

Películas delgadas depositadas por ablación láser para la medición de radiación ionizante y no-ionizante

Villarreal-Barajas J.E.¹, Escobar-Alarcón L.², Camps E.², Romero S.², González P.², Salinas B.³

¹ Departamento de Materiales Radiactivos, ² Departamento de Física, ³ Departamento de Metrología
Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares



MX0200055

Resumen

En este trabajo se presentan los resultados obtenidos al sintetizar películas delgadas de carbono amorfo con nitrógeno e hidrógeno incorporados, así como películas delgadas de óxido de aluminio, utilizando la técnica de ablación láser. Las películas delgadas fueron expuestas a radiación ionizante (rayos gamma de una fuente de ^{60}Co , radiación beta de una fuente de ^{90}Sr), y a radiación no-ionizante (radiación UV). Los resultados obtenidos demuestran que es posible obtener materiales en forma de película delgada con espesores de centenas de nanómetros, que presentan respuesta termoluminiscente al ser irradiados con radiación ionizante y radiación no-ionizante.

Introducción

Actualmente las nuevas técnicas radioterapéuticas (radioterapia conformal, radiocirugía esterotáxica, etc.) requieren de una dosimetría con una alta resolución espacial, de manera que se puedan realizar medidas exactas en regiones con altos gradientes de dosis. Los métodos usualmente utilizados para medir dosis en estos campos, utilizan la cámara de ionización y/o los diodos de silicio [1]. La cámara de ionización tiene baja sensibilidad y pobre resolución espacial (del orden de milímetros), aunque tiene una respuesta poco dependiente de la energía de la radiación ionizante. Los diodos de Silicio (Si) exhiben alta sensibilidad a la radiación ($\sim 1.0 \text{ nC/cGy}$), se puede lograr buena resolución espacial (del orden de micras), pero tienen la desventaja de que son sensibles al daño inducido por radiación, además de que por no ser equivalente a tejido, su respuesta tiene una dependencia energética importante para radiación electromagnética de bajas energías ($< 100 \text{ keV}$).

Una alternativa promisoriosa para usarse en lugar de las cámaras de ionización y los diodos de silicio, son los detectores de radiación en forma de película delgada. Los materiales en forma de película delgada, han sido objeto de intensa investigación en los últimos años, debido a la amplia variedad de aplicaciones que tienen en diversos campos de la ciencia y la tecnología. En general, las pro-

iedades de las películas delgadas pueden ser significativamente diferentes de sus atributos en bulto, resultando algunas de sus propiedades ordenes de magnitud mejores en película delgada. Es conveniente señalar que cualquiera que sea la ruta de síntesis utilizada para obtener la película delgada, sus propiedades pueden variarse mediante una selección apropiada de los parámetros de depósito involucrados, así como de tratamientos post-depósito adecuados, lo que permite crecer materiales con propiedades específicas para aplicaciones concretas. En particular, estamos interesados en obtener materiales en forma de película delgada que muestren respuesta termoluminiscente (TL).

La importancia de desarrollar este tipo de materiales, radica en el hecho de que se podrían fabricar dosímetros ultra-delgados (espesores del orden de decenas a centenas de nanómetros); estos dosímetros tendrían una alta resolución espacial, limitada solamente por el espesor de la capa delgada, lo que permitiría realizar mediciones de distribución de dosis absorbida con una mayor exactitud. Otra ventaja importante de estos dosímetros sería la posibilidad de realizar mediciones de dosis absorbida en cualquier medio en condiciones de Bragg-Gray, lo que permitiría la estimación de dosis absorbida en el medio sin necesidad de realizar correcciones debidas a la perturbación causada por el dosímetro [2].

La técnica de depósito utilizada para la obtención de las capas delgadas, es la denominada ablación láser o

depósito por láser pulsado. Durante los últimos años, ésta técnica de depósito ha concentrado la atención de muchos especialistas ya que tiene algunas ventajas respecto a procesos convencionales para la obtención de películas delgadas [3]. Adicionalmente, debido a que las propiedades de las películas delgadas dependen del control preciso de la estequiometría, la pureza de la fase y otros factores, la técnica de ablación láser por sus características intrínsecas, tales como la transferencia estequiométrica del blanco directamente al sustrato, así como también por las excelentes propiedades estructurales de la mayoría de las películas creadas por esta técnica, es ideal para obtener películas delgadas de materiales difíciles de fabricar usando técnicas convencionales.

