

RENATO CARDOSO SANTOS

DETECÇÃO DE FRAGMENTOS DE FISSÃO E PARTÍCULAS ALFA
UTILIZANDO O DETECTOR SÓLIDO DE TRAÇOS CR-39

Tese de

MESTRADO

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

Rio de Janeiro

-1988-

- A minha mulher e meus filhos
- A meus pais
- Ao Prof. Odilon

AGRADECIMENTO

No decorrer deste trabalho, contei com a colaboração de várias pessoas e instituições. Gostaria de agradecer:

– ao Professor Odilon A.P. Tavares, pela amizade, compreensão nas horas difíceis e sobretudo pela orientação deste trabalho, transmitindo toda a sua experiência científica;

– ao Professor Jader B. Martins, pela sua colaboração nos instantes de dificuldade e também pelo curso de Física Nuclear ministrado;

– ao Professor Emil L. Medeiros, pela amizade e colaboração na feitura dos programas de computador;

– ao Professor João Lucio Vieira, pela amizade antiga e colaboração na sua área de atuação;

– ao Professor Maurício M. Corrêa, pela amizade e pelas discussões sobre este trabalho;

– à Srta. Elizabeth L. Moreira, pelo trabalho de laboratório na preparação das soluções químicas e também pela sua opinião sobre este trabalho;

– ao Professor Tom M.J. Knöfel, pelas placas de CR-39 gentilmente cedidas;

– aos Professores T. Kodama, K. C. Chung e C.G. Bollini, pela qualidade de seus cursos oferecidos no Programa de Mestrado do CBPF;

– Aos Professores Arthur G. da Silva e Luiz T. Auler, do IEN/CNEN, pela inestimável ajuda em obter os espectros alfa e de fissão da fonte de Cf^{252} utilizada neste trabalho;

– aos Professores Marcos C. Falleiros e Pedro A. Aragão, que estão longe, mas que deixaram saudades;

– ao Professor Sergio J.B. Duarte, pela amizade e experiência científica passada a mim nos bate-papos;

– à Professora Mara Célia, pela revisão ortográfica;

– às meninas da Microscopia do DNE-CBPF, Helena, Luiza, Hilda e Lésia, pela amizade e pelo excelente trabalho de microscopia realizado;

– à Calculista Celeste Aída, pela amizade e pelos cálculos de microscopia;

– à Helena S. Ferreira, Secretária do DNE-CBPF, pela qualidade da datilografia deste trabalho e pela sua atenção com os alunos do Departamento;

– ao Sr. Hiram Cordeiro, pela qualidade gráfica do seu trabalho;

– à Myriam S. Coutinho, Secretária de Ensino, CFC-CBPF, por sua atenção e boa vontade com os alunos de Pós-Graduação;

– ao pessoal da Biblioteca, pela ajuda na localização das publicações;

– ao pessoal da Xerox, pela boa vontade no serviço;

– à Sra. Neuma, pela sua paciência e qualidade das cópias Xerox tiradas;

– aos Professores do Departamento de Física da UFF, pelo incentivo recebido;

– ao Departamento de Física da Universidade Federal Fluminense, pelo apoio recebido;

– Ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas-CBPF, e ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico-CNPq, pela oportunidade de realizar o meu Mestrado.

R E S U M O

A técnica de detecção de partículas carregadas utilizando o detector sólido de traços CR-39 é usada para estabelecer algumas características de registro de fragmentos de fissão e partículas alfa emitidos de uma fonte ordinária de Cf-252.

Amostras de CR-39, preparadas pela American Acrylics & Plastics, Inc., USA, foram expostas, no vácuo, a uma fonte de Cf-252 (10^5 fissões/cm²min) durante intervalos de tempo de 40 a 60 minutos, a uma distância de 7,0 cm da fonte. O ataque químico (revelação dos traços das partículas ionizantes) foi feito em soluções de NaOH de diferentes concentrações (3,0N, 4,5N e 6,25N), mantidas a diferentes temperaturas (50°C, 60°C e 70°C) e por tempos de revelação que variaram de 2 a 24 horas.

São apresentados e discutidos resultados relativos a i) distribuições de diâmetro dos traços, ii) variação do diâmetro dos traços com o tempo de ataque químico, iii) variação da velocidade geral de ataque químico (V_g) com a concentração e a temperatura, iv) energia de ativação (E_a) do processo de revelação, v) tempo de indução, e vi) ângulo crítico e eficiência de revelação de traços. São também apresentadas curvas de ionização e alcance residual no CR-39 para prótons e partículas alfa de baixa energia, bem como para fragmentos típicos médios da fissão espontânea do Cf-252.

No decorrer do trabalho, verificou-se a necessidade de se fazer uma análise detalhada da fonte de Cf-252, a qual mostrou uma impureza do isótopo Cf-250 numa proporção de $\sim 20\%$ ao tempo da preparação da fonte.

Nas condições usuais de revelação de traços (6,25N-NaOH-70°C), encontrou-se um tempo de indução de $(1,5 \pm 0,2)$ h para partículas alfa. Para fragmentos de fissão o tempo de indução foi de $(2,7 \pm 0,9)$ h nas condições 6,25N-NaOH-50°C. A energia de ativação do processo de ataque químico geral foi estimada em $(0,6 \pm 0,2)$ eV. As eficiências de registro de partículas alfa e fragmentos de fissão obtidas foram iguais, respectivamente, a 52% e 94% nas condições usuais de revelação.

SUMÁRIO

	<u>Pág.</u>
AGRADECIMENTO.....	iii
RESUMO	v
LISTA DE FIGURAS	vii
LISTA DE TABELAS	ix
 <u>INTRODUÇÃO</u>	 1
 <u>CAPÍTULO I: DETECÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS</u>	 6
1.1. Formação do Traço Latente	6
1.2. Mecanismo de Revelação do Traço Latente	8
1.3. Geometria do Traço Revelado	10
1.4. O Detector Sólido de Traços CR-39	17
1.5. Curvas de Ionização para o CR-39	19
 <u>CAPÍTULO II: PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL</u>	 25
2.1. Obtenção e Preparação das Amostras	25
2.2. Exposição	25
2.3. Revelação dos Traços	26
2.4. Observação e Análise dos Traços Revelados	29
2.5. Características da Fonte de Cf-252	29
 <u>CAPÍTULO III: APRESENTAÇÃO E DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÕES..</u>	 39
3.1. Medidas de Diâmetro	39
3.2. Estudos sobre V_g , Energia de Ativação e Tempo de Indução	49
3.3. Eficiência e Ângulo Crítico de Revelação de Traços de Fragmentos de Fissão e Partículas Alfa no CR-39	60
3.4. Conclusões	64
 <u>BIBLIOGRAFIA</u>	 67

LISTA DE FIGURAS

<u>FIG.</u>		<u>PÁG.</u>
1.1.1	- Mecanismo de formação do traço latente segundo o modelo da ponta de explosão iônica	7
1.2.1	- Representação esquemática do perfil sub-microscópico do traço, formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula	9
1.3.1	- Fotografia dos traços de fragmento de fissão e partículas alfa, em CR-39	10
1.3.2	- Representação esquemática da forma da superfície do traço, para V_t crescente (a), constante (b) e decrescente (c), em relação à distância de penetração no detector.....	11
1.3.3	- Geometria de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, para o caso em que V_g e V_t são constantes.....	12
1.3.4	- Geometria de revelação de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, quando V_g e V_t são constantes...	15
1.4.1	- Forma estrutural do Allyl Diglycol Carbonate (A.D.C.).....	17
1.5.1	- Curvas de alcance de diversos íons em CR-39	21
1.5.2	- Curvas de alcance de diversos íons em Makrofol	22
1.5.3	- Curvas de perda de energia por ionização de diversos íons no CR-39. As partículas alfa e os fragmentos típicos de fissão são provenientes de uma fonte de Cf^{252}	23
1.5.4	- (a) Mostra como as partículas alfa ionizam mais no interior do detector; (b) mostra como os fragmentos de fissão ionizam mais junto à superfície do detector.....	23
2.2.1	- Arranjo experimental utilizado para as exposições das amostras de CR-39 a fragmentos nucleares da fonte de Cf^{252}	26
2.2.2	- Arranjo experimental utilizado no ataque químico das amostras de CR-39	28
2.5.1	- Espectro alfa da fonte alíquota da fonte original de Cf^{252} obtido pela técnica de detectores de Silício de barreira de superfície conectado a um analisador multi-canal	32
2.5.2	- Curvas de variação da razão das atividades alfa total e de fissão total com o tempo de vida da fonte	36
2.5.3	- Variação das atividades alfa e de fissão espontânea para os isótopos componentes da fonte de Cf^{252} em quantidades significativas.....	37
2.5.4	- Espectro de energia dos fragmentos de fissão da fonte de Cf^{252}	38

3.1.1	- Retas com inclinações diferentes, que caracterizam a variação do diâmetro dos traços de partículas alfa e fragmentos de fissão, em CR-39, para diferentes concentrações da solução de ataque químico, NaOH a 50°C.....	40
3.1.2	- O mesmo como na Figura 3.1.1, para a temperatura de 60°C...	41
3.1.3	- O mesmo como na Fig. 3.1.1, para a temperatura de 70°C.....	42
3.1.4	- Retas com inclinações diferentes que caracterizam a variação do diâmetro dos traços de fragmentos de fissão da fonte de Cf ²⁵² , para diferentes concentrações de NaOH a 50°C.....	43
3.1.5	- Retas com inclinações diferentes que caracterizam a variação dos diâmetros dos traços de partículas alfa oriundas de uma fonte de Cf ²⁵² , para diferentes temperaturas e para a concentração de 6,25N de NaOH	44
3.1.6	- Distribuição de diâmetro dos traços de partículas alfa e fragmentos de fissão. As distribuições mostram uma forma de discriminação dos fragmentos nucleares.....	45
3.1.7	- O mesmo que a Fig. 3.1.6, para NaOH 4,5N-70°C	46
3.1.8	- Distribuições de diâmetro de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão, com atenuação de energia, mediante exposição com filtros de mylar	47
3.2.1	- Valores de V _g variando com a normalidade e a temperatura de ataque químico	51
3.2.2	- Valores de V _g encontrados por vários autores colocados juntos aos do presente trabalho para NaOH-70°C.....	52
3.2.3	- O mesmo que a Figura 3.2.2 para NaOH-60°C	53
3.2.4	- O mesmo que a Fig. 3.2.2 para NaOH-50°C	54
3.2.5	- Variação de V _g com a temperatura de ataque químico para diversas normalidades.....	56
3.2.6	- Variação do tempo de indução com a temperatura (eixo horizontal inferior) e com a normalidade (eixo horizontal superior)	59
3.3.1	- Perfil esquemático da geometria do arranjo experimental usado para a determinação do ângulo crítico de revelação de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão....	60
3.3.2	- Vista de frente (ou transversal) do arranjo experimental utilizado	60
3.3.3	- Distribuição de contagem de traços de partículas alfa no CR-39 resultante do arranjo experimental esquematizado na Fig. 3.3.2	63

LISTA DE TABELAS

<u>TAB.</u>	<u>PÁG.</u>
1.4.1 - Características do CR-39	18
1.5.1 - Alcances no CR-39	21
2.5.1 - Dados referentes aos isótopos de Cf e Cm	35
2.5.2 - Variação da razão das atividades alfa e de fissão espontânea em função do tempo para a fonte de Cf ²⁵²	35
3.2.1 - Valores de velocidade geral de ataque químico (V_g) e tempo de indução (t_0)	50
3.2.2 - Valores das energias de ativação do processo químico, para diferentes normalidades da solução de ataque químico	55
3.3.1 - Resultados experimentais sobre ângulo crítico de revelação e eficiência para diferentes partículas carregadas em CR-39	62

INTRODUÇÃO

Os estudos realizados sobre Detectores Sólidos de Traços (D.S.T.) mostraram que a maioria dos sólidos dielétricos orgânicos e inorgânicos, tais como vidros, quartzo, mica, polímeros (nitrato de Celulose, CR-39) e policarbonatos (Makrofol, Lexan e outros), são capazes de registrar partículas nucleares carregadas. Estas produzem modificações na estrutura e composição do meio, criando estreitas regiões intensamente danificadas ao longo e ao redor de suas trajetórias (traço latente). Essas regiões de traços latentes podem ser ampliadas por ataque químico conveniente e observadas ao microscópio ótico, possibilitando o estudo das características dos traços assim formados, podendo ser relacionados com os parâmetros físicos das partículas nucleares incidentes no detector.

Esta técnica simples de detecção de partículas nucleares foi inicialmente descrita por Young em 1958⁽¹⁾, quando pela primeira vez, numa amostra de Fluoreto de Lítio, observou os traços deixados por fragmentos de fissão do Urânio provenientes de um filme de U_3O_8 irradiado com neutrons térmicos. Young demonstrou que os traços tornavam-se visíveis ao microscópio ótico quando o Fluoreto de Lítio, após a exposição, era atacado quimicamente com solução de ácido Acético Glacial e ácido Fluorídrico.

Silk e Barnes⁽²⁾ publicaram, em 1959, fotografias tiradas com auxílio do microscópio eletrônico, que mostravam traços deixados em folhas de mica muscovita pela passagem de frag

mentos de fissão induzida numa amostra de U^{235} .

Price e Walker ⁽³⁾, em 1962, fizeram exposições de amostras de mica e fragmentos de fissão do U^{235} e observaram que, após o ataque químico com ácido fluorídrico, os traços deixados pelos fragmentos de fissão tornavam-se visíveis ao microscópio ótico.

Em 1963 e 1964 foi a vez dos polímeros, vidros e cristais a servirem de detectores sólidos de traços. Fleischer e Price, após ataque químico apropriado, encontraram traços deixados por partículas incidentes nesses materiais ^(4,5,6).

Para citar apenas uma das múltiplas aplicações dos detectores sólidos de traços, a partir de 1970, Storzer ⁽⁷⁾, Wagner e colaboradores ⁽⁸⁾ e Thiel ⁽⁹⁾ começaram independentemente a estudar vidros artificiais de Urânio, fabricados durante o século passado, com a finalidade de redeterminar a meia vida de fissão espontânea do ^{238}U . Thiel e Herr ⁽¹⁰⁾ apresentaram os resultados da análise de uma amostra de vidro de Urânio de 126 anos, encontrando o resultado $(8,57 \pm 0,42) \times 10^{-17} a^{-1}$ para a constante de desintegração do ^{238}U por fissão espontânea.

Em 1978, Cartwright, Shirk e Price ⁽¹¹⁾ mostraram que o polímero CR-39 (ALLYL DIGLYCOL CARBONATE) também apresentava propriedades de registro para partículas nucleares carregadas, como outros polímeros. O detector sólido de traços CR-39 é capaz de detectar partículas de Z/β [carga/velocidade/(v/c)] ≥ 6 ⁽¹²⁾. Por causa de sua alta sensibilidade, boa uniformidade e resolução, o CR-39 tem sido usado em diversas aplicações tais como detecção de íons pesados ⁽¹³⁾, dosimetria de neutrons ⁽¹⁴⁾, medição da quantidade de Urânio contido em vários materiais ^(15,16),

medidas do nível de radioatividade alfa ambiental em minas e residências⁽¹⁷⁾, e muitas outras aplicações.

Uma comparação entre os detectores sólidos de traços e as emulsões nucleares mostra que os D.S.T. têm a vantagem de serem insensíveis à radiação eletromagnética não precisando, portanto, do uso de câmaras escuras para sua utilização. Além disso, apresentam menos efeito de desvanecimento de traços latentes ("fading") e maior estabilidade química à temperatura e umidades ambientais, possibilitando a revelação de traços de partículas nucleares registrados há muito tempo atrás.

Deve-se observar que, nas últimas décadas, os D.S.T. têm demonstrado, sem dúvida, seu imenso potencial em quase todos os ramos da ciência, pela forma simples, pela sua eficiência, sensibilidade, baixo custo e fácil fabricação. Inúmeras Conferências Internacionais onde se discutem os princípios de utilização e as aplicações físicas dos D.S.T. têm sido realizadas nos últimos anos e, entre outras, citamos as de Florença (1966)⁽¹⁸⁾, Barcelona (1970)⁽¹⁹⁾, Bucharest (1972)⁽²⁰⁾, Munich (1976)⁽²¹⁾, Lyon (1979)⁽²²⁾, Bristol (1981)⁽²³⁾, México (1983)⁽²⁴⁾ e Roma (1985)⁽²⁵⁾.

Fleischer, Price e Walker⁽²⁶⁾ e Durrani e Bull⁽²⁷⁾, publicaram livros que podem ser considerados obras básicas de referência sobre os princípios de detecção, técnicas de utilização e várias aplicações dos D.S.T. na Física Nuclear e ciências afins que, juntamente com um grande número de artigos publicados até hoje, formam a bibliografia específica sobre o assunto.

O presente trabalho tem por objetivo estudar as propriedades de registro para fragmentos de fissão e partículas alfa no CR-39. Comparações serão feitas dos resultados obtidos com os de outros autores. Variações nas condições de ataque químico, aliadas ao estudo da morfologia dos traços, possibilitaram obter as condições experimentais ideais para o registro de fragmentos de fissão e, ao mesmo tempo, discriminaram esses traços dos traços de partículas alfa através das distribuições de diâmetro dos traços ampliados por ataque químico com soluções de NaOH. Atenção especial foi dada ao estudo da eficiência de detecção de partículas carregadas que, por sua vez, está ligado à determinação do ângulo crítico de incidência para revelação de traços. São também obtidas as energias de ativação para o processo de revelação, bem como o tempo de indução (intervalo de tempo entre o início do ataque químico e os primeiros aparecimentos de traços observáveis ao microscópio ótico, no detector) para formação de traços de fragmentos de fissão e partículas alfa.

A importância do estabelecimento dessas propriedades de registro se deve ao fato de o detector CR-39 estar sendo usado com grande eficiência em problemas de Física Nuclear e áreas afins.

O Capítulo I é uma descrição dos princípios gerais de detecção de partículas carregadas nos detectores sólidos de traços e das propriedades específicas para o detector CR-39. No Capítulo II é apresentada uma descrição detalhada dos procedimentos experimentais utilizados, tais como obtenção das amostras, descrição da fonte utilizada, a geometria

das exposições, descrição do banho utilizado para o ataque químico e o sistema de observação de traços. No Capítulo III são apresentados os resultados, é feito o tratamento dos dados obtidos, são discutidos os resultados e apresentadas as conclusões.

CAPÍTULO I

DETECÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS

O princípio de utilização dos detectores sólidos de traços consiste em relacionar os parâmetros do traço revelado com os parâmetros da partícula incidente. A população de traços revelados, bem como as formas geométricas que poderão adquirir, serão o resultado de uma competitividade entre a velocidade de ataque químico ao longo da trajetória da partícula e a velocidade de ataque químico nas partes não danificadas do detector.

1.1 - FORMAÇÃO DO TRAÇO LATENTE

Uma partícula carregada ao penetrar em um detector sólido de traços, provoca o aparecimento de uma região intensamente danificada ao longo da trajetória (traço latente).

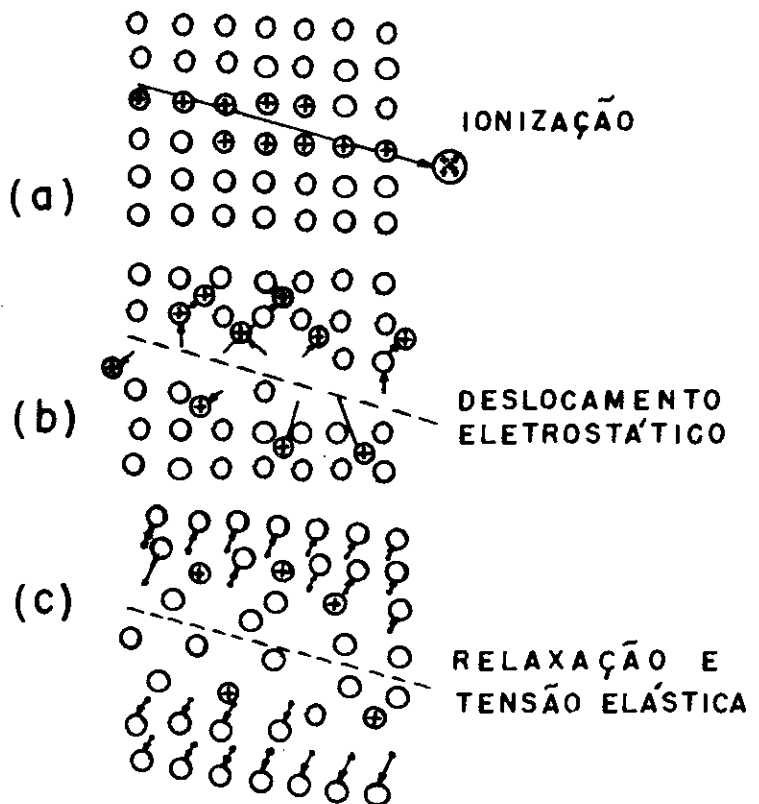
Um modelo que explique os mecanismos de formação de traços latentes nos detectores sólidos de traços deve ser consistente com as seguintes evidências experimentais:

- não ocorre formação de traços latentes na maioria dos semicondutores;
- cada meio é caracterizado por um $-dE/dx$ crítico, isto é, existe um valor mínimo de perda de energia da partícula incidente por unidade de comprimento no material abaixo do

- qual partículas ionizantes não são registradas;
- os traços latentes são razoavelmente estáveis no tempo.

Fleischer, Price e Walker⁽²⁸⁾ propuseram o modelo da Ponta de Explosão Iônica ("The Ion-Explosion Spike Model"). Para a formação de traços latentes em dielétricos inorgânicos, de acordo com este modelo, uma partícula carregada positivamente e em alta velocidade ioniza os átomos ao longo de sua trajetória criando no sólido uma região positivamente carregada havendo, com isto, a mútua repulsão entre os íons positivos, provocando deformações na estrutura do material, conforme mostrado esquematicamente na Figura 1.1.1.

FIGURA 1.1.1 - Mecanismo de formação do traço latente segundo o modelo da ponta de explosão iônica. A região ionizada é instável ejetando íons, criando vacâncias e átomos intersticiais. Posteriormente a região relaxa elasticamente deformando a matriz original. [Ref. (26)].



Essas regiões se caracterizam pela facilidade com que são atacadas

quimicamente por um reagente em comparação com as regiões não danificadas.

No caso dos polímeros (Nitrato de Celulose, CR-39) o

processo é ligeiramente diferente. Neste caso, o modelo proposto é o da formação do traço por danos radioquímicos ^(29,30,31), que mostra a formação de traços reveláveis a partir da ruptura radiolítica ao longo das cadeias moleculares, criando produtos reativos de baixo peso molecular, que são mais facilmente atacados por reagentes do que o meio não danificado.

Um critério para a formação do traço latente em polímeros é o da Perda Restrita de Energia ($-dE/dX$) ⁽³²⁾. Segundo este critério somente a transferência de energia pelas partículas menor que um dado valor limite são responsáveis pela criação de danos reveláveis. Apesar de apresentar boa concordância com os resultados experimentais, são ignoradas todas as deposições de energia efetuadas por raios delta (energia dissipada pelos elétrons secundários).

A não formação de traços em metais e em semicondutores é explicada pelo grau de mobilidade dos elétrons nos condutores, e que lhes permite neutralizar os átomos de um traço incipiente antes que possa se formar.

