo cual establece unas ganancias típicas de 10^4 electrones [15].

En la figura 1.5 se muestran las diferentes etapas de la ruptura dieléctrica según la curva característica $V-I$. A grandes rasgos, éstas son: i) inicio del proceso de ruptura por descarga de

Townsend (Townsend discharge), *streamer* o una combinación de ambas; ii) descarga luminiscente (glow discharge); iii) descarga de arco/chispa (arc discharge).

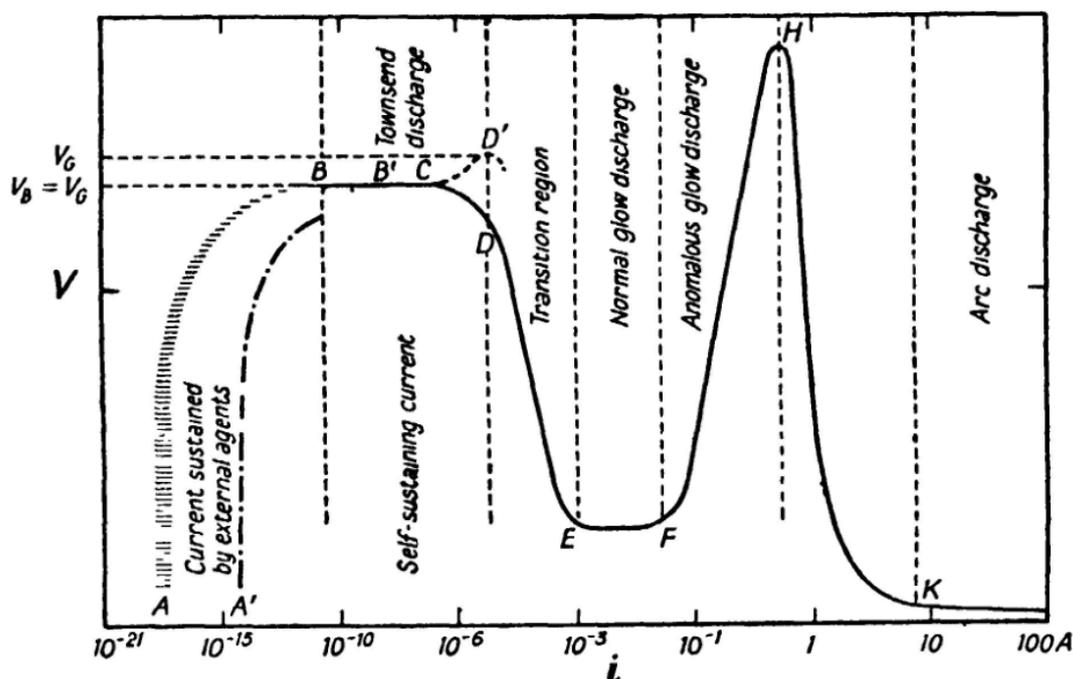


Figura 1.5: Característica V - I y etapas de la ruptura dieléctrica en un gas entre placas plano-paralelas, para valores bajos del producto de la presión por la longitud del arco (en torno a $1 \text{ bar} \cdot 1 \text{ cm}$ o menor). La ruptura se inicia en este caso por descarga de Townsend (en el texto se discute asimismo el modo *streamer*, más frecuente en detectores gaseosos), [16].

■ Mecanismo Townsend

El mecanismo de ruptura de Townsend es el mecanismo de ruptura que primero se identificó. Cuando una avalancha alcanza un cierto umbral de multiplicación, se producen efectos secundarios que desestabilizan el proceso, como efecto fotoeléctrico o extracción de electrones por parte de los iones que alcanzan el cátodo. La condición de criticalidad es que exista en promedio una nueva avalancha secundaria generada por la avalancha primaria. En estas condiciones, la descarga se extiende a todo el gas y en última instancia desencadena una chispa. El tipo de gas y condiciones del electrodo son los factores determinantes de la ruptura.

■ Mecanismo *Streamer*

En gases con aditivos moleculares (*quenchers*) y geometrías en las cuales el cátodo no está expuesto a la acción de los fotones ultravioleta o el impacto directo de los iones, el mecanismo de Townsend puede inhibirse y alcanzarse ganancias estables muy altas, hasta valores en torno a 10^4 o 10^5 . En este caso, el mecanismo de ruptura se denomina *streamer*, y pasa a ser una propiedad únicamente del gas, con capacidad de autopropagarse independientemente de las condiciones geométricas que delimitan el volumen. La condición que determina esta transición se conoce, en un sentido amplio, como límite de Raether, y viene dado por la condición 1.1.

En la figura 1.6 se muestra la evolución de la avalancha en *streamer*. Este proceso comienza con la acumulación de carga negativa en la cabeza de la avalancha, y positiva en la cola

(subfigura 1.6.a) debido a las velocidades de deriva diferentes entre electrones e iones, siendo los últimos unas mil veces más lentos [17]. Esto genera un campo eléctrico dipolar que se superpone al externo, distorsionando el campo eléctrico neto sentido por las partículas. Como resultado, el campo se hace más intenso en la cabeza de la avalancha, acelerando la ionización en esta zona y distorsionando todavía más el campo. En las condiciones en las que esto sucede, suele referirse como *anode-directed streamer*.

Debido al campo eléctrico no uniforme, los electrones en la cola de la avalancha sufren más recombinaciones electrón-ion. Este proceso genera centello ultravioleta, lo cual da lugar a avalanchas secundarias deslocalizadas (subfigura 1.6.b). Estas avalanchas se generan progresivamente en la dirección donde el campo eléctrico es mayor (hacia el cátodo) lo que provoca un movimiento aparente de la ionización en esa dirección, denominado *cathode-directed streamer* (subfigura 1.6.c).

Estas ionizaciones calientan el gas, de tal manera que su conductividad eléctrica aumenta. En consecuencia, el *streamer* evoluciona, pasando por otras fases (e.g., *glow discharge*), hacia la chispa, que es la liberación brusca de toda la energía electrostática almacenada entre el ánodo y el cátodo (subfigura 1.6.d).

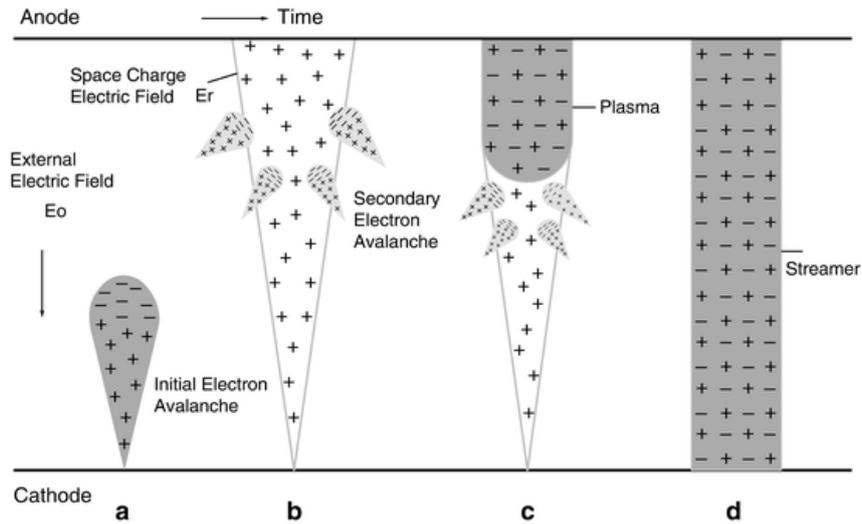


Figura 1.6: Evolución de una avalancha en *streamer* [18].

En base a lo anterior, si en las fases subsiguientes al *streamer* se puede limitar la propagación de las cargas utilizando electrodos de baja conductividad, sería en principio posible evitar los procesos potencialmente dañinos para el detector, confinando el proceso de ruptura dieléctrica al de *streamer*, que no causa daños.

Por tanto, interesa cortar la evolución de la ruptura dieléctrica en su primera etapa de *streamer*, de tal manera que se produzca la amplificación de la señal de manera estable, en ausencia de chispas. La mayoría de los eventos causarán así avalanchas normales, lo que dará lugar a propiedades deseables de respuesta del detector (e.g., proporcionalidad), y solo al nivel de partes por millón aparecerán los *streamers*, que pueden ser descartados durante el análisis. De acuerdo con [19], que se basa en diferentes estudios experimentales al respecto, el proceso de ruptura dieléctrica puede limitarse al de *streamer* si la resistividad de los electrodos de la estructura de multiplicación se halla en el rango $10^8 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$, como se indica en la figura 1.7. Resistividades menores no permiten estabilizar el proceso de multiplicación, mientras que resistividades superiores resultan en acumulación de carga en el material resistivo, afectando al campo eléctrico de las avalanchas subsiguientes, pues el tiempo necesario para evacuar la carga y recuperar el campo eléctrico uniforme es mayor que el intervalo de tiempo entre eventos.

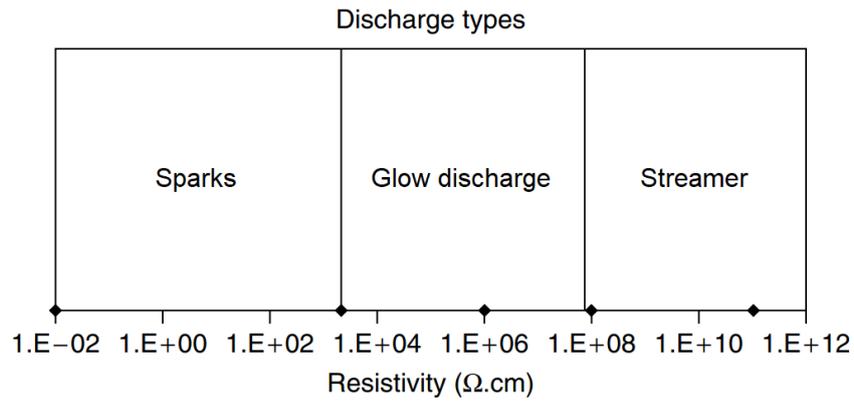


Figura 1.7: Estadio alcanzado por el proceso de ruptura dieléctrica según la resistividad de los electrodos. Se indica el rango de resistividad que los electrodos deben disponer para frenar la ruptura en cada etapa. En el caso de alta resistividad, de manera genérica, solo está activo el modo streamer. Figura adaptada de [19].

1.5. Resistive Plate Chambers (RPCs) y Resistive Plate WELLS (RP-WELLS)

Las cámaras de placas resistivas (*Resistive Plate Chambers*, RPCs) surgen para proteger al detector de chispas, en base a las explicaciones aportadas en el apartado 1.4. Hoy en día existen gran variedad de diseños, si bien todos ellos se basan en la misma idea, que es la implementación de electrodos resistivos en las estructuras de multiplicación electrónica.

En la figura 1.8.a se muestra el diseño de Santonico y Cardarelli (1980s), la primera RPC. Se trata de dos placas plano-paralelas de baquelita³ de resistividad volúmica $10^{10} - 10^{11} \Omega \cdot \text{cm}$, separadas por un *gap* de gas de unos pocos milímetros. La alta tensión se aplica a las superficies exteriores de la baquelita a través de un recubrimiento de pintura conductora. La lectura de la carga se realiza por medio de tiras de aluminio separadas de la pintura conductora con una capa aislante de plástico [17].

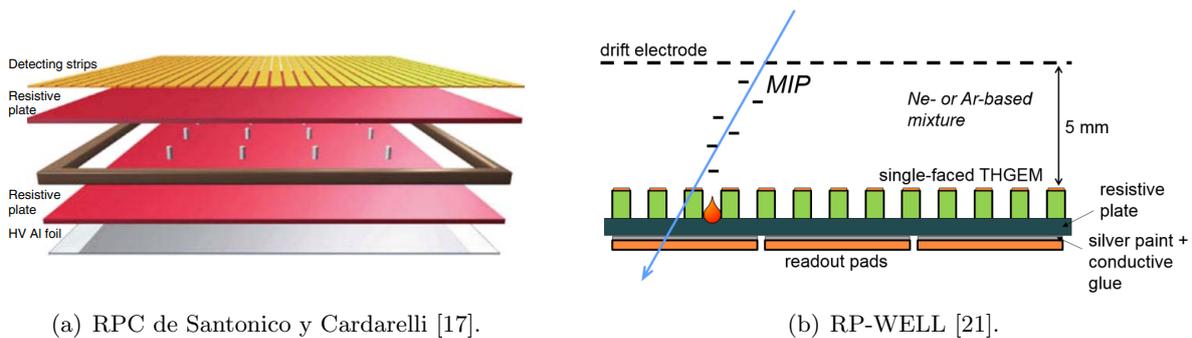


Figura 1.8: Modelos diferentes de detectores resistivos.

El tipo de detector resistivo en el que se centra este trabajo se denomina *Resistive Plate WELL* (RP-WELL). Este detector adopta la geometría Thick-WELL (THWELL), que son estructuras de multiplicación de la familia de los GEMs. Los THWELLS son Thick-GEMs (i.e. GEMs gruesos) conectados a un plano continuo que hace de ánodo y donde se recoge la carga.

³La baquelita es un tipo de plástico duro, también conocido como resina de fenol-formaldehído, en base a sus componentes [20].

La versión resistiva de este sensor se denomina RP-WELL, y se presenta en la figura 1.8.b. El propósito de este elemento es estabilizar el proceso de avalancha con la ayuda de materiales resistivos en el rango $10^9 - 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}^4$.

Los RP-WELLS, al contrario que las RPCs, son compatibles con la operación en TPCs dado que los electrones pueden acceder desde el volumen de deriva al de multiplicación a través de los agujeros del THGEM, mientras que el volumen de una RPC está confinado a un *gap* del orden de un milímetro.

Por otro lado, la configuración RP-WELL es mucho más favorable que las RPCs de cara a la implementación de protección resistiva. En primer lugar, un RP-WELL no solo usa el material resistivo como ánodo, sino que permite la evacuación directa de la carga a tierra, mientras que en muchas implementaciones actuales de RPC, el material resistivo debe actuar simultáneamente como ánodo y cátodo. Además, éste debe estar sometido a diferencias de potencial del orden de los kV, mientras que los RP-WELL trabajan intrínsecamente a potenciales más bajos.

En relación a los materiales que pueden emplearse como protección resistiva en RP-WELLS, existen una serie de requerimientos que éstos deben cumplir, relacionados con la uniformidad de su resistividad, la ganancia del detector y otros aspectos. En el capítulo siguiente se detallan estos requerimientos y se exploran las características de diferentes materiales, históricamente empleados en detectores resistivos como RPCs.

⁴Se ha aumentado la restricción de este rango con respecto al expuesto en la figura 1.7 por las características del detector, y en base a información más actual.

Capítulo 2

State-of-the-art de los elementos resistivos en RPCs y RP-WELLS

2.1. Propiedades de un buen material

Uno de los factores más importantes en un detector basado en multiplicación por avalancha es la ganancia, que debe ser lo más alta posible sin dar lugar a la aparición de chispas. Los materiales resistivos previenen la aparición de éstas, pero también limitan su capacidad de operar a altas tasas de partículas (*rate capability*).

Cómo afecta la resistividad al proceso de multiplicación y al *rate capability* puede entenderse en términos del tiempo τ que tarda la carga en ser evacuada a través del material [22], que puede aproximarse como

$$\tau \approx \rho \cdot \varepsilon \quad (2.1)$$

donde ρ es la resistividad y ε la constante dieléctrica del material. Si τ es bastante mayor que el tiempo de deriva de los electrones en el gas, tal que éstos no puedan ser evacuados por completo tras el proceso de formación del *streamer* antes del siguiente evento, la carga se acumula en la placa resistiva. Esto reduce el campo eléctrico neto en la zona afectada del detector, y por tanto la conductividad del gas, ‘apagando’ el proceso de formación de la chispa.

