

DISTRIBUCION DE DOSIS EN DETECTORES DE MAKROFOL-E POR IMPACTO DE IONES

P.J. MEOLI

División Radioterapia, Instituto Alexander Fleming, Cramer 1180 (1426), Buenos Aires, Argentina.

G.H. OLIVERA*, R.D. RIVAROLA.

Grupo de Colisiones Atómicas, Instituto de Física Rosario (CONICET-UNR), Av. Pellegrini 250, (2000) Rosario, Argentina.

e-mail: olivera@unrctu.edu.ar / colision@ifir.edu.ar

P.D. FAINSTEIN

Laboratoire de Chimie -Physique, Matière et Rayonnement, Université Pierre et Marie Curie, 11 Rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris, Francia.

G. SAINT MARTIN Y O. BERNAOLA

Departamento de Radiobiología, Comisión Nacional de Energía Atómica, Av. Libertador 8250, (1429) Buenos Aires, Argentina

Introducción

En el presente trabajo se calculan los perfiles de dosis originados por el impacto de diferentes iones en Makrofol-E, utilizado como Detector de Estado Sólido para Trazas Nucleares (SSNTD). Las secciones eficaces doble diferenciales de ionización simple son obtenidas a partir de la aproximación Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State (CDW-EIS). La deposición de energía debida a los rayos delta se modeliza utilizando la aproximación de frenado continuo (CSDA). Se analizan las relaciones entre los perfiles experimentales de daño submicroscópicos y las deposiciones de energía obtenidas a partir de las distribuciones radiales de dosis teóricas. En el presente trabajo mostramos que, a pesar de que no es posible obtener demasiada información cuantitativa sobre el procesos de formación de trazas a partir de modelos simples de deposición de energía, sin embargo, podemos obtener información cualitativa sobre el umbral de formación para energías de proyectil intermedias y bajas.

Modelo de Deposición de Dosis

La deposición radial de dosis en detectores de estado sólido para trazas nucleares (Solid State

Nuclear Track Detectors (SSNTD)) para diferentes iones pesados son obtenidas utilizando un programa de cálculo por computadora. Este programa tiene en cuenta los electrones eyectados a diferentes energías, para ángulos entre 0° y $\pm 180^\circ$ respecto a la trayectoria del ion. Se supone un blanco con N moléculas / cm^3 y que existe equilibrio electrónico.

La energía depositada en un volumen dV a una distancia radial x , puede ser calculada como:

$$Dd = \sum \frac{n(E_i)\Delta E_i}{dV} \quad (1)$$

donde $n(E_i)$ es el número de electrones que alcanzan x con energía E_i , ΔE_i es la energía perdida al recorrer una pequeña distancia ds , y dV es el volumen de una región anular de espesor dx y de una unidad de longitud. En la figura 1 se esquematizan los parámetros antes mencionados. Son utilizadas secciones eficaces doble diferenciales para establecer el número de electrones eyectados por la partícula primaria a diferentes ángulos y energías.

La integral que representa la ecuación 1 es:

$$Dd = \int_{E_{\min}}^{\infty} \int_{\theta=0}^{\pi} \frac{2\pi \cdot N \cdot \sigma(\theta, E) \cdot \Delta E \cdot \sin(\theta) \cdot d\theta \cdot dE}{2\pi \cdot x \cdot dx} \quad (2)$$

*Autor a quien debe enviarse la correspondencia

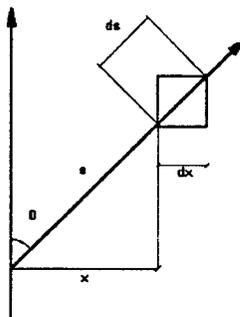


Fig. 1: Parámetros utilizados en el cálculo de la distribución radial de dosis.

donde $\sigma(\vartheta, E)$ es la sección eficaz doble diferencial de ionización por impacto del ion (DDCS). Los límites de ϑ son determinados de las relaciones rango-energía. Si un electrón de energía inicial E_i tiene un rango R , ϑ debe ser tal que el electrón alcance la distancia radial x antes que recorra una distancia R y pierda toda su energía.

