

## TECNICAS DE PREPARACION Y MANEJO DE DETECTORES DE TRAZAS DE PARTICULAS $\alpha$ HECHOS DE PELICULA DE NITRATO DE CELULOSA

N. Segovia, H. Pineda, B. Salinas

Instituto Nacional de Energía Nuclear

Sección de Normas Radiactivas

(recibido 2 de junio 1975)

### RESUMEN

En este trabajo se presenta la técnica de fabricación de películas delgadas de nitrato de celulosa que se usan como detectores para registrar trazas de partículas  $\alpha$  de energías inferiores a 5.5. MeV.

Se describe el método de revelado de las trazas por ataque químico del detector y el comportamiento y respuesta del mismo en condiciones de irradiación controladas.

Se comparan las características de nuestros detectores con detectores comerciales para registrar trazas de partículas  $\alpha$ .

### ABSTRACT

In this paper a manufacturing technique for preparing thin foils of cellulose nitrate is given. The foils are used to record alpha particles of energies lower than 5.5 MeV. The track etching method, the behaviour and response of the foils to alpha particles in laboratory conditions are described.

The behaviour of cellulose nitrate foils are compared with commercially available foils that record alpha tracks.

### INTRODUCCION

La detección de partículas  $\alpha$  de energías inferiores a 5 Mev tiene varias aplicaciones entre las cuales se cuentan la dosimetría y la prospección de uranio.

En este trabajo se informa de los resultados obtenidos en un estudio hecho para detectar trazas de partículas  $\alpha$  en películas de nitrato de celulosa de diferentes espesores, en condiciones de irradiación controlada.

Las partículas nucleares cargadas, al atravesar una gran cantidad de materiales aislantes, ya sean sólidos cristalinos, vidrios o plásticos, dejan trazas. Estas trazas son permanentes en condiciones normales de temperatura y se forman debido al daño que produce la partícula cargada en la estructura del material.

En 1958, Young<sup>(1)</sup> describió una técnica particularmente sencilla para agrandar el daño producido por partículas cargadas en aislantes. Observó concavidades gravadas en la superficie de cristales de fluoruro de litio que habían sido irradiados con fragmentos de fisión y sometidos posteriormente a un ataque químico con una mezcla de ácidos fluorhídrico y acético. Un año más tarde Silk y Barnes<sup>(2)</sup> observaron trazas producidas en distintos sólidos por partículas cargadas provenientes de la radiación cósmica, utilizando un microscopio electrónico de gran aumento. Esta observación se realizó directamente, sin la ayuda del revelado de las trazas por ataque químico.

El ataque químico de la muestra después de la irradiación permite incrementar el tamaño de la traza latente, debido a que destruye más rápidamente las regiones donde han penetrado las partículas energéticas, que las regiones no dañadas de la muestra. La diferencia en la velocidad de ataque de las dos regiones crea canales de daño o trazas reveladas por el ataque químico, que aparecen como perforaciones del material y pueden observarse con un microscopio óptico de poco aumento.

La técnica descrita por Young no fue aprovechada sino hasta 1962, en que Price, Walker y Fleischer<sup>(3,4)</sup> empezaron sus estudios referentes al daño producido por partículas cargadas en sólidos.

A partir de entonces, el método de revelado de trazas en sólidos por ataque químico ha tenido un gran desarrollo, tanto en lo referente al comportamiento de materiales detectores y método de ataque químico<sup>(3-10)</sup>, como a las aplicaciones que se le han dado. Entre estas últimas aparecen mencionadas en la literatura aplicaciones en múltiples campos como son la Física Nuclear, la Geología, la Geocronología, los estudios efectuados con rocas terrestres y lunares, la Dosimetría, la Prospección de uranio, etc.<sup>(10-14)</sup>.

En este trabajo informamos sobre la fabricación de detectores de nitrato de celulosa en forma de películas delgadas que registran el paso de partículas  $\alpha$  de energías inferiores a 5.5. Mev.

Se escogió el nitrato de celulosa debido a que es sensible a las energías que nos interesan, es de fácil obtención en el país, el método de preparación y revelado de los detectores es simple y la observación de las trazas puede realizarse con un microscopio óptico en las condiciones normales del laboratorio.