En este contexto, si la resistividad del material es mayor que $10^{13} \Omega\cdot\text{cm}$, la propia radioactividad ambiental es capaz de modificar el campo eléctrico en el detector, distorsionando su respuesta. Por tanto, se buscan resistividades en un rango que proporcione un compromiso adecuado entre la capacidad para confinar la ruptura dieléctrica a la etapa de *streamer*, y la necesidad de poder evacuar las cargas sin distorsionar el campo cuando se inician las avalanchas subsiguientes. Como se comentaba en el apartado 1.4, ello impone un rango de $10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$, donde el límite inferior lo marca la prevención de chispas, y el límite superior el *rate capability*.

Con esto en mente, pueden entenderse los siguientes requerimientos:

- La ganancia del detector debe ser estable. Preferiblemente, ésta no debe variar en exceso con el voltaje ni la tasa de partículas, siendo estable en el rango de operación del detector. Este parámetro depende tanto del material resistivo como de su geometría, dado que la resistividad depende del área y del espesor de dicho material, como puede observarse en la ecuación 2.2

$$\rho = \frac{R \cdot A}{t} \quad (2.2)$$

donde R es la resistencia, A es el área del material y t su espesor.

- La resistividad debe ser uniforme en todo el material para evitar corrientes de fuga. Si una zona del material presenta una resistividad menor, la carga tiende a ser evacuada por esta

región. Ello provoca que la carga transportada en esta zona sea mayor de lo que debería, pudiendo causar la ruptura dieléctrica del material.

- Es importante que las placas resistivas sean plano-paralelas y que su superficie sea lisa para evitar distorsiones en el campo eléctrico. Por ello, los materiales empleados deben poder ser fabricados con estas características y preservarlas en el tiempo.
- Tanto las propiedades mecánicas como eléctricas del material deben permanecer constantes con el tiempo. En relación a ello, el material debe poder soportar voltajes y cargas transportadas compatibles con el rango de operación del detector.
- Preferiblemente, debe tratarse de un material sencillo de fabricar, barato y mecánicamente robusto.

2.2. Adaptabilidad de materiales históricamente empleados en RPCs para su operación en LArT

La mayoría de RPCs y RP-WELLS empleadas hasta la fecha en experimentos de física de partículas operan a temperatura ambiente (*room temperature*, RT), si bien los detectores de DUNE operarán a LArT. Por ello, en la tabla 2.1 se revisan los distintos materiales que han sido empleados en el pasado y en la actualidad, observando si pueden ser adaptados a las RP-WELLS de DUNE.

Estos materiales pueden dividirse en cuatro categorías fundamentales: plásticos, cerámicas, vidrios y electrodos compuestos. HPL Bakelite significa *High Pressure Laminate Bakelite* i.e. bakelita laminada a alta presión. Semitron ESD 225 es un plástico estático-disipativo (*Static Dissipative Plastic*) basado en acetal [25]. Tivar EC y Tivar ESD (UHMW) es el nombre comercial de un tipo de termoplástico semi-cristalino comercializado por Tivar [26]. PTFE es asimismo un plástico de nombre químico ‘Politetrafluoroetileno’, comúnmente conocido como teflón [27]. Las películas de carbono/epoxi y Grafito-Araldite son ambas mezclas basadas en resina de epoxi. La primera, mezclada con carbono, la segunda, con grafito en polvo. Araldite es el nombre de la empresa que comercializa la resina de epoxi [28].

Para su operación a temperaturas criogénicas (LXeT, LArT) otras estructuras y materiales han sido estudiados, como Thick-GEMs con electrodos resistivos de materiales variados (*Resistive Electrode Thick-GEMs*, *RETGEMs*) [29]. No obstante, el único material que ha demostrado un funcionamiento correcto en RP-WELLS a temperaturas criogénicas han sido las cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ con una concentración en Fe₂O₃ del 35 %wt. Este material constituye por tanto el objeto de investigación de este documento.

2.3. Cerámicas de YSZ/Fe₂O₃

En esta sección se resumen los resultados de [23] con el objetivo de sentar las bases sobre las cuales parte el estudio de las cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ para su implementación en TPCs en LAr.

A. Roy, M. Morales et al estudiaron el comportamiento de la resistividad con la temperatura de dos muestras cerámicas, así como de dos materiales comúnmente empleados en RPCs y RP-WELLS a RT, Semitron ESD y LRS Glass, como referencia. En la figura 2.1.a se observa que las muestras cerámicas presentan la resistividad necesaria a LArT y LXeT ($10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$), mientras que la resistividad de los otros materiales es demasiado alta a estas temperaturas, como ya se había adelantado en la tabla 2.1.

¹Porcentaje en peso.

Material	ρ_{RT} [$\Omega \cdot \text{cm}$]	$\rho(T)$	Ganancia	Inconvenientes
Películas de carbono/epoxi	1 – 20 M Ω /sq		$10^4 - 10^5$. Dependencia exponencial con el voltaje.	Una resistividad mayor a 20 M Ω /sq provoca películas inhomogéneas. Además presenta chispas a voltajes altos.
VERTEC 400 glass	$8 \cdot 10^{12}$		10^5 . Saturación a voltaje alto.	
HPL Bakelite	$2 \cdot 10^{10}$		10^5 . Saturación a voltaje alto.	
Semitron ESD 225	$2 \cdot 10^9$	Arrhenius	10^5 . Dependencia exponencial con el voltaje.	Presenta chispas y corriente de fuga a > 1 kV. Además su resistividad es muy elevada a LArT.
Cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 (35 %wt ¹ Fe_2O_3)	10^7	Arrhenius	10^4 . Incrementa con el voltaje.	
Tivar EC y Tivar ESD (UHMW-PE)	$10^6 - 10^7$	Constante		Resistividad demasiado baja a LArT.
PTFE + 1.5 % Carbono	$10^7 - 10^8$	Constante		Resistividad demasiado baja a LArT.
Graphite - Araldite	$10^8 - 10^{14}$	Constante		Resistividad no uniforme.
Cerámicas basadas en Si	10^8	Arrhenius		Resistividad demasiado alta a LArT.
Low Resistive semiconductive Silicate (LRS) Glass	10^{10}			Producción complicada ya que la resistividad final depende de la composición inicial del material bruto y el proceso de fundido.

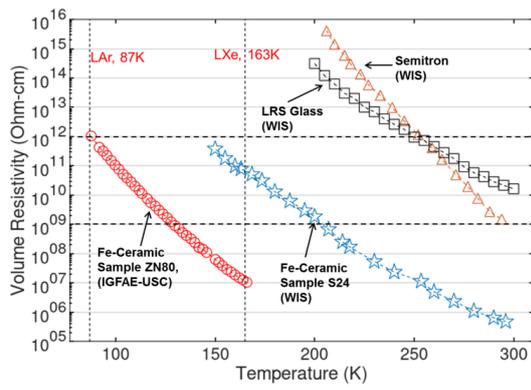
Tabla 2.1: Propiedades resistivas de algunos materiales empleados en RPCs, ganancia máxima del detector e inconvenientes de cara a su implementación en DUNE [22, 23, 24].

En relación a ello, también observaron que la resistividad de este material puede modificarse mediante tratamientos térmicos de post-procesado a $500 - 800^\circ\text{C}$, de tal manera que puede ajustarse al rango deseado a una temperatura dada. Ello convierte a las cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 en un material interesante debido a su posible adaptabilidad a un espectro amplio de aplicaciones.

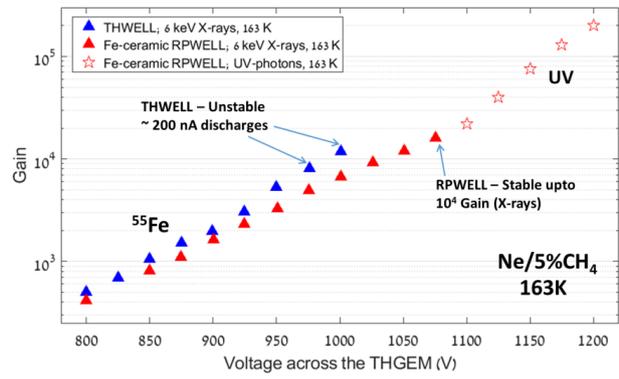
Por otro lado, en la figura 2.1.b se observa que se alcanzan ganancias de $\sim 10^4$. Los autores reportan que el detector opera de manera estable en ausencia de chispas hasta este valor de ganancia, aplicando un campo externo de 0.5 kV/cm. Nuevamente, estos resultados apuntan a que las cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 pueden convertirse en el material óptimo para su implementación en RP-WELLS en LAr.

2.4. Punto de partida y propuesta

La base de los estudios descritos en el capítulo 3 y sucesivos son los resultados de A, Roy, M. Morales et al. La cerámica con una composición del 35 %wt de Fe_2O_3 resulta demasiado resistiva a LArT, por lo que se ha buscado una muestra con una proporción diferente, tal que su resistividad se encuentre en el rango $10^9 - 10^{12}$ $\Omega \cdot \text{cm}$ a LArT y entre $0 - 500$ V de voltaje aplicado. Para ello, se han producido muestras de concentraciones de Fe_2O_3 en el rango $30 - 85$ %wt y se han medido sus propiedades eléctricas tanto a temperatura ambiente como a temperatura criogénica. El desarrollo experimental se detalla en el capítulo 3, y los resultados pueden hallarse en el capítulo 4.



(a) Resistividad en función de la temperatura de dos muestras cerámicas de $\text{YSZ}/\text{Fe}_2\text{O}_3$, Semitron ESD y LRS Glass.



(b) Curva de ganancia en función del voltaje de las cerámicas de $\text{YSZ}/\text{Fe}_2\text{O}_3$ en configuraciones THGEM y RP-WELL.

Figura 2.1: Curvas de resistividad frente a temperatura y ganancia frente a voltaje, tomadas de [23].

Capítulo 3

Desarrollo experimental

3.1. Fabricación de las piezas cerámicas

Las piezas cerámicas se fabrican en el Instituto de Cerámicas de Galicia (ICG) y están compuestas por Fe_2O_3 (hematita) y ZrO_2 (zircona) estabilizada con Y_2O_3 (yttria), en conjunto denominado *Yttria-Stabilized Zircon* (YSZ). Las proporciones de Fe_2O_3 y YSZ se calculan en peso, de tal manera que una muestra de 60 %wt de Fe_2O_3 contiene 60 gr de Fe_2O_3 y 40 gr de YSZ por cada 100 gr de cerámica.

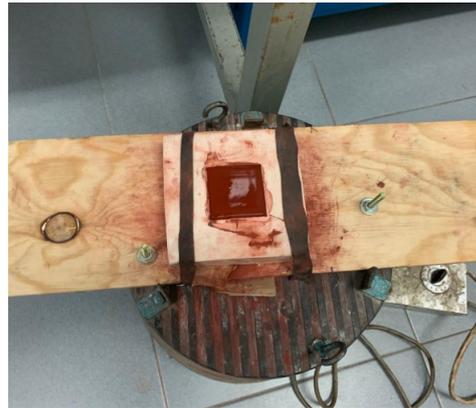
El polvo de Fe_2O_3 que se utiliza se adquiere de la empresa Sigma Aldrich y posee una pureza $\geq 99\%$ y tamaño de grano $< 5 \mu\text{m}$. La zircona presenta un tamaño de cristalito de 22 nm y contiene un 8 % de Y_2O_3 .

Estos componentes sólidos se mezclan primero en seco introduciéndose en un agitador-mezclador (subfigura 3.1.a) durante dos horas, en cuyo interior se colocan pequeñas esferas de zircona pura¹ que ayudan a mezclar los granos. Tras dos horas de mezclado en seco, se añade agua y surfactante² Dolapix y se mezcla durante otras cuatro horas. Esta mezcla recibe el nombre de ‘barbotina’.

Posteriormente, la barbotina se vierte en un molde de yeso de secado lento³ con la forma final de la pieza cerámica y se coloca sobre un agitador-vibrador (subfigura 3.1.b) durante diez minutos para eliminar burbujas de aire y para que la barbotina se adapte bien al molde.



(a) Agitador-mezclador.



(b) Agitador-vibrador.

Figura 3.1: Fotografías de los instrumentos de mezclado tomadas en el laboratorio de ICG.

¹Se emplean esferas de zircona porque su alta dureza en la escala de Mohs previene su erosión por choque contra las paredes del agitador-mezclador, de tal manera que no contamina la mezcla.

²El surfactante reduce la tensión superficial de la mezcla y previene la formación de grumos.

³El secado lento es relevante para evitar grietas en las muestras.

Seguidamente, el molde se introduce en un horno industrial no hermético y se calienta en atmósfera de oxígeno a 800°C durante dos horas. A este proceso lo hemos denominado ‘pre-calcinación’, pues se trata de un paso previo a la calcinación mediante la cual se obtiene la pieza final. En el proceso de secado y solidificación de la barbotina se genera relieve en las zonas que se encuentran en contacto con el molde por tensión superficial, como se indica en la figura 3.2. Se desea una muestra completamente plano-paralela, por lo que es preciso eliminar este borde. La pre-calcinación se efectúa para poder rebajarlo mediante pulido de manera sencilla, pues en este estado la muestra es mucho más blanda que en su estado final.

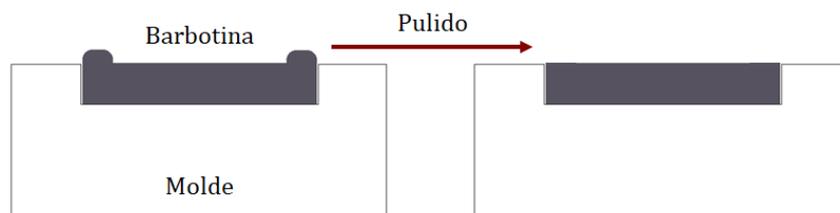


Figura 3.2: Representación de los bordes que se forman en la barbotina tras la pre-calcinación, y pulido para rebajarlos.

En el paso final, la muestra se calienta hasta los 1300°C mediante una rampa de temperatura ascendente. El tiempo que pasa a 1300°C está sobredimensionado para asegurar que la cerámica solidifica por completo. Para devolver la muestra a temperatura ambiente, primero se establece una rampa de enfriamiento de 2°C por minuto hasta alcanzar los 800°C . Alcanzada esta temperatura, el horno se abre y se deja enfriar al aire. En este proceso, la rampa de enfriamiento es relevante para evitar fracturas en la muestra por *shock* térmico.

En la figura 3.3 puede observarse un esquema del ciclo térmico al que se somete a la barbotina durante el proceso de fabricación de las piezas cerámicas. El tiempo entre las etapas de pre-calcinación y calcinación, así como el tiempo de esta última etapa, son orientativos y pueden variar.

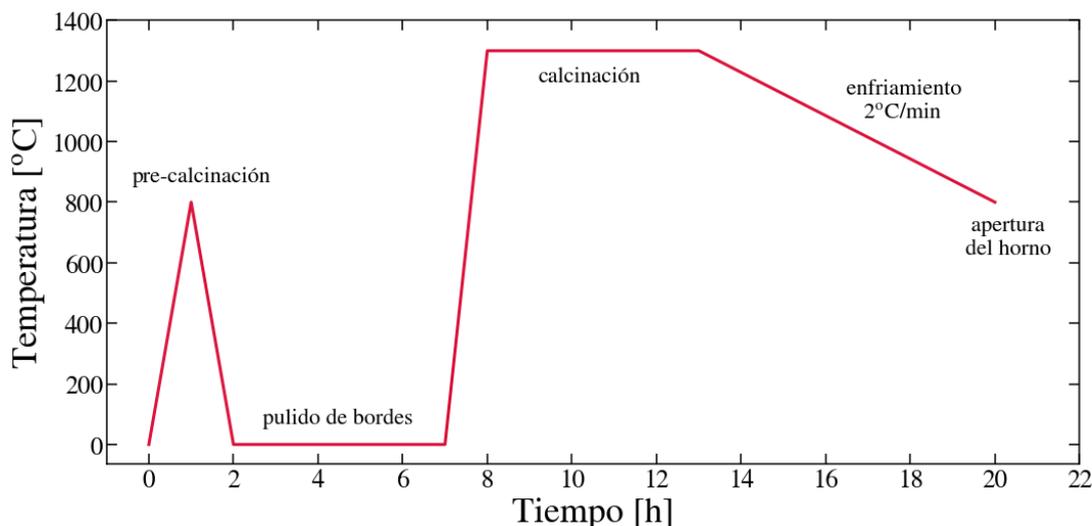


Figura 3.3: Ciclo térmico de fabricación de las piezas cerámicas.