1.2 - MECANISMO DE REVELAÇÃO DO TRAÇO LATENTE

Sob o ponto de vista microscópico, a revelação do traço latente é feita a partir da dissolução química preferencial, ao longo e ao redor da trajetória da partícula (Figura 1.2.1). A região danificada é rapidamente dissolvida em virtude da reatividade na mesma ser mais elevada que na região não danificada. Quando os limite da região danificada são atingidos ($\sim 50 \text{ \AA}$) a taxa de dissolução diminui e a solução de ata -

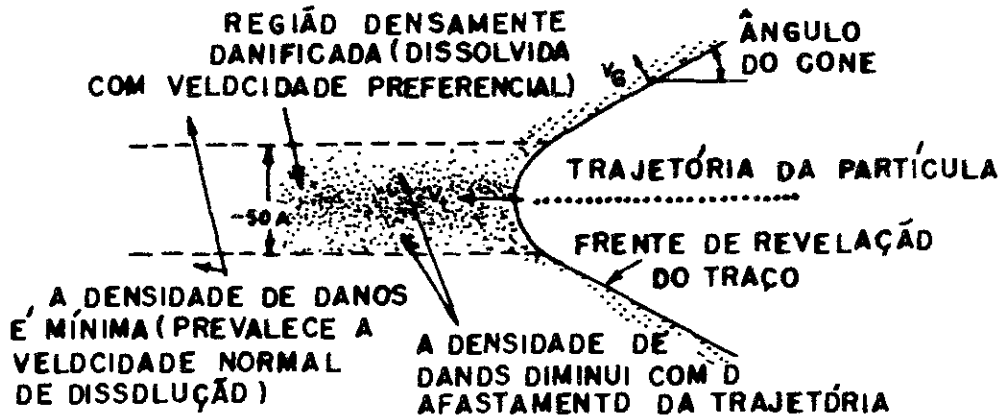


FIGURA 1.2.1 - Representação esquemática do perfil sub-microscópico do traço, formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula.

que químico começa, então, a atacar as regiões não danificadas em torno do traço, possibilitando o aumento de suas dimensões. As mesmas são aumentadas até um valor comparável ao comprimento de onda da luz visível, podendo então, os traços serem vistos ao microscópio ótico.

Do ponto de vista macroscópico, a revelação do traço consiste na ação simultânea de dois processos:

i - dissolução ao longo do traço, com velocidade V_t , função da composição do material, das condições de ataque químico (tipo, concentração do banho revelador e temperatura) e dos parâmetros da partícula incidente (massa, carga e energia) (33,34,35).

ii - dissolução química do material não danificado numa velocidade menor V_g , velocidade com a qual a superfície do detector e as paredes internas dos traços são dissolvidas, função da composição e das condições de ataque químico (tipo, concentração do banho revelador e temperatura) (36,37,38,39,40).

1.3 - GEOMETRIA DO TRAÇO REVELADO

Em alguns materiais as regiões avariadas são dissolvidas muito mais rapidamente do que o restante da amostra ($V_t \gg V_g$). Neste caso os traços adquirem uma forma cilíndrica. Por exemplo, traços de fragmentos de fissão em mica e makrofol. Em outros detectores sólidos de traços, a velocidade de ataque, ao longo do traço, não é muito diferente da velocidade de dissolução química da parte não danificada ($V_t > V_g$). Neste caso, os traços resultantes irão adquirir, então, forma muito aproximada à de um cone, que será visto no microscópio como um círculo, ou uma elipse, dependendo da incidência da partícula ter sido normal ou oblíqua à superfície do detector. Este é o caso, por exemplo, dos traços de fragmentos de fissão em vidro e de partículas alfa em Nitrato de Celulose e CR-39, Figura 1.3.1 (foto).

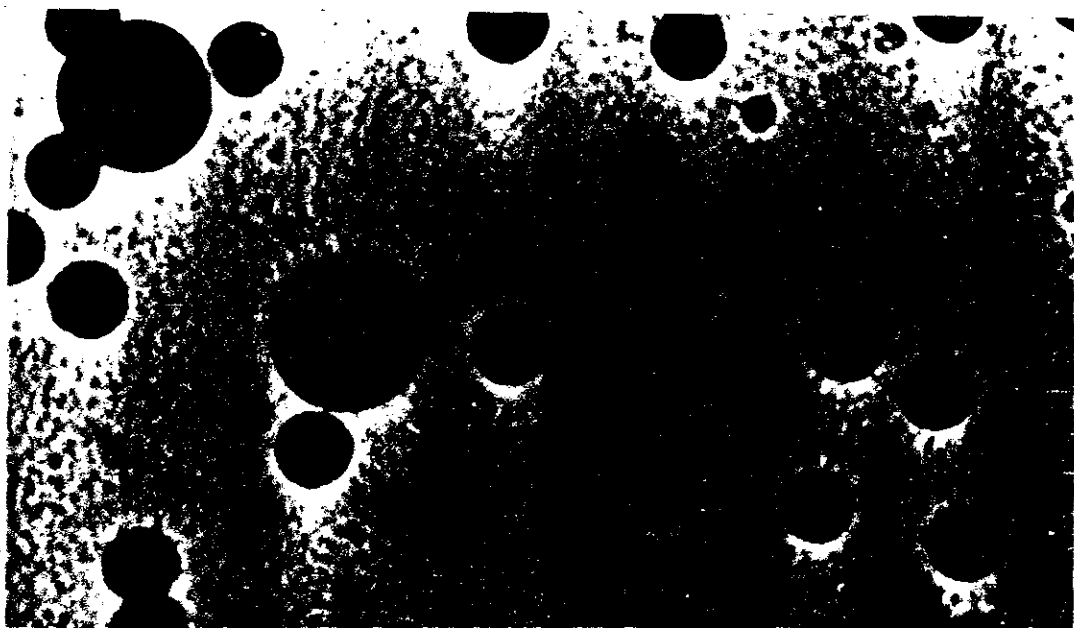


FIGURA 1.3.1 - Fotografia dos traços de fragmento de fissão e partículas alfa, em CR-39.

Vários modelos foram propostos para descrever a evolução geométrica dos traços nos detectores de traços ⁽⁴¹⁻⁴⁴⁾, tanto em meios isotrópicos quanto anisotrópicos. Alguns métodos têm sido desenvolvidos para a determinação dos parâmetros da partícula em função dos parâmetros dos traços, tais como diâmetro e comprimento residual, no sentido de utilizar os detectores sólidos de traços como discriminadores e espectrômetros de partículas carregadas pesadas. Considerando V_g isotrópica, e desprezando os efeitos de gradiente de concentração e produtos de reação, o problema da evolução do traço pode ser simulado, considerando a posição de uma frente de onda, produzida por um ponto deslocando-se ao longo da trajetória da partícula, com velocidade V_t , variável, função da posição, em um meio onde a velocidade de propagação de onda é constante e igual a V_g ⁽⁴³⁾. A superfície do traço, num dado instante, é constituída pela superfície envoltória de sucessivas esferas crescentes de dissolução conforme mostra a Figura 1.3.2.

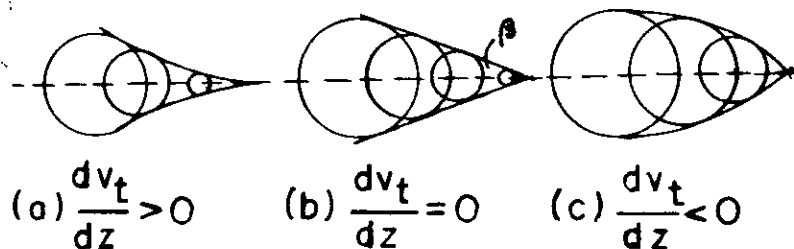


FIGURA 1.3.2 - Representação esquemática da forma da superfície do traço, para V_t crescente (a), constante (b) e decrescente (c), em relação à distância de penetração no detector.

As coordenadas dos pontos da superfície do traço podem ser determinadas utilizando-se o Princípio das Ondas Elementares de Huygens-Fresnel, ou Princípio do Tempo Mínimo de

Fermat.

A Figura 1.3.3 ilustra o fenômeno da evolução do traço para partículas incidindo perpendicularmente e obliquamente à superfície do detector. Suponhamos que V_g seja constante e isotrópica, o que sem dúvida é correto para sólidos não cristalinos ⁽²⁶⁾. Se o tempo de revelação t for suficientemente pequeno, o que significa considerarmos curtas distâncias de revelação ($V_t t$) ao longo do traço, V_t será também constante. Nestas condições, o traço de uma partícula que incidiu normalmente no detector tem o aspecto mostrado na Figura 1.3.3(a). O ângulo de cone, θ (dado por $\text{arc sen}(V_g/V_t)$), será tanto menor quanto maior for V_t em relação a V_g . Um exame desta figura mostra que as quantidades mensuráveis diretamente, tais como o diâmetro D e o comprimento visível do traço (ℓ), podem ser calculados. Temos:

$$\ell = (V_t - V_g)t \quad (1.3.1)$$

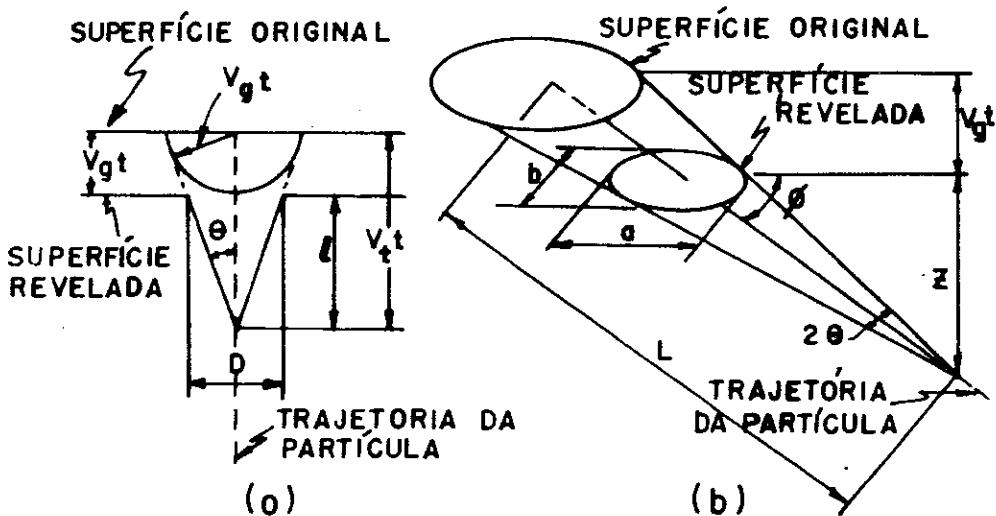


FIGURA 1.3.3 - Geometria de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, para o caso em que V_g e V_t são constantes - (a) partícula incidindo normalmente; (b) partícula incidindo com um ângulo de profundidade ϕ ⁽²⁶⁾.

$$\text{sen}\theta = \frac{V_g}{V_t} \quad (1.3.2)$$

$$\text{tg}\theta = \frac{D/2}{(V_t - V_g)t} \quad (1.3.3)$$

Combinando as equações (1.3.2) e (1.3.3), obtemos:

$$D = 2V_g t \sqrt{\frac{V_t - V_g}{V_t + V_g}} \quad (1.3.4)$$

A expressão acima mostra que o diâmetro é proporcional ao tempo de ataque químico. V_g pode ser calculada por variação na espessura do detector, por variação na massa do detector, ou pela variação do diâmetro do traço para partículas com alto grau de ionização (fragmentos de fissão). V_t pode ser avaliada da seguinte maneira:

$$V_t = V_g \frac{1 + \left(\frac{D}{2V_g t}\right)^2}{1 - \left(\frac{D}{2V_g t}\right)^2} \quad (1.3.5)$$

Notar que, para fragmentos de fissão, $V_t \gg V_g$. Isto leva a uma aproximação na equação do diâmetro (eq. (1.3.4)), isto é,

$$D = 2V_g t \quad (1.3.6)$$

Para incidência oblíqua (Fig. 1.3.3(b)), os traços na superfície do detector ficam mais elípticos quanto maior for o ângulo de incidência em relação a normal à superfície do detector. Neste caso, para que ocorra revelação do traço, a componente de V_t , em relação a normal à superfície do detector, deve ser maior que V_g . Nesta situação, as grandezas mensuráveis

diretamente, são: o eixo maior a , o eixo menor b e a profundidade do vértice do traço z . Henke e Benton ⁽⁴¹⁾ dão as seguintes expressões para estas quantidades:

$$a = 2V_g t \frac{\cos \theta}{\sin \phi + \sin \theta} \quad , \quad (1.3.7)$$

$$b = 2V_g t \sqrt{\frac{\sin \phi - \sin \theta}{\sin \phi + \sin \theta}} \quad , \quad (1.3.8)$$

$$z = L \sin \phi - V_g t \quad , \quad (1.3.9)$$

onde θ e ϕ estão mostrados na Figura 1.3.3(b).

A geometria dos traços para os casos mais complicados não será considerada aqui. As situações nas quais V_t é variável, ou em que V_g é anisotrópica, são discutidas em detalhes por Fleischer e colaboradores ⁽²⁶⁾.

O ângulo de cone θ , nas hipóteses V_t e V_g constantes e para pequenos tempos de revelação, é dado por

$$\theta = \arcsin(V_g/V_t) \quad . \quad (1.3.10)$$

Nesta condição, pode-se mostrar que apenas uma fração dos traços existentes no detector será revelada. A Figura 1.3.4(a) mostra, claramente, que quando $V_t t \sin \phi < V_g t$ (ou $V_t \sin \phi < V_g$) o traço não é revelado. Este fato ocorre porque o detector é dissolvido tão rapidamente, que a componente normal de revelação preferencial, ao longo do traço, deixa de ser predominante.

Na Figura 1.3.4(b) mostramos a situação limite, na qual a partícula incidiu em um ângulo de profundidade, ϕ_c , da

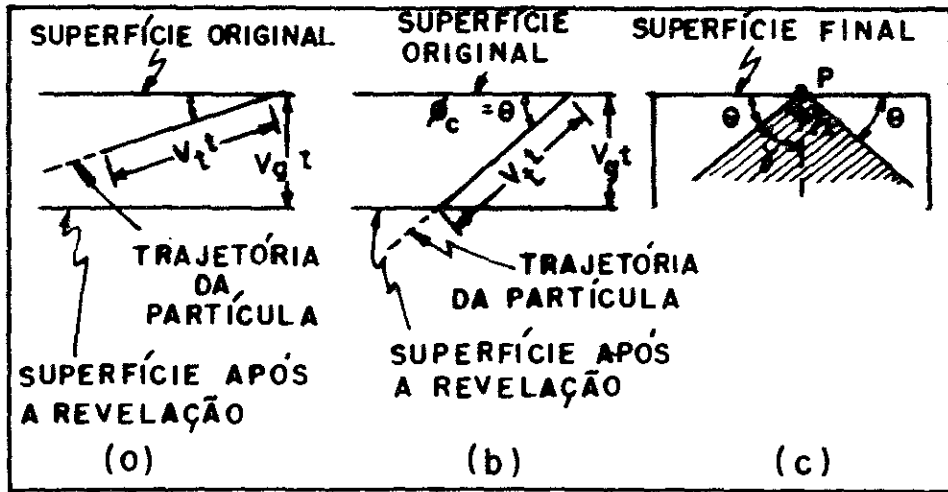


FIGURA 1.3.4 - Geometria de revelação de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, quando V_g e V_t são constantes. (a) partícula incidente em um ângulo de profundidade ϕ menor que θ ; (b) o ângulo crítico, ϕ_c , acima do qual os traços são revelados é $\text{arc sen}(V_g/V_t)$; (c) ângulo sólido Ω no qual as partículas são reveladas.

do por

$$\phi_c = \text{arc sen}(V_g/V_t) \quad (1.3.11)$$

Como vemos, apenas as partículas que incidem no detector em ângulo de profundidade maiores que θ darão origem a traços reveláveis (θ é portanto o ângulo crítico de revelação de traços).

Uma consequência imediata da existência de um ângulo crítico é o fato de que, para θ diferente de zero, deve-se considerar uma eficiência de registro ϵ , definida como sendo a fração de partículas que ao interceptarem uma superfície produzem traços reveláveis, sob condições específicas de ataque.

Para sabermos que fração de partículas emitidas têm seus traços revelados, é suficiente encontrarmos a relação entre o ângulo sólido no qual as partículas são reveladas, e

o ângulo sólido 2π . Na Figura 1.3.4(c), a região sombreada é aquela na qual serão observados traços provenientes de uma fonte puntiforme P. Da geometria sabemos que o ângulo sólido subentendido por um cone, com ângulo γ , é dado por

$$\Omega = 2\pi(1-\cos\gamma) \quad (1.3.12)$$

como θ é complementar a γ , a expressão anterior pode também ser expressa por

$$\Omega = 2\pi(1-\sin\theta) \quad . \quad (1.3.13)$$

Conseqüentemente, para tempos de revelação tais que V_t é constante, a eficiência de registro depende apenas de θ e pode ser obtida facilmente por meio das grandezas mensuráveis D e ℓ , como mostradas na Figura 1.3.3(a):

$$\epsilon = 1-\sin[\arcsin(\frac{D}{2\ell})] \quad . \quad (1.3.14)$$

Quando os tempos de ataque químico são tais que V_t (e portanto θ) não é mais constante, a eficiência de registro de traços é uma função do tempo de ataque químico. Algumas razões para isso são, entre outras, a ampliação de traços muito pequenos, que não eram percebidos numa revelação fraca, o aparecimento de traços reveláveis situados no interior do detector. A eficiência de detecção para tempos de ataque para os quais V_t deixa de ser constante passa a ser calculada numericamente ou medida diretamente.

1.4 - O DETECTOR SÓLIDO DE TRAÇOS CR-39

Allyl Diglycol Carbonate (A.D.C.) é o nome comercial do produto químico Diethylene Glycol Bis Allyl Carbonate, também conhecido por 2-2 Oxydiethylene Bis Allyl Carbonate, mais conhecido por CR-39 Monômero. CR-39 é a abreviação de COLUMBIA RESIN 39, presumivelmente chamada desta forma porque seus criadores eram empregados da Columbia Division da Pittsburg Plate Glass Company (USA) ⁽⁴⁵⁾.

O A.D.C. foi primeiro sintetizado e também polimerizado por Muskat e Strain em 1945 ⁽⁴⁶⁾. Um método modificado de polimerização foi revelado por Strain e colaboradores em 1950 ⁽⁴⁷⁾. A polimerização é iniciada por radicais livres produzidos pela decomposição térmica de um peróxido iniciador ou um dicarbonato de peróxido anexado ao monômero, o qual então é aquecido. A taxa de polimerização é determinada pelo tipo e quantidade do iniciador utilizado e também pela temperatura do monômero. Um aumento de temperatura e um alto gradiente térmico na fase de endurecimento do polímero podem ocorrer, e o produto final pode ficar quebradiço, a menos que o tempo de tratamento (aumento de temperatura versus tempo) seja cuidadosamente programado. Dois iniciadores são criteriosamente utilizados: o peróxidocarbonato de isopropila e o peróxibicarbonato, (C.H.P.C.).

O A.D.C. possui uma estrutura formada por dois grupos alílicos (Figura 1.4.1), que o faz polimerizar-se através

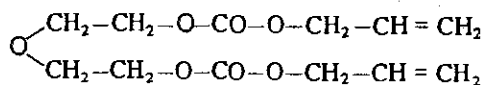


FIGURA 1.4.1 - Forma estrutural do Allyl Diglycol Carbonate (A.D.C.).

de uma cadeia de ligações cruzadas ("cross-linked") , originando um plástico "termoset". Esses plásticos são caracterizados por sua dureza, infusibilidade e insolubilidade. Uma amostra pode ser considerada como uma macromolécula, onde todas as ligações são covalentes.

O A.D.C. é transparente, tem boas propriedades mecânicas e boa resistência química às radiações eletromagnéticas. Essas propriedades fizeram com que o CR-39 fosse largamente utilizado, incluindo parabrisa de avião, janelas de observação, lentes oftalmológicas, chapas de proteção de vidro para soldadores, lentes e filtros fotográficos e janelas dos medidores de estacionamento. Detalhes da técnica de preparação das placas de CR-39 podem ser encontrados em (48,49,50).

TABELA 1.4.1 - Características do CR-39

Ótica	Transparente
Estrutura	Amorfa
Térmica	Termoset
Cadeia	Tridimensional ("cross-linked")
Densidade (g/cm ³)	1,31

Em 1978, as qualidades singulares de registro de traços de partículas nucleares no material foram anunciadas por Cartwright, Shirk e Price⁽¹¹⁾ mostrando ser o CR-39 de grande sensibilidade e resolução de partículas energéticas detectáveis. Devido ao fato das cadeias do A.D.C. necessitarem de pouca energia para o seu rompimento, uma partícula carregada, ao penetrar no plástico, quebrará a cadeia molecular produzindo danos

na estrutura, pois as ligações rompidas não encontram radicais livres para se rearmarem. O material é de grande valia na detecção de raios cósmicos, espectroscopia de partículas alfa, dosimetria de radônio no ar, e inúmeras outras aplicações em problemas de Física Nuclear (12,14,51,52) .

1.5 - CURVAS DE IONIZAÇÃO PARA O CR-39

Os principais mecanismos pelos quais uma partícula carregada perde energia ao se mover através de um meio são Ionização (colisões com elétrons atômicos) e colisões com núcleos atômicos (espalhamento de Rutherford). Este último é pouco provável, até que a partícula se aproxime do final da sua trajetória, quando, então, as colisões nucleares tornam-se competitivas com a ionização.

A perda de energia por ionização está relacionada à "carga efetiva ($Z^*(\beta)$)" da partícula, que depende unicamente de sua velocidade ($\beta = v/c$), e à ionização de um próton com mesma velocidade que a da partícula incidente. A relação é a seguinte,

$$-\frac{dE}{dx}(\beta)_{\text{ion}} = [Z^*(\beta)]^2 \left[-\frac{dE}{dx}(\beta)_{\text{próton}} \right] \quad (1.5.1)$$

Heckman e colaboradores (53), estudando a perda de energia por ionização de vários íons em meios compostos tais como emulsão nuclear, ar e Neônio, verificaram que a grandeza Z^*/Z necessária para produzir a quantidade de ionização obser-

vada experimentalmente é unicamente função da velocidade redu zida $\beta/z^{2/3}$ e não depende do meio onde a partícula se desloca. O conjunto de dados experimentais compilados por Heckman e colaboradores obedece a uma curva universal, cuja equação se escreve

$$z^* = z \left[1 - e^{-125\beta/z^{2/3}} \right] , \quad (1.5.2)$$

e que tem sido comumente usada para se calcular a carga efetiva de diferentes íons à velocidade β . No limite não relativístico β pode ser calculado pela expressão

$$\beta = 0,0463 \sqrt{\frac{E(\text{MeV})}{M(u)}} . \quad (1.5.3)$$

As perdas de energia dos fragmentos representativos da fissão do Cf^{252} foram calculadas a partir da tabela dos valores de perda de energia dos prótons em CR-39, obtida por Almási e Somogyi (54).