#### PREPARACION DE LOS DETECTORES

Las películas detectoras se prepararon en el laboratorio empleando el método de fabricación de Benton<sup>(7)</sup>, y el de Johnson y Becker<sup>(8)</sup>, haciéndoles algunas modificaciones que nos permitieron disponer de películas de varios espesores.

Las películas se fabricaron con nitrato de celulosa en forma de algodón (donado por Dupont), con el grado máximo de nitrato (14%) y humedecido con (30%) de alcohol etílico para minimizar los riesgos de explosión.

La preparación de las películas detectoras de nitrato de celulosa se hace en cuatro etapas:

1. preparación de la pasta,
2. dilución de la pasta,
3. vaciado de la pasta,
4. evaporación y secado de la película.

La preparación de la pasta se hizo con la fórmula de Benton, compuesta por 17% de nitrato de celulosa, 62% de acetato de etilo, 5% de alcohol isopropílico, 4% de alcohol etílico, 8% de acetato "Cellosolve" y 4% de dioetilftalato (DOP) como plastificante.

La disolución del nitrato de celulosa y todos los pasos posteriores se llevan a cabo evitando al máximo la presencia de polvo e impurezas, ya que el polvo que se deposita durante el secado disminuye la transparencia del detector y dificulta la identificación de las trazas de partículas cargadas por observar.

La pasta se deja reposar a la temperatura ambiente y en frasco cerrado durante cuatro ó cinco días, hasta que se logra la homogeneidad total de los componentes. Una vez transcurrido ese lapso, se toman alícuotas de pasta de 20, 30, 50 gr. etc., dependiendo del espesor de película que se desee, y se diluyen en 240 ml de acetato de etilo. Las

diluciones anteriores permiten obtener películas cuyos espesores en micras están en relación directa al peso de pasta en gramos.

Estas soluciones de la pasta se dejan nuevamente a temperatura ambiente y en frasco cerrado durante cuatro ó cinco días hasta alcanzar la homogeneidad.

La solución final se vacía en platos de acero inoxidable pulidos y nivelados para obtener películas de espesor constante.

El secado de la película se debe llevar a cabo lentamente, para lograrlo se tapan los platos de secado con una campana de vidrio, de manera que la evaporación de los solventes sea lenta. Si ocurre una evaporación rápida, la película se contrae dando lugar a ondulaciones que modifican el espesor homogéneo de la misma.

El secado de la película a temperatura ambiente tarda tres días aproximadamente. Una vez seca, se despega la película del plato de secado añadiéndole agua y provocando la flotación de la misma en un tiempo que varía entre una y tres horas.

Una vez obtenida la película, se debe cubrir con papel para protegerla de partículas alfa, debidas al fondo del laboratorio, las cuales producen trazas espúreas que aumentan el número de trazas registradas. Las partículas ligeras del fondo natural no dejan trazas en el material aunque sean energéticas. La protección de la película debe mantenerse hasta iniciar la irradiación de la misma.

La película se seca a 80°C durante 24 horas para terminar la evaporación de los solventes, ya que la presencia de éstos afecta la formación de las trazas. No se debe exceder esa temperatura de evaporación, porque si éso sucede, la película se resquebraja y pierde flexibilidad.

Las películas, que denominaremos NTC, se cortan en discos de una pulgada de diámetro y se montan en tambores de polietileno marcados con números de referencia para su identificación.

La manipulación de la película debe hacerse con los cuidados normales para el uso de películas delgadas.

## REVELADO DE LAS TRAZAS

Una vez irradiada la película, las trazas se ponen en evidencia por medio de un ataque químico. Los tipos de mordientes, concentraciones, tiempos de revelado y temperatura del baño para registrar trazas de partículas  $\alpha$  en películas de nitrato de celulosa, se encuentran ampliamente descritas en la literatura<sup>(7-10)</sup>.

Las muestras se sumergen en el mordiente durante un tiempo de revelado que debe ser determinado previamente para cada espesor de la película.

Por comodidad, después de probar varios tipos de mordientes para el ataque químico, se escogió una solución de KOH al 28% ó 5 N y sistema de agitación magnética para el baño con el fin de evitar zonas con diferencias de temperatura y concentración durante el revelado de las trazas.

La temperatura del mordiente se escogió a  $60^{\circ}\text{C} \pm 5\%$ .

Una vez transcurrido el tiempo de revelado se lavan las muestras con agua corriente y se dejan posteriormente 30 minutos en agua destilada para eliminar los residuos del mordiente.