3.2. Montaje experimental y medidas realizadas

Las medidas que se han llevado a cabo, explicadas en detalle más adelante, son:

- Caracterización del *skin* en cerámicas de 85 %wt Fe₂O₃: estimación de su espesor, medida de su resistividad superficial a RT y LN₂T. Estudio de su reproducibilidad mediante pulido y post-procesado de las muestras.
- Estudio del efecto de diferentes electrodos sobre los valores de resistividad medidos.
- Estudio de la uniformidad de la resistividad en las diferentes muestras.
- Estudio del comportamiento de la resistividad volúmica con el campo eléctrico a RT y LN₂T.
- Estudio de la dependencia de la resistividad volúmica con la temperatura.
- Estudio de la dependencia de la resistividad superficial con la concentración de Fe₂O₃ a RT y LN₂T.
- Estimación de la tensión de ruptura dieléctrica y tests de envejecimiento eléctrico en muestras seleccionadas.
- Medida de la constante dieléctrica en muestras seleccionadas.

Para ello se ha empleado fundamentalmente el montaje experimental de la figura 3.4. Las muestras son conectadas a un picoamperímetro Keithley modelo 6482 que permite aplicar voltajes de hasta 500 V y proporciona lecturas de corriente y resistencia.

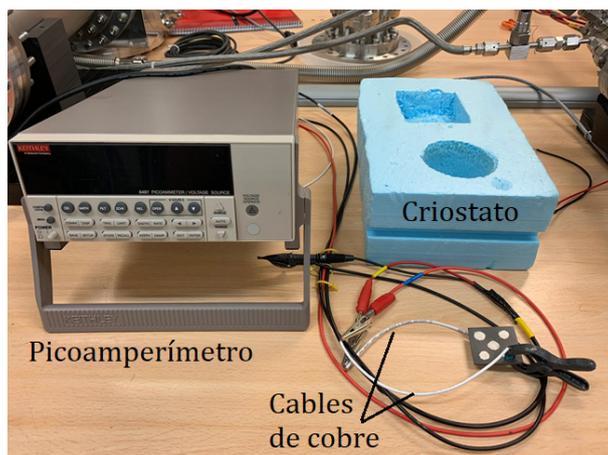


Figura 3.4: Picoamperímetro, criostato y pinzas con cable de cobre.

Para medir la resistencia superficial de las muestras se emplean dos pines metálicos en contacto directo con la muestra y conectados al Keithley (figura 3.5). Para las medidas de resistencia volúmica, se colocan electrodos en ambas caras de la muestra y se conecta sobre ellos cables de cobre por presión sujetos por pinzas.

Por otro lado, las medidas a RT se realizan en un laboratorio con temperatura controlada de 20°C. Las medidas a LN₂T se llevan a cabo introduciendo las muestras en un baño de LN₂, contenido en el criostato que se observa en la figura 3.4.

Para las medidas de resistividad en función de temperatura se empleó una termorresistencia Pt100. Se trata de una resistencia sensible a la temperatura, cuyas variaciones están tabuladas y cuya resistencia a 273 K es de 100 Ω. En la subfigura 3.6.a se puede observar el Pt100.

No obstante, para emplearlo en las medidas de resistividad en función de temperatura es necesario proteger el Pt100 y alargar sus contactos, para poder sumergirlo en LN₂. Para ello, se soldaron cables de cobre a los terminales del Pt100 y se recubrieron los contactos soldados con

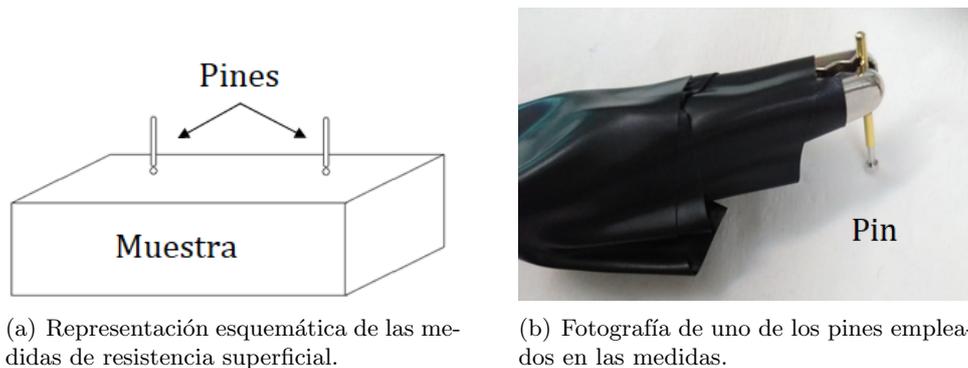


Figura 3.5: Esquema y fotografía de los pines metálicos empleados en las medidas de resistencia superficial.

cables termoretráctiles⁴. La cabeza del Pt100 se protegió con resina de epoxi para minimizar el *shock* térmico y evitar su fractura. En la subfigura 3.6.b puede observarse una fotografía del Pt100 con los cables de cobre y el recubrimiento protector.

En la misma figura puede observarse también que el Pt100 se coloca en contacto directo con la superficie de la muestra por medio de una pinza. Los terminales del Pt100 son conectados a un multímetro que permite medir la temperatura de la muestra a través de los valores de resistencia del Pt100. La resistencia se mide de manera usual, conectando la muestra con electrodos al Keithley.

Para realizar estas medidas, se sumergió la muestra en contacto con el Pt100 en LN₂, se esperó hasta que la temperatura estabilizara, y se sacó la muestra y dejó calentar a temperatura ambiente. Los valores de resistividad y temperatura se leyeron en modo *drift*, es decir, en tiempo real a lo largo del calentamiento de la cerámica desde LN₂T hasta RT.

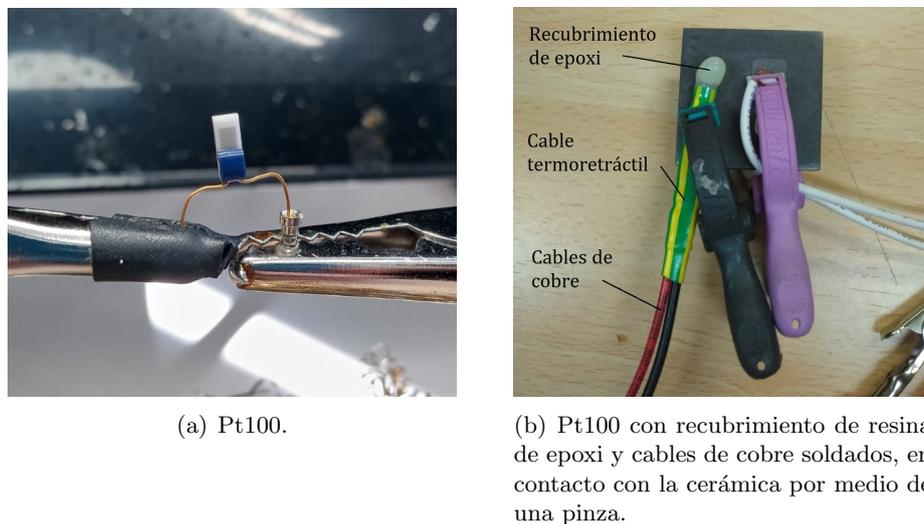


Figura 3.6: Fotografías del Pt100 antes y después de ser recubierto con resina de epoxi para realizar las medidas de resistividad en función de la temperatura.

⁴Los cables termoretráctiles se encogen por efecto del calor y se adaptan a la forma de lo que contienen, de tal manera que, en este caso, aportan robustez mecánica a la región soldada.

Capítulo 4

Resultados y análisis

En este capítulo se describen con detalle las medidas realizadas siguiendo el orden de enumeración del apartado 3 y se presentan los resultados de las mismas.

4.1. Caracterización del *skin* en cerámicas de 85 %wt Fe₂O₃

Se ha observado que en el proceso de fabricación de las piezas cerámicas, éstas desarrollan una corteza (*skin*) cuya resistividad es órdenes de magnitud superior a la resistividad del núcleo. En la figura 4.1 se aprecia el efecto de este *skin* en la resistividad superficial de muestras de diferentes concentraciones de Fe₂O₃. Estas medidas se han llevado a cabo posicionando las puntas del picoamperímetro a una distancia de aproximadamente 1 cm directamente sobre la superficie de las muestras, en ausencia de electrodos, como se indica en el apartado 3.2. Las cerámicas con *skin* que se muestran en esta figura fueron fabricadas en el Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid (ICMM), a excepción de la muestra de 85 %wt Fe₂O₃.

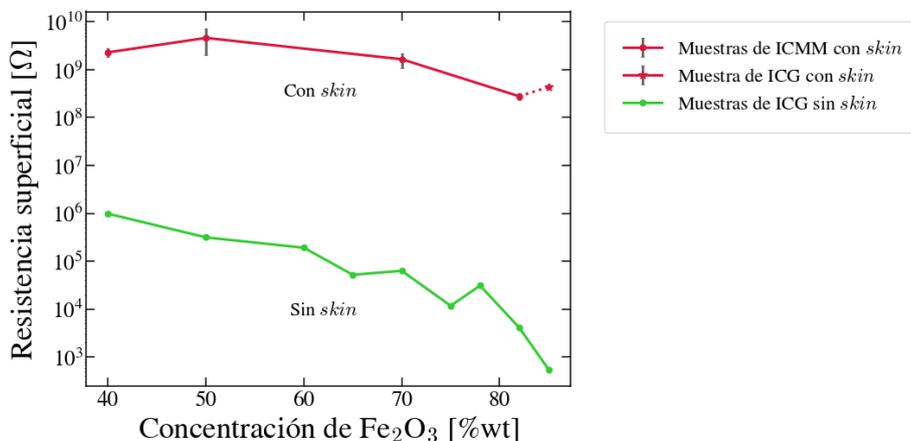


Figura 4.1: Resistencia superficial de muestras con y sin *skin*, medidas a RT.

En particular, la resistencia superficial en cerámicas homogéneas de 85 %wt de Fe₂O₃ se encuentra en el rango de las centenas de Ω, pero cuando presentan *skin*, la resistencia superficial asciende hasta los ~ 10⁸ Ω, es decir, seis órdenes de magnitud superior a la resistencia de una muestra sin *skin*.

Se ha estimado una cota superior del espesor de esta capa mediante medidas de pulido en función del tiempo, en las cuales se recoge cuánto ha variado el espesor y la masa de la cerámica tras un tiempo determinado de pulido uniforme. El pulido se realiza a mano empleando un paño

de lija de carburo de silicio¹. Para asegurar un pulido uniforme, se coloca la cerámica sobre el paño y se lija moviendo la pieza en forma de 8, como se indica en la figura 4.2. Cuánto material se elimina por cada segundo de pulido depende de la fuerza y la velocidad con que se pula, por ello este método constituye solamente una primera estimación del espesor del *skin*, pendiente de confirmar mediante medidas de microscopía electrónica de barrido (*Scanning Electron Microscopy*, SEM).

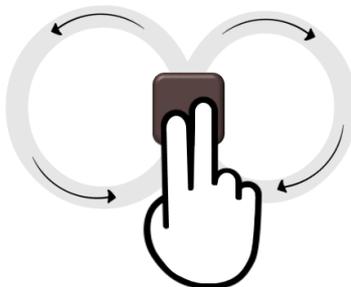


Figura 4.2: Método de pulido uniforme.

Se estableció un intervalo de tiempo de pulido de unos segundos y se realizó el proceso hasta alcanzar el núcleo de la muestra. Como se observa en la subfigura 4.3.a, sabemos que hemos eliminado el *skin* por completo cuando la resistencia superficial no varía más. Pevio a pulir y tras cada intervalo de pulido, se midió el espesor y la masa de la muestra. De esta manera, podemos estimar cuánto espesor hemos eliminado a partir de la diferencia de espesor medido y a partir de la diferencia de masa, que se relaciona con el espesor a partir de los datos iniciales, estableciendo una equivalencia entre peso inicial y espesor inicial.

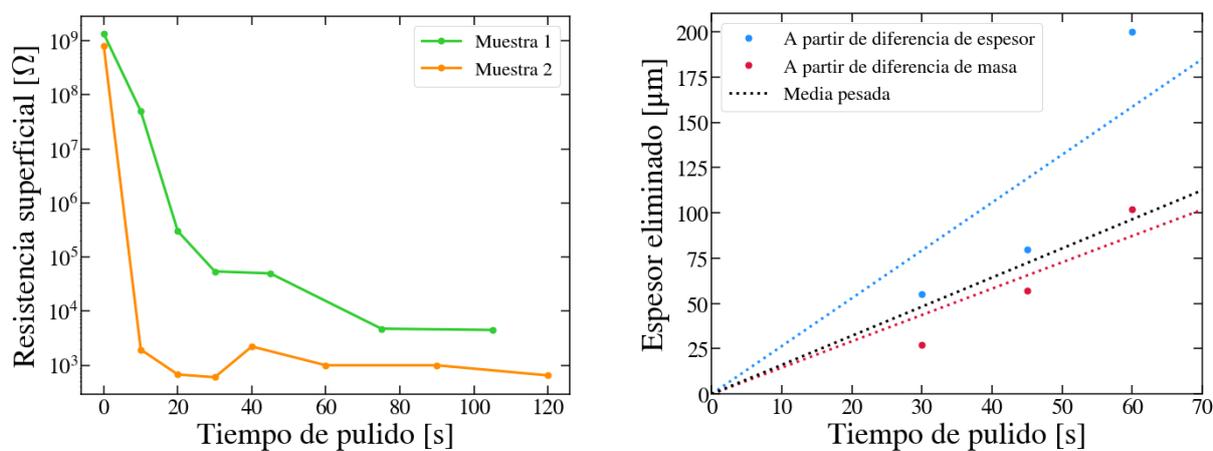


Figura 4.3: Variación de resistencia superficial y espesor en función del tiempo de pulido.

En la subfigura 4.3.b se muestra cuánto espesor se ha eliminado en función del tiempo, estimado con cada uno de los métodos. Aquí se representan valores totales, es decir, tras 45

¹La dureza en escala Vickers (HV) de estas cerámicas se sitúa en el rango 950 – 1400 para concentraciones de Fe_2O_3 entre 85 % – 35 % respectivamente, por lo que pueden trabajarse fácilmente con paños de carburo de silicio (2400 HV).

segundos se habrá eliminado el espesor que se eliminó tras los 30 segundos de pulido inicial, más el espesor eliminado en los 15 segundos posteriores.

Con objeto de obtener una ley aproximada de cuánto espesor se elimina en función del tiempo, se ajustan los datos a una recta con ordenada en el origen nula. Como estimación final se considera la recta calculada mediante la media pesada de los ajustes. La pendiente de ésta se ha calculado como

$$\bar{m} = \frac{\sum_i w_i \cdot m_i}{\sum_i w_i} \quad (4.1)$$

donde \bar{m} es la pendiente calculada de la recta, m_i son las pendientes de los ajustes y w_i sus pesos, calculados como

$$w_i = \frac{1}{\sigma_i^2} \quad (4.2)$$

siendo σ_i el error en cada pendiente m_i . Asimismo, el error en la pendiente de la recta calculada se obtiene como

$$\sigma = \frac{1}{\sqrt{\sum_i \sigma_i^2}} \quad (4.3)$$

Se ha obtenido la recta

$$t_{\text{eliminado}} = (1.6 \pm 0.2) \cdot \tau_{\text{pulido}} \quad (4.4)$$

donde $t_{\text{eliminado}}$ es el espesor eliminado y τ_{pulido} el tiempo de pulido.