Para obter as curvas de perdas de energia para os dois fragmentos representativos da fissão do Cf^{252} , foi utilizada a equação (1.5.1). Para tanto, calculou-se a carga efetiva $(z^*)^2$ de cada um desses íons, a partir da carga nominal z , multiplicou-se pela perda de energia do próton de mesma velocidade.

Determinadas as curvas $-dE/dX$ para os íons em consideração, e utilizando a regra de Simpson para o cálculo da integral numérica, chegou-se aos valores dos alcances residuais calculados mediante

$$R(E_0) = \int_0^{E_0} \frac{dE}{-dE/dx} \quad (1.5.4)$$

Para o cálculo do alcance residual da partícula alfa do Cf^{252} , foram utilizados os valores de dE/dx , retirados da tabela de perda de energia para partículas alfa em CR-39, obtida por Almási e Somogyi ⁽⁵⁴⁾, utilizando também a regra de Simpson.

TABELA 1.5.1 - Alcances no CR-39.

Íons	Alcance
Partículas Alfa 6,12MeV	44,6 μm
Fragmento de fissão (leve) 107 MeV	24 μm
Fragmento de fissão (pesado) 80 MeV	18 μm

A figura 1.5.1 mostra as curvas de alcance em função da energia/nucleon para prótons, partículas alfa do Cf^{252}

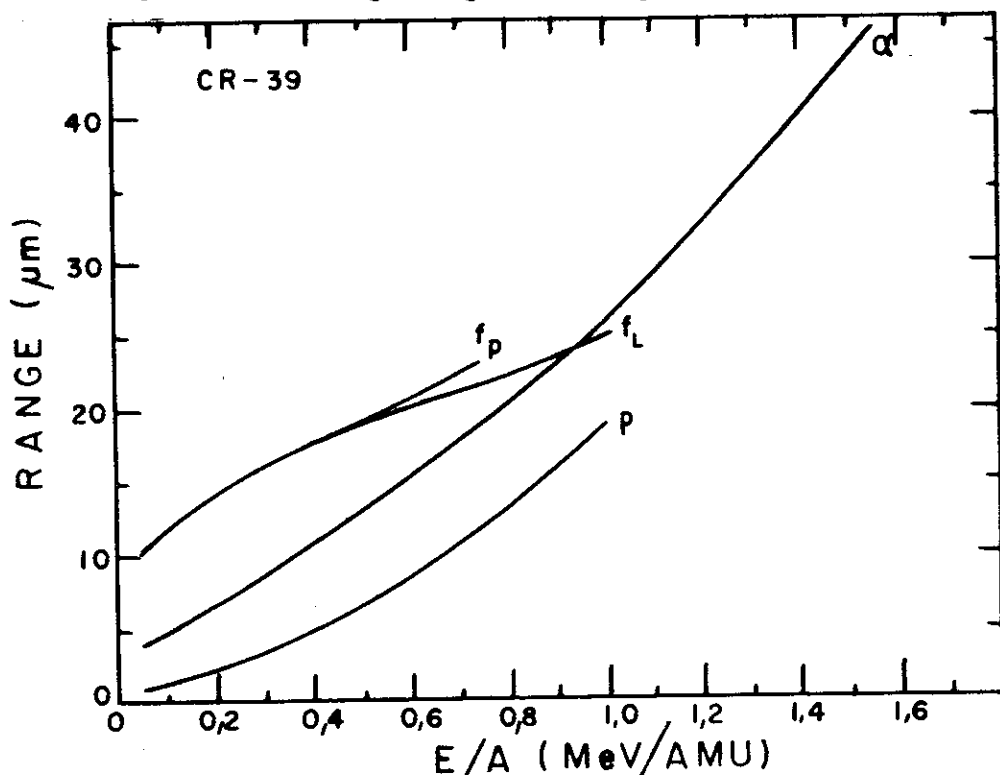


FIGURA 1.5.1 - Curvas de alcance de diversos íons em CR-39.

e fragmentos típicos de fissão do Cf^{252} em CR-39. A Figura 1.5.2 mostra as curvas de alcance no Makrofol, cujos valores foram retirados das tabelas de alcance de Tripier e colaboradores (55), onde se pode comparar com as curvas encontradas no presente trabalho.

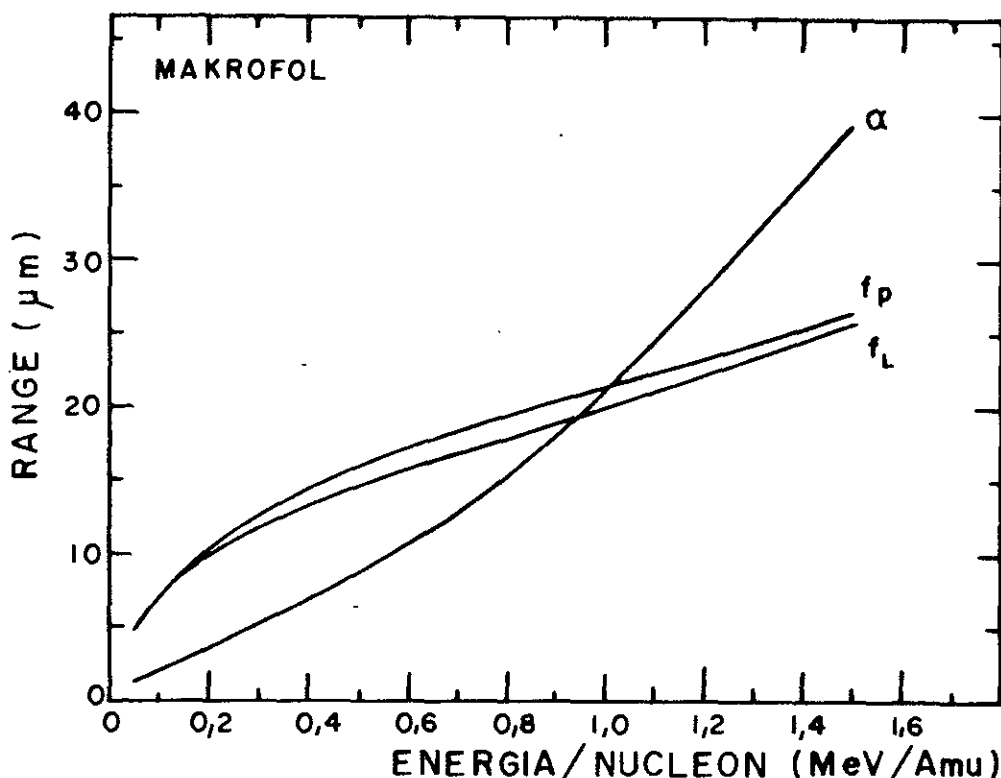


FIGURA 1.5.2 - Curvas de alcance de diversos íons em Makrofol.

A Figura 1.5.3 mostra como varia com a energia/nucleon, a ionização do próton, das partículas alfa do Cf^{252} e dos fragmentos típicos de fissão do Cf^{252} no CR-39. As energias indicadas são as iniciais que cada íon teria nos possíveis modos de desintegração espontânea do Cf^{252} . O conjunto das curvas de ionização reflete principalmente o efeito da carga efetiva dos diferentes íons. As ionizações da partícula alfa e do próton passam por um máximo com a diminuição da energia e, conseqüentemente, de β , segundo uma curva de Bragg, mostrando que esses ionizam mais no interior do detec-

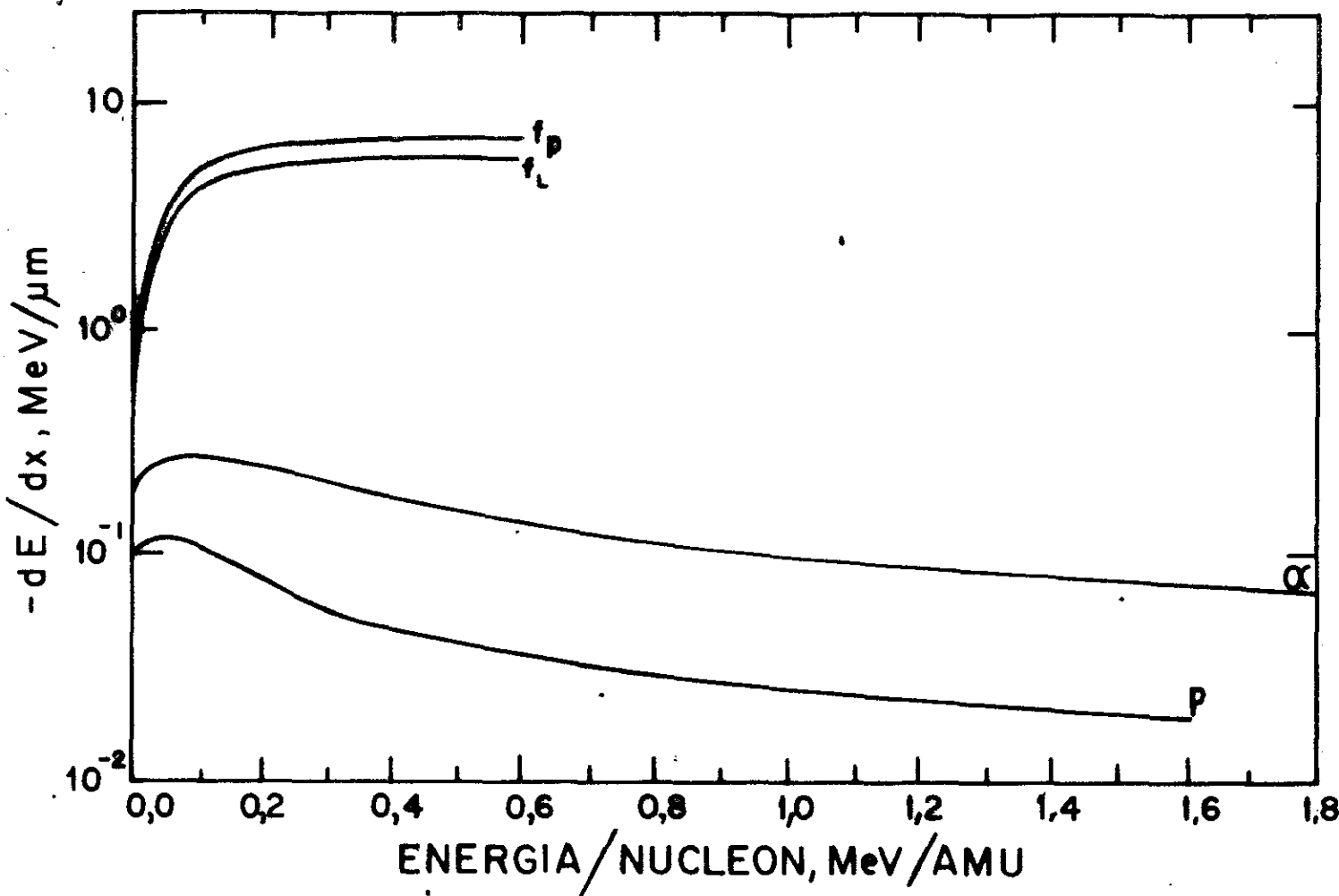


FIGURA 1.5.3 - Curvas de perda de energia por ionização de diversos íons no CR-39. As partículas alfa e os fragmentos típicos de fissão são provenientes de uma fonte de Cf^{252} .

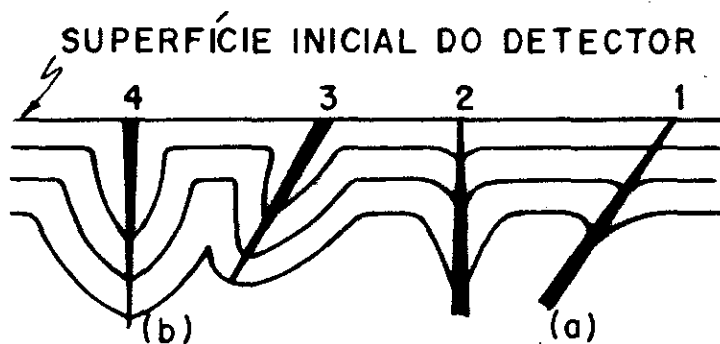


FIGURA 1.5.4 - (a) Mostra como as partículas alfa ionizam mais no interior do detector; (b) Mostra como os fragmentos de fissão ionizam mais junto à superfície do detector.

tor, dando a forma da Figura 1.5.4(a). Para os fragmentos de fissão a ionização sempre decresce com a diminuição da energia e, portanto, com a diminuição de β , mostrando que ionizam logo a partir da superfície do detector, dando assim a forma do traço como na Figura 1.5.4(b).

CAPÍTULO II

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

2.1 - OBTENÇÃO E PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

As placas de CR-39, com 1mm de espessura, utilizadas no presente trabalho foram fabricadas pela American Acrylics & Plastics, Inc., e gentilmente cedidas por T.M.J. Knöfel (CNEN, Rio de Janeiro).

Na preparação das amostras para utilização foram cortadas alíquotas de 2cm×1,5cm por meio de um estilete de aço. O estilete é passado várias vezes na placa original até criar uma ranhura, a qual pressionada sobre uma quina, parte-se. As amostras só foram identificadas no instante de serem utilizadas, pois vieram protegidas por uma película de polietileno para evitar o "background" indesejável de alfa-emissores do ambiente. Esta identificação foi feita mediante gravação com ponta de compasso.

2.2 - EXPOSIÇÃO

As amostras foram expostas a fragmentos de fissão e partículas alfa provenientes de uma fonte de Cf^{252} . Esta fonte foi preparada em 1967 no Oak-Ridge National Laboratory, Tennessee (U.S.A.). A fonte continha uma massa de $7,18 \times 10^{-2} \mu\text{g}$ de Cf^{252} , depositada sobre um disco de platina de $\sim 25\text{mm}$ de diâme

tro, cobrindo uma região circular de $\sim 10\text{mm}$ de diâmetro, preso a um suporte cilíndrico de plexiglass.

O tempo de exposição aos fragmentos nucleares foi estimado com o objetivo de se ter um número confortável de traços registrados no detector para posterior observação ao microscópio ótico. Esse tempo variou entre 40 a 60 minutos.

As amostras do detector foram colocadas paralela e coaxialmente à fonte circular de Cf^{252} , a uma distância de 7cm da mesma, como mostra a Figura 2.2.1.

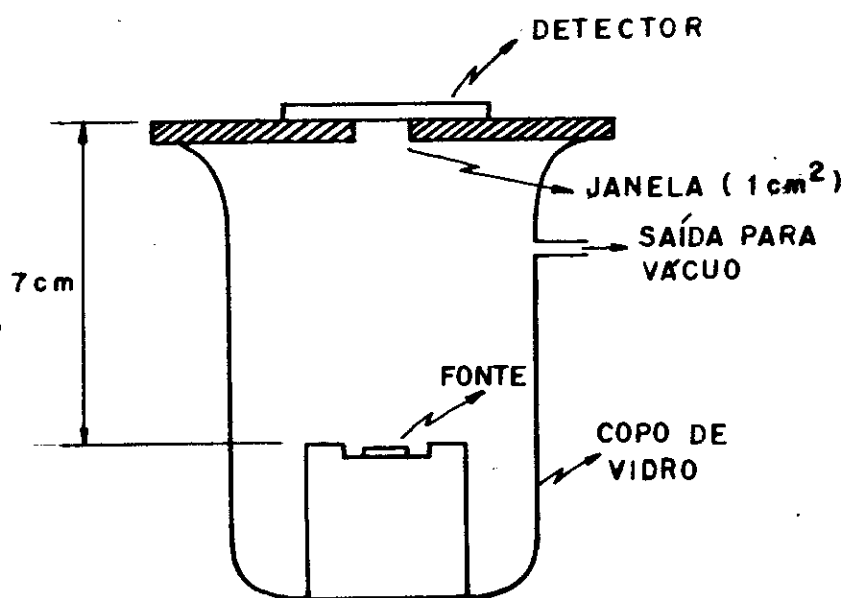


FIGURA 2.2.1 - Arranjo experimental utilizado para as exposições das amostras de CR-39 a fragmentos nucleares da fonte de Cf^{252} .

As exposições foram feitas no vácuo, e a geometria escolhida permitiu que a incidência dos fragmentos nucleares fosse próxima da normal à superfície do detector. À época das exposições a intensidade da fonte era cerca de 1×10^5 fissões / min.cm^2 .

2.3 - REVELAÇÃO DOS TRAÇOS

A revelação dos traços latentes foi feita utilizando

o arranjo experimental desenvolvido no Laboratório de Detecção de Traços do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas-CBPF e está mostrado na Figura 2.2.2. O sistema consiste de um banho térmico formado por uma cuba de pirex, um resistor acoplado a um termostato para controle automático da temperatura do banho. A cuba contém ~ 40 litros de óleo comestível, que possibilitou maior estabilidade térmica, sua principal vantagem sobre a água, que evapora já à temperatura ambiente. Este arranjo possibilitou ataques químicos prolongados, com perfeito controle da temperatura. O gradiente de temperatura foi evitado mantendo-se o banho de óleo sempre em agitação, por meio de uma pá oscilante, com frequência controlada. A incerteza na temperatura foi de $0,3^{\circ}\text{C}$.

As amostras de CR-39 foram colocadas em suportes de plexiglass de modo a manterem-se sempre na horizontal, garantindo condições idênticas de ataque para todas (Fig. 2.2.2). Detalhes podem ser vistos na referência (56).

Três provetas, contendo solução de ataque químico de concentrações diferentes, foram colocadas no interior da cuba de óleo e tampadas para evitar evaporação da solução. Atendida a temperatura de equilíbrio, foram, então, colocados os suportes contendo as amostras de CR-39 no interior de solução de ataque químico.

As soluções de ataque químico consistiram de dissoluções de NaOH em três diferentes concentrações (3N, 4,5N e 6,25N). Foram feitas titulações em cada solução de ataque para avaliarmos a influência da dissolução do material atacado nas diferentes concentrações de NaOH e para cada tempo e tempe

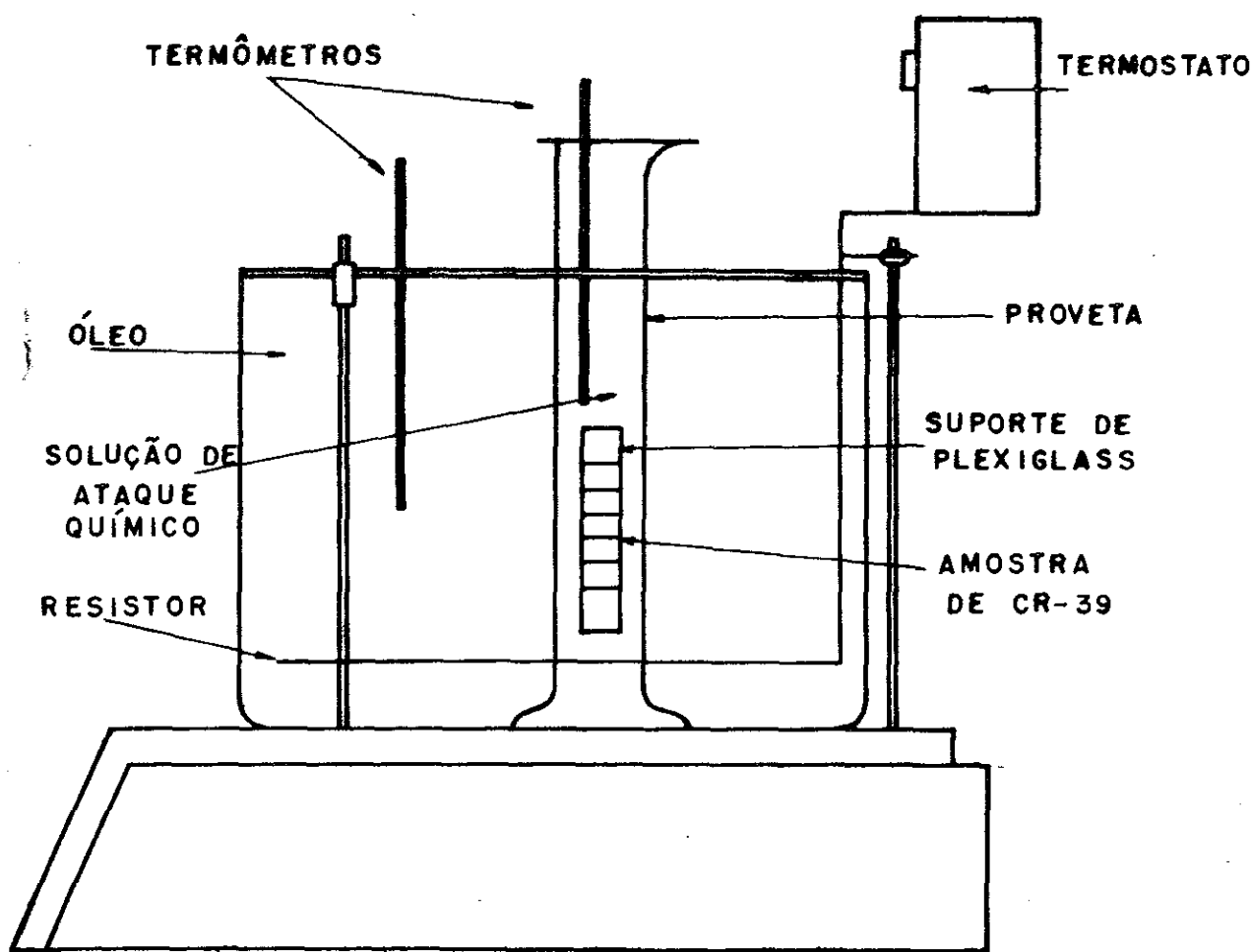


FIGURA 2.2.2 - Arranjo experimental utilizado no ataque químico das amostras de CR-39 [reproduzido de E.S. da Fonseca⁽⁵⁷⁾].

ratura de ataque químico. Nas condições apresentadas, não foram observadas variações apreciáveis nas concentrações das soluções de ataque químico.

As temperaturas dos banhos de ataque químico foram fixadas em 50°C, 60°C e 70°C.

O tempo de ataque variou de 2 a 24 horas, sendo cada amostra retirada de duas em duas horas, de tal modo a se obter variações na geometria dos traços. Terminada a revelação os resíduos da solução de ataque foram neutralizados colocando-se as amostras em um banho de HCl a 20% durante alguns minutos. Finalmente, depois de prolongada lavagem em água corrente

seguida de um banho em água destilada, foram postas a secar.

2.4 - OBSERVAÇÃO E ANÁLISE DOS TRAÇOS REVELADOS

As amostras foram montadas sobre suportes de vidro os quais foram fixados na platina de microscópios óticos Leitz Ortholux para observação, contagem e análise dos traços revelados.

Medidas de diâmetro dos traços, bem como contagens dos mesmos foram feitas utilizando aumentos de 400X, 560X ou 630X. Em alguns casos, a ocular micrométrica foi utilizada para medidas de diâmetros com maior precisão. Medidas de áreas de observação foram também feitas, possibilitando, assim, a determinação da população de traços nas diferentes amostras (número de traços/unidade de área).

2.5 - CARACTERÍSTICAS DA FONTE DE Cf^{252}

Na determinação da razão do número de traços de partículas alfa para o número de traços de fragmentos de fissão, N_α/N_f , a partir dos dados obtidos experimentalmente, nos deparamos com valores crescentes desta razão. Qual seria a explicação para este fato? Tendo em vista que o número total de átomos da fonte, à época de sua preparação (Novembro de 1967) era de $1,72 \times 10^{14}$ átomos de Cf^{252} , em primeiro lugar calculamos, utilizando a equação do decaimento radioativo, o número de átomos do isótopo filho Cm^{248} .

