

Producción de películas de diamante a partir de gases y su aplicación en dosimetría termoluminiscente

L.M. Apátiga*,
J.I. Golzarri**,
F. Alba**,
V.M. Castaño*

Resumen

En este artículo se estudia la aplicación de películas de diamante como detector de radiación tipo ionizante (partículas β) y luz ultravioleta. Tal aplicación como detector se estudió a través de la respuesta termoluminiscente característica del diamante, cubriendo el intervalo de temperaturas, desde temperatura ambiente hasta 350°C. La respuesta termoluminiscente fue inducida con partículas β provenientes de una fuente radioactiva y con luz ultravioleta de 254 nm, a diferentes dosis o tiempos de exposición. Las curvas de termoluminiscencia, cuyas intensidades son proporcionales a la dosis recibida por la película, fueron obtenidas con una velocidad de calentamiento de 10°C/s. Las películas mostraron un alta sensibilidad a ambos tipos de radiación con tan sólo unos segundos de exposición, su respuesta es extraordinariamente reproducible y altamente estable, por lo que son una alternativa real a los dosímetros tradicionales. También se hace una descripción breve del método utilizado en la preparación de las películas y su caracterización con espectroscopía Micro-Raman y microscopía electrónica de barrido.

Abstract

Dans cet article on étudie l'utilisation de pellicules de diamant comme détectrices des radiations de type ionisant (particules β) et de lumière ultraviolette. Cette application comme détectrice a été étudiée à travers de la réponse termoluminescente caractéristique du diamant; on couvre l'intervalle de températures, de la température ambiante jusqu'à 350°C. La réponse termoluminescente a été induite au moyen de particules β provenant d'une source radioactive et avec de la lumière ultraviolette d'une longueur d'onde de 254 nm, à différentes doses et temps d'exposition. Les courbes de thermoluminescence, dont les intensités sont proportionnelles à la dose reçue par la pellicule, ont été obtenues à une vitesse linéaire de chauffage de 10°C/s. Les pellicules ont montré une très haute sensibilité aux deux types de radiation, avec pas plus que quelques seconds d'exposition, et sa réponse est extraordinairement reproductible et hautement stable, ce qui les rendent une alternative réelle aux dosimètres traditionnels. On offre aussi une brève description de la méthode utilisée pour la préparation de pellicules et son caractérisation avec spectroscopie Micro-Raman et microscopie électronique à balayage.

Abstract

The use of diamond films as ionizing radiation and ultraviolet detectors has been studied through their thermoluminescent response, characteristic of diamond. The thermoluminescent glow curves were integrated from room temperature up to 350°C, at a linear heating rate of 10°C/s. The thermoluminescence in diamond was induced with β particles and ultraviolet light of 254 nm wavelength by exposing at different periods. A high sensitivity, reproducibility and stability were obtained subjecting the diamond films to those radiation sources for a few seconds. The results indicate that synthetic diamond films constitute a real alternative to conventional dosimeters. A brief description of the diamond deposition technique is also presented, as well as their characterization by Micro-Raman spectroscopy and scanning electron microscopy.

1. Introducción

Las tres cuartas partes de los minerales conocidos en la Tierra presentan en mayor o menor grado una respuesta termoluminiscente (Beeker 1973), esto quiere decir que una vez que son expuestos a algún tipo de radiación ionizante o a luz ultravioleta quedan excitados y cuando se calientan en un cierto intervalo de tempera-

tura, emiten luz. Los dosímetros comúnmente utilizados para detectar radiación funcionan con base en su respuesta termoluminiscente, es decir, después de ser sometidos a algún tipo de radiación, es posible cuantificar la dosis a la que fueron expuestos con tan sólo calentar y al mismo tiempo medir la intensidad de la luz emitida. En dosimetría, el cristal de fluoruro de litio (LiF) es el detector más común, mientras otros como el fósforo y la fluorita (CaF_2) son también empleados regularmente (Beeker 1973). Sin embargo, la respuesta de estos materiales se da en un

* Instituto de Física, UNAM, Campus Juriquilla

** Instituto de Física UNAM, A.P. 20-364, México 01000, D.F., México.

intervalo muy corto de temperatura, generalmente de 0 a 200 °C y además no son resistentes a los ataques químicos, por lo que su uso queda limitado para trabajar en ambientes libres de elementos corrosivos y a temperaturas inferiores a 200 °C.