De esta manera, si se toman los tiempos de pulido a partir de los que se alcanza el núcleo en las muestras 1 y 2 de la subfigura 4.3.a y se aplica la relación 4.4, se obtiene que **el espesor del *skin* es de unos 50 – 100 μm aproximadamente.**

De nuevo, se recalca el hecho de que este es un método muy aproximado de estimación del espesor, pues no se puede garantizar una velocidad y fuerza de pulido constantes a lo largo del proceso, siendo además diferentes dependiendo de la persona que pula. Por ello, la relación 4.4 no es universal.

Por otro lado, creemos que el *skin* es una capa de óxido en una fase diferente al Fe_2O_3 empleado en la fabricación, que se forma por efecto de la temperatura durante la calcinación de la barbotina. Para estudiar si es posible crecer el *skin* de manera controlada, una vez la cerámica ha sido pulida, se sometió a varias muestras de 85 %wt Fe_2O_3 a post-procesados en hornos industriales a diferentes valores de temperatura y de tiempo. Posteriormente, se volvió a medir su resistencia superficial para compararla con la resistencia previa al pulido.

La tendencia general que se ha observado es que el *skin* es reproducible, es decir, puede recuperarse con el mismo valor de resistividad previo al pulido. Además, la rapidez de crecimiento del *skin* depende tanto del tiempo como de la temperatura de calcinación. Si alguno o ambos parámetros son bajos, el *skin* que se desarrolla es fino y por tanto su tensión de ruptura dieléctrica es más baja, como puede observarse en la figura 4.4, donde se muestra la resistencia superficial de dos muestras post-procesadas a 700°C durante 1 y 6 horas respectivamente. La muestra post-procesada durante 6h recupera el valor inicial de resistencia y puede ser medida en todo el rango de tensión que puede aplicar el Keithley. Sin embargo, la muestra post-procesada durante 1h presenta una resistencia superficial algo menor, así como se encuentra que la ruptura dieléctrica de su *skin* tiene lugar a 250 V. Experimentalmente, se ha observado que **los parámetros óptimos para recuperar un *skin* estable con las características iniciales son 800°C y 8h.**

En principio, podría plantearse cualquiera de estas configuraciones, con o sin *skin*, para su uso en detectores. Sin embargo, es mucho más conveniente trabajar con muestras homogéneas, y por ello se ha preferido centrar el estudio en muestras sin *skin*. Las razones para ello atienden a los requisitos expresados en el apartado 2.1. En particular, la necesidad de una buena planaridad de las caras hace necesario pulir las muestras, dado que durante la fabricación muchas

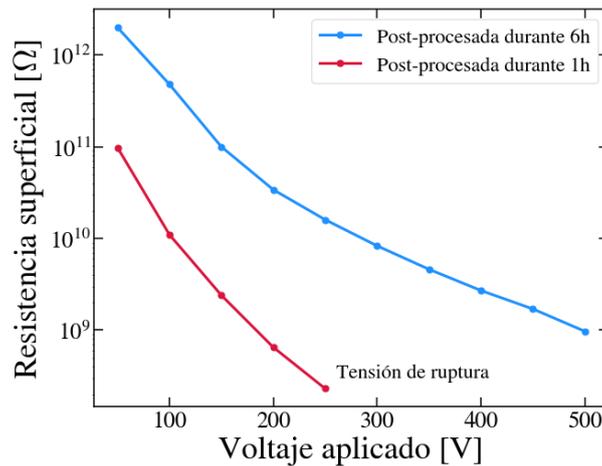


Figura 4.4: Resistencia superficial en función del voltaje aplicado para dos muestras post-procesadas a 700°C durante 1 y 6 horas respectivamente.

de ellas presentan una cara ligeramente cóncava y otra ligeramente convexa. Re-crecer el *skin* y re-verificar sus propiedades cada vez que se fabrica una muestra nueva alarga y complica innecesariamente el proceso de producción. Además, es previsible que la resistividad de una muestra homogénea sea más estable en el tiempo que en una muestra con *skin*. De hecho, existen evidencias indirectas por medidas realizadas en RPCs² de que el *skin* es frágil ante el proceso de descarga, de manera que la conductividad de la cerámica está en última instancia dominada siempre por la del núcleo.

4.2. Estudio del efecto de diferentes electrodos sobre los valores de resistividad y estimación de errores

Las medidas de resistividad volúmica en función del voltaje aplicado comenzaron a hacerse empleando electrodos de pintura de plata (subfigura 4.5.a). Sin embargo, se quería obtener las mismas curvas con otro tipo de electrodo, como medio de confirmación de que los resultados obtenidos representan el comportamiento de las cerámicas, y no del material del electrodo o la interacción electrodo-cerámica. Por esta razón se repitieron las medidas con electrodos de epoxi de plata (subfigura 4.5.b). Se observó concordancia entre los resultados obtenidos a LN₂T, pero no entre aquellos a RT. Por tanto, se repitieron las medidas con otros electrodos, hasta encontrar dos que proporcionaran medidas concordantes a ambas temperaturas. En la figura 4.5 se muestran los cinco tipos de electrodos estudiados. Éstos son:

- **Electrodos de pintura de plata.**

Se trata de una pintura conductora de acetato de plata de la marca RS Pro. Se aplica con un pincel y se emplea una plantilla adhesiva para definir la geometría del electrodo. Se borra fácilmente con acetona o etanol.

- **Electrodos de epoxi plata.**

Es un pegamento conductor que se comercializa en forma de dos reactivos que hay que mezclar en proporción 1:1. El cable de cobre empleado para conectar los electrodos al Keithley se fija a la cerámica mediante el epoxi, siendo éste el único contacto que no se realiza mediante presión.

²En estos estudios no se conocía la existencia del *skin* pero se observaba un aumento en la conductividad a lo largo del tiempo, que ahora asociamos a la ruptura dieléctrica del *skin*.

■ **Electrodos de platino (Pt) por *sputtering*.**

El *sputtering* o ‘pulverización catódica’ es un método que se utiliza para la deposición de capas finas de metales puros sobre un sustrato, en este caso la cerámica.

El equipo de pulverización genera en su interior un plasma a partir del cual se obtienen iones. Estos iones intercambian momento con los átomos del metal que conformará el electrodo [30]. Este metal se halla en estado sólido, y las colisiones entre los iones del plasma y los átomos del metal causan el desprendimiento de los átomos más externos. Se crea por tanto un gas de átomos de metal. Este gas no está en equilibrio termodinámico, de tal manera que cuando alcanzan el sustrato, se condensan y quedan adheridos. El proceso se lleva a cabo en atmósfera de argón, pues al tratarse de un gas noble, no desencadena reacciones químicas [31].

Estos electrodos fueron realizados en ICG.

■ **Electrodos de cromo (Cr) y oro (Au) por evaporación.**

El proceso de deposición de metal sobre un sustrato por evaporación es similar al *sputtering*, si bien el evaporador no emplea plasma, solo temperaturas elevadas.

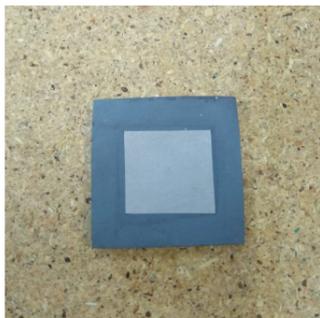
El metal es evaporado en un vacío de 10^{-4} Pa, que permite que las partículas viajen hacia el sustrato sin interactuar con otros elementos [32]. Cuando llegan a la cerámica, se condensan y quedan adheridas a su superficie.



(a) Pintura de plata (Ag).



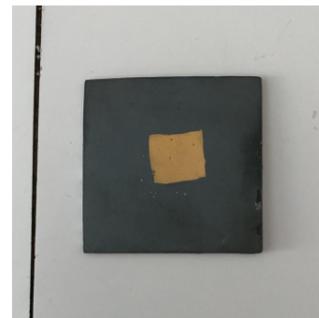
(b) Epoxi de plata.



(c) Platino (Pt).



(d) Cromo (Cr).



(e) Oro (Au).

Figura 4.5: Fotografías de los diferentes electrodos con los que se han efectuado las medidas de resistividad volúmica.

En la figura 4.6 pueden observarse los resultados de las medidas de resistividad obtenidas a LN₂T y RT para dos muestras de 40 y 70 %wt Fe₂O₃ respectivamente, con el error estadístico obtenido a partir de diferentes series de medidas como la incertidumbre. Éstas se representan en función del campo eléctrico en la cerámica, calculado como el voltaje aplicado entre el espesor

de la muestra, puesto que es la variable física de importancia de cara a estudios posteriores de ganancia y otros aspectos relacionados con la implementación del material en RP-WELLS. En las subfiguras 4.6.a y 4.6.c se observa el acuerdo entre las cinco curvas a LN₂T, mientras que a RT (subfiguras 4.6.b y 4.6.d) se aprecian diferencias de hasta tres órdenes de magnitud.

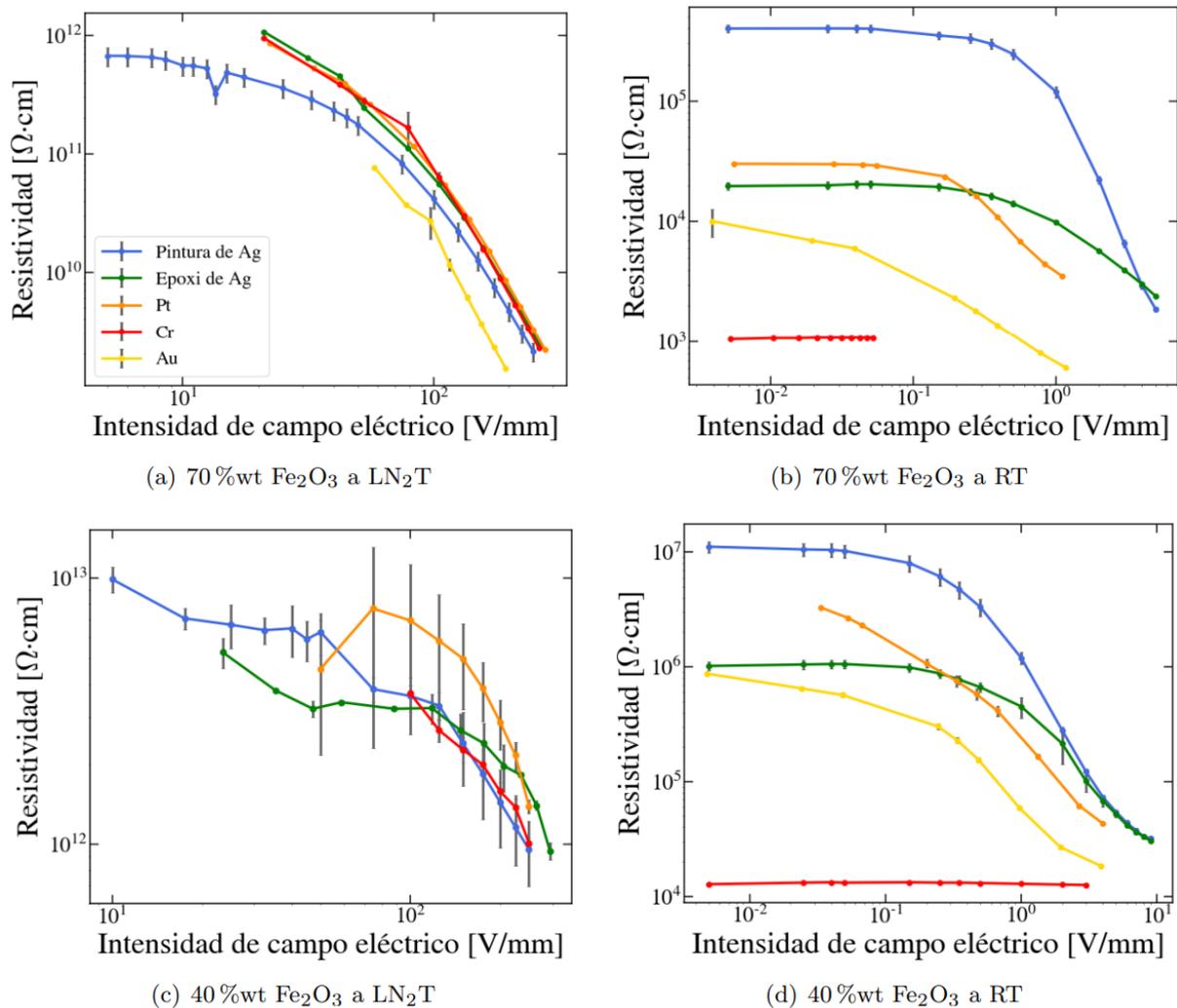


Figura 4.6: Resultados de resistividad volúmica medidos con cada uno de los cinco electrodos, a LN₂T y RT, en muestras de 40 y 70 %wt de Fe₂O₃ respectivamente.

Se ha considerado que las medidas realizadas con electrodos de Cr son las que representan los valores reales de resistividad volúmica de las muestras por los siguientes motivos.

En primer lugar, observar una resistencia mayor a la intrínseca de las muestras puede ser un artefacto de los contactos. Por ejemplo, si el material de los electrodos no se encuentra bien adherido a la superficie de la cerámica, los portadores de carga pueden experimentar dificultad a campos bajos para ser conducidos a través de la interfase entre el electrodo y el material. Asimismo, moléculas de suciedad³ en esta interfase pueden reducir la conductividad, dando lugar a una resistencia de contactos mayor a la resistencia de la cerámica. Este tipo de efectos siempre provocan el aumento de la resistividad medida, de tal manera que, a priori, la medida de menor resistividad proporciona un valor más cercano al valor real del material.

³ Antes de colocar los electrodos, la superficie de las muestras se limpia con acetona para evitar efectos causados por suciedad, si bien es posible que la acetona no pueda eliminar el 100 % de los residuos, como restos de *skin* tras el pulido.

En segundo lugar, las subfiguras 4.6.b y 4.6.d parecen indicar que las medidas realizadas con electrodos de Au tienden a aquellas con electrodos de Cr a campos altos. Esta tendencia se intuye también en los otros electrodos, lo cual sugiere que el efecto de bloqueo de carga a campos bajos está asociado al material del electrodo y no es una propiedad de la cerámica. Consideramos ésto, por tanto, como una confirmación de que las medidas realizadas con electrodos de Cr representan la resistividad del material. También parece indicativo de que las discrepancias a bajo campo son debidas a la existencia de un campo umbral necesario para que los portadores de carga pasen del electrodo a la cerámica, que parece ser diferente para cada material.

Por otro lado, las medidas de resistividad a LN₂T han sido empleadas para calcular el error sistemático a esta temperatura. Para ello, se han seleccionado las curvas medidas con electrodos de Cr y de pintura de Ag (que son las que muestran un mayor grado de acuerdo, y se han realizado para todas las concentraciones disponibles y en un rango de valores de campo eléctrico mayor) y se ha calculado la desviación estándar entre ambas curvas para cada punto de voltaje aplicado⁴. No todas las medidas se tomaron a los mismos valores de voltaje, por lo que se han realizado interpolaciones lineales de pares de datos seleccionados para obtener valores de resistividad en los mismos puntos. En la figura 4.7 se muestra punto a punto la desviación estándar relativa al promedio de las medidas con cada electrodo (Cr y Ag). Estos valores se toman como la incertidumbre en la medida de resistividad a LN₂T.