Resulta entonces que: $R \sin \vartheta$ debe ser $\geq x$
 $\sin \vartheta \geq x/R$
 $\vartheta \min = \sin^{-1}(x/R)$

luego

$$\vartheta \max = \pi - \sin^{-1}(x/R)$$

Se obtiene entonces para la dosis depositada:

$$Dd = \int_{E \min}^{\infty} \int_{\arcsin(x/R)}^{\pi - \arcsin(x/R)} N \cdot \frac{1}{x} \cdot \frac{dE}{ds} \cdot \sigma(\theta, E) \cdot d\theta \cdot dE \quad (3)$$

donde $\frac{dE}{ds}$ es el poder de frenado electrónico para el impacto de electrones a la energía del electrón en el punto de interés.

La exactitud con la cual puede ser evaluada la ecuación 3 está limitada por los datos de las secciones eficaces dobles diferenciales y poderes de frenamiento para los electrones de baja energía. Las secciones eficaces dobles diferenciales son calculadas con la aproximación CDW-EIS (Continuum Distorted Wave-Eikonal Initial State).

Como el modelo Born I no considera la captura de electrones al continuo (ECC) del proyectil, las distribuciones angulares predichas por este modelo subestiman las secciones eficaces dobles diferenciales cercanas al ángulo de 0° . El modelo de onda distorsionada (DW) ha sido desarrollado para incorporar la captura al continuo del proyectil [1,2]. Es de especial interés el modelo CDW-EIS de Crothers y Mac-Cann [3], revisado por Fainstein *et al* [4,5]. El estado ligado inicial es distorsionado por una fase eikonal que tiene en cuenta la interacción electrón activo-proyectil desnudo. El estado final es un producto de los estados del continuo coulombiano electrón activo-proyectil desnudo, y electrón activo-blanco residual. CDW-EIS ha mostrado una adecuada reproducción de datos experimentales.

Las DDCS moleculares para el Makrofol ($H_{14}C_{16}O_3$) son obtenidas utilizando la regla de aditividad de Bragg, es decir sumando las correspondientes DDCS atómicas:

$$DDCS(\text{Makrofol}) = 14 \text{ DDCS(H)} + 16 \text{ DDCS(C)} + 3 \text{ DDCS(O)}$$

Se considera que la suma de las DDCS de cada constituyente de una gran molécula para obtener las DDCS moleculares, no introduce importantes errores. Esto puede ser supuesto por el hecho que la regla de aditividad de Bragg de poder de frenamiento electrónico en grandes moléculas da una buena descripción del poder de frenamiento electrónico molecular [6].

La energía depositada por un ion rápido es mayormente depositada por la eyección de electrones. Desde un punto de vista cuantitativo, el conocimiento de pérdidas de energías y rangos de los electrones entre unos pocos eV y decenas de keV es de gran importancia. Para Makrofol, se utilizaron datos de ICRU [9], dependiendo de la energía del electrón, para obtener un ajuste de la relación rango-energía, con la siguiente fórmula:

$$R = k E^m$$

con $k = 4.15 \text{ E-}06 \text{ g/cm}^2 \text{ keV}^m$
 $m = 1.805$

Es realizada una extrapolación para electrones de baja energía. Se considera la aproximación CSDA (Continuum Slowing Down Approximation) para todas las energías de electrones. Por lo tanto, los perfiles de dosis cercanos a la traza del ion (radio prácticamente nulo) no son válidos. En esta región es necesario adoptar el método de Monte Carlo para obtener mejores resultados.

En un reciente trabajo, Tombrello [10] propone una ecuación para la obtención de radios críticos, que definen zonas hasta donde la energía depositada por unidad de volumen es mayor que un cierto valor umbral e_c , valor mínimo supuesto para producir roturas de enlaces moleculares en el material orgánico.

Los resultados obtenidos por el método de Tombrello reproducen adecuadamente datos experimentales para diferentes materiales, irradiados con diferentes iones de alta energía de impacto.

La ecuación propuesta es:

$$a_c = \left\{ \frac{\gamma}{2\pi e_c} \frac{dE}{dx} \right\}^{1/(2-\gamma)} \frac{1}{R_1^{\gamma/2-\gamma}}$$

donde a_c es el radio crítico, R_1 es el máximo alcance radial de los electrones secundarios, y para materiales como Makrofol e iones de las energías y masas utilizadas $e_c = 0.007 \text{ eV/\AA}^3$, y $\gamma = 0.27$.