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{01} \left[e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right] \quad (2.5.1)$$

onde N_{01} - número inicial de átomos de Cf^{252}
 $N_2(t)$ - número de átomos de Cm^{248} no tempo t
 λ_1 - constante de desintegração total do Cf^{252}
 λ_2 - constante de desintegração total do Cm^{248} .

Cerca de 16 anos após, época em que a fonte foi utilizada no presente trabalho, a fonte dita de "Califórnio" continha menos de 2% de átomos de Cf^{252} , possuindo aproximadamente $1,7 \times 10^{14}$ átomos de Cm^{248} , isto é, cerca de 98%.

Em segundo lugar, determinamos teoricamente o valor inicial da razão N_α/N_f . Como para cada evento de fissão são emitidos dois fragmentos, temos:

$$N_{0\alpha} = \lambda_{1\alpha} N_{01} t \quad (2.5.2)$$

$$N_{0f} = 2\lambda_{1f} N_{01} t \quad (2.5.3)$$

onde $N_{0\alpha}$ - número de partículas alfa emitidas
 N_{0f} - número de fragmentos de fissão emitidos
 $\lambda_{1\alpha}$ - constante de desintegração por emissão alfa do Cf^{252}
 λ_{1f} - constante de desintegração por fissão espontânea do Cf^{252} .

Como a constante de desintegração é igual ao inverso da meia vida $T_{1/2}$ multiplicada por $\ln 2$ ($\lambda = \ln 2/T_{1/2}$), e dividindo uma expressão pela outra, podemos determinar a razão entre o número de traços de partículas alfa emitidas e regis -

tradas numa certa geometria de exposição e o número de traços de fragmentos de fissão emitidos e registrados na mesma geometria,

$$\frac{N_{0\alpha}}{N_{0f}} = \frac{1}{2} \frac{T_{1/2}^{1f}}{T_{1/2}^{1\alpha}} \quad .$$

Como

$$T_{1/2}^{1f} = 85,3 \text{ anos} \quad ,$$

e

$$T_{1/2}^{1\alpha} = 2,72 \text{ anos} \quad ,$$

resulta

$$\frac{N_{0\alpha}}{N_{0f}} = 15,7 \quad .$$

Em terceiro lugar, começamos, então, a estudar a causa do aumento desta razão com o tempo de vida da fonte. Pensamos que pudesse existir uma impureza de algum emissor alfa na fonte, pois não poderia estar havendo uma diminuição no número de fragmentos de fissão registrados, uma vez que a meia vida por fissão espontânea do Cf^{252} é muito pequena em comparação com a dos outros isótopos do Califórnio e do Cm^{248} .

Mediante espectrometria alfa de uma fonte menos ativa (~ 240 partículas alfa/min.cm²) produzida a partir da fonte principal, conseguimos identificar, através das energias das partículas alfa emitidas, algumas impurezas existentes na fonte. A Figura 2.5.1 mostra principalmente as contribuições dos isótopos de Cf^{252} e Cf^{250} , sendo em maior número as partículas alfa do Cf^{250} . Estas medidas foram realizadas na Divisão de Física Nuclear do Laboratório Ciclotron do IEN/CNEN.

Detectada a presença de impurezas do Cf^{250} , partimos

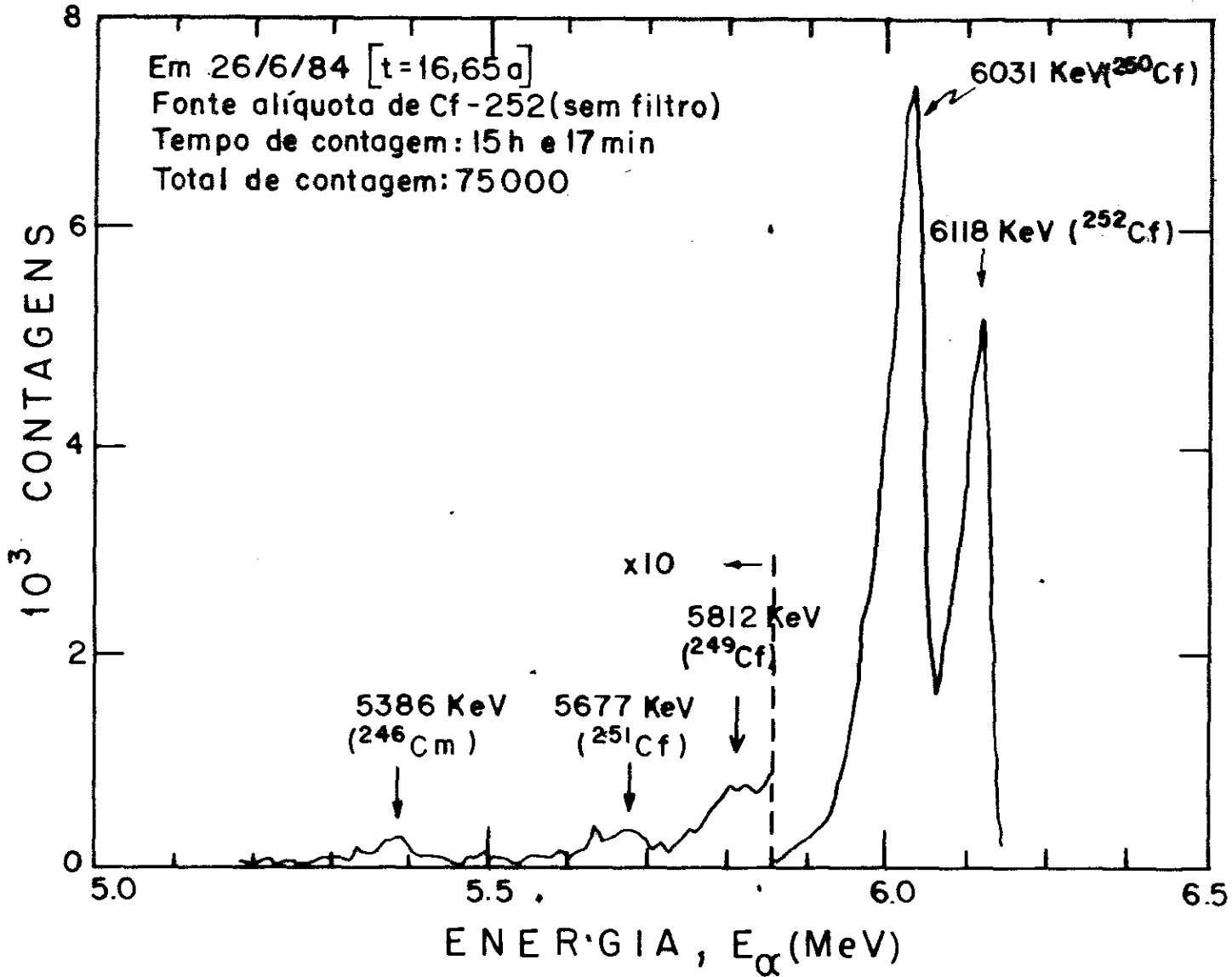


FIGURA 2.5.1 - Espectro alfa da fonte alíquota da fonte original de Cf²⁵² obtido pela técnica de detectores de Silício de barreira de superfície conectado a um analisador multicanal.

para o cálculo da quantidade desta impureza na fonte. Sejam N_{01} o número de átomos de Cf²⁵² e xN_{01} o número de átomos de Cf²⁵⁰ (N_{03}) ao tempo da preparação da fonte ($t=0$), onde x é a fração correspondente ao número de átomos de Cf²⁵⁰. O número de átomos de cada espécie no tempo t , vem dado por

$$N_3(t) = xN_{01} e^{-\lambda_3 t} \quad (2.5.3)$$

$$N_1(t) = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \quad (2.5.4)$$

Multiplicando as equações por λ_α de cada isótopo, e dividindo uma pela outra, vem:

$$\frac{\lambda_{3\alpha} N_3(t)}{\lambda_{1\alpha} N_1(t)} = \frac{\lambda_{3\alpha} x N_{01} e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_{1\alpha} N_{01} e^{-\lambda_1 t}},$$

onde $\lambda_{3\alpha}$ é a constante de desintegração alfa do Cf^{250}

λ_3 é a constante de desintegração total do Cf^{250}

O primeiro membro representa a razão R entre as atividades alfa dos dois isótopos de Califórnio presentes na fonte no instante t . Explicitando x , temos:

$$x = \frac{\lambda_{1\alpha} R}{\lambda_{3\alpha} e^{(\lambda_1 - \lambda_3) t}} \quad (2.5.5)$$

$$x = \frac{T_{1/2}^{3\alpha} \cdot R}{T_{1/2}^{1\alpha} e^{\ln 2 \left(\frac{1}{T_{1/2}^1} - \frac{1}{T_{1/2}^3} \right) t}} \quad (2.5.6)$$

Decorridos 16,646 anos, obteve-se o espectro alfa da fonte alíquota da fonte original (ver Figura 2.5.1). Em consequência,

$$x = 0,1472R \quad (2.5.7)$$

O valor R é retirado da Figura 2.5.1, mediante a razão entre as áreas das distribuições de energia correspondentes aos isótopos Cf^{250} e Cf^{252} . Encontramos $R = 1,59$. Daí, $x = 23,4\%$, o que constitui o teor de impureza do isótopo Cf^{250} .

Calculada a quantidade de Cf^{250} presente como impureza na fonte, calculamos então a variação da razão entre as

atividades alfa total e de fissão total no tempo t mediante a expressão:

$$\frac{A_{\alpha}}{A_f} = \frac{A_{\alpha}(Cf^{252}, t) + A_{\alpha}(Cf^{250}, t) + A_{\alpha}(Cm^{248}, t) + A_{\alpha}(Cm^{246}, t)}{A_f(Cf^{252}, t) + A_f(Cf^{250}, t) + A_f(Cm^{248}, t) + A_f(Cm^{246}, t)} \quad , \quad (2.5.8)$$

que, após as substituições apropriadas, passa a ser escrita como:

$$\frac{A_{\alpha}}{A_f} = \frac{\frac{1}{T_{1/2}^{1\alpha}} N_{01} e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{1\alpha}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{3\alpha}} N_{03} e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{3\alpha}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{2\alpha}} N_2(t) e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{2\alpha}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{4\alpha}} N_4(t) e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{4\alpha}} t}}{\frac{1}{T_{1/2}^{1f}} N_{01} e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{1f}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{3f}} N_{03} e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{3f}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{2f}} N_2(t) e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{2f}} t} + \frac{1}{T_{1/2}^{4f}} N_4(t) e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}^{4f}} t}} \quad (2.5.9)$$

onde $T_{1/2}^{1\alpha}$ é a meia vida de desintegração alfa do Cf^{252}
 $T_{1/2}^{2\alpha}$ é a meia vida de desintegração alfa do Cm^{248}
 $T_{1/2}^{3\alpha}$ é a meia vida de desintegração alfa do Cf^{250}
 $T_{1/2}^{4\alpha}$ é a meia vida de desintegração alfa do Cm^{246}
 $T_{1/2}^{1f}$ é a meia vida de desintegração por fissão do Cf^{252}
 $T_{1/2}^{2f}$ é a meia vida de desintegração por fissão do Cm^{248}
 $T_{1/2}^{3f}$ é a meia vida de desintegração por fissão do Cf^{250}
 $T_{1/2}^{4f}$ é a meia vida de desintegração por fissão do Cm^{246}
 $T_{1/2}^1$ é a meia vida de desintegração total do Cf^{252}
 $T_{1/2}^2$ é a meia vida de desintegração total do Cm^{248}
 $T_{1/2}^3$ é a meia vida de desintegração total do Cf^{250}
 $T_{1/2}^4$ é a meia vida de desintegração total do Cm^{246}
 $N_4(t)$ número de átomos de Cm^{246} no tempo t .

Os valores destas diferentes quantidades estão mos -

trados na Tabela 2.5.1. Os valores de $N_2(t)$ e $N_4(t)$ para o Cm^{248} e o Cm^{246} são retirados da equação do decaimento radioativo já vista [equação (2.5.1)].

TABELA 2.5.1 - Dados referentes aos isótopos de Cf e Cm.

Isótopos	Emissão alfa	Meias vidas (ano)		Total
		Fissão	Espontânea	
Cf^{252}	2,72	85,3		2,64
Cf^{250}	13,23	$1,73 \times 10^4$		13,22
Cm^{248}	$3,703 \times 10^5$	$4,11 \times 10^6$		$3,4 \times 10^5$
Cm^{246}	$4,73 \times 10^3$	$1,85 \times 10^7$		$4,73 \times 10^3$

A partir da equação (2.5.9), construímos a curva (1) da Figura 2.5.2, a qual mostra a variação da razão das atividades alfa e de fissão com o tempo, considerando um percentual de impureza de 23,4%, conforme obtido experimentalmente. A Figura 2.5.2 mostra também a variação desta mesma razão determinada experimentalmente através da contagem de traços registrados em vários detectores tipo placa e em datas diferentes, conforme Tabela 2.5.2 (pontos experimentais).

TABELA 2.5.2 - Variação da razão das atividades alfa e de fissão espontânea em função do tempo para a fonte de Cf^{252} .

Tempo a partir da preparação da fonte, t (anos)	$R = A_\alpha / A_f$		Método Experimental
1,75	$33,0 \pm 0,8$	(a)	Emulsão Nuclear
14,49	53 ± 3	(a)	CR-39
14,82	54 ± 5	(a)	CR-39
15,20	59 ± 3	(a)	CR-39
16,75	$74,9 \pm 0,9$	(a)	Det. de Silício
16,92	$79,1 \pm 0,5$	(b)	Det. de Silício
19,00	88 ± 5	(a)	CR-39

(a) Fonte original; (b) Fonte alíquota.

Estes valores estão em melhor acordo se considerarmos um grau de impureza de 18% dos átomos de Cf^{252} como sendo de Cf^{250} [voltando à equação (2.5.9), determinamos a curva 2 da Figura 2.5.2]. A diferença entre as duas curvas pode ter uma explicação no fato de que a fonte pouco intensa foi obtida por riscagem com a ponta de uma agulha sobre a fonte

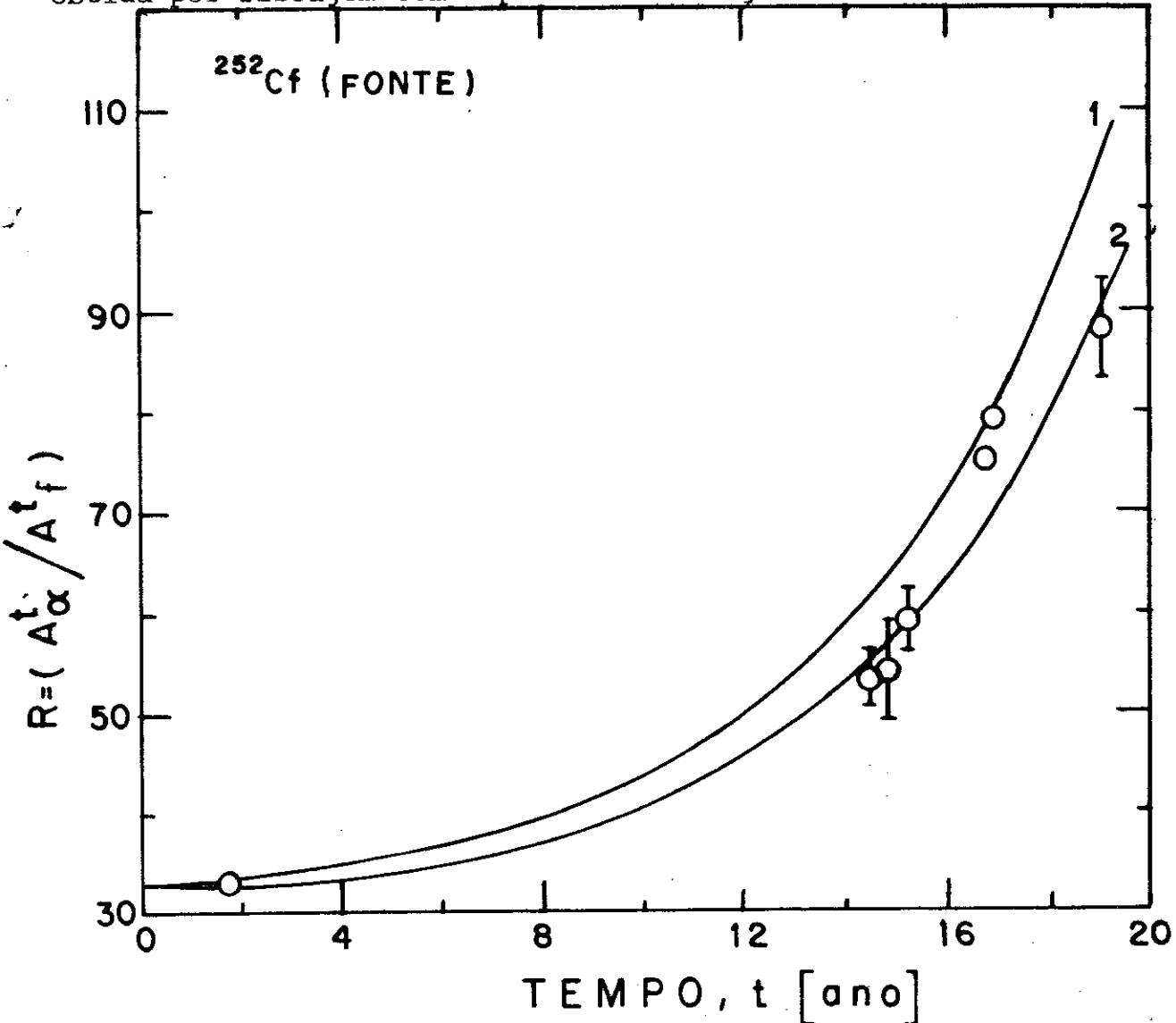


FIGURA 2.5.2 - Curvas de variação da razão das atividades alfa total e de fissão total com o tempo de vida da fonte. 1) Representa a curva de variação desta razão calculada para uma impureza de 23,4% do isótopo Cf^{250} ; 2) Representa a variação da razão para uma impureza de 18%. São apresentados também os resultados experimentais da razão, através da contagem dos traços registrados em vários detectores tipo placa em datas diferentes (Tabela 2.5.2).

original. Como esta já apresentava pouca quantidade de Cf^{252} , consequentemente obtêm-se razões A_α/A_f maiores que os valores determinados experimentalmente utilizando a fonte principal. A conclusão a que se chega é que a impureza de Cf^{250} pode estar compreendida entre as duas percentagens apresentadas.

A título de complementar nosso estudo sobre a fonte de Califórnio utilizada no presente trabalho, apresentamos os gráficos da Figura 2.5.3 onde se mostra a variação das atividades alfa e de fissão para os isótopos componentes da fonte, em quantidades significativas.

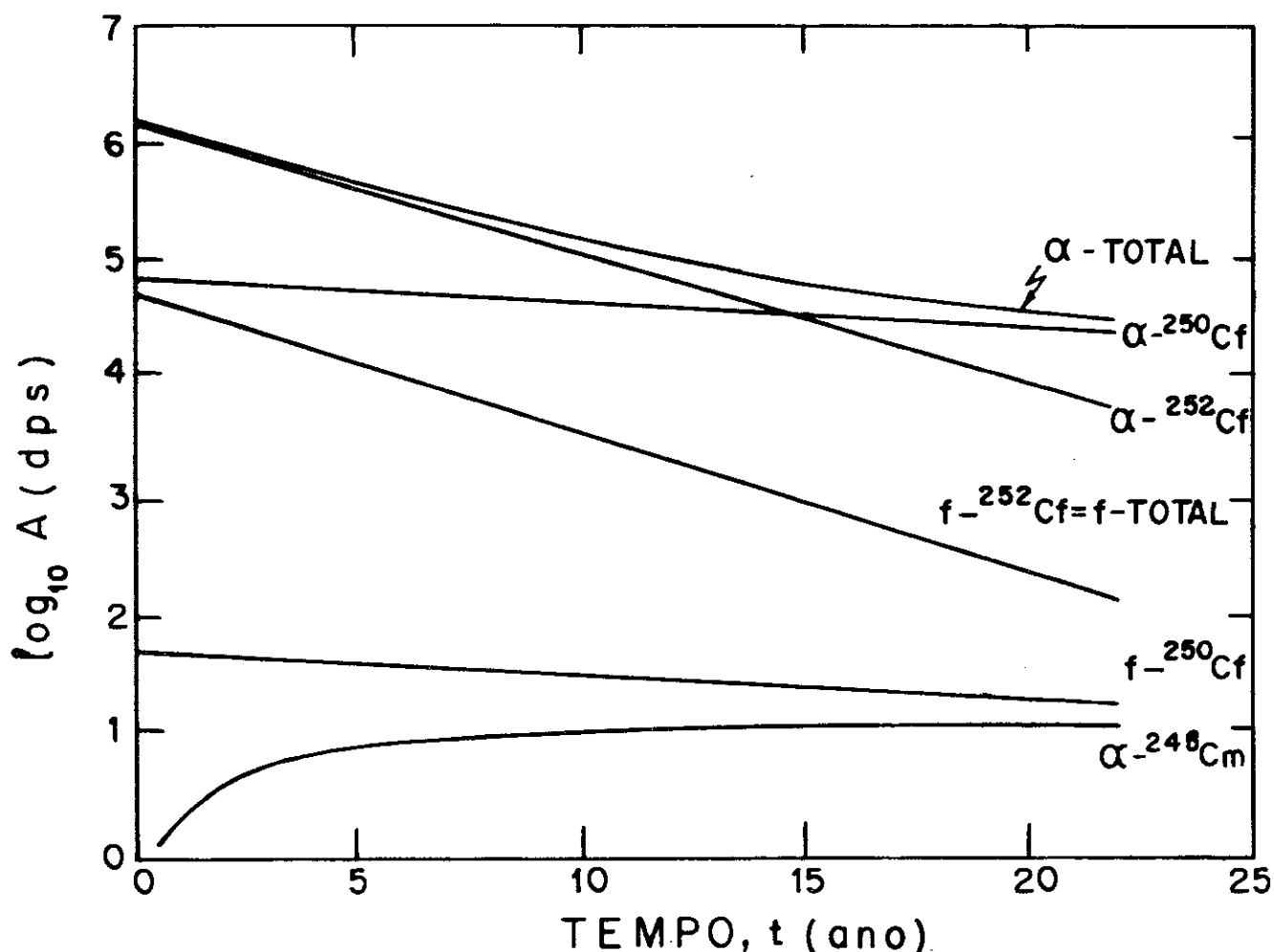


FIGURA 2.5.3 - Variação das atividades alfa e de fissão espontânea para os isótopos componentes da fonte de Cf^{252} em quantidades significativas.

A Figura 2.5.4 mostra o espectro de energia dos fragmentos de fissão da fonte de Califórnio. Este espectro foi obtido mediante a técnica usual de detecção utilizando detectores de Silício de barreira de superfície conectados a um analisador multicanal.