Por otra parte, la imperiosa necesidad de medir dosis de radiación en ambientes corrosivos y a temperaturas mayores a 200°C hace que se busquen constantemente nuevos materiales termoluminiscentes. A este respecto, el diamante proporciona una excelente alternativa, pues no sólo resiste los ataques químicos, sino que además su respuesta termoluminiscente cubre un intervalo mayor de temperaturas (Apátiga et al. 1998a) (0-350°C). El objetivo de este trabajo es estudiar, analizar y discutir la aplicación de las películas de diamante como detector de radiación con base en su respuesta termoluminiscente, cuando ésta es inducida con partículas β y luz UV (Apátiga et al. 1998b).

2. Desarrollo experimental

2.1 Preparación de las películas

Las películas de diamante empleadas en este trabajo fueron obtenidas por el método de combustión de flama, usando la flama de un soplete obtenida mediante la mezcla de oxígeno y acetileno (Rubiet al. 1990, Apátiga et al. 1997) Desde el punto de vista de la complejidad del sistema, este método es de los más simples y eficientes, pues no sólo produce películas de buena calidad sino que además no se requiere de vacío ni de atmósfera especial, ya que el proceso se realiza al aire. La materia prima, a partir de la cual se produce el diamante, es una mezcla gaseosa de oxígeno-acetileno con una proporción $O_2/C_2H_2=0.9$. El sustrato es una lámina de molibdeno de $1 \times 1 \text{ cm}^2$ y 0.05 cm de espesor y se monta sobre un portamuestras hecho a base de un cilindro de cobre. La temperatura del sustrato se regula con el flujo de agua que circula a través del portamuestras y se mide con un pirómetro óptico y un termopar, el cual se encuentra justo debajo del sustrato (Apátiga et al. 1997). La temperatura del sustrato fue de 800 °C y es un promedio entre estas dos lecturas.

Bajo estas condiciones experimentales es posible depositar durante 1 hora una película de diamante de 20 nm de espesor en un área circular de casi 4 mm de diámetro. El área circular se forma por la intersección de la zona central de la flama con el sustrato y su diámetro puede variar dependiendo, entre otros factores, de la distancia flama-sustrato, misma que se mantuvo constante a 1 cm.

2.2 Caracterización, termoluminiscencia y luminiscencia

La morfología de la superficie de las películas de diamante se estudió a temperatura ambiente con microscopía electrónica de barrido, mediante un equipo JEOL-5200, operando a 25 keV. La fase del depósito se analizó también a temperatura ambiente con espectroscopía Micro-Raman, usando un equipo Dilor con láser He-Ne de longitud de onda de 632 nm y 20 mW de potencia. Con estas técnicas fue posible determinar la forma y la estructura de los cristales que integran la película, así como su ordenamiento, esto último en términos de ancho de banda, el cual se mide justo a la mitad de la intensidad del pico Raman característico del diamante.

La respuesta termoluminiscente de las películas fue inducida de dos formas diferentes: con luz ultravioleta y con partículas β , cada una fue hecha por separado. La longitud de onda de la luz UV fue de 254 nm con 4 W de potencia, proveniente de una lámpara comercial UVGL-25 de Ultra-Violet Products, Inc. La lámpara se colocó a 15 cm de la superficie de la película, la cual se expuso a diferentes tiempos, que van desde 5 hasta 60 segundos. La excitación con partículas β se hizo con una fuente radiactiva de $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ que emite a razón de 0.04 Gy/s. Una vez que la película se excitó de estas dos formas por separado, se obtuvieron sus respectivas curvas de brillantez, con la ayuda de un equipo Harshaw 2000A acoplado a un integrador de corriente 2000B, mismo que se conectó a un graficador para obtener la curva de termoluminiscencia. El equipo tiene un fotodiodo y calienta la película, desde temperatura ambiente hasta 350°C en una atmósfera

de nitrógeno y con una velocidad de 10°C/s . Debido a la extrema sensibilidad del diamante a la luz ultravioleta, todas las mediciones se realizaron en un laboratorio iluminado con luz ámbar.

