



DETERMINACIÓN EXPERIMENTAL DE LOS PARÁMETROS DE LA HUELLA GRABADA EN DETECTORES CR-39 PARA PROTONES

Claudia Aparicio O.^{*b,c}, Agustín Zúñiga G.^{a,c}

^aFacultad de Ciencias Físicas, Universidad Nacional Mayor de San Marcos Ap. Postal 14-0149, Lima 14, Perú.

^bFacultad de Ciencias Naturales y Matemática, Universidad Nacional Federico Villareal, Lima 21, Perú.

^cDepartamento de Cálculo, Análisis y Seguridad, Instituto Peruano de Energía Nuclear, Av. Canadá 1470 Lima 41, Perú.

Abstract

In the chemical etching process or chemical development is very important to know the track etching parameters, such as bulk etching velocity (V_b) and track etching velocity (V_t), to define the optimal time of etching. In this work both parameters has been experimentally measured in CR-39 that it was irradiated with a thermal neutron flux; the thermal neutrons produce protons by the nuclear reaction (n,p) with the air. The CR-39 detectors were chemically etched in sodium hydroxide 6,25 N at 70 °C for time periods from 1 to 6 hours. The obtained results show that the value of V_t is almost twice V_b .

PACS: 29.40.-n; 29.40.Wk

Keywords: CR-39, bulk etch rate, track etch rate.

Resumen

En el proceso de grabado o revelado químico es muy importante conocer los parámetros de grabado de la huella, tales como velocidad de grabado de la región no dañada (V_b) y velocidad de grabado de la huella (V_t), para definir el tiempo óptimo de grabado. En éste trabajo ambos parámetros han sido medidos experimentalmente en CR-39 que fue irradiado con un flujo de neutrones térmico; los neutrones térmicos producen protones vía la reacción nuclear (n,p) con el aire. Los detectores fueron grabados químicamente en hidróxido de sodio 6,25 N, 70°C por periodos de 1 a 6 h. Los resultados obtenidos muestran que el valor de V_t es casi dos veces el valor de V_b .

Palabras claves: CR-39, huellas nucleares, velocidad de grabado.

1. Introducción

La utilización de los detectores polímeros CR-39, extendida para detección de neutrones y radón (partículas alfa), hace necesario caracterizar las propiedades del mismo. Uno de los procedimientos importantes en la utilización del CR-39 es el revelado químico que permitirá hacer observables las huellas latentes producidas por las partículas cargadas en la superficie del material.

El objetivo de éste trabajo es medir la velocidad de la región no dañada (V_b) y la velocidad de grabado de la huella (V_t). La importancia de conocer éstas velocidades toma importancia en el proceso de revelado químico para obtener el tiempo óptimo de grabado y lograr una buena visibilidad de las huellas bajo un microscopio óptico.

2. Parte Teórica

Los detectores sólidos de huellas nucleares son materiales dieléctricos, que tienen la propiedad de registrar daños microscópicos producidos en su estructura por partículas cargadas. Entre los más conocidos encontramos: mica, vidrio, makrofol, CR-39, LR-115 [1].

Estos detectores son susceptibles de sufrir daño por radiación de partículas cargadas y producir ruptura de cadenas moleculares, radicales libres, etc. Éste daño a escala nanométrica (huella latente, 30 a 100 Å) puede ser amplificado a escala micrométrica (huella observable) por la aplicación adecuada de un reactivo químico que disuelva esas regiones dañadas en una tasa mayor que en las regiones no dañadas. Microscópicamente en la zona dañada, alrededor de la trayectoria de la partícula, existe una disolución

* E-mail: caparicio@scientist.com

química preferencial; la región dañada es disuelta rápidamente por tener una mayor reactividad que la no dañada. Se termina el revelado con un proceso de limpieza para remover la fracción de la capa gel. Este proceso de grabado se caracteriza por dos parámetros como son la velocidad de grabado de la región no dañada (V_b) y de grabado de la huella (V_i), que resultan en una huella de geometría cónica [2].

Algunos posibles productos de la reacción del revelador (NaOH) con el CR-39 son: alcohol poli alílico, 2,2-oxi dietanol, alcohol alílico, alcohol isopropílico, carbonato de sodio, bicarbonato de sodio, etc.