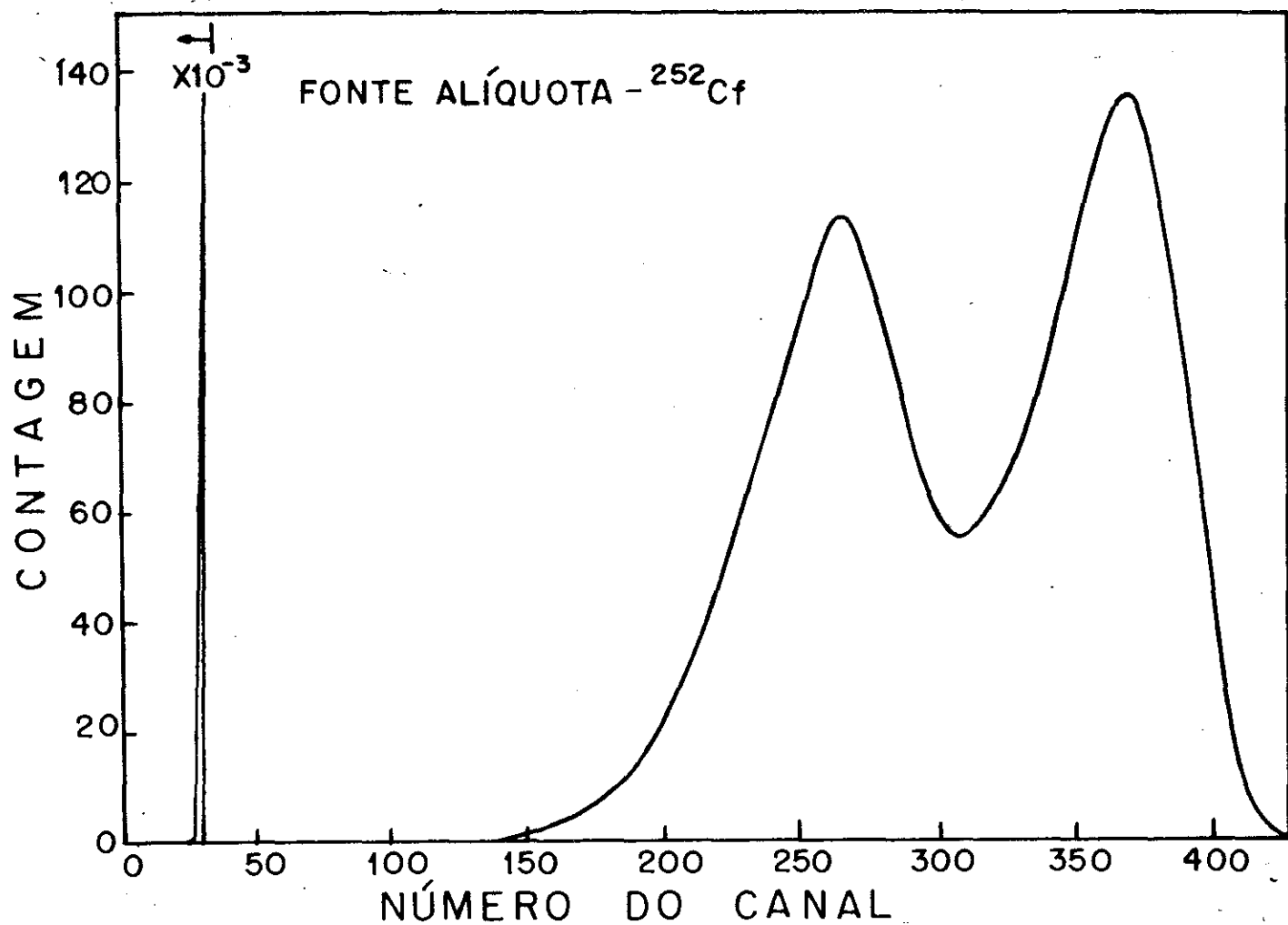


FIGURA 2.5.4 - Espectro de energia dos fragmentos de fissão da fonte de ^{252}Cf .

CAPÍTULO III

APRESENTAÇÃO E DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÕES

3.1 - MEDIDAS DE DIÂMETRO

Os gráficos das Figuras 3.1.1, 3.1.2, 3.1.3 mostram que, para pequenos tempos de ataque, os diâmetros dos traços de fragmentos de fissão e das partículas alfa emitidos da fonte e registrados no detector variam linearmente com o tempo de ataque químico, como era de se esperar pelo modelo da geometria de traços (parágrafo 1.3).

As inclinações das retas representam as taxas de variação dos diâmetros com o tempo, de onde pode ser calculado o valor da velocidade geral de ataque químico (V_g), utilizando as inclinações das retas, que representam as variações dos diâmetros dos traços de fragmentos de fissão. Também, as inclinações dessas retas fornecem uma forma de discriminar os dois tipos de fragmentos nucleares, partículas alfa e fragmentos de fissão. Quanto maior a ionização, maior a inclinação da reta, ou seja, os diâmetros dos traços de fragmentos de fissão crescem mais rapidamente que os das partículas alfa. Este método de discriminação de tais fragmentos nucleares se apresenta mais eficiente para temperaturas e concentrações mais altas.

Os gráficos das Figuras 3.1.4 e 3.1.5 mostram como as inclinações das retas variam com as condições de ataque

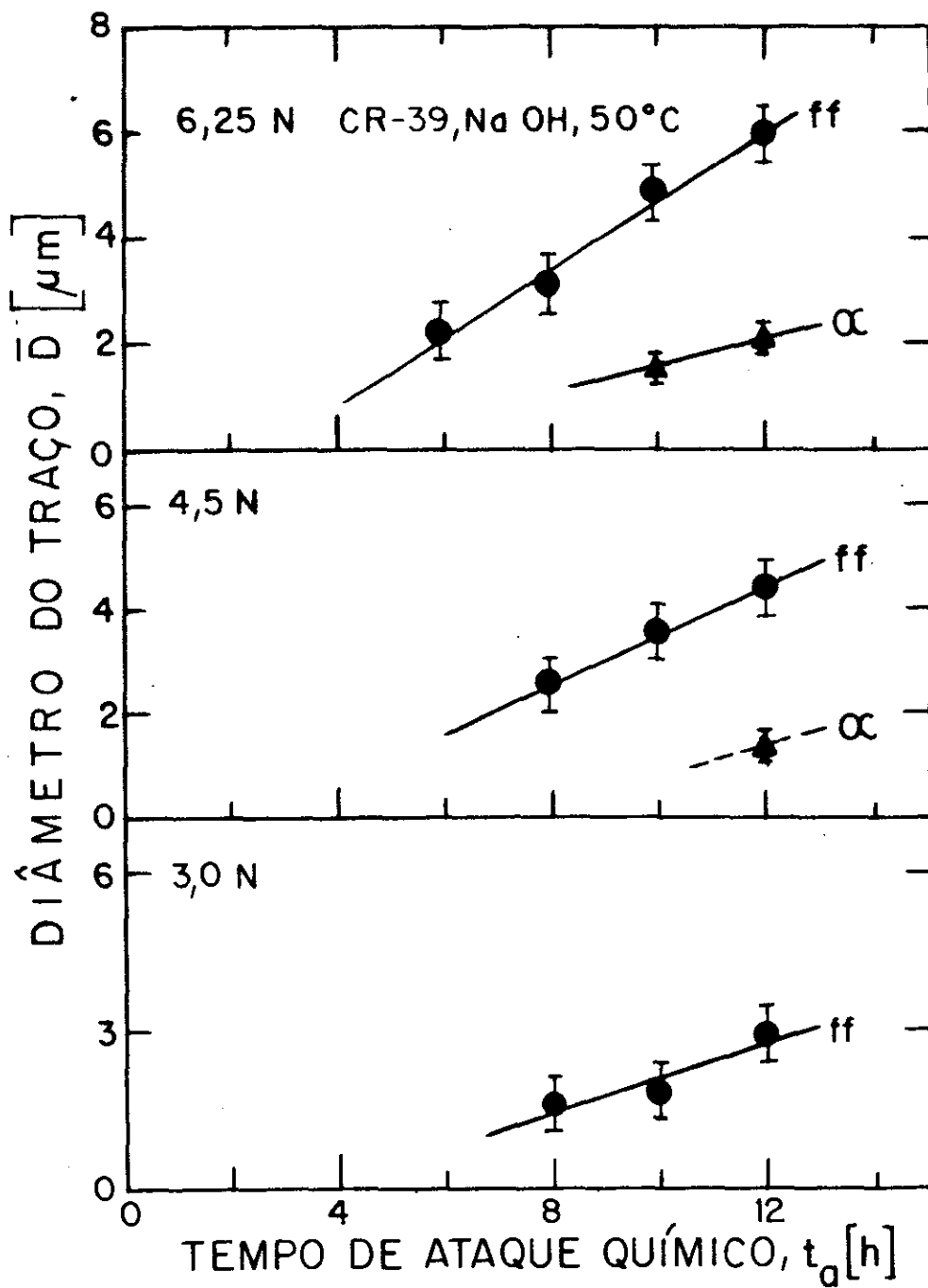


FIGURA 3.1.1 - Retas com inclinações diferentes, que caracterizam a variação do diâmetro dos traços de partículas alfa e fragmentos de fissão, em CR-39, para diferentes concentrações da solução de ataque químico, NaOH a 50°C.

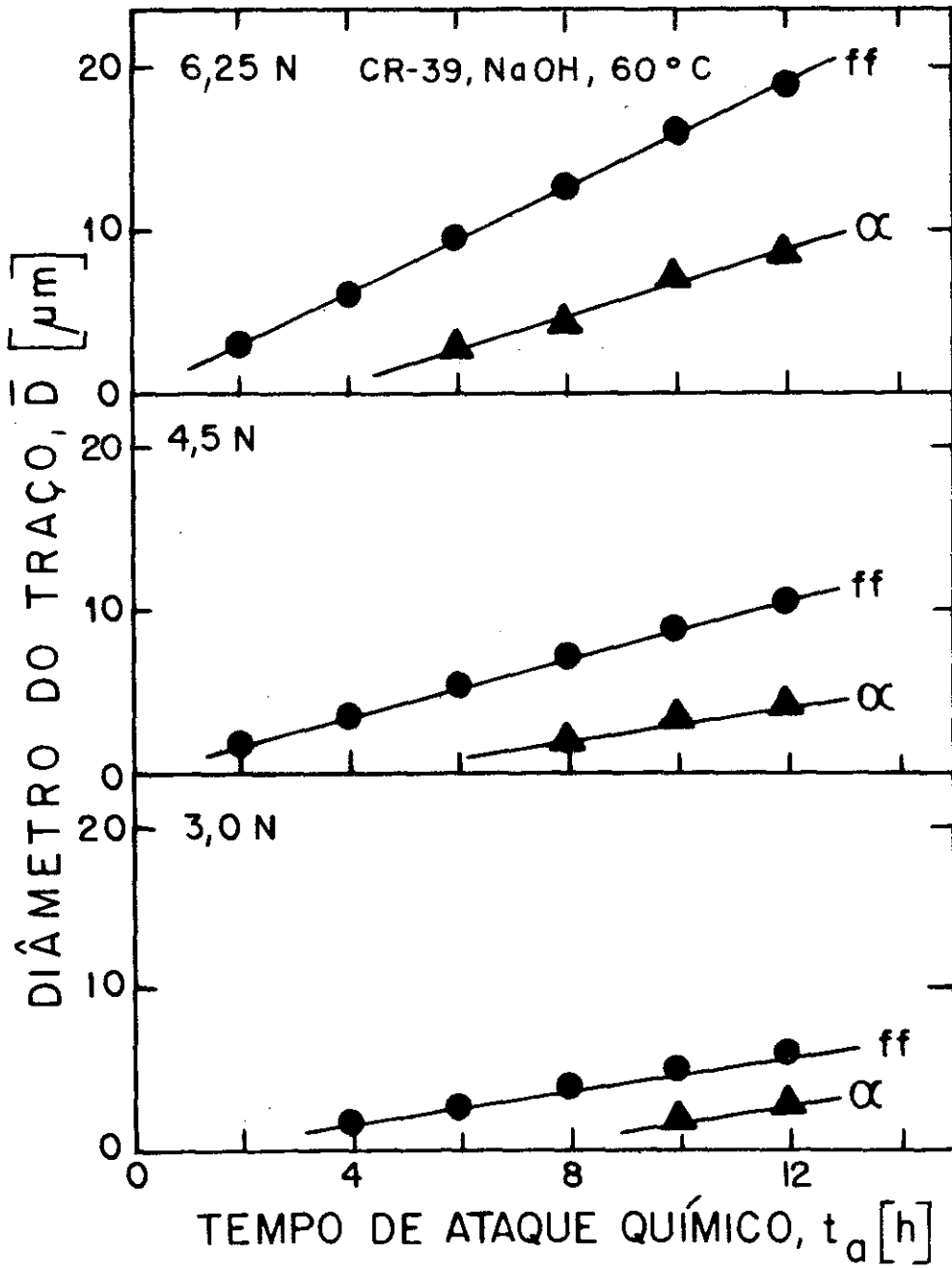


FIGURA 3.1.2 - O mesmo como na Figura 3.1.1, para a temperatura de 60°C.

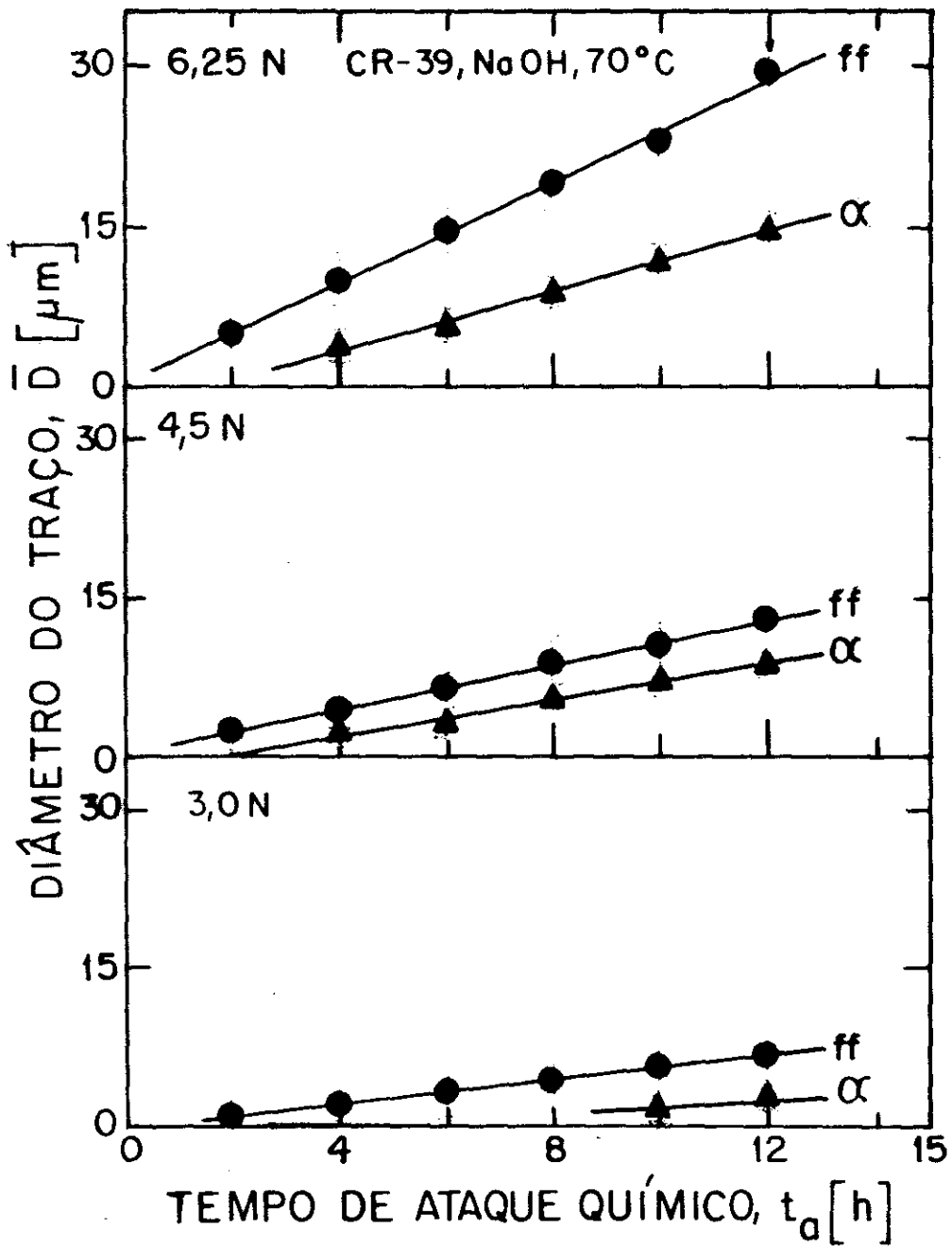


FIGURA 3.1.3 - O mesmo como na Fig. 3.1.1, para a temperatura de 70°C.

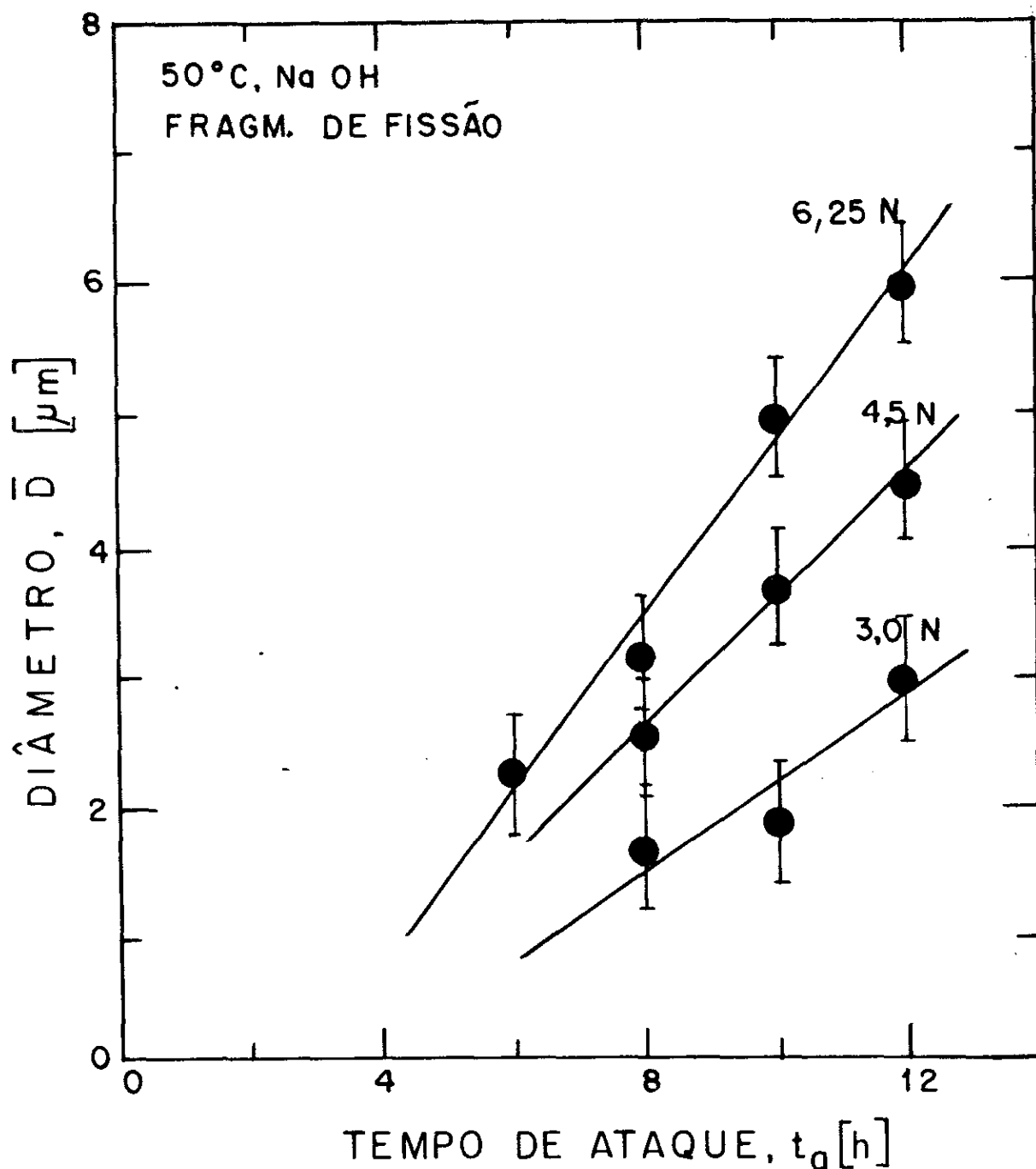


FIGURA 3.1.4 - Retas com inclinações diferentes que caracterizam a variação do diâmetro dos traços de fragmentos de fissão da fonte de Cf^{252} , para diferentes concentrações de NaOH a 50°C.

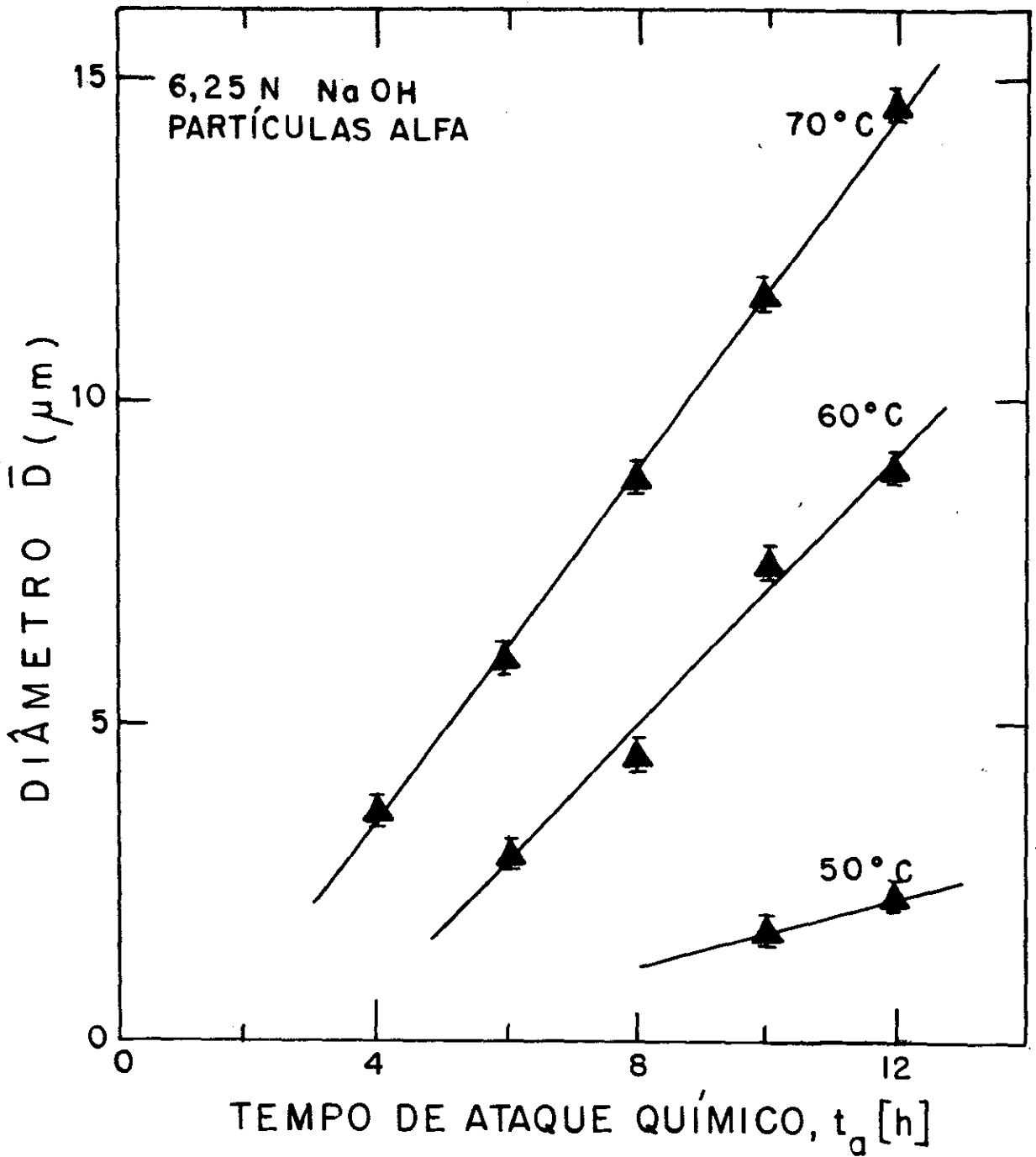


FIGURA 3.1.5 - Retas com inclinações diferentes que caracterizam a variação dos diâmetros dos traços de partículas alfa oriundas de uma fonte de Cf^{252} , para diferentes temperaturas e para a concentração de 6,25N de NaOH.