El mordiente afecta toda la película, pero en las zonas que corresponden a las trayectorias de penetración de las partículas, la velocidad de reacción es mayor, dando lugar a la formación de agujeros que van creciendo al estar en contacto con el mordiente.

Estos agujeros corresponden a las trazas y pueden ser observados con un microscopio óptico. En nuestro caso las observaciones de las trazas se hicieron con un microscopio óptico, de 100 aumentos.

## CUENTA DE TRAZAS

Las trazas se cuentan por observación directa al microscopio. Cuando el número de muestras es grande, las cuentas se hacen tomando fotografías al microscopio de las muestras irradiadas, con película fotográfica de 400 ASA.

Las trazas se cuentan en la proyección amplificada de los negativos fotográficos.

Este procedimiento permite reducir considerablemente el error in-

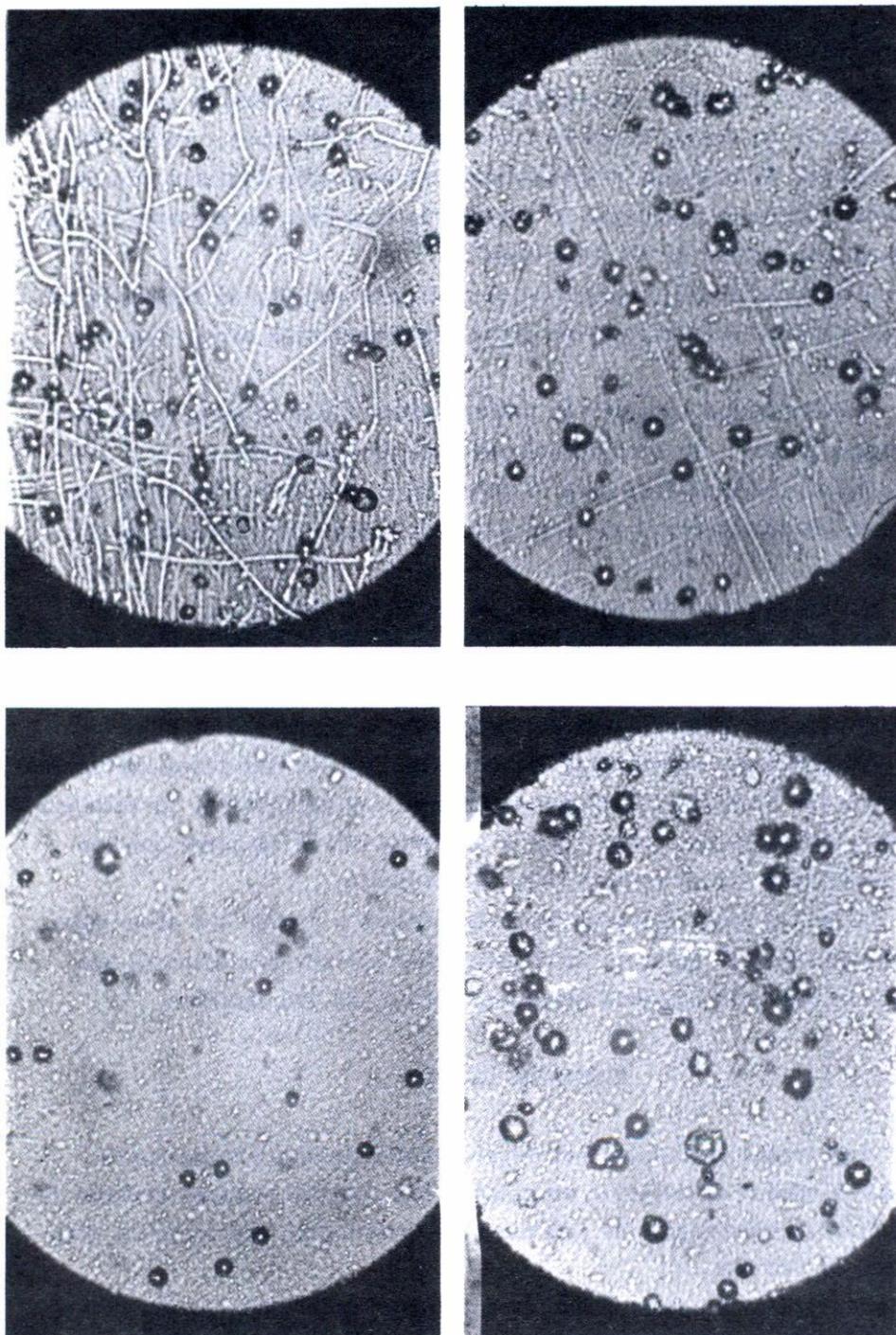


Fig. 1. Trazas de partículas alfa reveladas por ataque químico en detectores NTC.

troducido por el observador. Para tomar las fotografías las muestras se montan entre portaobjetos de vidrio para asegurar que queden planas.