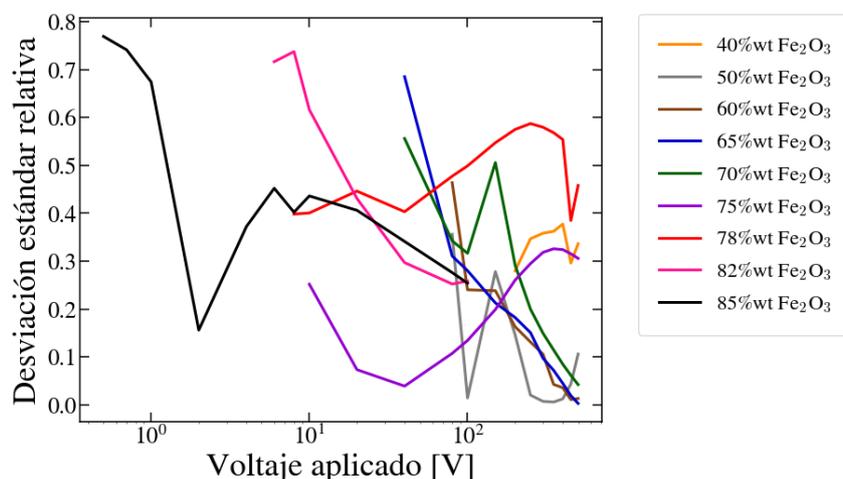


Figura 4.7: Desviación estándar relativa al promedio entre medidas con pintura de plata y Cr frente a tensión aplicada para cada muestra.

4.3. Estudio de la uniformidad de la resistividad

Como se señaló en el apartado 2.1, uno de los requisitos de un buen material es la uniformidad de la resistividad sobre toda la muestra. Para estudiar este punto se emplearon los cinco electrodos de pintura de plata que pueden observarse en la subfigura 4.5.a (las medidas de uniformidad son independientes del material del electrodo, por lo que se ha empleado la pintura de plata por conveniencia.). Se midió la resistencia volúmica a LN₂T⁵ en función del voltaje aplicado en cada uno de los cinco electrodos para cada muestra y se calculó la desviación estándar a partir de las cinco medidas. En la figura 4.8 puede observarse la desviación estándar relativa al valor de la resistividad para cada cerámica.

En la tabla 4.1 se presenta la media de las desviaciones para cada muestra, a partir de lo que se observa que ésta se halla en el rango 15.4 – 38.1 %. Asimismo, para cada muestra

⁴En este caso se ha trabajado con voltaje aplicado, en vez de con campo eléctrico, para disponer de una variable

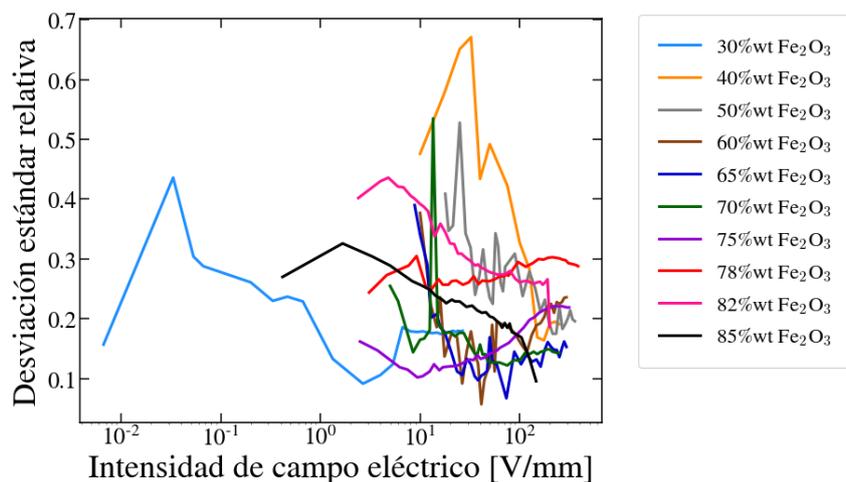


Figura 4.8: Desviación estándar relativa entre los cinco electrodos de plata para cada muestra.

Muestra [%wt Fe ₂ O ₃]	Variación promedio [%]	Factor de variación típico	Factor de variación máximo
85	21.8	1.85	2.32
82	31.6	2.12	2.92
78	27.8	2.12	2.30
75	16.0	1.50	1.81
70	16.6	1.29	1.61
65	15.4	1.25	1.55
60	18.3	1.41	2.00
50	26.6	1.12	1.72
40	38.1	2.33	3.33
35	19.5	1.37	2.14
30	24.2	1.61	1.71

Tabla 4.1: Variación promedio y factores de variación típico y máximo de la resistividad volúmica en una misma muestra, medida en cinco puntos diferentes.

se seleccionaron las dos curvas más discrepantes y se calculó el cociente entre ambas, con el objetivo de estimar la máxima variación en la resistividad. Este cálculo se llevó a cabo para cada valor de campo eléctrico. En la tabla 4.1 se muestra el factor de variación típico, obtenido como el promedio de los cocientes; y el factor de variación máximo. A partir de ello se observa que los valores de resistividad medidos pueden variar hasta en un factor ~ 3 dependiendo de la localización del electrodo sobre la muestra, si bien esta variación es típicamente inferior a un factor ~ 2 .

Por otro lado, se llevaron a cabo medidas con anillo de guarda en diferentes muestras para todo el rango de concentraciones estudiado, con el objetivo de descartar posibles anisotropías en la conductividad, relacionadas con efectos superficiales. Este anillo se colocó con pintura de plata (subfigura 4.5.b) y se conectó a tierra durante las medidas, posteriormente comparadas con aquellas en ausencia de anillo. No se observó variación en la resistividad de la mayoría de muestras, excepto en la cerámica de 30 %wt Fe₂O₃, donde se comprobó que la conductividad superficial domina frente a la conductividad volúmica a LN₂T. Por tanto, las medidas que se

a partir de la cual poder comparar las curvas punto a punto.

⁵La muestra de 30 %wt fue medida a RT, pues, como se verá posteriormente, esta muestra presenta una resistividad demasiado alta a temperatura criogénica, que no puede ser medida con el Keithley.

presentan en los apartados subsiguientes incorporan el anillo de guarda en esta muestra.

4.4. Estudio del comportamiento de la resistividad volúmica con el campo eléctrico

En la figura 4.9 se presentan las curvas de resistividad volúmica en función del campo eléctrico en la muestra, medidas a LN₂T, para cerámicas en un rango de concentraciones 40 – 85 %wt Fe₂O₃. Puesto que el rango de campo eléctrico que en el que puede medirse la resistividad es diferente para tipo de electrodo, y a LN₂T las medidas concuerdan, éstas se han realizado con electrodos de Cr para las muestras de 40 – 65 %wt Fe₂O₃, y con electrodos de pintura de plata para el resto. La incertidumbre en la resistividad ha sido estimada a partir de la suma en cuadratura del error sistemático (figura 4.7), el error estadístico (calculado a partir de la desviación estándar entre diferentes series de medidas) y la variación en la uniformidad (tabla 4.1)⁶.

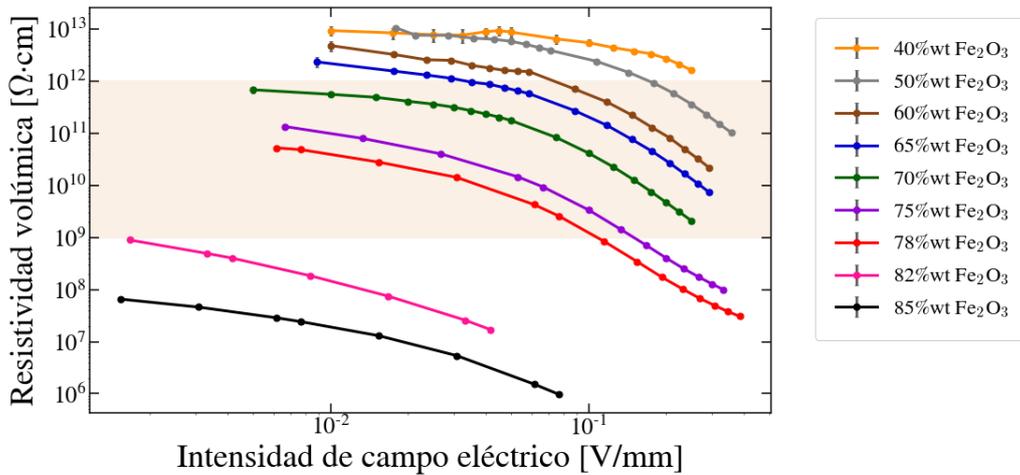


Figura 4.9: Resistividad volúmica en función del campo eléctrico en la muestra a LN₂T. La banda rosa indica el rango de resistividad $10^9 - 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$.

Lo primero que se observa es que las curvas siguen una sistemática tal que cuanto mayor es la concentración de Fe₂O₃, menor es su resistividad volúmica. Asimismo, la resistividad parece saturar a valores de campo bajo (régimen óhmico o lineal). El valor de intensidad de campo eléctrico para el que se entra en el régimen lineal también parece seguir una sistemática con la concentración, de tal manera que cerámicas de menor concentración de Fe₂O₃ mantienen la linealidad hasta campos más altos.

Por el contrario, a alto campo la resistividad disminuye monótonamente, si bien las curvas asociadas a las muestras de 75 y 78 %wt Fe₂O₃ parecen apuntar a una reducción de esta tendencia. No obstante, esto no lo podemos asegurar, dado que valores más altos de campo quedan fuera del rango de voltaje que puede aplicar el Keithley. Sin embargo, la forma de estas curvas puede deberse a alguna fluctuación en la medida.

Asimismo, la banda rosa indica el rango de resistividad de interés, de $10^9 - 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$. Se observa que las muestras cuya resistividad se halla en este rango a LN₂T son aquellas de 70, 75 y 78 %wt Fe₂O₃. La temperatura del LN₂ (77 K) y del LAr (87.5 K) son lo suficientemente cercanas como para esperar que la resistividad de las muestras a estas temperaturas no sea muy diferente, considerando un comportamiento de tipo Arrhenius, como el reportado por A. Roy, M. Morales et al en [23]. No obstante, es esencial conocer el comportamiento de la resistividad

⁶ $\Delta\rho = \sqrt{\Delta_{\text{sistemático}}^2 + \Delta_{\text{estadístico}}^2 + \Delta_{\text{uniformidad}}^2}$

volúmica con la temperatura para identificar las muestras adecuadas a LArT. Este estudio se presenta en el apartado 4.5.

Por otro lado, en la figura 4.10 se presentan las mismas curvas medidas a RT. En este caso también se intuye una sistemática tal que la resistividad es menor cuanto mayor es la concentración de Fe_2O_3 , si bien no es perfectamente seguida por todas las muestras, pues la muestra de 82 %wt Fe_2O_3 es menos resistiva que la muestra de 85 %wt. Esto podría deberse en parte al factor 3 de variación de la resistividad dependiendo de la posición del electrodo. La diferencia entre estos valores es de un factor 2.6, y al disponer de un solo punto en cada caso⁷, puede que este efecto haga parecer que la resistividad de la muestra de 82 %wt Fe_2O_3 es en general menor que la de 85 %wt a RT. En cuanto a la forma de las curvas, se aprecia que todas ellas se hallan en el régimen lineal.

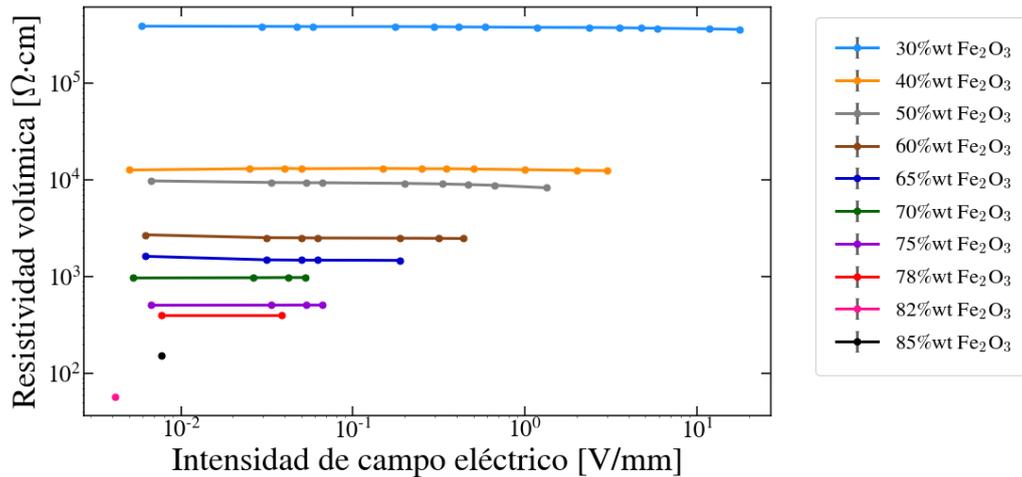


Figura 4.10: Resistividad volúmica en función del campo eléctrico en la muestra a RT. Se presentan las medidas con error estadístico, calculado a partir de la desviación estándar entre varias series de medidas.

4.5. Estudio de la dependencia de la resistividad volúmica con la temperatura

Las medidas de resistividad en función de temperatura se realizaron en modo *drift*, como se explica en el apartado 3.2. Los resultados pueden observarse en la figura 4.11. En línea discontinua se muestra también la curva perteneciente a la cerámica de 35 %wt Fe_2O_3 medida por A. Roy, M. Morales et al [23], tomada de la subfigura 2.1.a (curva Fe-ceramic: Sample S24 (WIS)) mediante el software ‘Web Plot Digitizer’.

Estas medidas se llevaron a cabo a campos bajos, en el régimen lineal de la figura 4.9. Se realizaron dos series de medidas por muestra y se calculó el valor medio (datos mostrados en la figura) y desviación estándar, a partir de la cual se obtuvo el error estadístico. Asimismo, representados en estrellas se añaden los valores de resistividad a LN₂T y RT medidos a temperatura estabilizada, tomados de las figuras 4.9 y 4.10. En la estimación de la incertidumbre de estos puntos se ha considerado el error sistemático, estadístico y la variación promedio asociada a la uniformidad de la resistividad (tabla 4.1).

Se aprecia, en primer lugar, que las curvas siguen la sistemática observada previamente en las figuras 4.9 y 4.10, tal que las muestras de mayor concentración de Fe_2O_3 presentan una resistividad volúmica menor. Además, esta jerarquía se mantiene en todo el rango de temperaturas

⁷A RT llegamos al límite de corriente medible del Keithley a campos bajos.

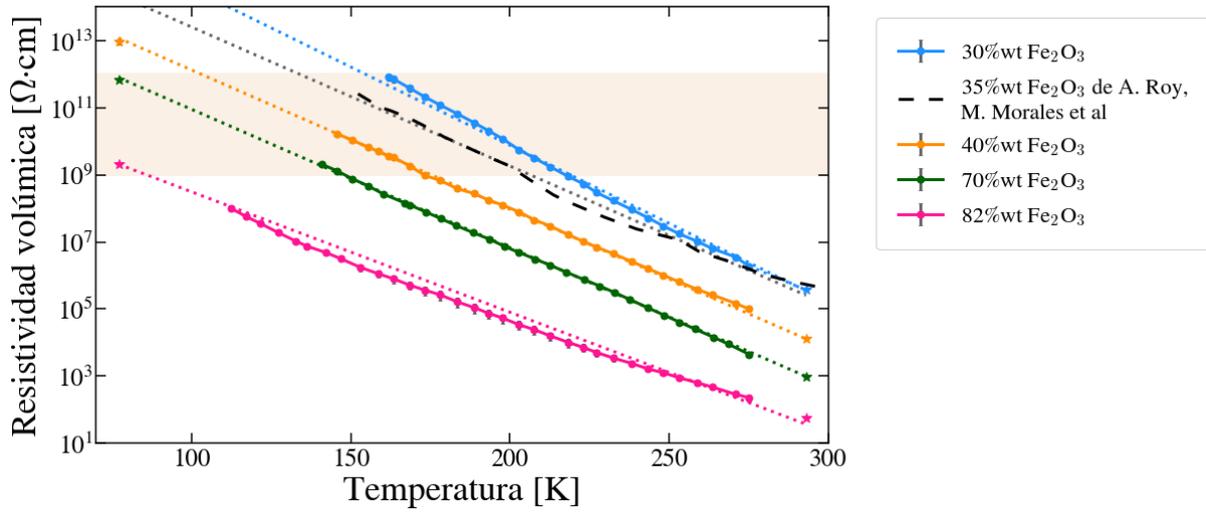


Figura 4.11: Resistividad volúmica en función de la temperatura, medida con electrodos de Cr. Los datos representados en puntos corresponden con las medidas en modo *drift*. Los datos en estrellas son medidas a RT y LN₂T estabilizadas. Se presentan también los ajustes en línea punteada.

explorado, y también la sigue la muestra de A. Roy, M. Morales et al. Sabemos por este último que los ciclos térmicos seguidos durante el proceso de fabricación de las piezas cerámicas de ICMM son diferentes a los de ICG. Por tanto, que esta muestra siga la sistemática en la figura 4.11 indica que las propiedades finales de la cerámica vienen determinadas por las concentraciones relativas de Fe₂O₃ y YSZ y no por el proceso de fabricación. Esto representa una gran ventaja con respecto a materiales como el LRS Glass (ver tabla 2.1), pues facilita su fabricación y favorece su reproducibilidad.