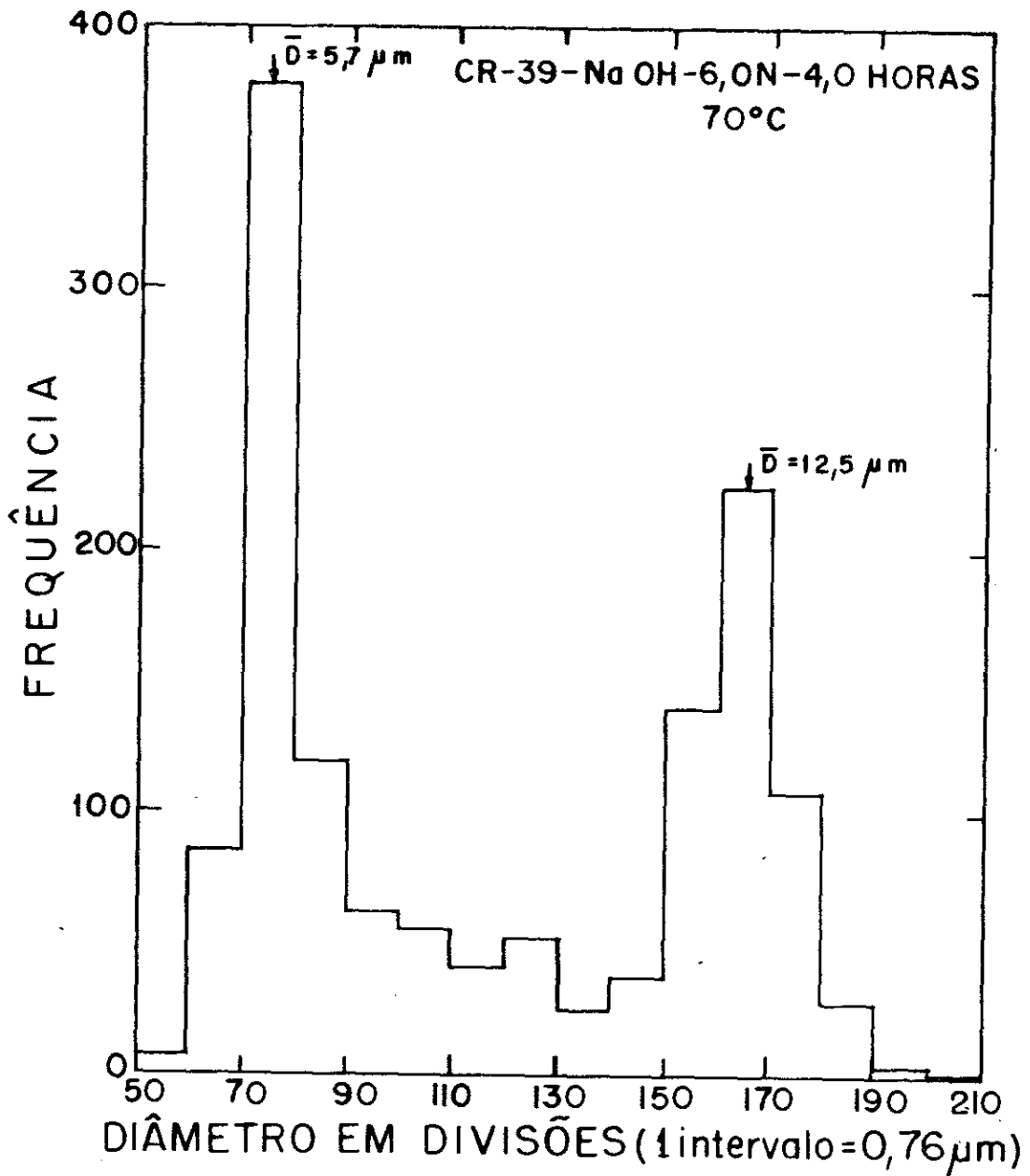


FIGURA 3.1.6 - Distribuição de diâmetro dos traços de partículas alfa e fragmentos de fissão. As distribuições mostram uma forma de discriminação dos fragmentos nucleares. Os traços de partículas alfa têm diâmetro médio $\bar{D} = 5,7 \mu\text{m}$, os dos fragmentos têm diâmetro médio $\bar{D} = 12,5 \mu\text{m}$. As condições de ataque químico são NaOH-6,0N, 70°C e o tempo de ataque químico foi de 4,0h.

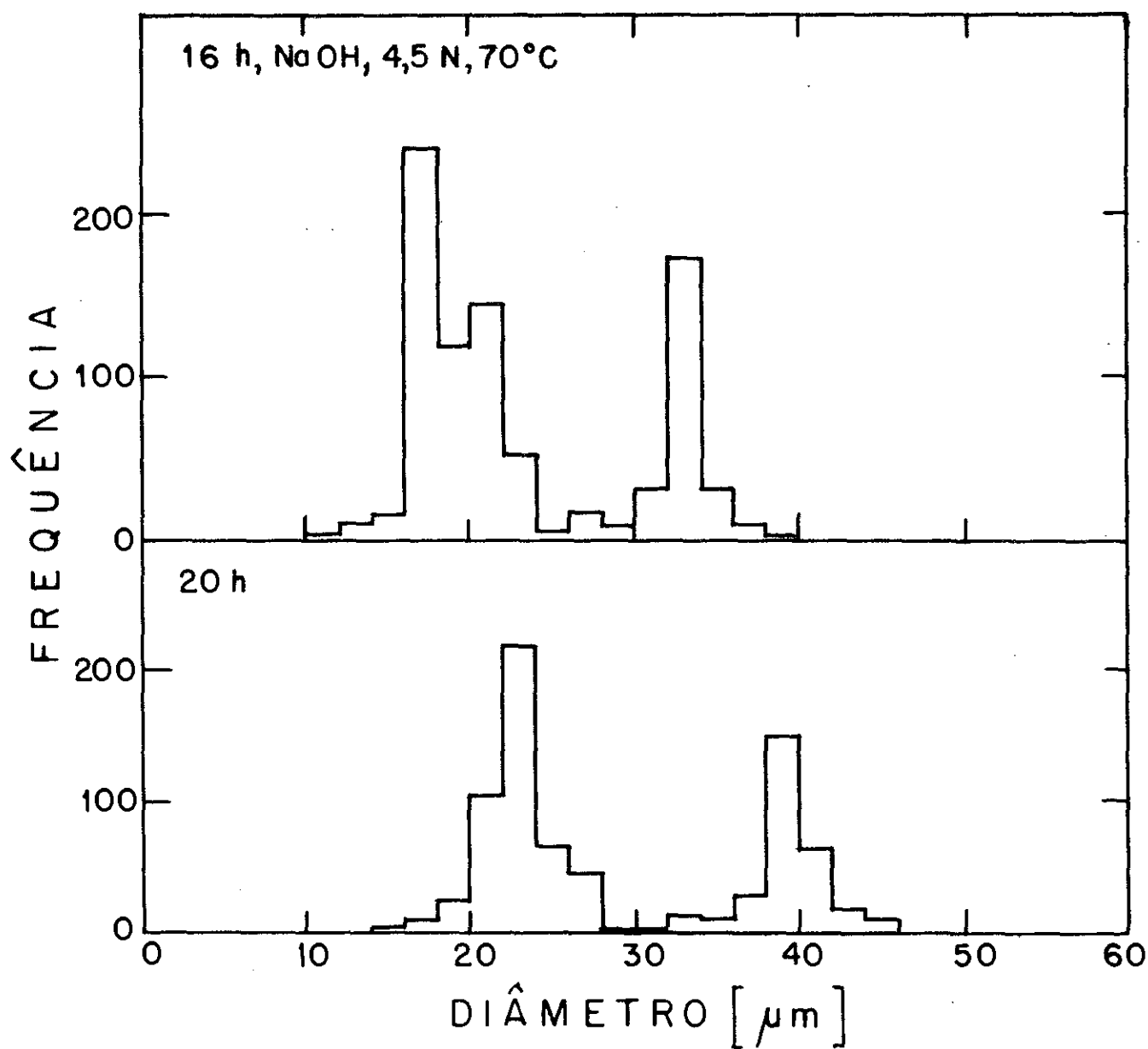


FIGURA 3.1.7 - O mesmo que a Fig. 3.1.6, para NaOH 4,5N-70°C, 16h e 20h.

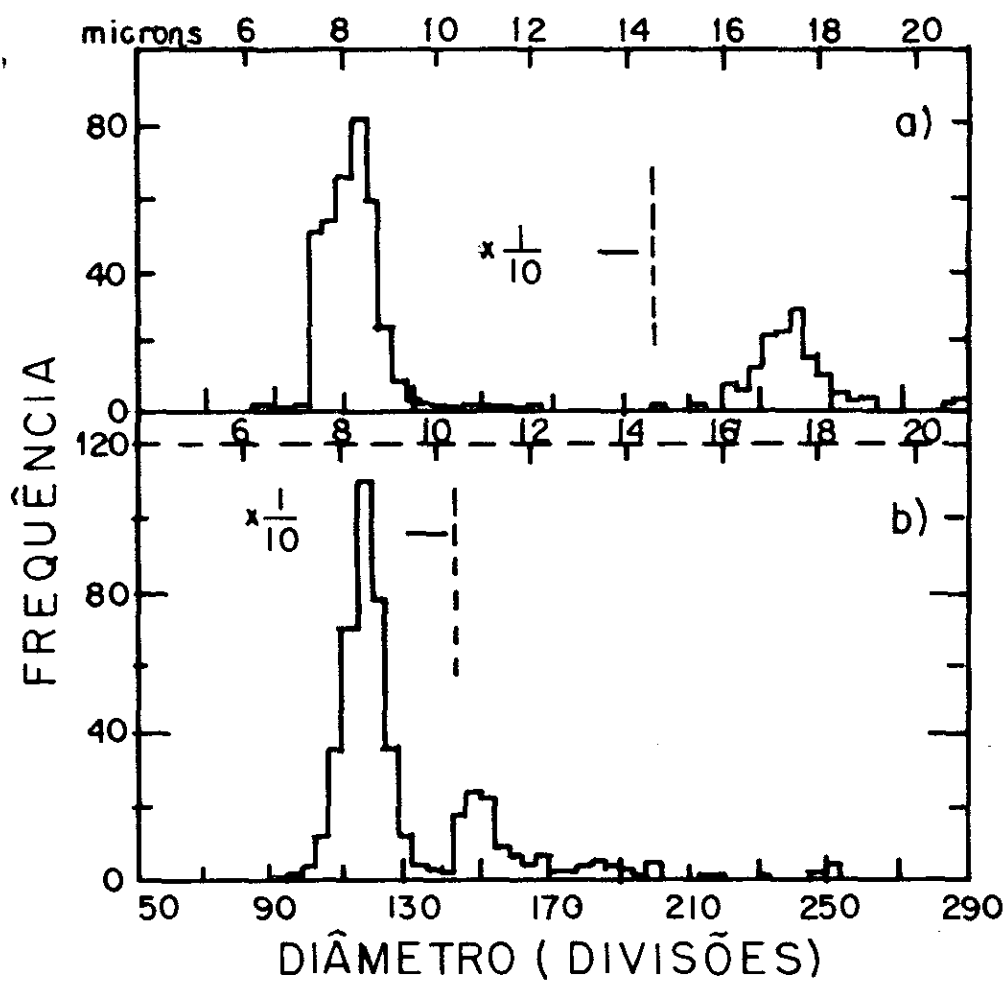


FIGURA 3.1.8 - Distribuições de diâmetro de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão, com atenuação de energia, mediante exposição com filtros de mylar. Condições de ataque químico, NaOH-3,0N, 70°C, 16h; calibrações das lentes a) 0,073 μm ; b) 0,073 μm . a) Distribuição de diâmetro sem filtro de mylar; b) com filtro de 10 μm de espessura de mylar.

(temperatura e normalidade da solução), para os fragmentos de fissão e partículas alfa.

Os histogramas das Figuras 3.1.6 e 3.1.7 mostram, para duas condições de ataque químico e para tempos de 4h, 16h e 20h, outra forma de se discriminar as partículas alfa dos fragmentos de fissão. Vê-se claramente que a diferença entre os valores médios dos diâmetros correspondentes a cada grupo de partículas carregadas aumenta à medida que o tempo de ataque químico se torna cada vez maior.

O efeito de atenuação em energia dos fragmentos nucleares registrados no CR-39 pode ser visto na Fig. 3.1.8, onde são mostradas as distribuições de diâmetros dos traços. As condições de ataque químico utilizadas foram NaOH - 3,0N-16h, sem agitação. Os casos a e b desta figura referem-se à amostras do detector que foram cobertas com filtros de poli-carbonato Mylar. Em (a) é apresentado o resultado para a amostra sem filtro, e em (b) a amostra coberta com um filtro de Mylar com $\sim 10\mu\text{m}$. Fazendo-se uma comparação entre os dois histogramas, observamos o deslocamento dos picos das distribuições de diâmetro dos traços de fissão com o aumento da espessura de Mylar. Este deslocamento reflete o decréscimo da ionização no CR-39 para fragmentos de fissão, quando sua energia é atenuada (cf. Figura 1.5.3).

Para partículas alfa o efeito de atenuação em energia se torna nítido com o filtro de $\sim 10\mu\text{m}$ de Mylar. Neste caso, o deslocamento do pico correspondente à distribuição de diâmetro se faz para a direita, o que mostra o aumento da ionização no CR-39 para as partículas alfa de menor ener-

gia (cf. Fig. 1.5.3).

Deve-se observar, no entanto, que nas condições de ataque químico de baixa normalidade e baixa temperatura a observação dos traços ao microscópio se torna difícil dado o "background" existente no CR-39 devido, principalmente, aos defeitos da própria estrutura do plástico⁽⁴⁶⁾. A seleção dos eventos para contagem ou medida direta das grandezas geométricas relevantes deve ser feita com muito cuidado.

3.2 - ESTUDOS SOBRE V_g , ENERGIA DE ATIVAÇÃO E TEMPO DE INDUÇÃO

A velocidade geral de ataque químico representa a quantidade de material removida da superfície do detector sólido de traços com o tempo durante o processo de ataque químico, muitas vezes descrita por meio da taxa de remoção da superfície, V_g . Esta taxa representa um importante parâmetro no estudo da formação do traço revelado.

Os métodos usuais para se determinar V_g são:

- i - Variação da espessura do detector com o tempo de ataque químico^(57,58);
- ii - Variação da massa do detector com o tempo de ataque químico⁽⁵⁹⁾;
- iii - Taxa de variação do diâmetro para partículas de alta ionização.

Neste trabalho utilizou-se o terceiro método para a determinação de V_g , pois as partículas em questão foram fragmentos de fissão oriundos de uma fonte de Cf^{252} , que são bastante ionizantes.

Do modelo de geometria do traço para fragmentos de fissão, tem-se $V_t \gg V_g$ (Seção 1.3). A expressão do diâmetro fica então simplificada para $D = 2V_g t$ (eq. (1.3.4)), e daí $\frac{dD}{dt} = 2V_g$, onde dD/dt representa a inclinação das retas nos gráficos das Figuras 3.1.4, 3.1.5 e 3.1.6, da Seção anterior.

A Tabela 3.2.1 mostra, em uma de suas colunas, os valores de V_g para diversas condições de ataque químico. Com o auxílio da Tabela 3.2.1 construiu-se os gráficos da Figura 3.2.1, que mostra como V_g varia com a normalidade da solução de ataque químico e a temperatura. V_g cresce não linearmente com a normalidade, para as diferentes temperaturas de ataque químico. As Figuras 3.2.2, 3.2.3 e 3.2.4, mostram uma

TABELA 3.2.1 - Valores de velocidade geral de ataque químico (V_g) e tempo de indução (t_0).

Condições de Ataque Temperatura (°C)	Normalidade (N)	Velocidade geral, V_g (µm/h) [fragmento de fissão]	Tempo de Indução, t_0 (h)	
			ff	α
70	6,25	1,16±0,03	0	1,5±0,2
	4,5	0,54±0,01	0	2,0±0,4
	3,0	0,29±0,01	0,5±0,1	5±1
60	6,25	0,82±0,01	0	3±1
	4,5	0,42±0,01	0	4,0±0,3
	3,0	0,24±0,01	0,2±0,2	7±1
50	6,25	0,32±0,03	2,7±0,9	4±2
	4,5	0,24±0,02	3±1	-
	3,0	0,16±0,06	4±2	-

comparação dos resultados deste trabalho com os de outros autores (40,57,60,61). As pequenas diferenças existentes se devem a dois fatos: i) diferenças no método de preparação das

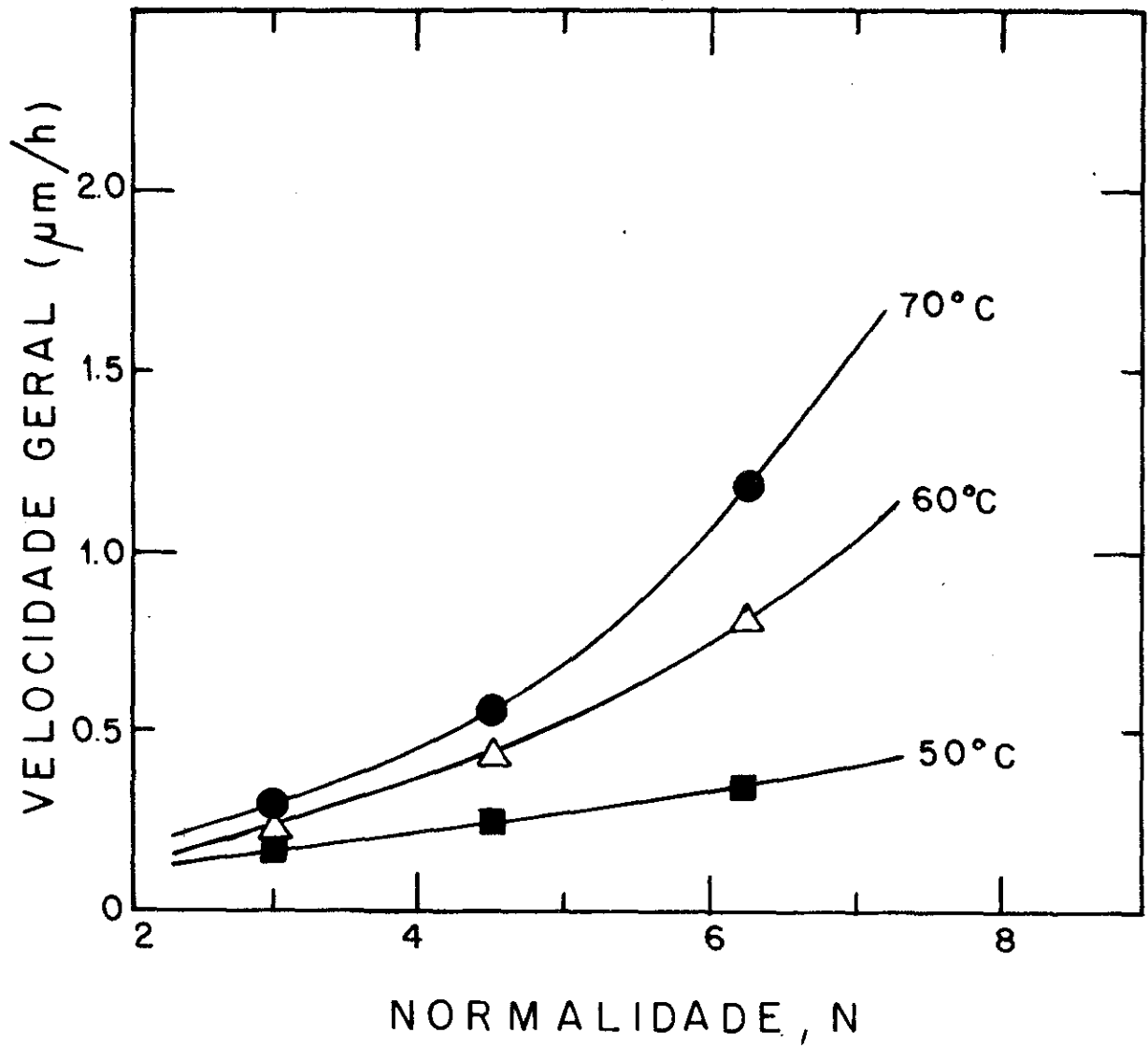


FIGURA 3.2.1 - Valores de V_g variando com a normalidade e a temperatura de ataque químico.