Además del método anterior para efectuar esos conteos se mencionan en la literatura métodos automáticos para contar las trazas en películas delgadas, como por ejemplo, el método de chispa<sup>(8)</sup>. En el presente trabajo no se usó ese método porque es inadecuado para los espesores de película que se manejaron. En efecto, el método de chispa es aplicable para espesores del detector inferiores a 20 micras, mientras que en esta ocasión se fabricaron películas de 10 a 90 micras.

### RESPUESTA DE LOS DETECTORES

Se fabricaron películas detectoras NTC de distintos espesores entre 10 y 90 micras.

La respuesta de los detectores se determinó en el laboratorio irradiándolos con partículas  $\alpha$  provenientes de fuentes de  $^{241}\text{Am}$  y uranio natural.

La fuente de  $^{241}\text{Am}$  es delgada, o sea que se dispone de energías  $\alpha$  de 5.48 Mev., mientras que el uranio se encuentra en muestra gruesa obteniéndose de esta forma un espectro continuo de energías  $\alpha$  inferiores a 5 Mev.

Todas las irradiaciones se efectuaron en el aire.

Los tiempos de revelado para cada espesor de la película se determinaron experimentalmente. En las condiciones de observación con microscopio óptico en las que se trabajó, las trazas (Fig. 1) aparecen a partir de cierto tiempo de revelado y van haciéndose mayores al proseguir el ataque químico. Este proceso continúa hasta que se llega al rompimiento de la película la cual va adelgazándose al estar en contacto con el mordiente.

Los tiempos de revelado en las condiciones de operación antes mencionados, son aquellos en que las trazas aparecen con mayor nitidez y se muestran en la Tabla No. 1, para los distintos espesores de la película.

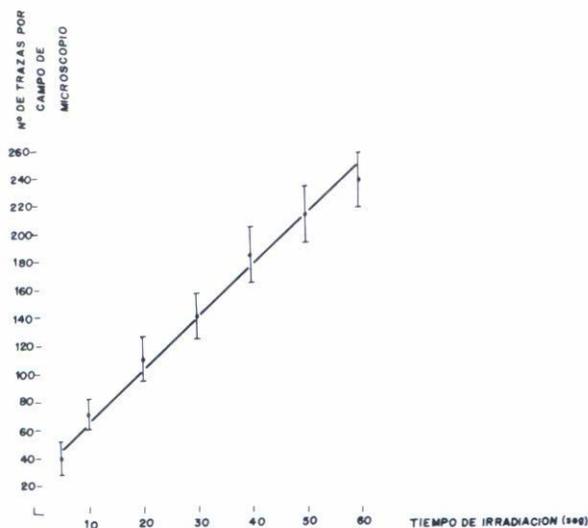


Fig. 2. Respuesta de detectores NTC. Número de trazas vs. tiempo de irradiación.