Para simplificar, se asume que las partículas tienen una incidencia normal a la superficie del detector ($\delta = 0^\circ$), la tasa lineal de ataque es V_b , tal que dentro del tiempo de revelado de la huella t la huella revelada puede extenderse a una distancia L del punto de origen; sin embargo la superficie está siendo removida en una tasa V_b , tal que de la Fig. 3 podemos obtener las ecuaciones (1) a (3).

$$L_i = V_i \cdot t - V_b \cdot t \quad (1)$$

$$r = d = 2 V_b \cdot t \sqrt{\frac{V_i - V_b}{V_i + V_b}} \quad (2)$$

$$\theta = \arctg\left(\frac{V_b}{\sqrt{(V_i^2 - V_b^2)}}\right) = \arcsen\left(\frac{V_b}{V_i}\right) \quad (3)$$

El ángulo θ en polímeros es pequeño, puesto que $V_i > V_b$. Si se excede el tiempo de revelado, y el espesor removido es mayor que L , entonces la forma de las huellas ya no es cónica sino esférica [4].

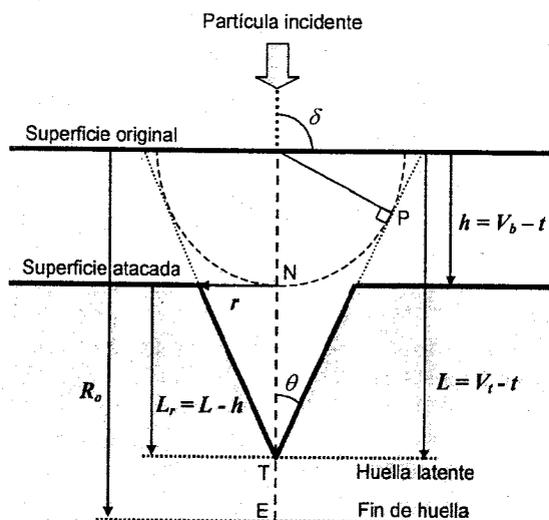


Fig. 1. Formación de la huella para V_i constante [1].

3. Parte Experimental

3.1 El Polímero CR-39

El CR-39 o poli alil diglicol carbonato (PADC) es un plástico del tipo "thermoset" hecho por polimerización del dietilenglicol bi alil carbonato (ADC). El monómero es una resina alílica que contiene el grupo funcional $[\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-]$. Algunas de sus características es que es transparente, resistente a abrasivos, golpes, presión, ralladuras y a la radiación gamma, además mantiene sus propiedades ópticas luego de la exposición a solventes químicos, ácidos oxidantes y bases fuertes. El CR-39 (TASTRAKTM) empleado en éste trabajo fue manufacturado por TASL (Bristol) [5].

3.2 Irradiación de los Polímeros CR-39

Se irradiaron las láminas de CR-39 (500 μm , 1 cm^2) colocadas cada una dentro de un contenedor de acrílico, que permite tener un espesor de aire de 5 mm sobre la superficie del polímero, delimitado por una lámina de aluminio de 113 μm de espesor, bajo un flujo de neutrones térmicos de $6,59 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ - este flujo al interactuar con el N-14 del aire produce protones de 0,58 MeV vía la reacción (n,p) [6] - durante 9 horas al interior de la facilidad térmica del reactor RP-10 del IPEN.

3.2 Determinación de las Velocidades V_b y V_i

Se pesaron las láminas de CR-39 con la balanza Toledo de precisión 0,01 mg y se midió el espesor de cada una de ellas con un medidor de espesor por ultrasonido de precisión 1 μm .

Las láminas de CR-39 ya irradiadas se grabaron químicamente en NaOH 6,25 N a $(71 \pm 2)^\circ\text{C}$, por diferentes tiempos de grabado en rangos de 1 a 6 horas.

Al cabo de cada hora de grabado, se sacó la lámina de CR-39 y se detuvo el proceso sumergiéndola en HCl 0,1%, se limpió con papel absorbente, se pesó y midió el espesor.

Para el tratamiento de datos se utilizó la ecuación [7]:

$$\Delta l = (l_0 - l)/2 \quad (4)$$

En donde l_0, l son los espesores inicial y final. Para hallar la velocidad de grabado en la región no dañada V_b se graficó Δl versus t , siendo la pendiente del gráfico la velocidad buscada.

M. Fromm obtuvo una relación experimental para V_b (24), para normalidades entre 6 y 8, y temperaturas en el rango de 333 y 353 K [8].

$$V_i = 1.276 \times \text{Exp}[2.303\{0.828 \cdot C + 0.049 \cdot T - 0.002 \cdot C \cdot T - 17.624\}] \quad (5)$$

Para obtener V_i además de pesar y medir el espesor de las láminas de CR-39, se midió los diámetros de las huellas cada dos horas.