El espectro de luminiscencia se obtuvo también a temperatura ambiente, iluminando con luz de 450 nm a la película misma que fue previamente excitada con luz ultravioleta durante 30 segundos en las condiciones arriba mencionadas. El equipo es un espectrofluorómetro SPEX Fluorog 2 con tubo fotomultiplicador Hamamatsu R928. El espectro de luminiscencia está formado por dos señales, una de excitación y otra de emisión. La señal de excitación, es en realidad emitida por el equipo para iluminar (luz de 450 nm), mientras que la señal de emisión corresponde a la longitud de onda emitida por la película durante la termoluminiscencia.

3. Resultados y discusión

3.1 Caracterización

La morfología y calidad de las películas se muestra en la figura 1A, donde se observa una micrografía de la superficie de la película de diamante tomada con el microscopio electrónico de barrido. La película está formada por pequeños cristales traslapados unos con otros y con un

FIGURA 1A

MICROGRAFÍA DE LA SUPERFICIE DE LA PELÍCULA DE DIAMANTE, TOMADA CON UN MICROSCOPIO DE BARRIDO ELECTRÓNICO

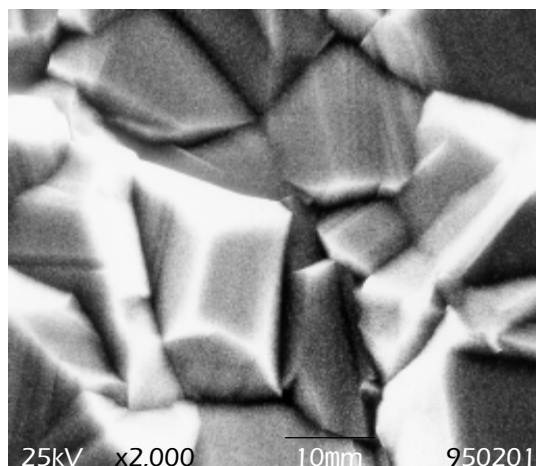
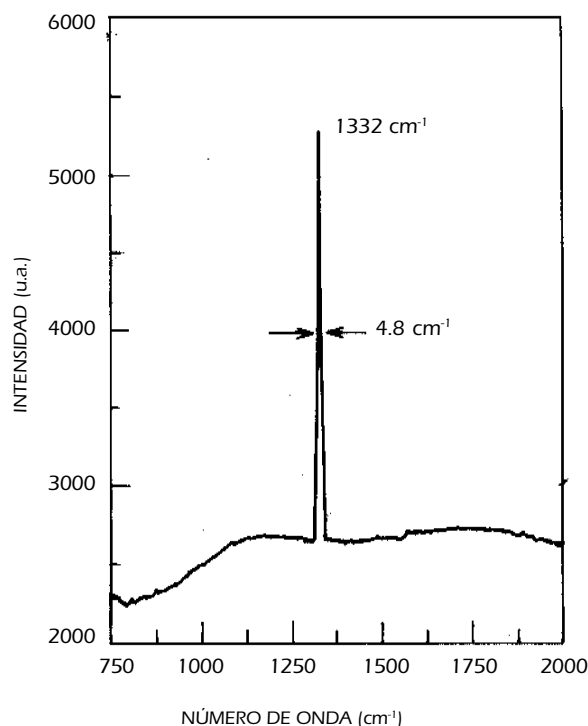


FIGURA 1B



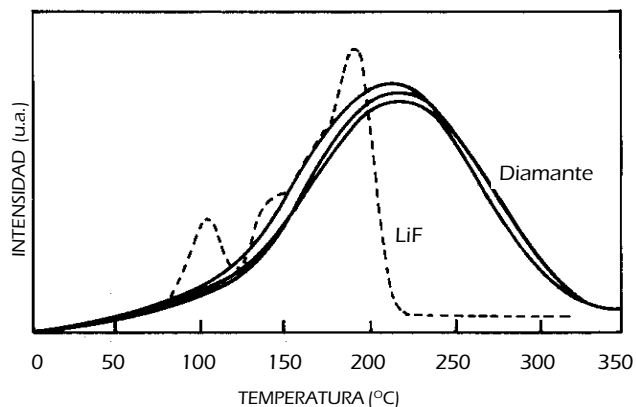
ESPECTRO MICRO-RAMAN, TOMADO EN UNA REGIÓN PRÓXIMA A LA SUPERFICIE MOSTRADA EN LA MICROGRAFÍA

tamaño promedio de 20 nm. El espectro Micro-Raman de la figura 1B muestra el pico característico de la fase diamante localizado en 1332 cm^{-1} . Su ancho medido justo a la mitad de la intensidad es de 4.8 cm^{-1} , lo cual es indicativo de un alto grado de ordenamiento en la estructura de las películas.