Las películas delgadas de carbono amorfo, presentan algunas ventajas importantes sobre las cámaras de ionización y los detectores de Silicio para usarse como dosímetro, entre las que cabe destacar las siguientes: no es tóxico, es inerte químicamente, es insensible al daño inducido por radiación y es muy estable, de tal manera que puede usarse para realizar dosimetría "in vivo". Su ventaja más importante radica en el hecho de que por tener un número atómico igual a 6, puede considerarse como un material equivalente a tejido biológico, ya que el número atómico efectivo de tejido es de aproximadamente 7.4. Es importante señalar que éste material puede sintetizarse a bajas temperaturas de sustrato y se pueden obtener capas delgadas con espesores del orden de 100 nm y morfología superficial suave [4], lo que las hace promisorias como dosímetros ultra-delgados.

Adicionalmente, en los últimos años ha sido de mucho interés el desarrollo de materiales dosimétricos para usarse en la región ultravioleta (UV), debido a los efectos en la salud humana de la luz solar UV, especialmente la componente solar UVB, asociada al cáncer de piel y a la eritema. Uno de los materiales utilizados para este propósito ha sido el Al_2O_3 , sin embargo aun es muy escasa la información relativa a este tipo de aplicación, sobre todo con materiales en el rango de los nanómetros.

Procedimiento experimental

Las películas delgadas de óxido de aluminio y carbono amorfo, se obtuvieron utilizando la técnica de ablación láser, una descripción detallada del arreglo experimental utilizado se puede encontrar en [5, 6]; brevemente, el sistema consiste en una cámara de alto vacío, dentro de la cual se coloca el blanco que se desea ablacinar, en este caso se usaron cristales de Al_2O_3 , así como pastillas de grafito pirrolítico. Se utilizó un láser de Nd:YAG ($\lambda = 1064$ nm, FWHM = 28 ns) trabajando a una frecuencia de 20 Hz, se enfocó el haz láser sobre el blanco utilizando una lente de 25 cm de distancia focal; durante el depósito, el

blanco se mantiene girando, con el propósito de irradiar un área mayor y reducir su deterioro, para evitar una mayor cantidad de salpicado sobre la superficie de la película delgada. La presión base en la cámara de vacío fue de 5×10^{-6} Torr. Las películas se depositaron sobre sustratos de silicio (100) colocados frente al blanco y paralelos a éste, a una distancia de 3.5 cm (Al_2O_3) y 6 cm (carbono amorfo). Previamente al depósito, los sustratos se limpiaron en ultrasonido con acetona y alcohol etílico. Los depósitos se realizaron a densidades de potencia promedio de 10^8 W/cm².

Las películas delgadas obtenidas fueron caracterizadas por Microscopía Electrónica de Barrido (morfología superficial), Espectroscopia Raman y difracción de rayos X (estructura), dispersión elástica de haces de iones (composición), perfilometría (espesor), así como por mediciones de termoluminiscencia. Las mediciones de termoluminiscencia se realizaron con un lector TL Harshaw 4000, utilizando un ciclo consistente en un precalentamiento a 50 °C por 5 segundos, obteniéndose la curva de brillo desde 50 hasta 300 °C a una razón de calentamiento de 10 °C s⁻¹. Todas las lecturas fueron realizadas en atmósfera de nitrógeno.

Resultados y discusión

Oxido de aluminio

Se depositaron una serie de muestras bajo las mismas condiciones, con el propósito de verificar la reproducibilidad de los resultados. Las películas depositadas tienen espesores promedio de 300 ± 50 nm. Los resultados de la espectroscopia Raman y la difracción de rayos X revelan el crecimiento de un material amorfo. La morfología superficial de las capas depositadas consiste de superficies lisas con partículas salpicadas sobre éstas [6]. La composición de las capas parece corresponder a Al_2O_3 , aunque aun no se caracteriza de manera confiable la composición.

Se realizaron dos series de experimentos, uno para investigar la respuesta TL de las películas delgadas a la radiación UV utilizando una lámpara de mercurio a baja presión (Acton mod. MS 416) y la otra para estudiar su respuesta a radiación beta usando una fuente de ^{90}Sr - ^{90}Y ($E_{\text{max.}} = 2.28$ MeV). Todas las irradiaciones así como las mediciones TL, se realizaron a temperatura ambiente y en la oscuridad con el propósito de evitar cualquier influencia de la luz ambiente en la respuesta TL del material.