Para el cálculo de V_i se utilizó la siguiente ecuación [1]:

$$V_i = V_b \frac{4V_b \cdot t + d^2}{4V_b \cdot t - d^2} \quad (6)$$

En donde d es el diámetro de la huella, t es el tiempo de grabado y V_b es la velocidad de grabado en la región no dañada.

Como el rango de los protones de 0,58 MeV en CR-39 es 11 μm (calculado con TRIM [9]), con los valores hallados de V_b , y las correcciones de normalidad descritas por E. Khan [10] se realizó un programa para calcular el tiempo de grabado óptimo.

3.2 Revelado Químico

El revelado se realizó en todos los casos por un tiempo de 6 horas. Las láminas de CR-39 se colocaron dentro de viales de borosilicato llenados con NaOH 6,25 N, y todo esto dentro de un vaso de pirex conteniendo agua, para mantener la temperatura constante, con el termómetro todo el tiempo se monitoreó la temperatura fue de $(70 \pm 2)^\circ\text{C}$.

3.2 Observación de las Huellas Visibles

La observación de las huellas fue realizada con ayuda de un microscopio óptico con el cual se implementó un sistema de adquisición de imágenes con una web cam y una PC (Fig. 18). Lo que permitía obtener imágenes a 400 X y 625 X de resolución aceptable, para su tratamiento posterior y extraer de ese modo la información allí contenida. Para la medición de diámetros se utilizó el software UTHSCSA ImageTool Version 3.0 de la universidad de Texas [11]. En la Fig. 2 se muestran los diámetros a 625 X para diferentes tiempos de grabado.

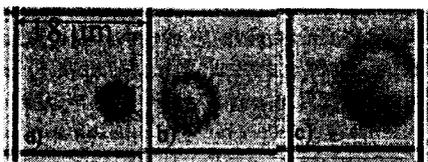


Fig. 2. Imágenes obtenidas a 625X, para diferentes tiempos de revelado. a) 2 h, b) 4 h y c) 6 h.

4. Resultados y Discusiones

De las mediciones de masas y espesores, para seis láminas de CR-39, se puede ver que éstas magnitudes decrecen linealmente con el tiempo (Fig. 24).

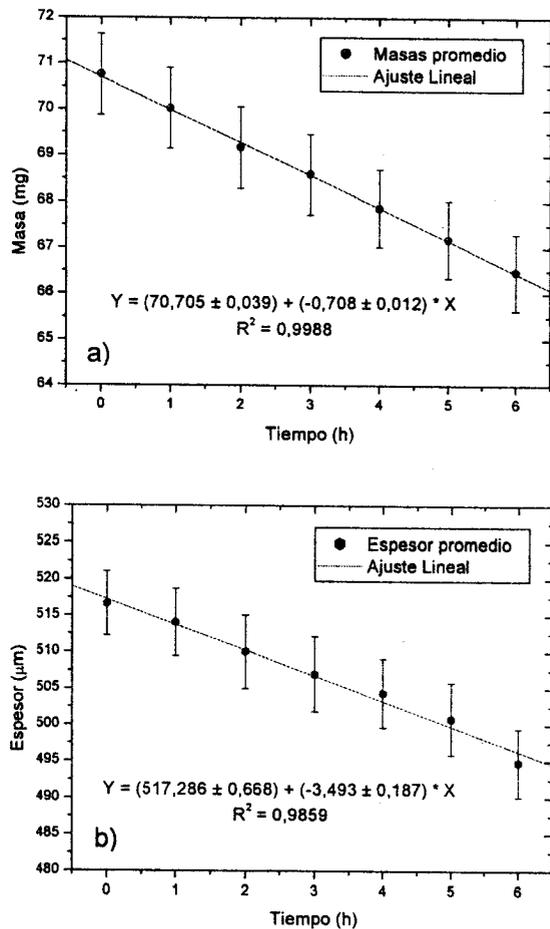


Fig. 3. Linealidad decreciente en función del tiempo para: a) masa de CR-39 y b) espesor del CR-39.

La magnitud descrita por la ecuación (23), crece linealmente con el tiempo (Fig. 25), de ella, la pendiente de la recta da la velocidad de grabado en la región no dañada. La cual es constante y tiene un valor de $V_b = (1,75 \pm 0,10) \mu\text{m/h}$.

Las huellas obtenidas luego del revelado químico muestran forma circular, con contornos regulares, lo que las hace adecuadas para contar; además la presencia de huellas producidas por partículas alfa (rango para partículas con $E > 5 \text{ MeV} = \sim 40 \mu\text{m}$ [9]) fue insignificante, esto confirma la utilidad de recubrir el detector que contiene el CR-39 con una lámina delgada de aluminio, además de impedir que protones producidos en otros puntos cercanos al detector contribuyan con la formación de huellas.