Por otro lado, puesto que las medidas se realizan en modo *drift*, no puede asegurarse el equilibrio térmico entre las muestras y el Pt100, o dentro de la propia muestra. Sin embargo, el hecho de que las medidas sigan una ley de tipo Arrhenius en todo el rango de temperaturas y enlacen adecuadamente con los valores (independientes) a RT y LN₂T estabilizadas, sugiere que las medidas con electrodos de Cr son correctas y están libres de artefactos, así como muestra la validez del método. Por tanto, estos resultados pueden emplearse para estimar la resistividad de las muestras a LArT. Para ello, se ha realizado un ajuste pesado del logaritmo de la resistividad en función de la temperatura a una recta de tipo $\log(\rho) = a + b \cdot T$. Los parámetros del ajuste se recogen en la tabla 4.2, donde se muestra también la resistividad a LArT estimada a partir de las curvas. Las curvas de ajuste se presentan en la figura 4.11 con línea punteada.

Muestra [%wt Fe ₂ O ₃]	a	b · 10 ⁻² [K ⁻¹]	ρ a LArT [Ω·cm]
82	12.077 ± 0.008	-3.587 ± 0.010	(8.8 ± 0.2) · 10 ⁸
70	15.07 ± 0.04	-4.122 ± 0.015	(3.0 ± 0.3) · 10 ¹¹
40	16.27 ± 0.08	-4.15 ± 0.03	(4.4 ± 0.9) · 10 ¹²
35	17.54 ± 0.08	-4.14 ± 0.03	(8.4 ± 1.6) · 10 ¹⁴
30	19.20 ± 0.08	-4.66 ± 0.03	(1.4 ± 0.3) · 10 ¹⁵

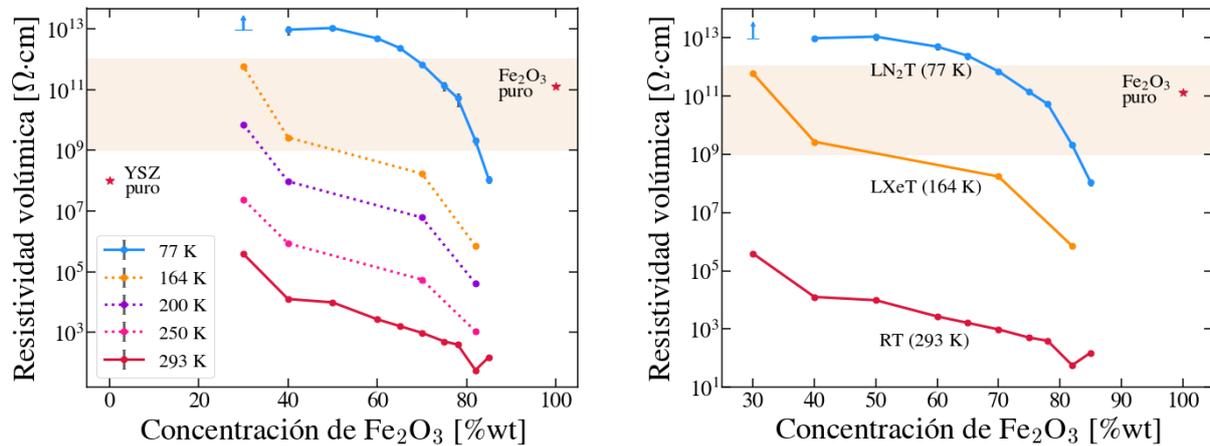
Tabla 4.2: Parámetros de ajuste y resistividad estimada a LArT para cada muestra de la figura 4.11.

Se observa que la muestra de 70%wt Fe₂O₃ presenta un valor de resistividad dentro del rango requerido de 10⁹ – 10¹² Ω·cm, mientras que la resistividad de las muestras de 30, 35,

40 y 82 %wt quedan fuera de este rango. Asimismo, se observa que la resistividad a LArT es aproximadamente un factor 2 menor que a LN₂T (ver figura 4.9). Considerando esto, a partir de la figura 4.9 puede deducirse que **las muestras potencialmente adecuadas para su implementación en RP-WELLS son aquellas de 65, 70, 75 y 78 %wt Fe_2O_3 .**

4.6. Estudio de la dependencia de la resistividad volúmica con la concentración de Fe_2O_3

En búsqueda de las concentraciones óptimas de Fe_2O_3 , también puede estudiarse cómo varía la resistividad volúmica en función de esta variable. Para ello, se ha tomado el valor de resistividad a menor campo (en el régimen lineal) para cada concentración de Fe_2O_3 de las figuras 4.9 y 4.10. Estas curvas se representan en la subfigura 4.12.a con líneas sólidas, y se trata de medidas a temperatura estabilizada. El valor a LN₂T para la muestra de 30 % se da como cota inferior, pues a esta temperatura queda fuera del rango medible por el Keithley. Se muestra asimismo la resistividad de dos muestras puras de YSZ y Fe_2O_3 , respectivamente, medidas a RT estabilizada. Por otro lado, en líneas discontinuas se muestran curvas a temperaturas intermedias, cuyos puntos han sido extraídos de la figura 4.11 (siendo por tanto medidas a temperatura no estabilizada).



(a) Resistividad volúmica de muestras de diferentes concentraciones de YSZ/ Fe_2O_3 a varias temperaturas. Líneas continuas: medidas a temperatura estabilizada. Líneas discontinuas: medidas en modo *drift*. La resistividad a LN₂T de la muestra de 30 %wt Fe_2O_3 se da como cota inferior. Se presenta también la resistividad de muestras de YSZ y Fe_2O_3 puras a RT.

(b) Curvas de interés para aplicación en RP-WELLS.

Figura 4.12: Comportamiento de la resistividad volúmica en función de la concentración de Fe_2O_3 a diferentes temperaturas. La banda rosa indica el rango de resistividad de interés para la aplicación del material en RP-WELLS, de $10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$.

Lo primero que llama la atención es cómo la mezcla de dos aislantes con resistividades volúmicas en el rango de los $\text{M}\Omega\text{-G}\Omega$ da lugar a un material cuya resistividad puede ser tan baja como las decenas de Ω . Además, queda de manifiesto cómo la resistividad de estas cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 puede ser ajustada en un rango de varios órdenes de magnitud variando las concentraciones relativas de Fe_2O_3 y YSZ.

Destaca también que la variación de la resistividad con la concentración presenta fundamentalmente la misma forma tanto a temperatura estabilizada como en modo *drift*, si bien parece que

la variación es más pronunciada cuanto menor es la temperatura, para concentraciones extremas (por debajo y por encima de 30 y 65 %wt Fe_2O_3 respectivamente).

Asimismo, dado que la resistividad del Fe_2O_3 puro es mucho mayor que la del YSZ/ Fe_2O_3 en el rango de concentraciones estudiado, cabría esperar ver una inversión de la tendencia decreciente a valores cercanos al 100 %wt de Fe_2O_3 . La curva a RT parece a priori mostrar este cambio de tendencia, presentando un mínimo en torno a 82 %wt. No obstante, esto puede ser un efecto del factor 3 en la uniformidad de las muestras, como se comentó en el apartado 4.4. Además, no se observa este mínimo a LN₂T, y no se disponen de datos a otras temperaturas para concentraciones mayores a 82 %wt.

Por otro lado, en la subfigura 4.12.b se recogen las curvas de interés de cara a la aplicación de este material como protección resistiva en RP-WELLS. Como se comentó en el apartado 2.2, la mayoría de detectores de placas resistivas han operado históricamente a RT. Este no es el caso de DUNE, si bien podría plantearse un RP-WELL a RT (en un medio diferente al LAr) con una cerámica de Fe_2O_3 puro para otro tipo de experimentos, pues su resistividad se encuentra en el rango deseado.

A LXeT se observa que las muestras óptimas son aquellas con concentraciones en el rango 30 – 40 %wt, lo cual concuerda con el estudio de A. Roy, M. Morales et al, y proporciona la esperanza de que, encontrada la concentración óptima a LArT, funcione de manera estable como protección resistiva, de manera análoga a la muestra de 35 %wt en LXe.

A LN₂T se aprecia que las muestras cuya resistividad entra dentro del rango $10^9 - 10^{12} \Omega \cdot \text{cm}$ son aquellas de 70, 75, 78 y 80 %wt Fe_2O_3 . Considerando que la resistividad a LArT es aproximadamente un factor 2 menor, se verifica que las muestras potencialmente apropiadas para DUNE son aquellas de 65, 70, 75 y 78 %wt Fe_2O_3 .

4.7. Tensión de ruptura dieléctrica y test de envejecimiento en muestras seleccionadas

Para que las muestras trabajen de manera estable en el tiempo, su tensión de ruptura dieléctrica debe ser mayor al rango de voltajes al que serán sometidas durante su funcionamiento en el detector, así como deben mantener una resistividad volúmica constante en el tiempo. Con objeto de estudiar esta estabilidad, se ha sometido a muestras seleccionadas a tests de ruptura dieléctrica y de envejecimiento eléctrico.

Para estimar la tensión de ruptura, se sometió a una muestra de 60 y otra de 75 %wt Fe_2O_3 a series sucesivas de voltajes crecientes y decrecientes en el rango 0–5.5 kV a LN₂T, y se monitorizó la intensidad de corriente medida. Se ha observado que la curva $I-V$ aumenta monótonamente hasta los 3 kV aplicados pero, a partir de este voltaje, no se recuperan los valores iniciales de intensidad. Por tanto, se seleccionó este valor, identificándolo como posible tensión de ruptura dieléctrica, y se sometió a las muestras a este voltaje durante 5 minutos, con el objetivo de observar variaciones en la intensidad de corriente. Ésta resultó mantenerse constante, de tal manera que las cerámicas pueden ser sometidas hasta por lo menos 3 kV sin alcanzar su tensión de ruptura. El detector operará a tensiones en el rango 2.5 – 3 kV, de manera que, incluso en el caso de que se produzca un *streamer*, queda descartado que el material sufra ruptura dieléctrica.

Por otro lado, el test de envejecimiento eléctrico se llevó a cabo para una muestra de 40 y otra de 70 %wt Fe_2O_3 , a RT y LN₂T respectivamente. Para ello, se sometió a las muestras a 500 V durante un tiempo (variable dependiendo de la muestra y la temperatura) y se monitorizó el valor de resistividad medido, con objeto de observar posibles variaciones. Los resultados de estos tests se presentan en la figura 4.13.

El doble eje relaciona el tiempo de medida con el valor de carga transportada alcanzado, para comprender cómo varía la resistividad en función de esta variable. Puesto que la resistividad es diferente en cerámicas de alta y baja concentración de Fe_2O_3 y a RT y LN₂T, los valores de carga

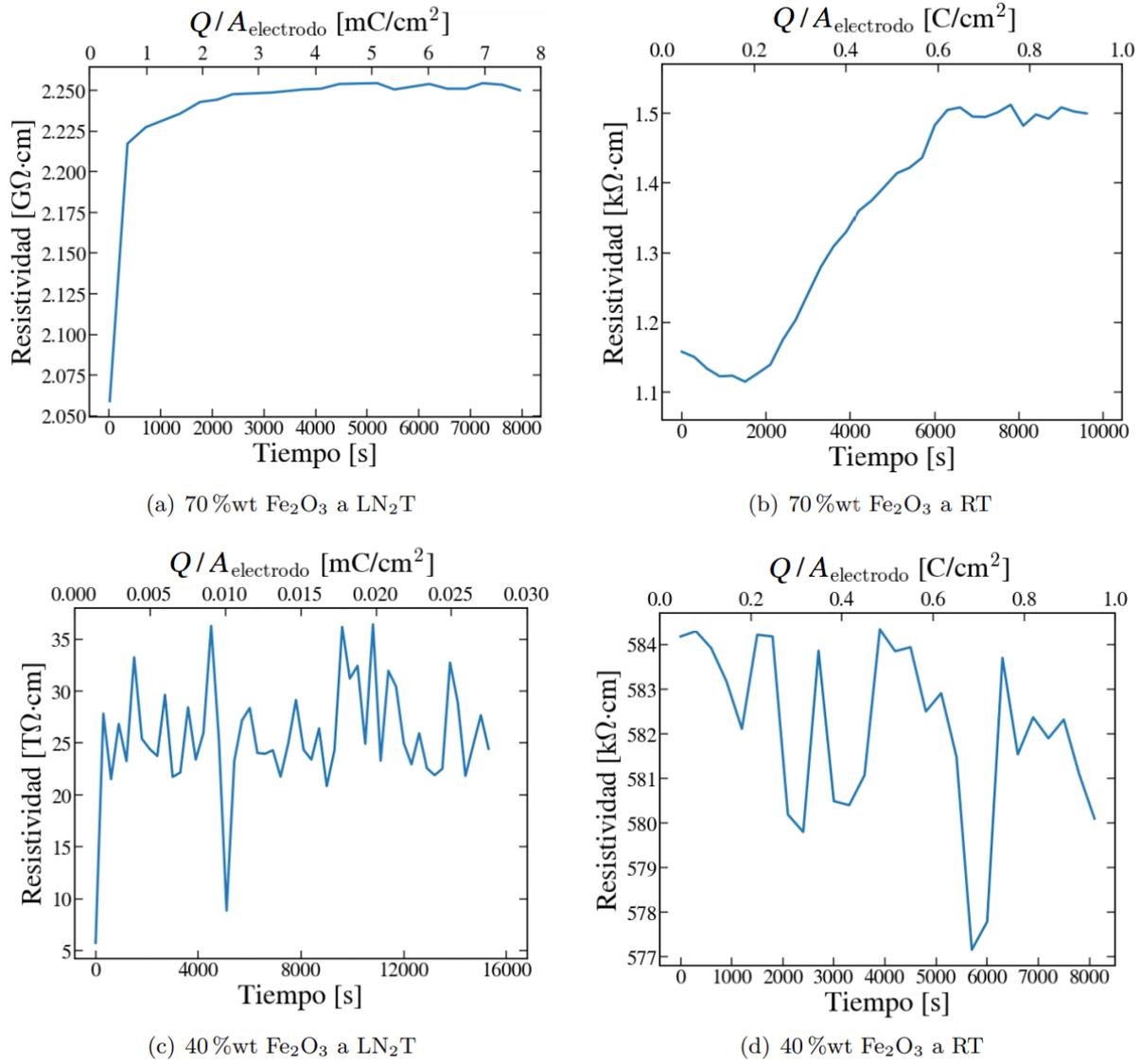


Figura 4.13: Resultados del test de envejecimiento eléctrico a LN_2T y RT en muestras de 70 y 40 %wt Fe_2O_3 respectivamente.

transportada alcanzados en cada subfigura no son los mismos. A RT se ajustó el tiempo de medida tal que un valor de $1 \text{ C}/\text{cm}^2$ pudiera ser alcanzado, que es un valor de carga transportada típico de experimentos de altas energías, como el LHC. Por otro lado, a LN_2T se habrían requerido semanas para alcanzar este mismo valor, por lo que en este caso se estableció un tiempo de medida de entre 2 y 4 horas, alcanzando valores menores de carga transportada.