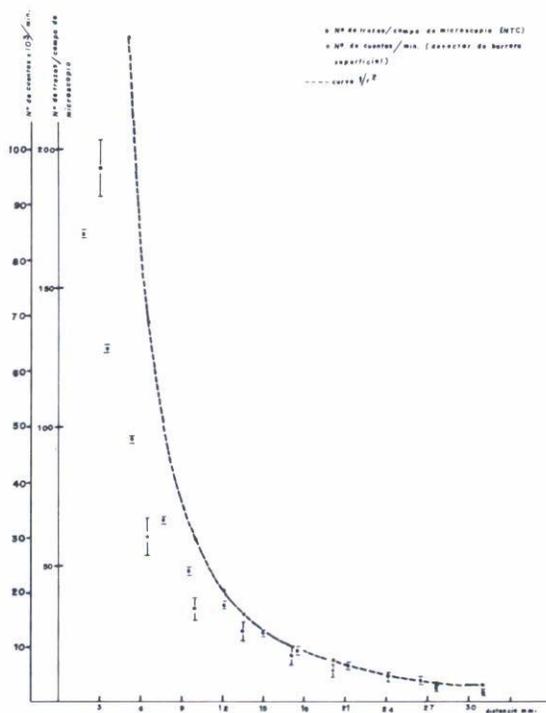


Fig. 3. Comparación del número de trazas observadas vs. distancia de la fuente al detector, con el número de cuentas por minuto obtenidas con un detector de barrera superficial vs. distancia de la fuente al detector. La curva punteada representa la función:  $1/r^2$ .

TABLA 1

| Espesor de la película<br>micras | Tiempo óptimo de revelado<br>de rutina<br>minutos |
|----------------------------------|---|
| 10                               | 1   |
| 15                               | 5   |
| 20                               | 10  |
| 25                               | 15  |
| 30                               | 20  |
| 35                               | 25  |
| 40                               | 30  |
| 45 a 90                          | 35  |

Al irradiar la película con partículas  $\alpha$  procedentes de la fuente de  $^{241}\text{Am}$  en condiciones geométricas fijas, se encuentra que el número de trazas, en las mismas condiciones de revelado, crece linealmente con el tiempo de irradiación (Fig. 2). El tiempo máximo de irradiación a contacto que se considera en la figura 2 es de 1 minuto ya que a mayores tiempos de irradiación la densidad de trazas es muy grande, estas se superponen y es difícil contarlas.

La linealidad es suficientemente buena para conteos inferiores a 300 trazas por campo de observación. Se observó que a partir de 300 trazas/campo de microscopio, los errores debidos al observador son tan grandes, que el método deja de ser práctico. Por esta razón se estableció la técnica de fotografía del campo del microscopio y proyección ampliada del negativo para trabajos de rutina. Con este último método se tiene la ventaja de conservar fijo un campo de observación, permitiendo conteos repetitivos y cambios de observador en caso necesario.

Se estudió la variación del número de trazas al cambiar la distancia de la fuente al detector. La irradiación se realizó al aire dejando fija la superficie del detector y moviendo la fuente para cambiar la distancia entre ellos. El tiempo de irradiación fué el mismo para cada distancia.

Para comparar la respuesta de los detectores NTC con la de un detector convencional de partículas alfa, se substituyeron éstos por un

detector de barrera superficial, repitiéndose el experimento anterior: se fijó el tiempo de conteo y se varió la distancia de la fuente al detector.

Los resultados de los dos experimentos aparecen en la Fig. 3.

Comparando los resultados obtenidos con los dos tipos de detectores se puede observar que la respuesta de los detectores NTC es semejante a la del detector de barrera superficial, siempre y cuando la irradiación se realice en las mismas condiciones.

El comportamiento general de los datos experimentales es el mismo, por lo que se puede pensar en calibrar los detectores NTC en la misma forma en que se calibran los detectores convencionales, sacando la relación del número de trazas en función de la actividad del emisor.

En la Fig. 3 se muestra también una curva proporcional a  $1/r^2$ , la cual corresponde al factor geométrico para una fuente puntual. Los datos experimentales concuerdan con la curva teórica en las distancias intermedias. Sin embargo, en esta figura se observa que los puntos experimentales se desvían de esta curva en sus dos extremos. Para distancias pequeñas intervienen varios factores que conducen a esta desviación, como son, el tamaño y la forma de la fuente ya que se trabajó con una fuente plana de 3 mm de radio; además se observó que para distancias pequeñas se dificulta la cuenta de las trazas debido a que éstas son numerosas y pequeñas. Para distancias grandes los puntos experimentales se desvían de la curva  $1/r^2$  debido a que las partículas alfa de 5.5 Mev. de energía inicial que tienen un alcance en aire de 4.1 cm, tienen una pérdida de energía considerable y por otra parte la energía mínima necesaria para detectar las partículas alfa en la película NTC es de 500 Kev.<sup>(16)</sup>.

Durante el desarrollo de los experimentos se observó que el diámetro de las trazas varía con la distancia de irradiación, siendo menor el diámetro a distancias menores entre la fuente y el detector.