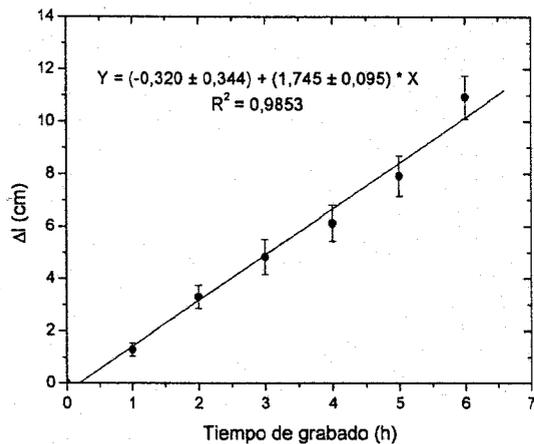


Fig. 4. Gráfica que muestra la linealidad de ΔI con el tiempo de grabado.

En Fig. 5 se muestra la variación de los diámetros de las huellas con el tiempo de grabado, se nota una tendencia lineal [12, 13].

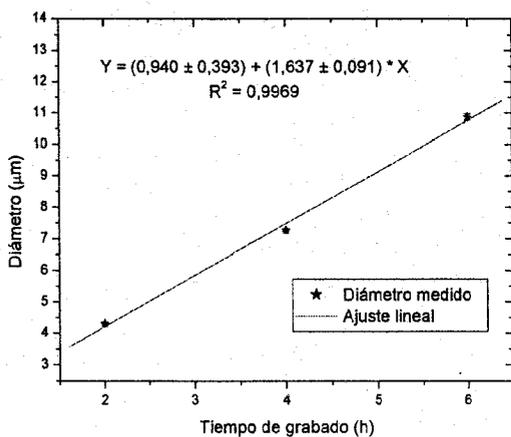


Fig. 5. Tendencia lineal de los diámetros de las huellas con el tiempo de grabado.

La distribución de diámetros para cada intervalo de tiempo sigue una distribución Gaussiana (Fig. 6).

La velocidad de grabado de la huella es decreciente con el tiempo de grabado describiendo una función potencial (Fig. 7). Su valor al final de las 6 horas de grabado es de $V_t = (3,03 \pm 0,17) \mu\text{m/h}$.

La variabilidad de la magnitud V_b se debe a la forma en que la partícula cargada deposita su energía en el material con el que interactúa, la tendencia potencial indica que el mayor daño se producirá en el CR-39 cuando la partícula tiene menos velocidad, puesto que tendrá mas tiempo para ionizar átomos y romper enlaces poliméricos.

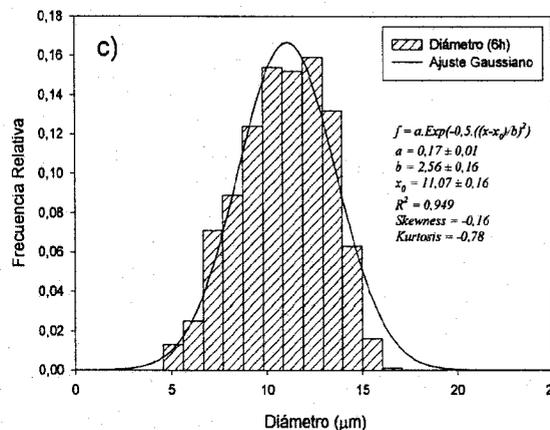
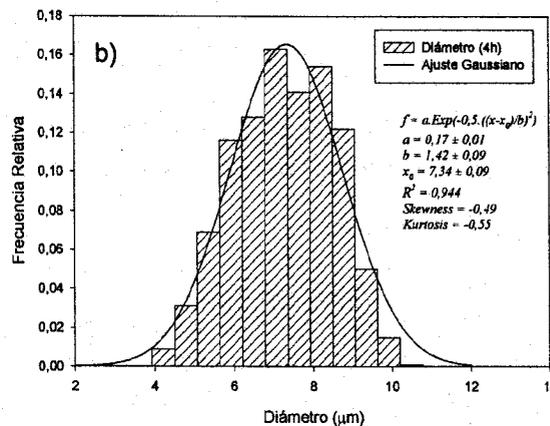
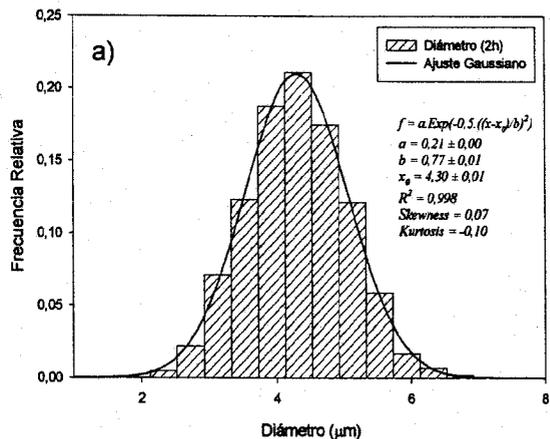