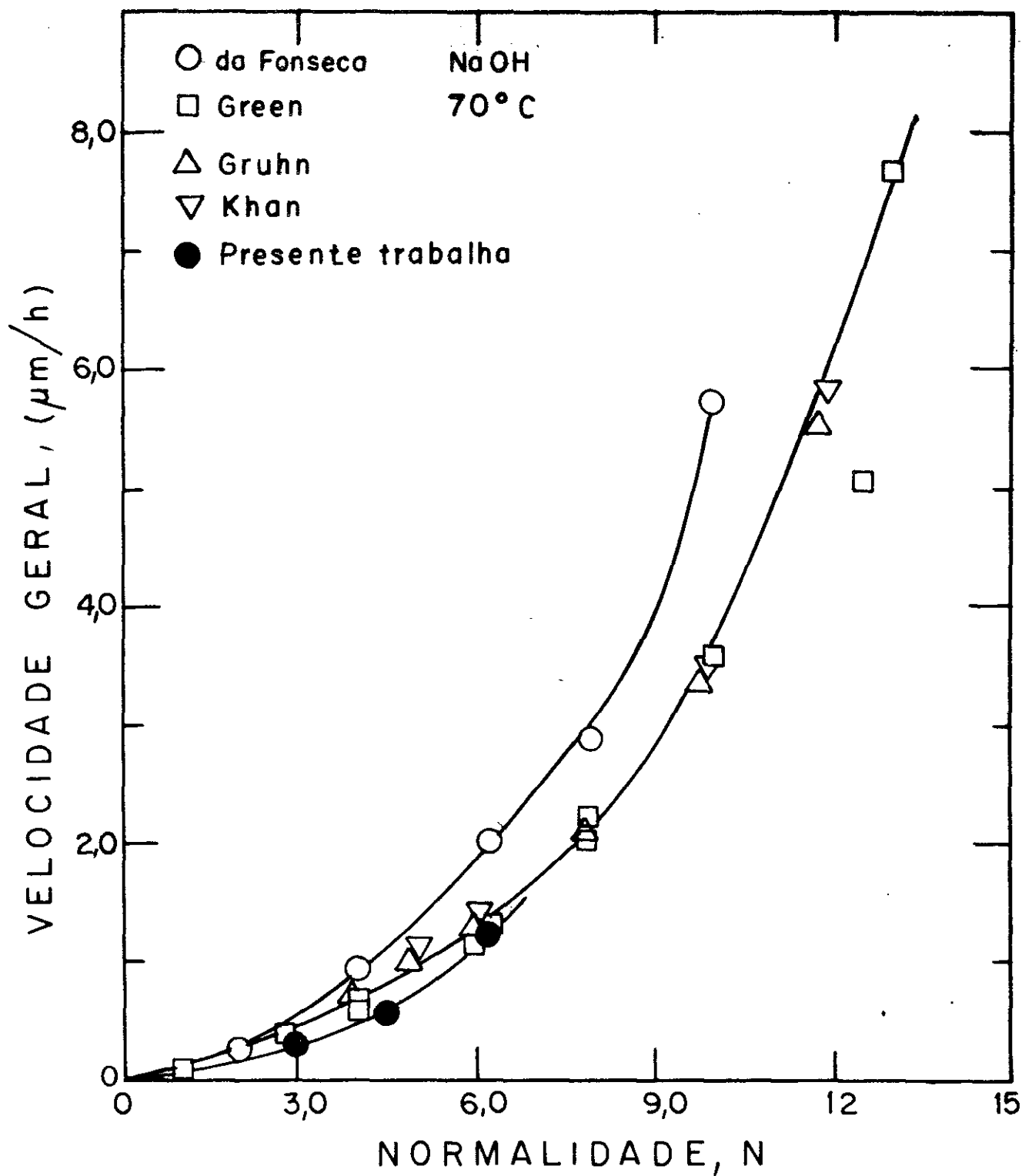


FIGURA 3.2.2 - Valores de V_g encontrados por vários autores colocados juntos aos do presente trabalho para NaOH-70°C. ○ da Fonseca⁽⁵⁷⁾; □ Green⁽⁴⁰⁾; △ Gruhn⁽⁶¹⁾; ▽ Khan⁽⁶⁰⁾; ● Presente trabalho.

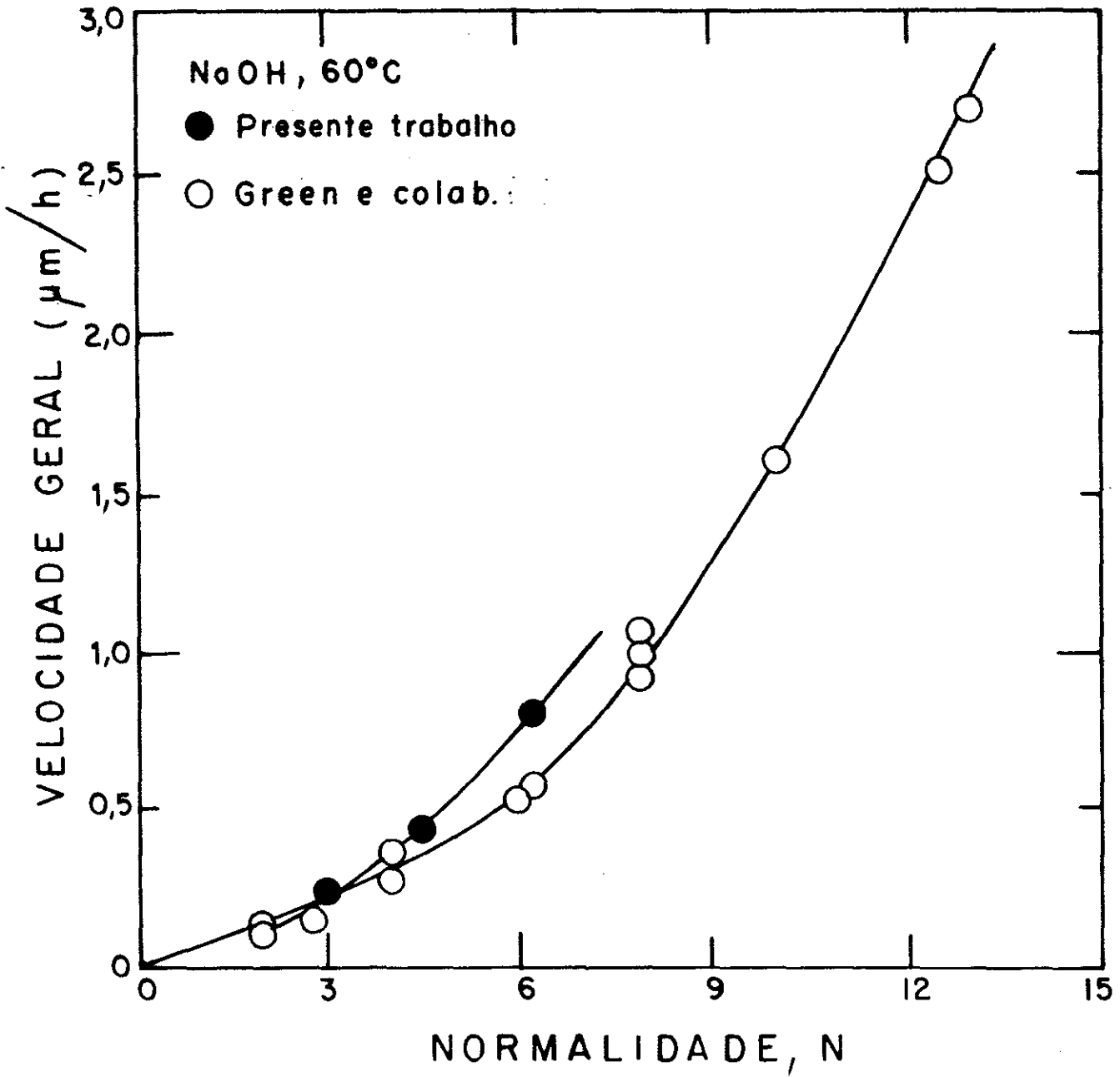


FIGURA 3.2.3 - O mesmo que a Figura 3.2.2 para NaOH-60°C .

- Presente trabalho;
- Green⁽⁴⁰⁾.

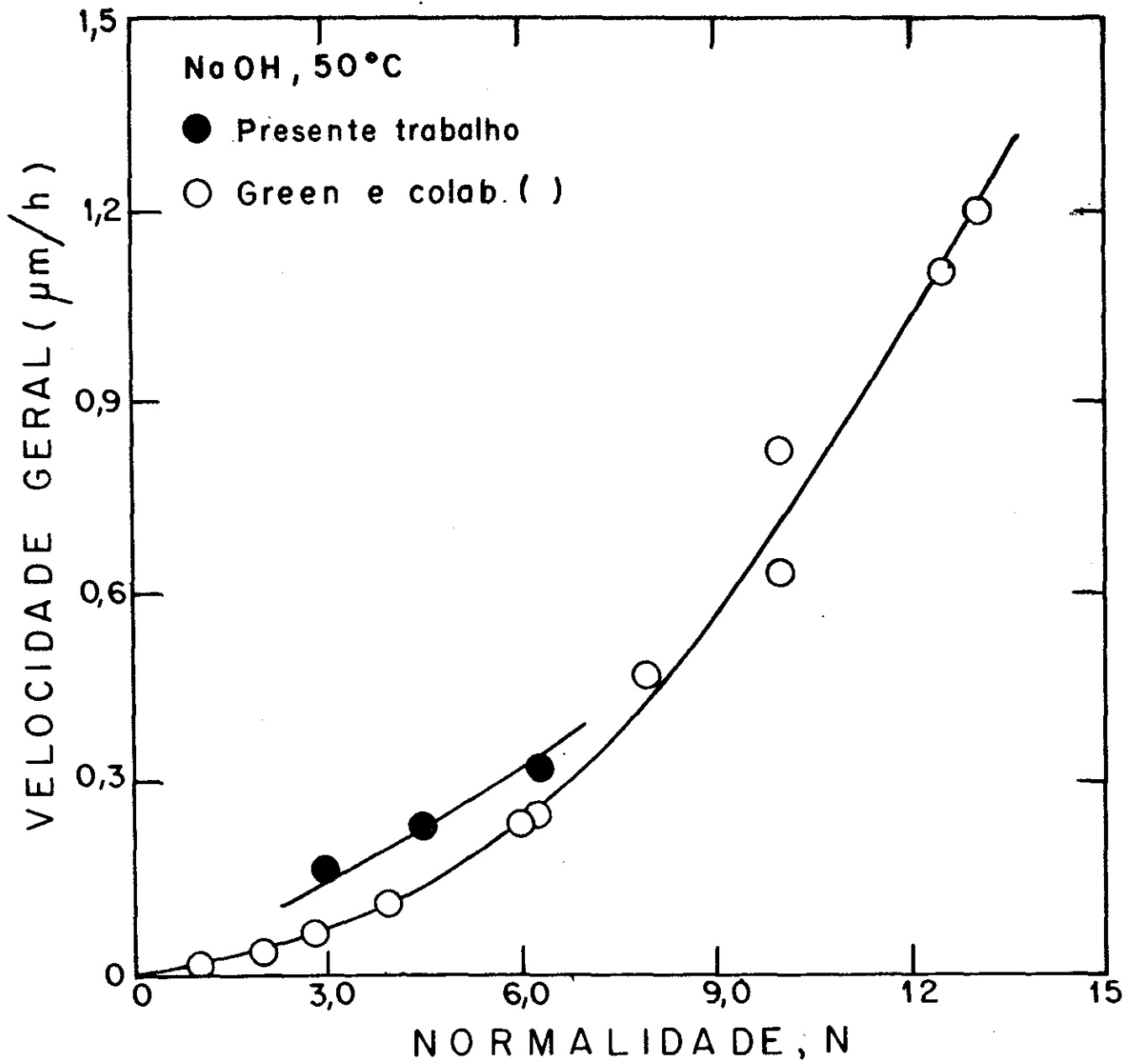


FIGURA 3.2.4 - O mesmo que a Fig. 3.2.2 para NaOH-50°C:

● Presente trabalho;

○ Green e colaboradores⁽⁴⁰⁾.

amostras de CR-39 utilizadas e ii) pequeno número de dados experimentais. No entanto, o andamento das curvas está em boa concordância. Outro gráfico que ilustra a variação de V_g com as condições de ataque químico está mostrado na Figura 3.2.5.

As energias de ativação do processo de ataque químico, para o caso de CR-39, foram calculadas a partir da dependência do V_g com a temperatura, para soluções de NaOH (3N, 4,5N e 6,25N) conforme mostrado na Figura 3.2.5. As retas foram obtidas pelo método dos mínimos quadrados à equação de Arrhenius

$$V_g = V_0 e^{-E_a/kT},$$

sendo k - Constante de Boltzmann ($8,617 \times 10^{-5}$ eV/K),

T - Temperatura absoluta,

E_a - Energia de ativação,

onde as inclinações das retas, para cada normalidade, estão relacionadas às energias de ativação, Tabela 3.2.2.

TABELA 3.2.2 - Valores das energias de ativação do processo químico para diferentes normalidades da solução de ataque químico.

Normalidade (NaOH)	Energia de Ativação E_a (eV)
6,25N	$0,6 \pm 0,2$
4,5N	$0,39 \pm 0,09$
3,0N	$0,29 \pm 0,07$

Os valores encontrados mostram que os resultados diferem de outros detectores, tais como vidro, lexan e makrofol, pois para esses detectores as energias de ativação não variam

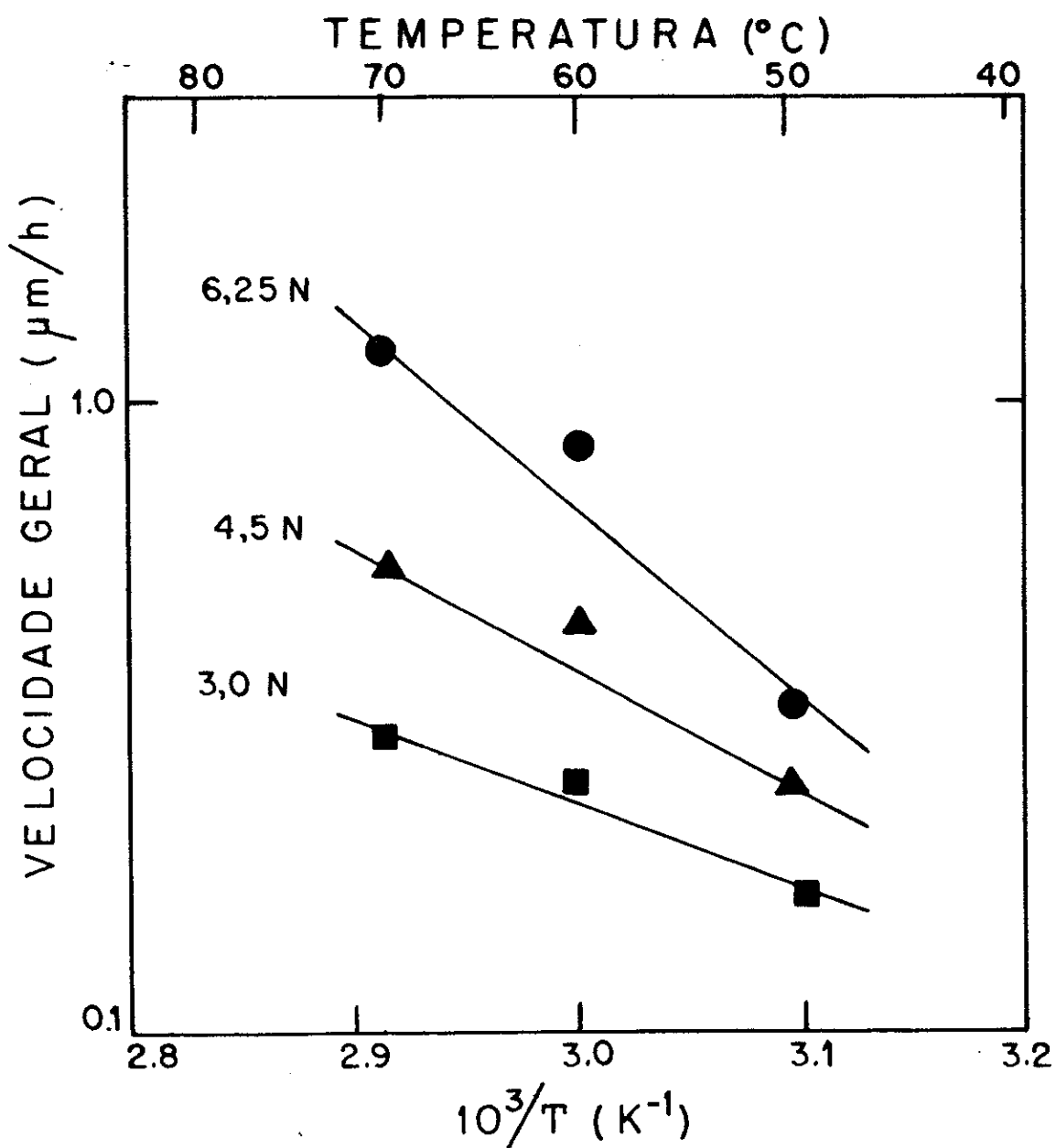


FIGURA 3.2.5 - Variação de V_g com a temperatura de ataque químico para diversas normalidades.

com a normalidade da solução, como no presente caso. Uma explicação para este fato pode ser encontrada observando-se a estrutura "cross-linked" do CR-39 em comparação com os demais detectores. Quando a normalidade e a temperatura são altas, a solução age nas regiões de traços latentes deixando-os parcialmente revelados cheios de resíduos de produtos da reação que vão dificultando a própria solução de continuar o ataque químico alterando, desta forma o valor final da energia de ativação, que resulta maior. Quando a temperatura é mais baixa a ação da solução de ataque químico é menos enérgica havendo, assim, uma diminuição da formação de resíduos, e o valor da energia de ativação tende a ser menor.

Não foi testado neste trabalho, mas uma verificação deste problema seria mediante ataques químicos com agitação, pois assim não seria permitido que os resíduos dos produtos de reação impedissem o prosseguimento normal do ataque químico.

Ruddy e col. ⁽⁶²⁾, fazendo estudos sobre o tempo de indução, t_0 , em Nitrato de Celulose, sugeriram uma correlação entre t_0 e parâmetros característicos dos íons estudados, tais como Z e $\beta = v/c$ (onde v é a velocidade da partícula incidente e c a velocidade da luz no vácuo). Partículas com ionização alta, como fragmentos de fissão, deixam traços visíveis em plásticos depois de um pequeno tempo de ataque químico, enquanto que partículas com baixa ionização, como partículas alfa, prótons e outras, mostram traços visíveis apenas depois de submetidas a longo período de ataque químico.

No presente trabalho, é mostrado que o detector

CR-39 discrimina bem as partículas alfa do Cf^{252} dos fragmentos de fissão através do tempo de indução, que pode ser obtido diretamente dos gráficos de variação de diâmetro como tempo de ataque químico, utilizando o método dos mínimos quadrados. Os gráficos mostram tempos de indução para fragmentos de fissão muito menores que para partículas alfa (vide Tab. 3.2.1).

As Figuras 3.1.3 e 3.1.5, mostram que os traços de partículas alfa e fragmentos de fissão são revelados para tempos menores que o tempo de indução para a remoção do material não danificado [$t_0 = (3,8 \pm 0,4)$ horas em solução de NaOH , 6,25N a 70°C ⁽⁵⁷⁾]. Isto sugere que as partículas nucleares perdem uma quantidade de energia necessária para produzir danos reveláveis na superfície do detector. O efeito de V_g e V_t deve se manifestar somente na região onde a partícula incidiu, e como a densidade de danos é grande, o fenômeno de formação do traço é iniciado antes que as partes não danificadas pela passagem do íon sofram efeito de V_g .

Os gráficos da Figura 3.2.6 mostram a dependência do tempo de indução com a temperatura e a normalidade de solução de ataque químico, tanto para partículas alfa como para fragmento de fissão.

A premissa de Ruddy ⁽⁶²⁾ sobre a dependência do tempo de indução com a temperatura foi também mostrada por Grabez ⁽⁶³⁾ e reafirmada por nós com os resultados do presente trabalho. Quanto menor a temperatura maior o tempo de indução. Devemos acrescentar além disso a grande dependência de t_0 com a normalidade da solução, ou seja, quanto maior a normalidade menor o tempo de indução.

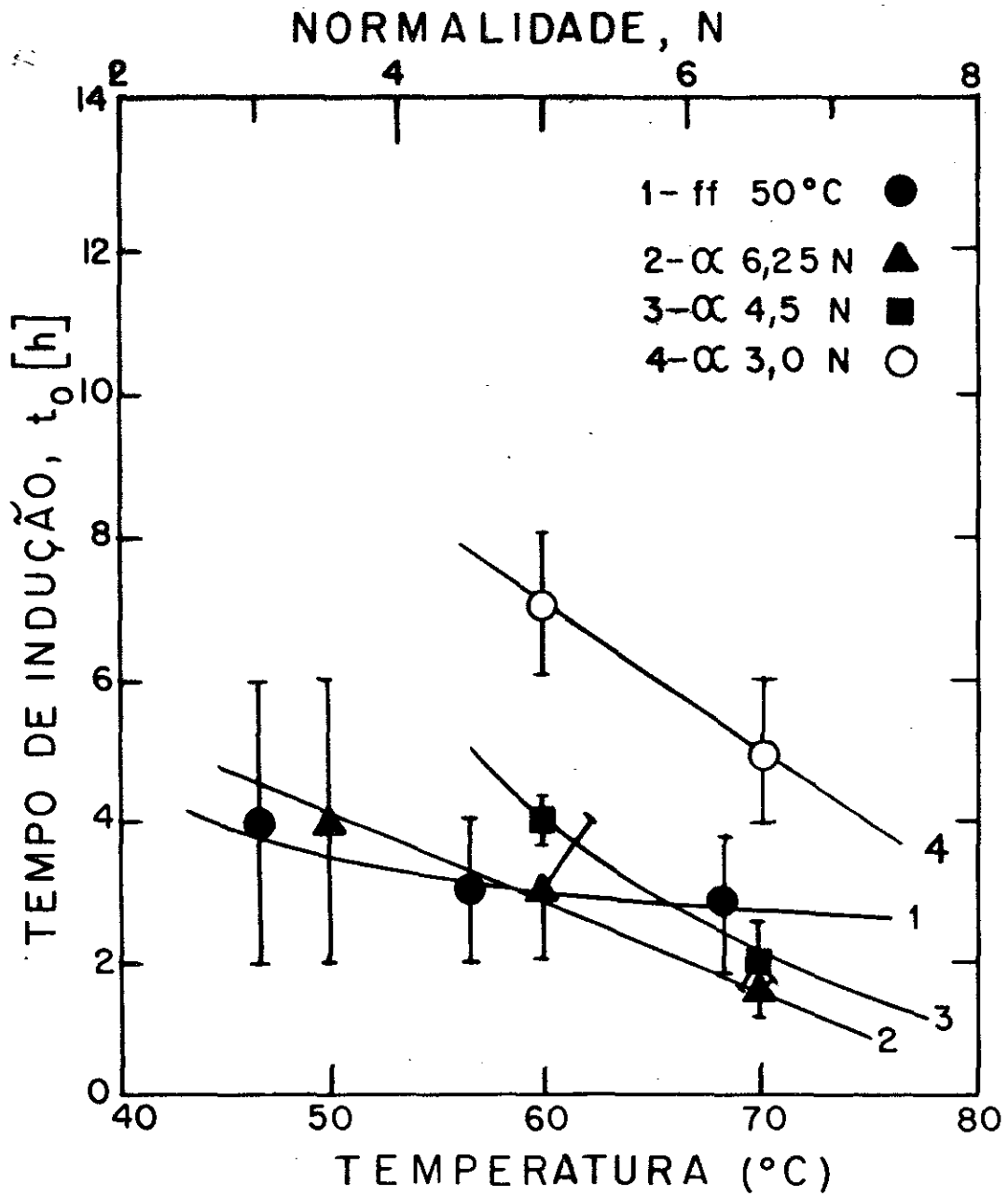


FIGURA 3.2.6 - Variação do tempo de indução com a temperatura (eixo horizontal inferior) e com a normalidade (eixo horizontal superior); 1) Fragmentos de fissão 50°C ● ; 2) Partículas alfa 6,25N ▲ ; 3) Partículas alfa 4,5N ■ ; 4) Partículas alfa 3,0N ○ .

3.3 - EFICIÊNCIA E ÂNGULO CRÍTICO DE REVELAÇÃO DE TRAÇOS DE FRAGMENTOS DE FISSÃO E PARTÍCULAS ALFA NO CR-39

O método utilizado na determinação da eficiência de registro de traços consistiu de exposição de uma amostra de CR-39, no vácuo, a fragmentos de fissão e partículas alfa da fonte de Cf^{252} que veio sendo utilizada no presente trabalho. Na Figura 3.3.1 é mostrado, esquematicamente a geometria do arranjo experimental usado, conforme mostrado na Figura 3.3.2.