3.2 Reproducibilidad, estabilidad y linealidad termoluminiscente

Con el fin de determinar la reproducibilidad y estabilidad de la respuesta termoluminiscente a la radiación β y UV de las películas, se obtuvieron 2 conjuntos de curvas para cada forma de excitación, cada conjunto contiene 20 curvas y en cada uno de estos conjuntos las curvas fueron obtenidas exponiendo la película a dosis de partículas β de 96 Gy y durante 30 s a la luz UV. La máxima variación entre cada curva, en términos del área que cubren y de la altura del pico (intensidad), es del 3 % para una misma película. Este mismo resultado se obtuvo para otras pelícu-

FIGURA 2

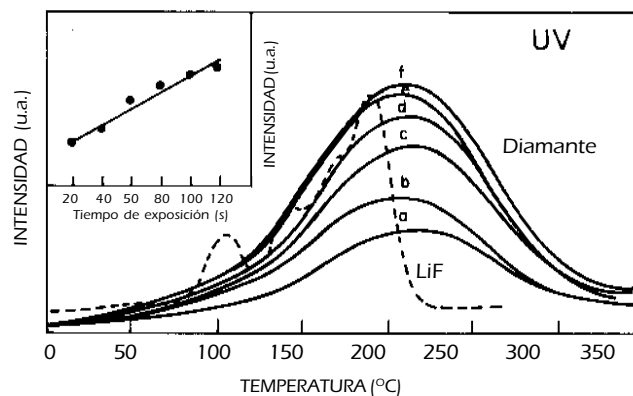
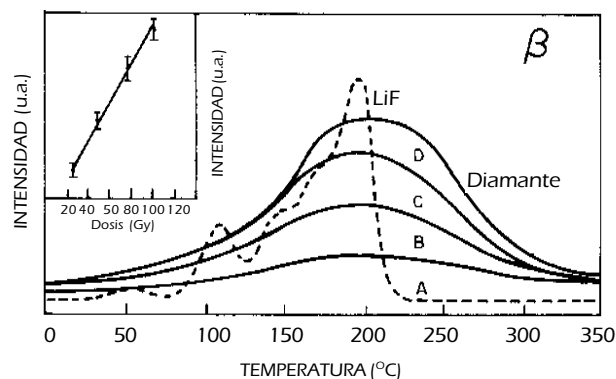


CURVAS DE TERMOLUMINISCENCIA QUE MUESTRAN
LA REPRODUCIBILIDAD Y ESTABILIDAD DE LAS PELÍCULAS DE DIAMANTE

las producidas bajo las mismas condiciones experimentales, por lo que la respuesta termoluminiscente de las películas a la radiación β y UV es altamente reproducible y estable, aún para otras películas generadas en condiciones similares (Mumford et al. 1998). La figura 2 muestra algunas de estas curvas, donde además en cada caso se sobrepone una curva discontinua, que es la que se obtiene para el dosímetro de LiF en condiciones similares. Se puede observar que la curva del LiF no cubre el mismo intervalo de temperatura, como lo hace el diamante y aunque uno de sus picos es más intenso respecto a del diamante, éste se localiza a una temperatura de 190 °C, por lo que su intervalo de operación se reduce casi un 30 % respecto al de la película de diamante.

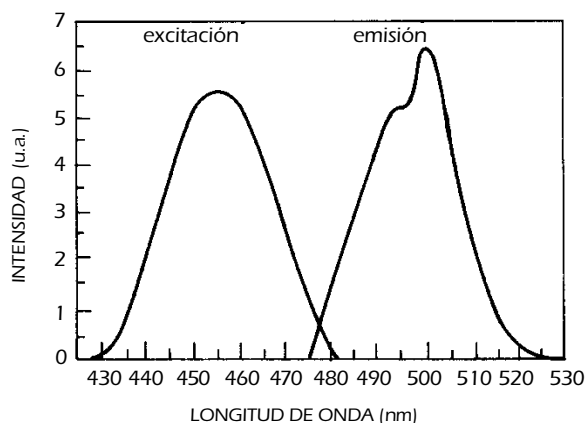
La figura 3 muestra las curvas de termoluminiscencia obtenidas al exponer la película a la radiación β y UV por diferentes intervalos de tiempo. Como puede observarse, la forma de estas curvas es muy similar, salvo la intensidad o altura del pico, la cual aumenta con el tiempo de exposición. El recuadro de cada figura nos muestra una gráfica de intensidad termoluminiscente (altura del pico TL) en función del tiempo de exposición. Este comportamiento lineal de la intensidad termoluminiscente en función de la dosis o tiempo de exposición es también altamente reproducible, pues el mismo resultado se obtuvo al repetir el experimento 20 veces en condiciones similares y con 2 diferentes películas.