Las trazas podrían agrandarse aumentando el tiempo de revelado; sin embargo, para poder comparar los datos experimentales todos los detectores se revelaron en las mismas condiciones.

Para distancias mayores a 31 mm el número de trazas fue comparable al fondo de trazas espúreas de los detectores que se usaron en el experimento.

Los detectores presentan siempre un cierto número de trazas corres-

pondiente a su historia dentro del fondo natural de radiación en el laboratorio. El valor del fondo se obtiene de las muestras sin irradiar que se usan como testigos. Es importante trabajar las muestras irradiadas acompañándolas siempre de muestras testigo a lo largo del proceso de revelado, ya que la lectura de estos testigos representa el fondo que hay que descontar para medidas cuantitativas del número de trazas. El fondo promedio que se obtiene en el laboratorio es de 20 trazas/mm<sup>2</sup>  $\pm$  12% para películas preparadas tres meses antes de su empleo.

Con el fin de probar la respuesta de los detectores NTC frente a radiaciones  $\beta$  ó  $\gamma$ , se irradiaron los detectores con emisores  $\beta$  como el <sup>32</sup>P y el <sup>210</sup>Pb y con emisores  $\gamma$  como el <sup>60</sup>Co y el <sup>137</sup>Cs.

Las fuentes de radiación fueron de baja intensidad con el fin únicamente de ver si aparecían trazas o algún cambio de respuesta con dosis bajas. No se observó ningún cambio después de irradiados los detectores con lo cual puede considerarse que en esas condiciones los detectores son específicos para radiación  $\alpha$  de energía inferior a 5.5. Mev.

El registro de trazas puede ser afectado por la temperatura a la que se somete al material detector. Al aumentar la temperatura las trazas disminuyen en diámetro y pueden llegar a borrarse por movimientos térmicos de reacomodo de los iones dentro del material.

Los detectores de NTC se sometieron a humedades altas, hasta 90% de humedad relativa y hasta temperaturas de 70°C. La respuesta de la detección no se vió afectada ni se perdió información. Esto era de esperarse ya que en la literatura se menciona que el efecto de borrado se observa solamente a partir de 80°C<sup>(7,8,14,15)</sup>, en polímeros como el nitrato de celulosa.

#### COMPARACION DEL COMPORTAMIENTO DE LOS DETECTORES NTC Y DE LA PELICULA COMERCIAL KODAK LR 115

Pueden adquirirse en el comercio, películas de nitrato de celulosa sensibles a partículas  $\alpha$  de energías inferiores a 5 Mev.

Para comprobar las características de los detectores NTC se hizo una comparación del comportamiento de éstos con detectores de nitrato de celulosa fabricados por KODAK, específicos para registrar trazas de partí-

culas  $\alpha$  de energías inferiores a 4 Mev.

Estos detectores están hechos de una capa delgada de nitrato de celulosa de espesor inferior a 10 micras, coloreada en rojo, depositada sobre un soporte de poliéster transparente de 150 micras aproximadamente.

Las condiciones de revelado para este material las proporciona el fabricante, siendo el mordiente una solución de NaOH al 10% a 60°C de temperatura, en la que se debe colocar el detector, sin agitación, durante 65 minutos. Como la película sensible es muy delgada, las condiciones de revelado son críticas; debe tenerse especial cuidado en no exceder ni la temperatura ni el tiempo de revelado, pues esto puede provocar la destrucción de la película perdiéndose toda la información de las trazas.

También el lavado de la película para limpiarla del mordiente tiene que efectuarse con mucha delicadeza, pues la película sensible sufre escoriaciones con cualquier fricción o frotamiento mecánico.

La observación de las trazas se hace al microscopio óptico con 200 aumentos. Como la película es muy delgada, las perforaciones atraviesan de lado a lado la capa de nitrocelulosa coloreada, apareciendo los agujeros como discos perforados en el fondo rojo de la película.

Si se interpone un filtro verde (Wratten No. 40) entre el objetivo y la muestra, de manera que la transmisión de luz se realice únicamente por los agujeros formados por las trazas, se pueden observar claramente éstas como puntos luminosos en un fondo oscuro.