En los cuatro casos se observa que la resistividad permanece aproximadamente constante a lo largo del tiempo. Esto indica que, al menos en el rango de carga transportada estudiado, no se dan fenómenos de agotamiento de carga, lo cual es por lo general indicio de conductividad iónica [33]. Para garantizar la estabilidad del material y evitar la reducción de portadores de carga disponibles a lo largo del tiempo, es preferible que éste posea conductividad electrónica.

Además, DUNE trabajará a una tasa de partículas menor que el LHC, tal que los valores de carga transportada esperados se sitúan en torno a los $60.5 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ para 10 años. Este valor ha sido ampliamente excedido en estas medidas tanto a RT como a LN_2T , sin observarse una degradación importante de la resistividad, lo cual sugiere que estas cerámicas no sufrirán un envejecimiento que afecte a la correcta operación del detector.

4.8. Estudio del apantallamiento en la inducción de señal

Para estudiar este punto ha sido preciso determinar la constante dieléctrica de las cerámicas. Ésta ha sido medida a RT y LN₂T para cuatro muestras, cubriendo un rango amplio de concentraciones, en concreto 40, 70, 82 y 100 % Fe₂O₃. Para ello, se ha empleado un multímetro LCR, que proporciona medidas de la capacitancia y resistencia de las muestras. A partir de estos datos, la parte real de la constante dieléctrica puede calcularse como indica la ecuación 4.5

$$\varepsilon_r = \frac{C \cdot t}{A \cdot \varepsilon_0} \quad (4.5)$$

donde C es la capacitancia, t el espesor de la muestra, A su área y ε_0 la permitividad eléctrica del vacío, con valor $8.85 \cdot 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}^{-1}$. En la figura 4.14 se muestra la parte real de la constante dieléctrica en función de la frecuencia del campo aplicado durante las medidas.

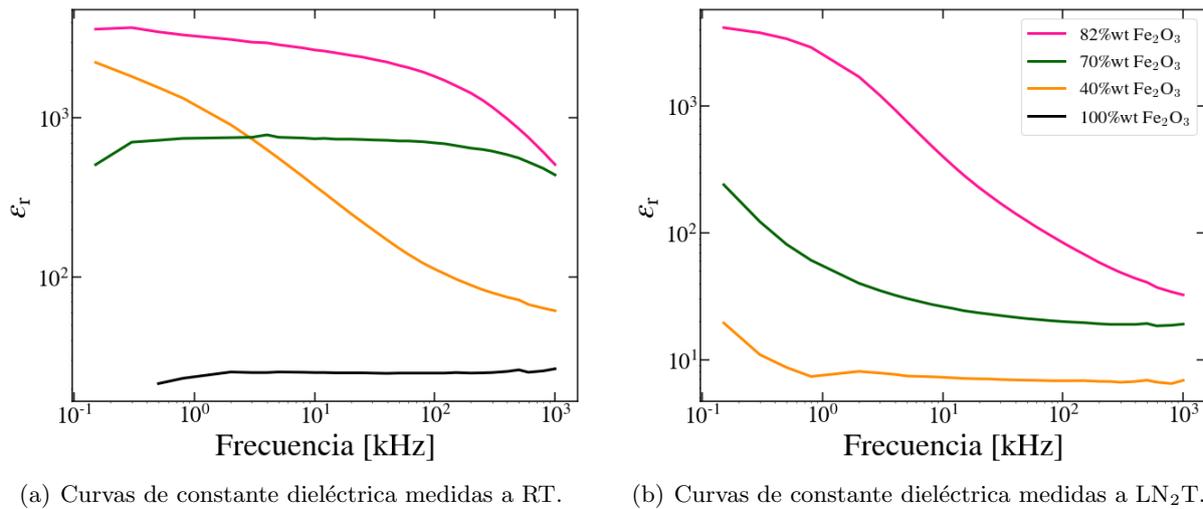


Figura 4.14: Constante dieléctrica de muestras de 40, 70, 82 y 100 % Fe₂O₃ en función de la frecuencia, medidas a RT y LN₂T.

La forma de estas curvas es característica del modelo de Debye [34]. Éste establece una relación entre la frecuencia, el tiempo de relajación y la temperatura dada por las expresiones 4.6 y 4.7

$$\varepsilon_r = \frac{1}{\varepsilon_0} \cdot \left[\varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)}{1 + \omega^2 \tau^2} \right] \quad (4.6)$$

$$\tau \propto T^{-1} \quad (4.7)$$

donde ε_∞ y ε_s son la constante dieléctrica a alta y baja frecuencia respectivamente, ω es la frecuencia, τ el tiempo de relajación y T es la temperatura [35]. La ecuación 4.7 indica que el tiempo de relajación es mayor a temperaturas menores, de tal manera que, debido al producto entre frecuencia y tiempo en la ecuación 4.6, se espera observar una frecuencia de relajación menor a temperaturas bajas. Esto es precisamente lo que se aprecia en la figura 4.14, donde a RT (subfigura 4.14.a) la frecuencia de relajación se halla en el rango ≥ 1 kHz para las muestras de 40, 70 y 82 % Fe₂O₃, y a LN₂T se encuentra en el rango ≤ 1 kHz.

Asimismo, las curvas de constante dieléctrica parecen seguir una sistemática tal que cuanto mayor es la concentración de Fe₂O₃, mayor es ε_r tanto a baja como a alta frecuencia, y mayor es la frecuencia de relajación. No obstante, este comportamiento parece ser mejor seguido por las curvas a LN₂T, pues a RT la muestra de 40 % Fe₂O₃ presenta un valor de ε_r mayor que la muestra de 70 % a baja frecuencia, y tampoco está claro que la frecuencia de relajación de la

muestra de 82% sea mayor a la de 70%. Esto podría ser indicativo de que a RT existe otro mecanismo de relajación.

Por otro lado, asumiendo que a LN₂T el mecanismo de Debye es el único implicado, puede estimarse el valor de ε_∞ para cada muestra a esta temperatura como el valor de ε_r en el régimen constante a alta frecuencia. Ello permite calcular el campo de pesado, que describe el acoplamiento electromagnético entre una carga y un conjunto de conductores y es comúnmente empleado para calcular la señal de corriente inducida en los electrodos de lectura por las cargas en movimiento en el detector [36], como sugiere la ecuación 4.8 [37],

$$i(t) = E_w \cdot v_d(t) \cdot n(t) \cdot q_e \quad (4.8)$$

donde $i(t)$ es la corriente inducida en función del tiempo, E_w es el campo de pesado, $v_d(t)$ es la velocidad de deriva de las cargas, $n(t)$ el número de las mismas, y q_e es la carga del electrón.

El producto $v_d(t) \cdot n(t) \cdot q_e$ es una característica del gas en el detector. Por tanto, puede estimarse cómo la presencia de un material resistivo entre la estructura de multiplicación y el electrodo de lectura limita la intensidad de la señal generada a través del cociente (factor de acoplo) entre el campo de pesado en ausencia (configuración WELL) y en presencia (configuración RP-WELL) del material resistivo. Aproximando el sistema como un condensador de placas plano-paralelas, el campo de pesado en cada uno de los casos se calcula como indican las expresiones 4.9 y 4.10

$$E_w(\text{WELL}) = \frac{1}{d_{\text{gap}}} \quad (4.9)$$

$$E_w(\text{RP-WELL}) = \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_{\text{GAR}} \cdot d_c + \varepsilon_c \cdot d_{\text{gap}}} \quad (4.10)$$

donde ε_c y d_c son la constante dieléctrica y el espesor de la cerámica y ε_{GAR} y d_{gap} son la constante dieléctrica del GAR y el espesor de la estructura de multiplicación. Se ha tomado como valor de referencia $d_{\text{gap}} = 0.5$ mm, si bien éste no es un valor universal. La constante dieléctrica a alta frecuencia⁸ y el factor de acoplo calculado como $E_w(\text{RPWELL})/E_w(\text{WELL})$ para cada muestra de la figura 4.14 se recoge en la tabla 4.3, donde se observa que el acoplo es mayor (i.e., apantallamiento menor) para las muestras más resistivas.

Muestra [%wt Fe ₂ O ₃]	ε_∞	Factor de acoplo
82	32.32	0.871
70	18.88	0.811
40	6.75	0.628

Tabla 4.3: Constante dieléctrica y factor de acoplo de la señal inducida en el electrodo de lectura para cada muestra.

Por otro lado, si se toman como referencia los vidrios estudiados en [34] (vidrios basados en SiO₂ dopados con Na₂O y CaO en diferentes proporciones, y vidrio Pyrex) y se calcula su factor de acoplo (en el rango 0.434 – 0.552), se encuentra que las cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ tienen un efecto menor en la inducción de señal. Este es un resultado positivo pues, si bien se quiere controlar la multiplicación electrónica, es conveniente que la inducción de señal dependa lo menos posible del material resistivo.

⁸Para la muestra de 82% Fe₂O₃ se toma el valor medido a mayor frecuencia, para las muestras de 40 y 70% se calcula el promedio entre los valores en el régimen constante.

Capítulo 5

Discusión

A partir de los resultados presentados en el capítulo anterior, se aprecia que las cerámicas cumplen con la mayoría de los requisitos planteados en el apartado 2.1.

En particular, se ha encontrado un rango de concentraciones de Fe_2O_3 tal que la resistividad volúmica de las muestras se halla entre $10^9 - 10^{12} \Omega\text{-cm}$ para diferentes temperaturas. A LXeT (164 K) se ha visto que las cerámicas que presentan estos valores de resistividad son aquellas de 30 – 40 %wt Fe_2O_3 , lo cual concuerda con los estudios de A. Roy, M. Morales et al, quienes demostraron el funcionamiento de una muestra de 35 %wt Fe_2O_3 en detector, y que constituye la base y referencia constante de este trabajo. A LArT (87.5 K) la concentración de Fe_2O_3 necesaria es mayor, en torno a 65 – 78 %wt.

La resistividad puede variar globalmente en un factor máximo de 3 en diferentes puntos de una misma muestra. Este es un valor de uniformidad razonable para la aplicación en el detector, pues incluso con estas variaciones, la resistividad se mantiene en el rango deseado. Además, estos valores son estables en el tiempo y la tensión de ruptura dieléctrica queda lejos de los voltajes a los que las piezas serán sometidas durante su funcionamiento como protección resistiva.

La no degradación de la resistividad con el tiempo a cargas transportadas altas, de hasta 1 C/cm^2 , es indicio de que la conductividad puede ser electrónica, propiedad altamente deseada para evitar fenómenos de agotamiento de carga y por consiguiente de envejecimiento eléctrico. No sabemos qué tipo o tipos de mecanismos de conducción están presentes en las cerámicas, si bien existen estudios previos que señalan que la conductividad es de tipo mixto iónica-electrónica, y nosotros vemos indicios de que éste puede ser el caso a temperatura ambiente.

La zircona y la YSZ son conductores iónicos, pero se ha reportado en varios trabajos ([38], [39], [40]) que la adición de Fe_2O_3 proporciona al material conductividad electrónica, que incrementa cuanto mayor es la cantidad de Fe_2O_3 añadida. Según la referencia [39], la conductividad en las cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 es predominantemente iónica cuando la concentración de Fe_2O_3 es menor que 5 %mol, e iónica-electrónica por encima de esta concentración, rango en el que se engloban las muestras aquí estudiadas.

En este contexto, el mecanismo de conducción predominante depende de la temperatura, ya que la energía de activación de la conductividad electrónica es menor que la de la conductividad iónica. Se espera, por tanto, que el mecanismo de conductividad a temperatura criogénica sea predominantemente electrónico, mientras que a RT se observaría una conductividad mixta. Esto podría explicar por qué a LN₂T obtenemos acuerdo entre las medidas con cada tipo de electrodo y no a RT, pues en el último caso, al presentarse conductividad mixta, parte de la carga (los iones) quedaría atrapada, ya que los electrodos metálicos bloquean la corriente iónica [41], [42]. Algunos ejemplos de mecanismos que limitan la corriente iónica están asociados con reacciones químicas entre los iones y las moléculas del metal del electrodo. Estas reacciones son diferentes en función de los reactivos implicados, lo cual podría explicar por qué para unos electrodos la resistividad aparente es mayor que para otros.

El efecto de bloqueo de carga y de presencia de un campo umbral puede explicarse también en base a las funciones de trabajo del YSZ/Fe₂O₃ y del metal del electrodo. Si éstas son diferentes, se genera una barrera energética que dificulta a los portadores de carga ser conducidos a través de la interfase entre el material y el electrodo, y que es mayor cuanto mayor es la diferencia entre las funciones de trabajo. Esto concuerda con lo que se observa en la figura 4.6, donde se comentó que el aumento aparente de resistividad era probablemente un artefacto de los contactos. Se desconoce la función de trabajo del YSZ/Fe₂O₃, de la pintura de plata y del epoxi de plata, pero sí se conocen aquellas de los electrodos de metales puros. El Pt, el Au y el Cr presentan funciones de trabajo de 5.93 – 5.12, 5.31 – 5.47 y 4.5 eV respectivamente [43]. La función de trabajo del Pt es por lo general mayor que la del Au, y ésta que la del Cr. En las subfiguras 4.6.b y 4.6.d se observa que se obtiene sistemáticamente una resistencia aparente mayor con los electrodos de Pt, y menor con los de Cr, lo que sugiere que la función de trabajo del YSZ/Fe₂O₃ puede ser parecida a la del Cr.

De esta manera, es posible que el bloqueo de carga a campos bajos tenga que ver tanto con la contribución de la conductividad iónica (especialmente a RT), como por la presencia de esta barrera. En este contexto, el campo umbral observado en la figura 4.9 puede entenderse como la energía que es preciso suministrar al material para que los electrones puedan ser conducidos ‘por encima’ de la barrera.

Sin embargo, esto son solamente indicios, no demostraciones de un modelo de conductividad concreto, y existen otros, como la conductividad por borde de grano, que podrían jugar un papel importante en este material. Para ello, será necesario estudiar este punto en más detalle, y una de las vías mediante las cuales puede hacerse es mediante el estudio de la constante dieléctrica en un rango más amplio de frecuencias que el aquí estudiado. En particular, los diagramas de Cole-Cole, que representan la parte imaginaria de la constante frente a la parte real, se componen generalmente de semicírculos que representan los efectos de grano, borde de grano y polarización del electrodo [44].

Lo que sí parece claro es que la conductividad no es predominantemente iónica, ni siquiera a RT, en base a los resultados del test de envejecimiento. Este test también fue realizado por M. Morales et al en [33], para cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ y otros materiales con conductividad iónica. Como se aprecia en la figura 5.1, tomada de [33], las cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ son el único material cuya resistividad no aumenta para valores altos de carga transportada, sugiriendo que el mecanismo de conducción es diferente con respecto a los otros materiales.

Además, este test fue realizado a 365 K, temperatura a la cual la conductividad iónica podría predominar sobre la electrónica, pues en semiconductores esta última disminuye por efecto de una temperatura ascendente. Sin embargo, se observa que la resistividad se mantiene estable en un rango de temperatura desde los 77 hasta los 365 K, indicando, nuevamente, una contribución muy pequeña o incluso ausencia de conductividad iónica.

Para comprender el material, será preciso llevar a cabo estudios sobre su estructura cristalina, conductividad eléctrica, etc. Sin embargo, en lo que respecta a su operación en el detector, solo resta poner a prueba las muestras seleccionadas, de 65, 70, 75 y 78 %wt Fe₂O₃. Con este objetivo, han sido recientemente enviadas al Instituto Weizmann de Ciencias en Israel (*Weizmann Institute of Science*, WIS), donde serán implementadas en un prototipo de DP-TPC basado en Ar por el grupo de física de partículas de S. Bressler y A. Breskin.