FIGURA 3



CURVAS DE TERMOLUMINISCENCIA OBTENIDAS AL EXPONER LA PELÍCULA
DE DIAMANTE A LA RADIACIÓN β Y UV POR DIFERENTES PERIODOS

FIGURA 4



ESPECTRO DE LUMINISCENCIA MOSTRANDO LA LONGITUD DE ONDA
DE LA LUZ EMITIDA POR LA PELÍCULA, LA CUAL
SE ENCUENTRA A 500 nm; ESTO ES, ALREDEDOR DEL VERDE

Para medir la longitud de onda de la luz emitida por la película y cuya intensidad en función de la temperatura se mostró en la curvas de termoluminiscencia de las figuras 2 y 3, se obtuvo el espectro de luminiscencia excitando la película con luz UV. La figura 4 muestra este espectro con dos señales, una a 450 nm que corresponde a la empleada por el equipo para desexcitar a la película y la otra que es la de la luz emitida por la película (emisión), que en este caso corresponde al color verde, alrededor de 500 nm. Esta señal de emisión ya ha sido reportada en otros trabajos y la presentan tanto el diamante sintético como el natural [Dean 1965].

4. Conclusiones

Los resultados obtenidos en este trabajo muestran que, pese a la simplicidad del método empleado en la preparación de las películas, es posible obtener películas de diamante de buena calidad y con una respuesta ter-

moluminiscente altamente reproducible y además estable, aspectos importantes para cualquier sistema de detección de radiación. Además se tiene la ventaja, respecto a la mayoría de los detectores usados regularmente, de que el diamante puede trabajar a temperaturas de hasta 300°C y en ambientes extremadamente corrosivos [Keddy et al. 1993] 

Agradecimientos

Los autores desean agradecer al Dr. Sergio Jiménez del CINVESTAV-Qro por la espectroscopía Micro-Raman, a la M. en C. Jaqueline Cañetas del IF-UNAM por la microscopía electrónica de barrido, al Dr. Jorge García del IF-UNAM por el espectro de luminiscencia, al pasante Guillermo González del CCH y a los Sres. Rafael Caire y E. Méndez del IF-UNAM por la asistencia técnica. Este trabajo fue financiado por DGAPA-UNAM, proyecto IN-503796.

Bibliografía

- APÁTIGA, L.M. J.I. GOLZARRI, J. MUMFORD, F. ALBA y V.M. CASTAÑO,
1998a *Radiation Physics and Chemistry*, No. 54, 223-228.
APÁTIGA, L.M. J.I. GOLZARRI, J. GARCÍA, F. ALBA y V.M. CASTAÑO,
1998b enviado a *Physica Status Solidi (A)*.
APÁTIGA, L.M. R. CAIRE, J. MUMFORD, E. MÉNDEZ, D. RANGEL, F.
ALBA y V.M. CASTAÑO
1997 *Memorias del XII Congreso de Instrumentación*, San Luis Potosí, S.L.P. 309-316.
- BECKER K.
1973 *Solid State Dosimetry*, CRC Press, Cleveland, Ohio.
DEAN P.J.,
1965 *Physical Review*, No. 139, 2A, 588-602.
KEDDY R. and T.L. NAM,
1993 *Radiat. Phys. Chem.*, No. 41, No.4/5, 767-773.
MUMFORD J.W., L.M. APÁTIGA, J.I. GOLZARRI y V.M. CASTAÑO,
1998 *Materials Letters*, No. 37, 330-333.
RAVI, K.V. C.A. KOSH, H.S. HU y A. JOSHI, J.
1990 *Mater. Res.*, Vol. 5, No.11, 2356-2366.