Cuando el número de muestras es grande no se puede adaptar la técnica de fotografía que se usó en los detectores NTC ya que la intensidad de luz es mínima debido a la presencia del filtro. El conteo directo al microscopio es arduo y los errores debidos al observador aumentan. No pudo adaptarse el método automático de chispa en esta ocasión debido a que la capa de celulosa no se desprendió de la lámina de poliéster que la soporta. El mismo fabricante produce una película que es desprendible y a la que puede adaptársele el método de chispa, pero no se trabajó con este tipo de película.

La comparación de los detectores NTC fabricados en el laboratorio y los de los detectores KODAK LR 115 aparecen en la tabla No. 2.

TABLA 2

| Parámetro                 | Detector Kodak LR 115   | Detector NTC                      |
|---------------------------|---|-----------------------------------|
| Material                  | Nitrato de celulosa   | Nitrato de celulosa               |
| Espesor                   | 10 micras   | De 10 a 90 micras                 |
| Partículas que registra   | $\alpha$  | $\alpha$                          |
| Energía máxima registrada | 4 MeV   | 5.5 MeV                           |
| Superficie sensible       | 1 lado  | 2 lados                           |
| Reveladores de trazas     | NaOH al 10%; 60°C; 65 min.  | KOH 28%; 60°C; 30 min.            |
| Observaciones             | Microscopio óptico (200 aumentos)                                   | Microscopio óptico (100 aumentos) |
| Método de conteo          | Directo con filtro  | Fotografía                        |
| Lavado                    | Se desprende con presiones físicas, corrientes de agua y agitación. | Sin problema                      |
| Procedencia               | Importación   | Local                             |

## CONCLUSION

Los detectores de nitrato de celulosa NTC, responden favorablemente a partículas  $\alpha$  de energías inferiores a 5.5. MeV.

La respuesta es selectiva para radiación  $\alpha$ , lo cual es una ventaja pues discrimina contribuciones de radiaciones múltiples ( $\beta, \gamma$ ); los detectores registran las trazas de las partículas cargadas, conservan la información sin pérdidas en condiciones normales y soportan las manipulaciones sin deteriorarse.

El equipo necesario para fabricar los detectores, revelar las partículas y contar las trazas es barato y puede acomodarse en un laboratorio convencional de química sin instalaciones especiales.

La respuesta de los detectores NTC es semejante a la de películas comerciales sensibles a partículas  $\alpha$ .

En vista de estas cualidades, los detectores son apropiados para aplicaciones como la prospección de uranio, la dosimetría, autoradiografías  $\alpha$ , etc.

## AGRADECIMIENTOS

Deseamos agradecer a la M. en C. Silvia Bulbulián y al Dr. Alfonso Mondragón el interés que demostraron por este trabajo y el estímulo que nos brindaron.

## BIBLIOGRAFIA

1. D.A. Young, *Nature* (London), 182 (1958) 375.
2. E.C.H. Silk y R.S. Barnes, *Phil. Mag.* 4 (1959) 970.
3. R.L. Fleischer, P.B. Price, H. Appl. *Phys.*, 34 (1963) 2903.
4. R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, *J. Appl. Phys.*, 36 (1965) 3645.
5. R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, E.L. Hubbard, *Phys. Rev.* 156 (1967) 2, 363.
6. R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, E.L. Hubbard, *Phys. Rev.* 133 (1964) 5A, 1443.
7. E.V. Benton, U.S.N.R.D.L. - TR - 14 (1968).
8. D.R. Johnson, K. Becker, ORNL-TM-2826, (1970).
9. R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, *J. Appl. Phys.* 36 (1965) 3645.
10. K. Becker, Topics in Radiation Dosimetry, Supplement I, Academic Press Inc. New York and London, (1972).
11. R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, *Science*, 149 (1965) 383.
12. R.L. Fleischer, H.W. Alter, S.C. Furman, P.B. Price, R.M. Walker, *Science* 178 (1972) 4058.
13. J.E. Gingrich, D.B. Lovett (G.E.C. Pleasanton, Calif.) *Trans. Amer. Nucl. Instr. and Meth.*, 15 (1972) 15.
14. H.A. Khan, S.A. Durrani, *Nucl. Instr. and Meth.*, 113 (1973) 51.
15. R.H. Boyett, D.R. Johnson, K. Becker, *Rad. Res.*, 42 (1970) 1-12.
16. J.I. Gallardo, M. Rocha, N. Palacios, J. Calvillo, J. Rickards. XVIII Congreso Nacional de Investigación en Física, Veracruz, Ver. (1975).