Las muestras se irradiaron con radiación UV durante tiempos desde 1 minuto hasta 2 horas y fueron leídas 30 minutos después de la irradiación. La figura 1 muestra las curvas de brillo características de las películas irradiadas con UV a diferentes tiempos.

Como puede observarse la curva de brillo muestra dos picos centrados en 95 y 162 °C, el pico de 95 °C se desvanece totalmente en aproximadamente 10 hrs., mientras que el de 162 °C es más estable aunque su desvanecimiento es del orden del 50% después de 4 días. En la figura 2 se muestra la respuesta TL como función del tiempo de irradiación, observándose un comportamiento no-lineal de la intensidad TL con la dosis (tiempo de irradiación) con tendencia a la saturación a dosis altas, indicando una reducción significativa de la sensibilidad conforme se incrementa la dosis UV.

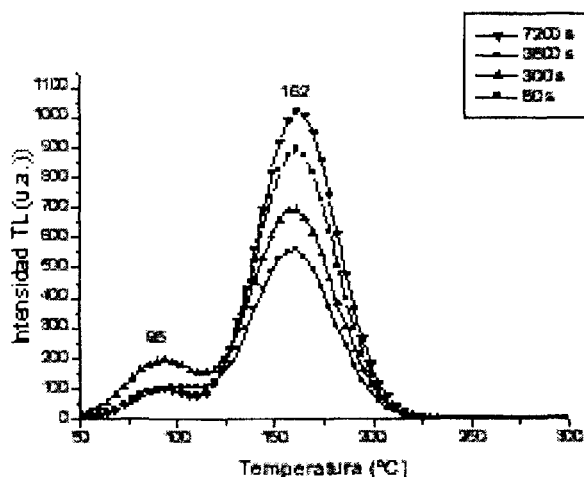


Figura 1. Curvas de brillo características de películas delgadas de óxido de aluminio irradiadas con UV a diferentes tiempos.

Este tipo de comportamiento puede sugerir la existencia de un mecanismo TL que involucra al menos dos tipos de trampas, una que actúa como una trampa activa y la otra que actúa como un competidor.

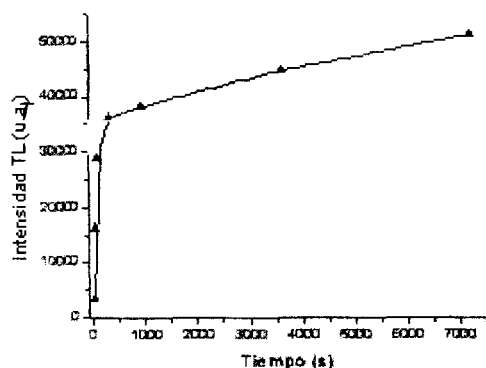


Figura 2. Respuesta TL de películas delgadas de óxido de aluminio como función del tiempo de irradiación con UV.

La curva de brillo de las películas irradiadas con radiación beta, muestra únicamente la presencia del pico de alta temperatura (162 °C), observado con radiación UV. En este caso la estabilidad del pico es mejor, observándose un desvanecimiento del orden del 10% en los primeros 4 días. En la figura 3 se presenta la respuesta TL como función de la dosis en el intervalo de 2.5 a 20 Gy.

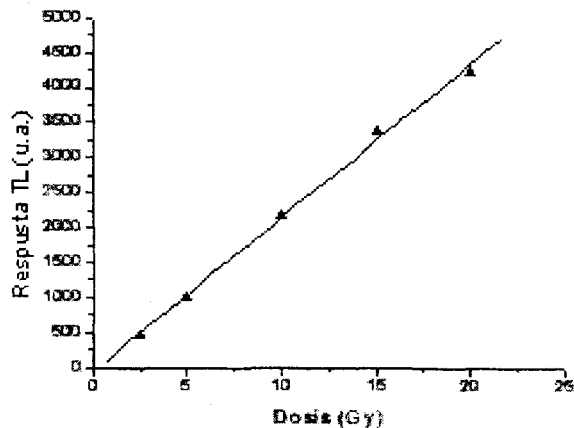


Figura 3. Respuesta TL de películas delgadas de óxido de aluminio como función de la dosis de radiación beta.

Como puede observarse en este caso el material presenta una relación lineal entre respuesta TL y dosis en el intervalo estudiado. Es importante señalar aquí que para dosis menores a 2.5 Gy la respuesta TL del material es muy pobre aunque su reproducibilidad fue siempre del orden del 5%.