Trazas Nucleares Experimentales

El paso de iones a través de materiales aislantes orgánicos, produce intenso daño a escala atómica. En nuestro laboratorio se desarrolló una técnica de réplica para trazas nucleares, que permite observar el daño producido por los iones, hasta una

resolución de 10 \AA utilizando microscopía electrónica [7, 8]. Se utilizó Makrofol E como material orgánico de detección, en folias de $300 \mu\text{m}$ de espesor. Las folias fueron irradiadas con haces de iones de incidencia normal a la superficie del detector. Para las irradiaciones con iones de 3000 keV/uma de ^{12}C y 5000 keV/uma de ^7Li se utilizó el acelerador Tandem de CNEA, para las de 500 keV/uma de ^{12}C , 286 keV/uma de ^7Li y 125 keV/uma de ^{16}O el acelerador Tandem

del Brookhaven National Laboratory de USA y para el resto de los iones el Implantador de Iones Varian 200 de la misma Institución. Las folias irradiadas fueron tratadas químicamente con solución PEW (15g KOH + 40g CH₃CH₂OH + 45g H₂O), con la finalidad de revelar las trazas. Para la obtención de réplicas, las folias fueron posteriormente metalizadas con C - Pt en una Metalizadora Balzer BAE 250. Las réplicas fueron finalmente flotadas en cloroformo para su montaje en las grillas a utilizar en el microscopio electrónico. Mediante un cuidadoso manejo de las réplicas, las trazas nucleares pueden ser observadas de perfil como se describe en [7, 8]. Para ciertos iones y energías no es posible observar trazas por efecto umbral, o son observables sólo mediante largos tiempos de procesamiento químico [11, 12].

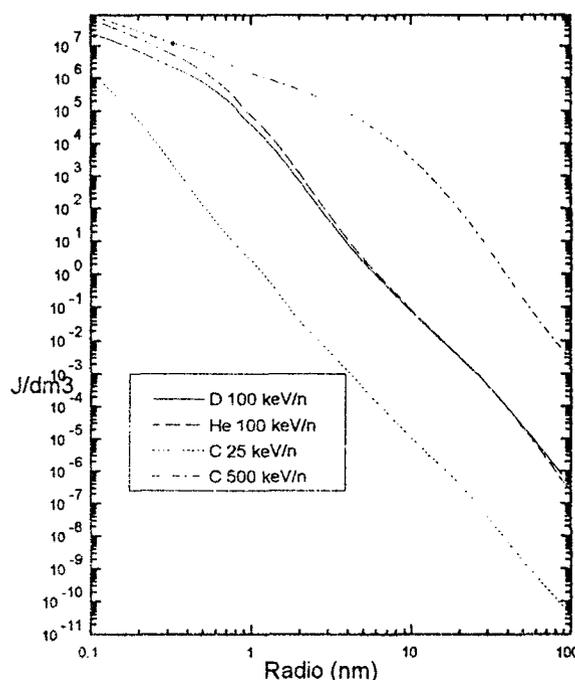


Fig. 2: Perfiles de dosis teóricos.

Resultados y Discusión

En la figura 2 se presentan perfiles radiales de dosis depositada en Makrofol para diferentes iones y energías.

Si en los perfiles obtenidos se comparan los valores de dosis correspondientes a los radios de trazas experimentales, no se encuentra una

relación directa entre dichas dosis, aunque los radios experimentales sean similares entre sí.

Los dos modelos utilizados son válidos para energías intermedias y altas, los cuales reproducen adecuadamente resultados experimentales. Uno de los objetivos de este trabajo fue utilizar estos modelos para energías intermedias y bajas, para tratar de obtener alguna información cualitativa de los mismos.

En la tabla I se resumen los iones estudiados y sus correspondientes radios de trazas experimentales (R_{exp}) y teóricos (a_c : radio crítico de Tombrello, R_p : radio de perfiles teóricos de dosis correspondientes a $e_c = 0.007 \text{ eV/\text{Å}^3}$.)