Fig. 6. Distribución Gaussiana de los diámetros en la superficie del CR-39: a) 2 horas, b) 4 horas y c) 6 horas.

Con el programa elaborado, se obtuvo el tiempo óptimo de grabado que es de 6 horas, puesto que en ese tiempo el espesor removido para V_b de la relación experimental es $11,26 \mu\text{m}$, y para V_b obtenido en este trabajo es $10,47 \mu\text{m}$, que son valores que están cercanos al rango de las huellas de protones de $0,58 \text{ MeV}$ que es $11 \mu\text{m}$, y de esa manera se obtienen huellas de perfiles cónicos.

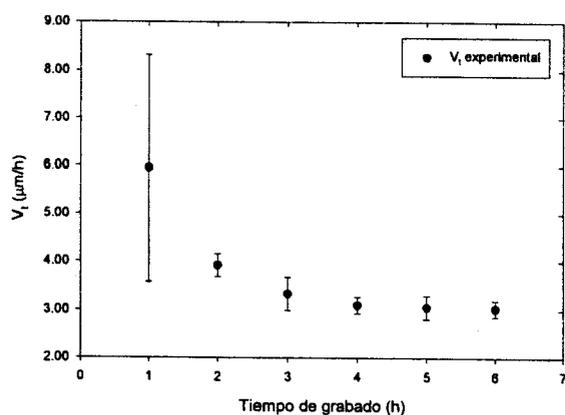


Fig. 7. Variación de la velocidad de grabado de la huella (V_t) con el tiempo.

5. Conclusiones

La velocidad de grabado en la región no dañada V_b , permanece constante en el tiempo de grabado, mientras que V_t , es mas bien variable y su valor al final del rango del protón es casi el doble.

La distribución de diámetros en cada lámina de CR-39 sigue una distribución Gaussiana lo que manifiesta la naturaleza aleatoria de la radiación, además de mostrar una tendencia al valor medio, lo que sugiere que es predominante una energía de protones.

Referencias

[1] S. Durrani, R. Bull, *Solid State Nuclear Track Detection, Principles, Methods and*

- Applications*. Pergamon Press. Oxford. 1987.
- [2] Z. Lounis, S. Djeflal, K. Morsli and M. Allab, *Nuc. Instr. and Meth. B* **179**, 543 (2001).
- [3] D. Bartlett, R. Tanner and D. Thomas, *Radiat. Prot. Dosim.* **86**(2), 107 (1999).
- [4] D. Nikezic and K. Yu, *Radiat. Meas.* **37**, 39 (2003).
- [5] Track Analysis Systems Ltd (TASL), United Kingdom.
<http://www.phy.bris.ac.uk/research/tasl/page2.html>.
- [6] Bouassoule T. *Contribución a la Dosimetría de Neutrones por Detectores Sólidos de Trazas*. Tesis Doctoral. Universidad Autónoma de Barcelona (UBA). Bellaterra. 1998.
- [7] E. Fonseca, T. Knöfel and O. Tavares, *Bulk etching characteristics of CR-39 track detectors in hydroxide solutions*. CBPF-NT-002/83. 1983. Disponible en:
http://www.biblioteca.cbpf.br/index_2.html.
- [8] M. Fromm, F. Membrey, A. El Rahamany and A. Chambaudet, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* **21**(3), 357 (1993).
- [9] J. Ziegler, *SRIM 2003 Code*. www.srim.org.
- [10] E. Khan et. Al., *Radiat. Meas.* **35**, 41 (2002).
- [11] UTHSCSA Image Tools, Versión 3.0, software libre disponible en
<http://ddsdx.uthscsa.edu/dig/itdesc.html>.
- [12] M. Sadowski et. Al., *25th EPS Conference on Controlled Fusion and Plasma Physics. Praha: "Calibration and Application of Nuclear Track Detectors for High Temperature Plasma Diagnosis"*, 1998.
- [13] A. Joseph and K. Varier, *Radiat. Meas.* **24**(2), 111 (1995).