Carbono amorfo

En este caso los depósitos se realizaron en atmósfera de nitrógeno a presiones de trabajo de 7.5×10^{-2} Torr, los detalles experimentales, así como los resultados de la caracterización física han sido reportados en [4, 5]. En este caso las capas depositadas son de carbono amorfo con nitrógeno, hidrógeno y oxígeno incorporados en la red de carbono con espesores de 100 nm. Los resultados del análisis por dispersión elástica de haces de iones, para la composición elemental del material, indican que su composición es $C_{0.51}N_{0.20}O_{0.07}H_{0.22}$.

Las películas delgadas fueron irradiadas con radiación gamma de una fuente de ^{60}Co y con radiación UV. Las curvas de brillo de las muestras irradiadas con una dosis absorbida en agua de 110 Gy de gammas de ^{60}Co , se muestran en la figura 4a, como puede observarse estas muestran un pico en 290 °C, similar al pico TL observado en diamante producido por la técnica de CVD. En este caso es posible que la respuesta TL provenga del nitróge-

no incorporado en la capa delgada, debido a que capas con menor cantidad de nitrógeno no presentan respuesta TL.

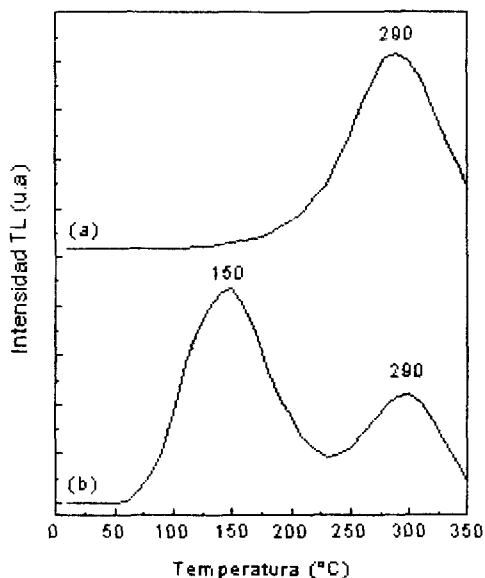


Figura 4. Curvas de brillo características de películas delgadas de carbono amorfo, (a) irradiadas con gammas de ^{60}Co y (b) irradiadas con UV.

En la figura 4b, se presenta la curva de brillo de una capa irradiada con UV, como puede observarse en este caso la curva está compuesta de dos picos, uno en $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ y otro en $290\text{ }^{\circ}\text{C}$ que aparece al irradiar con gammas, siendo más intenso el pico de baja temperatura. Para verificar la reproducibilidad de los resultados cada muestra fue expuesta a radiación gamma y UV cuatro veces observándose respuestas similares. Un estudio más completo sobre la respuesta TL de este material está en proceso.

Conclusiones

Los resultados presentados en este trabajo demuestran que es posible obtener materiales en forma de película delgada con espesores de centenas de nanómetros, con respuesta TL al ser irradiados con radiación ionizante (beta y gamma) y radiación no-ionizante (UV). Esta propiedad hace a estos materiales atractivos para ser utilizados como dosímetros ultra-delgados. Particularmente, la relación lineal entre dosis y respuesta TL para radiación beta, hace a las películas delgadas de óxido de aluminio adecuadas para usarse como dosímetro ultra-delgado de radiación beta.

Referencias

- [1] Buttar C.M., Airey R., Conway J., Hill G., Ramkumar S., Scarbrook G., Sussmann R.S., Walker S., Whitehead A., (2000) *Diamond and Related Materials*, **9**, 965.
- [2] Miller A., McLaughlin W.L. (1982) *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **33**, 1299.
- [3] Hubler G. K., en *Pulsed Laser Deposition of Thin Films* (Ed. D. B. Chrisey y G. K. Hubler, John Wiley and Sons, Inc. New York 1994), Cap. 13.
- [4] Escobar-Alarcón L., Villarreal-Barajas J. E., Camps E., Muhl S., Haro-Poniatowski E., Romero S., Salinas B., (2001) *Mat. Sci. Eng. B*, en prensa.
- [5] Escobar-Alarcón L., Camps E., Rebollo B., Haro-Poniatowski E., Camacho-López M.A., Muhl S., (2000) *Superficies y Vacío*, **11**, 36.
- [6] Villarreal-Barajas J. E., Escobar-Alarcón L., González P. R., Camps E., Barboza-Flores M., (2001), *Radiation measurements*, enviado para publicación.