TABLA I

ION	E/n [keV/uma]	R_{exp} [nm]	a_c [nm]	R_p [nm]
^1H	30	umbral	0.59	0.15
^1H	44	~umbral	0.59	0.25
^1H	190	umbral	0.46	0.6
D	12	umbral	0.58	-
D	20	~umbral	0.58	-
D	30	~umbral	0.59	0.15
D	44	26	0.59	0.20
D	100	23	0.55	0.60
^4He	30	19	0.92	0.10
^4He	100	26	0.98	0.60
^{12}C	20	21	1.54	-
^{12}C	25	19	1.58	0.1
^{12}C	500	25	15.58	1
^{12}C	3000	30	0.78	sc
^7Li	286	29	0.98	1
^7Li	5800	umbral	0.25	0.22
^{16}O	20	19	1.7	-
^{16}O	125	28	2.32	0.9
^{40}Ar	0.75	25	17.43	sc
^{40}Ar	1.25	24	18.15	sc

sc: sin perfil teórico disponible

"-" el perfil teórico no alcanza el valor e_c

~umbral: trazas observables sólo con grandes tiempos de procesado químico.

De los valores anteriores se puede observar que aparece un valor de aproximadamente 0.6 nm en el

radio crítico de Tombrello que sugiere una zona límite por encima de la cual se logran ver experimentalmente las trazas, y que por debajo de esta zona habría efectos de umbral.

En el caso de los perfiles de CDW-EIS, buscando en dichos perfiles los radios correspondientes al valor e_c propuesto por Tombrello, se encuentra un valor nuevamente cercano a 0.6 nm, excepto para aquellos iones cuya energía por nucleón es de algunas decenas de keV/uma. Esto podría explicarse ya que son energías muy bajas para este modelo, y que además no se utilizan parámetros de ajuste, que sí se utilizan en el modelo de Tombrello.

Otra limitación del modelo de Tombrello para estas energías se manifiesta en el caso del deuterio, que aunque tienen valores de a_c similares, hay iones que tienen efecto total de umbral, otros que se pueden ver sólo con grandes comidos y otros que se logran observar sin inconvenientes, dependiendo de la energía del ion. Además son necesarios valores de dE/dx del ion, cuyo comportamiento no se conoce detalladamente en bajas energías.

Son necesarios más estudios para tratar de relacionar el valor de 0.6 nm ya mencionado con el tamaño real de la molécula del procesador químico, que podría estar limitando la resolución del proceso.

De estos análisis podemos concluir que efectos post-irradiación y de procesamiento, pueden estar interfiriendo o limitando los resultados finales, como el proceso químico en sí, o el tamaño real de las moléculas del procesador químico.

Actualmente estamos desarrollando un código de Montecarlo para mejorar la descripción de la deposición de energía en el medio.

Referencias

- 1- A. Salin, J.Phys. B At.Molec.Phys. 2, 631-639 (1969).
- 2- Dz. Belkic, J.Phys. B 11, 3529-3552 (1978).
- 3- D.S.F. Crothers and J.F. MacCann, J.Phys. B At.Molec.Phys. 16, 3229-3242 (1983).
- 4- P.D. Fainstein, V.H. Ponce, R.D. Rivarola, J.Phys. B At.Molec.Phys. 21, 287-300 (1988).

- 5- P.D. Fainstein, V.H. Ponce, R.D. Rivarola, J.Phys. B At.Molec.Phys. 22, 1207-1216 (1989).
- 6- T.H. Thwaites, Nucl. Instr. and Meth. B69, 53, (1992).
- 7- R. Mazzei, O.A. Bernaola, B. Molinari de Rey and R. Cabrini, Nucl. Track 9, 219-223, (1984).
- 8- R. Mazzei, O.A. Bernaola, G. Saint-Martin and B. Molinari de Rey, Nucl. Instr. and Meth. B9, 163, (1985).
- 9- ICRU Report 49: Stopping Powers of Protons and Alpha Particles. International Commission on Units and Measurements, Bethesda, MD, (1992).
- 10- Tombrello T.A. Nucl. Instr. and Methods B 94, 424 (1994).
- 11- O.A. Bernaola, G. Saint-Martin and C. Grasso, Nucl. Tracks Radiat. Meas., Vol. 22, Nos 1-4, pp. 25-28, (1993).
- 12- G. Saint-Martin, PhD Thesis (en preparación).