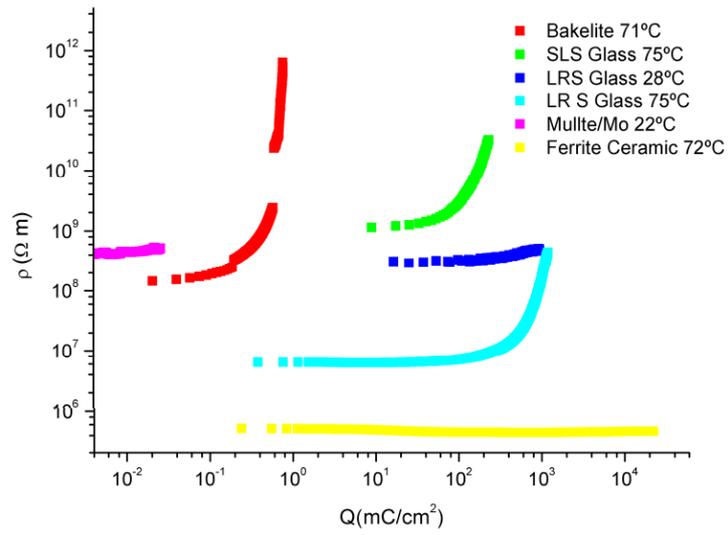


Figura 5.1: Estudio de envejecimiento eléctrico en diferentes materiales realizado por M. Morales et al en [33]. Todos los materiales, a excepción (presumiblemente) de las cerámicas de YSZ/ Fe_2O_3 , presentan conductividad iónica.

Capítulo 6

Conclusiones

Para formular una teoría completa de física de partículas más allá del SM es preciso explorar nueva física, para lo cual se requiere de nuevos experimentos capaces de acceder al estudio de fenómenos que quedan fuera de las capacidades de los experimentos actuales.

DUNE estudiará la oscilación de neutrinos en búsqueda de esta nueva física. Para los módulos tercero y cuarto del FD, se plantea implementan la tecnología TPC de doble fase LAr-GAr, que permitiría minimizar el umbral de detección gracias al fenómeno de multiplicación por avalancha electrónica. Para hacer posible el uso de esta tecnología, es preciso encontrar un material resistivo que limite las avalanchas a su etapa de *streamer* para prevenir daños en el detector y la estructura de multiplicación.

Para ello, este material debe poseer unas propiedades determinadas, entre las cuales destacan que su resistividad debe hallarse en el rango $10^9 - 10^{12} \Omega\cdot\text{cm}$ y que debe ser estable en el tiempo. A. Roy, M. Morales et al propusieron el uso de piezas cerámicas de YSZ/Fe₂O₃ y demostraron su correcto funcionamiento en el detector a LXeT.

Con base en este trabajo, nosotros hemos considerado la implementación de este material a LArT. Para ello, hemos buscado un rango de concentraciones de Fe₂O₃ que dotara a las muestras de valores de resistividad en el rango deseado, y hemos estudiado la dependencia de esta resistividad con el campo eléctrico aplicado, la temperatura y la concentración de Fe₂O₃, así como hemos estudiado su homogeneidad y estabilidad en el tiempo.

Hemos identificado como candidatas a implementarse como protección resistiva las muestras de 65, 70, 75 y 78 %wt Fe₂O₃ y hemos comprobado que no presentan fenómenos de agotamiento de carga ni de ruptura dieléctrica en condiciones compatibles con su operación en el detector. Hemos visto también que la magnitud del apantallamiento que este material provoca sobre la inducción de señal es menor que en otros materiales, debido a su alta constante dieléctrica.

Tenemos por tanto un material prometedor que puede hacer posible el empleo, por primera vez, de la tecnología RP-WELL a temperatura criogénica, y que puede ayudar a encontrar una teoría completa de física de partículas.

Lista de acrónimos

DP Dual-Phase.
DP-TPC Dual-Phase Time Projection Chamber.
DUNE Deep Underground Neutrino Experiment.

FD Far Detector.

GA_r Gaseous Ar.
GEM Gaseous Electron Multiplier.
GUTs Grand Unified Theories.

HEP High-Energy Physics.

ICG Instituto de Cerámicas de Galicia.
ICMM Instituto de Ciencia de Materiales de Madrid.

LAr Liquid Ar.
LArT Liquid Ar Temperature.
LBNF Long Baseline Neutrino Facility.
LN₂ Liquid N₂.
LN₂T Liquid N₂ Temperature.
LXe Liquid Xe.
LXeT Liquid Xe Temperature.

ND Near Detector.

PIP-II Proton Improvement Plan II.
PMT Photo-Multiplier Tube.

RETGEM Resistive Electrode Thick-GEM.
RP-WELL Resistive Plate WELL.
RPC Resistive Plate Chamber.
RT Room Temperature.

SM Standard Model.
SP Single-Phase.
SP-TPC Single-Phase Time Projection Chamber.
SURF Sandfor Underground Research Facility.

THGEM Thick Gaseous Electron Multiplier.
THWELL Thick WELL.
TPC Time Projection Chamber.

YSZ Yttria-Stabilized Zircon.

Referencias

- [1] The DUNE Collaboration. *Deep Underground Neutrino Experiment (DUNE) Far Detector Technical Design Report. Introduction to DUNE*. Inf. téc. 2020.
- [2] Fermilab. *An International Experiment for Neutrino Science*. URL: <https://www.dunescience.org/> (visitado 13-07-2022).
- [3] SINC. *Un indicio de la violación de la simetría entre materia y antimateria en neutrinos*. 2020. URL: <https://www.agenciasinc.es/Noticias/Un-indicio-de-la-violacion-de-la-simetria-entre-materia-y-antimateria-en-neutrinos> (visitado 13-07-2022).
- [4] S. Ray. *Unveiling the Mystery of Matter-Antimatter Asymmetry of the Universe with Neutrino Oscillation Experiments*. 2020. URL: <https://www.scientificeuropean.co.uk/sciences/physics/unveiling-the-mystery-of-matter-antimatter-asymmetry-of-the-universe-with-neutrino-oscillation-experiments/> (visitado 13-07-2022).
- [5] University. *Las oscilaciones de los neutrinos podrían explicar la asimetría de materia-antimateria*. 2012. URL: <https://universitam.com/academicos/noticias/las-oscilaciones-de-los-neutrinos-podrian-explicar-la-asimetria-de-materia-antimateria/> (visitado 13-07-2022).
- [6] The DUNE Collaboration. *Long-Baseline Neutrino Facility (LBNF) and Deep Underground Neutrino Experiment (DUNE). The LBNF and DUNE Projects*. Inf. téc. 2016. Cap. 2, págs. 1-10.
- [7] Fermilab. *DUNE at LBNF*. URL: <https://lbnf-dune.fnal.gov/> (visitado 13-07-2022).
- [8] J. Eldred, V. Lebedev y A. Valishev. “Rapid-Cycling Synchrotron for Multi-Megawatt Proton Facility at Fermilab”. 2019. URL: https://www.researchgate.net/publication/332109975_Rapid-Cycling_Synchrotron_for_Multi-Megawatt_Proton_Facility_at_Fermilab/citation/download.
- [9] The DUNE Collaboration. *Deep Underground Neutrino Experiment (DUNE) Far Detector Technical Design Report. DUNE Far Detector Technical Coordination*. Inf. téc. 2020.
- [10] A. Julião. *Mejoran un dispositivo creado en Brasil para la realización de un experimento internacional con neutrinos*. 2019. URL: <https://agencia.fapesp.br/mejoran-un-dispositivo-creado-en-brasil-para-la-realizacion-de-un-experimento-internacional-con-neutrinos/29777/> (visitado 13-07-2022).
- [11] I.B. García Ferreira, J. García Herrera y L. Villaseñor. “The Drift Chambers Handbook, introductory laboratory course (based on, and adapted from, A H Walenta's course notes)”. En: *Journal of Physics: Conference Series* 18 (2005), págs. 346-361. DOI: 10.1088/1742-6596/18/1/010. URL: <https://doi.org/10.1088/1742-6596/18/1/010>.
- [12] “Centelladores”. En: cap. 1, págs. 1-6.
- [13] M.V. Nemallapudi. “Gain of a single gas electron multiplier”. En: 2012.
- [14] P. Fonte. “The physics of streamers and discharges”. En: 2nd RD51 Collaboration Meeting. 2008.
- [15] V. Peskov y P. Fonte. “Research on discharges in micropattern and small gap gaseous detectors”. En: (2009). URL: https://www.researchgate.net/publication/45882064_Research_on_discharges_in_micropattern_and_small_gap_gaseous_detectors.
- [16] J.M. Meek y J.D. Craggs. *Electrical Breakdown of Gases*. Oxford University Press, 1953.
- [17] M. Abbrescia, V. Peskov y P. Fonte. *Resistive Gaseous Detectors. Designs, Performance and Perspectives*. Wiley-VCH, 2018. ISBN: 978-3-527-34076-7.

- [18] J. Wang et al. “Development of multi-gap resistive plate chambers with low-resistive silicate glass electrodes for operation at high particle fluxes and large transported charges”. En: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 621.1 (2010), págs. 151-156. ISSN: 0168-9002. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.04.056>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900210009058>.
- [19] E. Nappi y V. Peskov. *Imaging Gaseous Detectors and Their Applications*. Wiley-VCH, 2013. ISBN: 978-3-527-40898-6.
- [20] A. Mittal. *What is Bakelite?: The Plastic That Changed the World*. 2022. URL: <https://plasticranger.com/what-is-bakelite/>.
- [21] L. Moleri et al. “The Resistive-Plate WELL with Argon mixtures - A robust gaseous radiation detector”. En: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 845 (2016). DOI: 10.1016/j.nima.2016.06.009.
- [22] A. Rubin et al. “First studies with the Resistive-Plate WELL gaseous multiplier”. En: *JINST; in press* (2013). DOI: 10.1088/1748-0221/8/11/P11004.
- [23] A. Roy et al. “First results of Resistive-Plate Well (RPWELL) detector operation at 163 K”. En: (2019). URL: https://www.researchgate.net/publication/334413608_First_results_of_Resistive-Plate_Well_RPWELL_detector_operation_at_163_K.
- [24] L. Moleri. “Development of large-area gas-avalanche Resistive-Plate WELL detectors: potential sampling elements for digital hadron calorimetry”. Tesis doct. Weizmann Institute of Science, 2016.
- [25] *Semitron® ESD 225 Technical data Sheet*. URL: https://www.theplasticshop.co.uk/plastic_technical_data_sheets/semitron_esd_225_technical_data_sheet.pdf.
- [26] Boedeker Plastics INC. *TIVAR® ESD UHMW-PE*. URL: <https://www.boedeker.com/Product/TIVAR-ESD-UHMW-PE>.
- [27] Carviflon. *¿Qué es el PTFE?* URL: [https://carviflon.com/que-es-el-ptfe/#:~:text=El%20Politetrafluoroetileno%20\(PTFE\)%2C%20comercialmente,le%20dota%20de%20caracter%3ADsticas%20%3BANicas](https://carviflon.com/que-es-el-ptfe/#:~:text=El%20Politetrafluoroetileno%20(PTFE)%2C%20comercialmente,le%20dota%20de%20caracter%3ADsticas%20%3BANicas).
- [28] C. Calixto, P. Cervini y É. Cavalheiro. “Graphite-Araldite® composite electrode: didactic applications - Part II.” En: *Química Nova* 31 (2007), págs. 2194-2198. DOI: 10.1590/S0100-40422008000800048.
- [29] V. Peskov et al. “Development and First Tests of GEM-Like Detectors With Resistive Electrodes”. En: *Nuclear Science, IEEE Transactions on* 54 (2007), págs. 1784 -1791. DOI: 10.1109/TNS.2007.905160.
- [30] Wikipedia. *Pulverización catódica*. 2021. URL: [https://es.wikipedia.org/wiki/Pulverizaci%C3%B3n_cat%C3%B3dica#:~:text=La%20pulverizaci%C3%B3n%20cat%C3%B3dica%20\(o%20por,de%20este%20por%20iones%20energ%C3%A9ticos](https://es.wikipedia.org/wiki/Pulverizaci%C3%B3n_cat%C3%B3dica#:~:text=La%20pulverizaci%C3%B3n%20cat%C3%B3dica%20(o%20por,de%20este%20por%20iones%20energ%C3%A9ticos) (visitado 13-07-2022).
- [31] Electronic diener. *Sputtering*. URL: <https://www.plasma.com/es/glosario-de-tecnologia-del-plasma/sputtering/> (visitado 13-07-2022).
- [32] Wikipedia. *Evaporation (deposition)*. 2021. URL: [https://en.wikipedia.org/wiki/Evaporation_\(deposition\)](https://en.wikipedia.org/wiki/Evaporation_(deposition)) (visitado 13-07-2022).
- [33] M. Morales et al. “Aging and conductivity of electrodes for high rate tRPCs from an ion conductivity approach”. En: *Proceedings of Science* 159 (2012). DOI: <https://doi.org/10.22323/1.159.0024>. URL: <https://pos.sissa.it/159/024/>.
- [34] H.E. Taylor. “THE DIELECTRIC RELAXATION SPECTRUM OF GLASS”. En: *Transactions of the Faraday Society* 52 (1956). DOI: <https://doi.org/10.1039/TF9565200873>. URL: <https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/1956/TF/tf9565200873>.
- [35] A.D. Espurz. *Tiempo de relajación en los dieléctricos polares*. URL: https://digibuo.uniovi.es/dspace/bitstream/handle/10651/4850/1196383_306.pdf?sequence=1&isAllowed=y.

- [36] J. Schwandt y R. Klanner. “On the weighting field of irradiated silicon detectors”. En: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A* 942 (2019). DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.162418>. URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900219309891>.
- [37] D. González Díaz. “Research and developments on timing RPC’s. Application to the ESTRELA detector of the HADES experiment at GSI”. Tesis doct. Universidade de Santiago de Compostela, 2006.
- [38] B.A. Boukamp et al. “Electrochemical characterisation of 3Y-TZP-Fe₂O₃ composites”. En: *Solid State Ionics* 158 (2003). DOI: [https://doi.org/10.1016/S0167-2738\(02\)00841-X](https://doi.org/10.1016/S0167-2738(02)00841-X). URL: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S016727380200841X#!>.
- [39] V.V. Kharton, E.N. Naumovich y A.A. Vecher. “Research on the electrochemistry of oxygen ion conductors in the former Soviet Union. I. ZrO₂-based ceramic materials”. En: *Journal of Solid State Electrochemistry* 3 (1999). DOI: <https://doi.org/10.1007/s100080050131>. URL: <https://link.springer.com/article/10.1007/s100080050131>.
- [40] R.M. Slilaty y F.M.B. Marques. “Electrical conductivity of Yttria Stabilized Zirconia (YSC) doped with transition metals”. En: *Boletín de la Sociedad Española de Cerámica y Vidrio* 35 (1996). URL: <https://digital.csic.es/handle/10261/49797>.
- [41] G. Mata-Osoro et al. “Faradaic Current in Different Mullite Materials: Single Crystal, Ceramic and Cermets”. En: *International Journal of Materials Research* 103 (2012). DOI: 10.3139/146.110717. URL: https://www.researchgate.net/publication/237050886_Faradaic_Current_in_Different_Mullite_Materials_Single_Crystal_Ceramic_and_Cermets.
- [42] M. Morales et al. “Conductivity and charge depletion aging of resistive electrodes for high rate RPCs”. En: *Journal of Instrumentation* 8 (2013). DOI: 10.1088/1748-0221/8/01/P01022. URL: <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1748-0221/8/01/P01022>.
- [43] D.R. Lide. *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, 2005. URL: <http://webdelprofesor.ula.ve/ciencias/isolda/libros/handbook.pdf>.
- [44] X. Sun et al. “Li/Fe modified Zn_{0.3}Ni_{0.7}O NTC thermistors with adjustable resistivities and temperature sensitivity”. En: *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 29 (2018). DOI: 10.1007/s10854-017-7922-2. URL: <https://link.springer.com/article/10.1007/s10854-017-7922-2#citeas>.