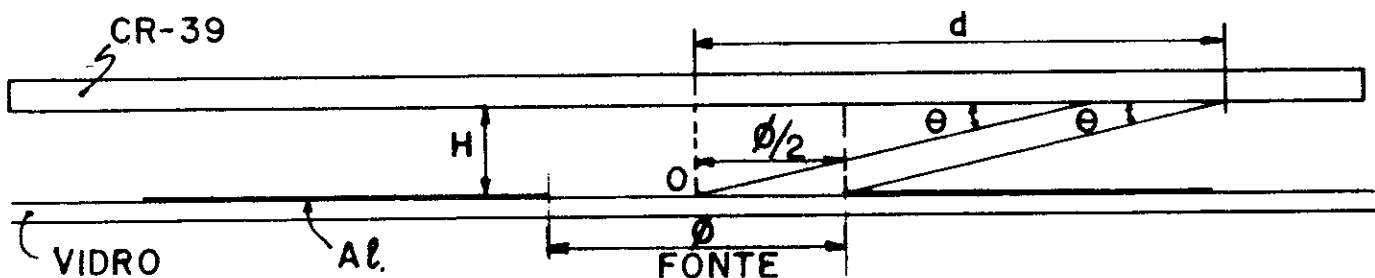


FIGURA 3.3.1 - Perfil esquemático da geometria do arranjo experimental usado para a determinação do ângulo crítico de revelação de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão.

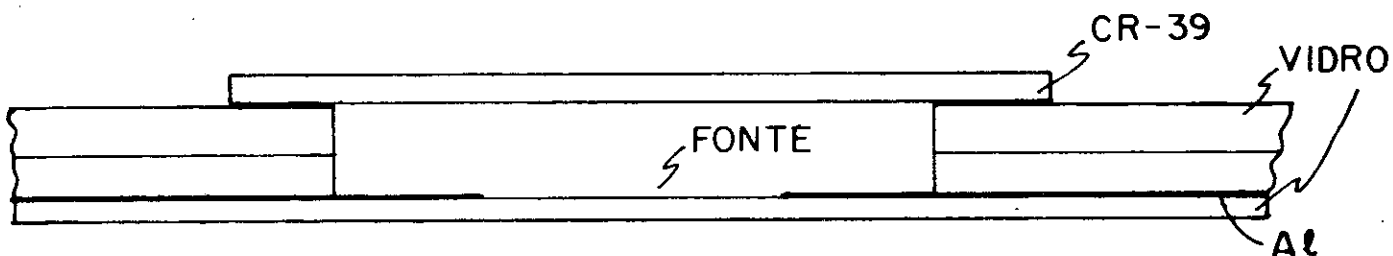


FIGURA 3.3.2 - Vista de frente (ou transversal) do arranjo experimental utilizado.

A fonte foi colocada sobre uma lâmina de vidro e blindada com uma folha de alumínio de 28µm de espessura, que possuía uma janela circular com diâmetro de 5mm, cujo centro coincidiu com o centro da fonte. O objetivo da blindagem foi evitar que fragmentos de fissão provenientes dos bordos da fonte prejudicassem a obtenção de uma imagem bastante uniforme da fonte após o ataque químico. Sobre a blindagem de alumínio, foram colocados dois pares de lâminas de vidro, totalizando 2883µm de espessura cada par, paralelos e, separados por cerca de 15mm. O detector CR-39 foi apoiado sobre as lâminas de vidro.

Foram expostas três amostras de CR-39, com tempos de exposição variando entre 40 minutos e 12 horas, com o intuito de saturar as amostras com traços dos fragmentos nucleares, delimitando as regiões a serem observadas. O ataque químico, depois da exposição foi feito com uma solução de NaOH de normalidade 6,25, em duas temperaturas distintas, 70°C e 50°C, com tempos de ataque químico respectivamente iguais a 5,0 horas e 20 horas. As amostras foram então levadas ao microscópio óptico, onde foram medidas as grandezas relevantes, com aumento de 400X, para o cálculo do ângulo crítico. Esse cálculo foi feito a partir da equação (3.3.1), obtida da geometria da Figura 3.3.1,

$$\theta_c = \arctg \frac{H}{d - \frac{\phi}{2}}, \quad (3.3.1)$$

onde H é a espessura de vidro, $\phi/2$ é o raio da fonte e d é a distância a partir do centro da imagem da fonte até o último

registro de partículas. Sendo a eficiência de registro expressa por $\varepsilon = 1 - \sin\theta_c$ [cf. eq. (1.3.14)], conseguimos construir a Tabela 3.3.1, que mostra os resultados encontrados para os ângulos críticos e eficiência nas condições experimentais do presente trabalho.

TABELA 3.3.1 - Resultados experimentais sobre ângulo crítico de revelação e eficiência para diferentes partículas carregadas em CR-39.

Temperatura de ataque químico	Partículas alfa		Fragmentos de fissão	
	Ângulo crítico	Eficiência	Ângulo crítico	Eficiência
50°C	32°±3°	~ 47%	—	—
70°C	29°±3°	~ 52%	~ 3°	~ 94%

Para se obter melhor precisão nas medidas das distâncias envolvidas, como mostra a Figura 3.3.1, foi feita a distribuição de contagem de traços registrados campo a campo, observados a cada 0,5 mm do Vernier do microscópio ótico, varrendo toda uma faixa passando pelo centro da imagem da fonte (veja Figura 3.3.3). A metade da distância onde traços foram observados fornece a distância do centro da imagem da fonte até o limite de observação de traços (d).

Comparando os resultados do presente trabalho com os encontrados por Khan e Durrani⁽⁶⁴⁾, que usaram fragmentos de fissão emitidos por uma fonte de Cf^{252} e registrados em Lexan e Makrofol, a eficiência de registro de CR-39 para fragmentos de fissão é aproximadamente a mesma que a do Lexan e Makrofol. Devido à grande sensibilidade do CR-39, acreditamos que com o aperfeiçoamento do método usado neste trabalho é possível chegar-se a um valor de eficiência ainda maior para o registro de fragmentos de fissão.

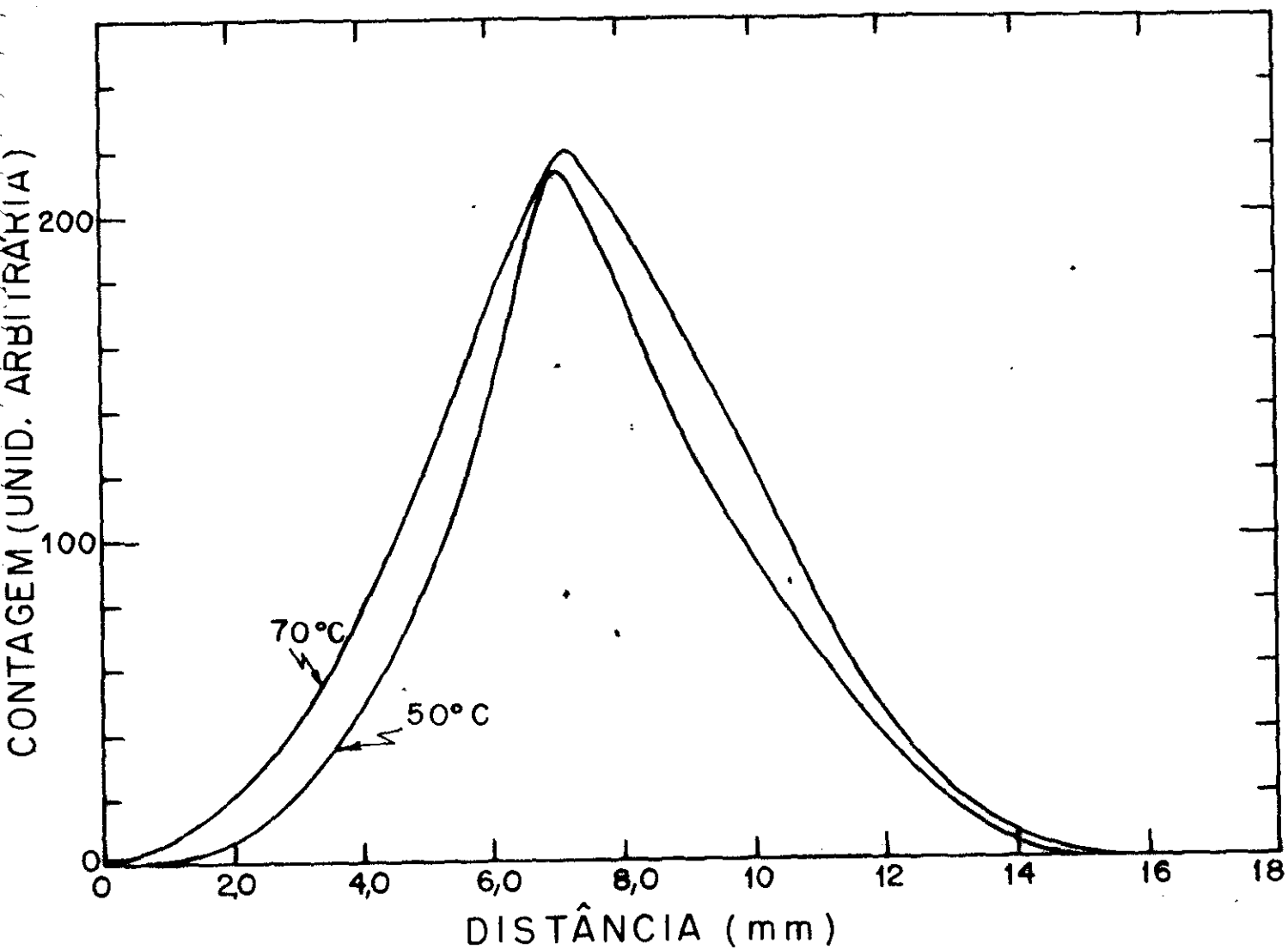


FIGURA 3.3.3 - Distribuição de contagem de traços de partículas alfa no CR-39 resultante do arranjo experimental esquematizado na Figura 3.3.2.

3.4 - CONCLUSÕES

No presente trabalho, foi utilizado o detector sólido de traços CR-39 para determinar algumas características de registro de fragmentos de fissão e partículas alfa. Uma fonte ordinária de Cf^{252} foi utilizada como meio de se obter as diferentes partículas carregadas. Após exposição no vácuo de várias amostras do detector à fonte, procedeu-se ao ataque químico com soluções de NaOH a diferentes temperaturas e diferentes tempos de revelação. Das observações feitas ao microscópio ótico e da análise dos dados obtidos foi possível estudar vários parâmetros de caracterização dos traços revelados e do próprio detector. Alguns desses resultados foram comparados com os obtidos por outros autores. Embora ainda existam imperfeições nos métodos utilizados, bem como erros inerentes às medidas realizadas, os resultados do presente trabalho permitem concluir que:

- 1 - Melhores condições de discriminação entre fragmentos de fissão e partículas alfa são obtidas com soluções de ataque químico de NaOH 6,25N a 70°C . Nestas condições, verifica-se que não só o diâmetro dos traços de fragmentos de fissão, mas também a taxa de variação deste, são substancialmente maiores que os correspondentes às partículas alfa, permitindo uma diferenciação entre estes dois tipos de fragmentos nucleares sem ambigüidade.
- 2 - Um outro modo de diferenciação entre os fragmentos de fissão e partículas alfa é o tempo de indução para revelação de traços destas partículas carregadas. De acordo com o

que foi observado, quanto maior o grau de ionização mais rapidamente o traço se apresenta revelado ao nível de observação ao microscópio ótico.

- 3 - Mesmo em condições de revelação menos severas (como, por exemplo, menor concentração de NaOH) consegue-se boa discriminação entre traços de fragmentos de fissão e partículas alfa para tempos de ataque químico prolongados (~ 20 h).
- 4 - A velocidade geral de ataque químico, V_g , aumenta com a normalidade e com a temperatura do banho revelador, e os resultados do presente trabalho estão em bom acordo com os resultados de outros autores.
- 5 - As energias de ativação para dissolução do material detector com solução de NaOH variam com a normalidade da solução, resultado este que difere para outros detectores. A conclusão é que, provavelmente, a falta de agitação durante o ataque químico dificulta a retirada dos resíduos dos produtos da reação que impedem a continuação do processo de revelação.
- 6 - Os tempos de indução para revelação dos traços de partículas carregadas diminuem com o aumento da normalidade e temperatura da solução de ataque químico, tanto para fragmentos de fissão quanto para partículas alfa.
- 7 - As razões das atividades alfa e de fissão A_α/A_f da fonte de Cf^{252} medidas ao longo do tempo com CR-39, em conjunto com dados obtidos por espectrometria alfa com detectores de Silício de barreira de superfície e medidas anteriormente obtidas com emulsão nuclear, permitiram estabelecer o te

or de impureza de Cf^{250} na fonte.

- 8 - O CR-39 é praticamente 100% eficiente para a detecção de fragmentos de fissão, isto é, comparável em eficiência a outros detectores sólidos de traços como o Makrofol e a Mica. Ao contrário, possui eficiência de detecção de cerca de 50% para partículas alfa, que é das melhores quando comparada à de outros detectores plásticos para registro de traços de partículas alfa (Nitrato de Celulose) (65).
- 9 - Como conclusão complementar, o CR-39 é um detector de alta sensibilidade, porém seu uso exige cuidados especiais devido ao alto "background" existente, provocado por defeitos na estrutura e sua possibilidade de detectar contaminações ambientais.

Para finalizar, deve ser destacada a importância de se estudar as características de registro de traços de partículas carregadas em CR-39, dada a sua larga utilização em diversas áreas da Ciência e Tecnologia, tais como pesquisa de Urânio, monitoração de alfa-emissores no ambiente, detecção de raios cósmicos, dosimetria de neutrons, reações nucleares, e outras.

BIBLIOGRAFIA

- (1) - D.A. Young, Etching of Radiation Damage in Lithium Fluoride, *Nature*, 182 (1958) 375.
- (2) - E.C.H. Silk e R.S. Barnes, Examination of Fission Fragment Tracks with an Eletron Microscope, *Phil. Mag.* 4 (1959) 970.
- (3) - P.B. Price e R.M. Walker, Chemical Etching of Charged Particle Tracks, *J. Appl. Phys.* 33 (1962) 3407.
- (4) - R.L. Fleischer e P.B. Price, Tracks of Charged Particles in High Polymers, *Science* 140 (1963) 1221.
- (5) - R.L. Fleischer e P.B. Price, Techniques for Geological Dating of Minerals by Chemical Etching of Fission Fragment Tracks, *Geochim. Cosmochim. Acta* 28 (1964) 1705.
- (6) - R.L. Fleischer e P.B. Price, Charged Particle Tracks in Glass, *J. Appl. Phys.* 34 (1963) 2903.
- (7) - D. Storzer, Spaltspuren des 238-Urans und ihre Bedeutung für die geologische Geschichte natürlicher Gläser, Thesis, Universität Heidelberg (1970).
- (8) - G.A. Wagner, G.M. Reimer, B.S. Carpenter, H. Faul, R. van der Linden e R. Gijbels, The Spontaneous Fission Rate of U-238 and Fission Track Dating, *Geochim. Cosmochim. Acta* 39 (1975) 1279.
- (9) - K. Thiel, Neuere Anwendungen der Methode der Teilchenspuren (Particle Tracks) in Kristallen und Gläsern, Thesis, Universität zu Köln (1973).
- (10) - K. Thiel e W. Herr, The ²³⁸U-Spontaneous Fission Decay Constant Re-Determined by Fission Tracks, *Earth Planet. Sci. Lett.* 30 (1976) 50.
- (11) - B.G. Cartwright, E.K. Shirk and P.B. Price, A Nuclear Track-Recording Polymer of Unique Sensitive and Resolution, *Nucl. Instr. and Meth.* 153 (1978) 457.

- (12) - T. Hayashi e T. Doke, Characteristics of Plastic CR-39 for Detection of Relativistic Cosmic Ray Heavy Nuclei, Nucl. Instr. and Meth. 174 (1980) 349.
- (13) - K.K. Dwivedi, A. Sazena, P. Crombach, E. Reichwein and G. Fiedler, Track Lengths of Heavy Ions in CR-39 and ZnP-Glass Detectors, Nuclear Tracks 12 (1986) 241.
- (14) - M.A. Gomaa and S.A. Kasim, Neutron Personal Dosimetry Using a CR-39 Carbonate Plastic Detector, Nucl. Instr. and Meth. 176 (1980) 579.
- (15) - P.M.C. Brandão e K. Fuzikawa, Testes Auto-Radiomicro - gráficos Comparativos de Nitrato de Celulose e Placa de Polímero CR-39, Nuclebrás (Superintendência Geral de Prospecção e Pesquisa Mineral, Belo Horizonte), Nota Técnica EBHD.PM Nº 08, 1983.
- (16) - V.K. Din and P. Henderson, Application of CR-39 to the Mapping of B in Minerals and Rocks, Proceedings of 11th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Bristol, 7-12 Sept. (1981) 597.
- (17) - C.F. Wong, N. Espie and L.A. Meara, The Measurement of Airborne Alpha Particles Using a CR-39 Nuclear Track Detector, Nucl. Instr. and Meth. 206 (1983) 569.
- (18) - Proceedings of the 6th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Florence, 1966.
- (19) - Proceedings of the 7th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Barcelona, 1970.
- (20) - Proceedings of the 8th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Bucharest, 1972.
- (21) - Proceedings of the 9th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Neuherberg Munchen, 30th Sept.-6th Oct. 1976, F. Granzer, H. Paretzke and E. Schopper Editors (Pergamon Press, 1978).
- (22) - Proceedings of 10th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Lyon, 2-6 July, H.François, J.P. Massue, R. schmitt, N. Kurtz, M. Monnin and S.A. Durrani Editors (Pergamon Press, 1980).

- (23) - Proceedings of the 11th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Bristol, 7-12 Sept. 1981, P.H. Fowler and V.M. Clapham Editors (Pergamon Press, 1982).
- (24) - Proceedings of the 12th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Acapulco (1983).
- (25) - Proceedings of the 13th International Conference on Solid State Nuclear Track Detectors, Roma, 23-27 Sept. , 1985, L. Tommasino, G. Baroni and G. Campos-Venuti Editors (Pergamon Press, 1986).
- (26) - R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications, University of California Press (1975).
- (27) - S.A. Durrani and R.K. Bull, Solid State Nuclear Track Detection, Principles, Methods and Applications, Pergamon Press (1987).
- (28) - R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, The Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charged Particle Tracks in Solids, J.Appl. Phys. 36 (1965) 3645.
- (29) - E.V. Benton, On Latent Track Formation in Organic Nuclear Charged Particle Track Detectors, Rad. Effects 2 (1970) 273.
- (30) - J. Fain, M. Monnin and M. Montret, Heavy Ion Effects in Polymers, 3rd Symposium on Radiation Chemistry, Tihany (Hungria), 1971.
- (31) - R.H. Boyett, D.R. Jhonson and K. Becker, Some Studies on the Chemical Damage Mechanisms Along Charged Particle Tracks in Polymers, Rad. Research 42 (1970) 1.
- (32) - E.V. Benton and W.D. Nix, The Restricted Energy Loss Criterion for Registration of Charged Particles in Plastics, Nucl. Instr. and Meth. 67 (1969) 343.
- (33) - R.L. Fleischer, P.B. Price and R.T. Woods, Nuclear Particle Track Identification in Inorganic Solids, Phys. Rev. 88 (1969) 563.

- (34) - G.E. Blandford Jr., R.M. Walker and J.P. Wefel, Track Etching Parameters for Plastics, Rad.Effects 3(1970)267.
- (35) - P.B. Price, D. Lal, A.S. Tamhane and V.P. Perehygin , Characteristics of Tracks of Ions with $14 \leq Z \leq 36$ in Common Rock Silicates, Earth Planet. Sic. Letter 19 (1973) 377.
- (36) - W. Enge, K. Grabisch, R. Beaujean and K.-P. Bartholmā , Etching Behaviour of a Cellulose Nitrate Plastic Detector under Various Etching Conditions, Nucl. Instr. and Meth. 115 (1974) 263.
- (37) - H.A. Khan, An Important Precaution in the Etching of Solid State Nuclear Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 109 (1973) 515.
- (38) - H.B. Lück, The Effect of Pre-etching on the Properties of CN-Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 131 (1975) 105.
- (39) - W. Tanti-Wipawin, A Method of Measuring Etching Velocities in Plastic Nuclear Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 126 (1975) 597.
- (40) - P.F. Green, A.G. Ramli, S.A.R. Al-Najjar, F. Abudyarad and S.A. Durrani, A Study of Bulk Etch Rates and Track-Etch Rates in CR-39, Nucl. Instr. and Meth. 203 (1982) 551.
- (41) - R.P. Henke and E.V. Benton, On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 97 (1971) 483.
- (42) - G. Somogyi, e S.A. Szalay, Track-Diameter Kinetics in Dielectric Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 109 (1973) 211.
- (43) - H.G. Paretzke, E.V. Benton and R.P. Henke, On Particle Track Evolution in Dielectric Track Detectors and Charge Identification Through Track Radius Measurement, Nucl. Instr. and Meth. 108 (1973) 73.
- (44) - A. Ali and S.A. Durrani, Etched Track Kinetics in Iso -

- tropic Detectors, Nuclea Track Detectors 1 (1971) 99.
- (45) - D.T. Bartlett, What's in a name ? That which we call CR-39..., Radiol. Prot. Bull. n^o 64 (Maio, 1985) 20.
- (46) - I.E. Mustak and F. Strain, Polybasic Acid-Polyhydric Alcohol Esters and Polymers thereof, US Patent 2 (1945) 370.
- (47) - F. Strain, W.E. Bissinger, W.R. Dial, H. Rudolf, B. J. DeWitt, H. C. Stevens and J.H. Langston, Esters of Peroxycarbonic Acids, J. Am. Chem. Soc. 72 (1950) 1254.
- (48) - K. Kinoshita and P.B. Price, Method for Producing Thin Sheets of Proton-Sensitive CR-39 Plastic Track Detectors, Rev. Sci. Instr. 51(1) (1980) 32.
- (49) - D.L. Henshaw, N. Griffiths, O.A.L. Landen, and E.V. Benton, A Method of Producing Thin CR-39 Plastic Nuclear Track Detectors and Their Application in Nuclear Science and Technology, Nucl. Instr. and Meth. 180(1981) 65.
- (50) - S. Szilagyi and G. Somogyi, Calculation of Thermal Effects Occurring During the Manufacture of CR-39 Sheets, Nucl. Tracks & Radiat. Meas. 8 (1984) 171.
- (51) - A.P. Fews and D.L. Henshaw, High Resolution Alpha-Particle Spectroscopy Using CR-39 Plastic Track Detector, Nucl. Instr. and Meth. and Physics Research 223 (1984) 609.
- (52) - K. Ogura, E.V. Benton, A. Frank and T. Atallah, Proton Response of CR-39, Nuclear Track 12 (1966) 527.
- (53) - H.H. Heckman, B.L. Perkins, W.G. Simon, F.M. Smith and W.H. Barkas, Ranges and Energy-Loss Processes of Heavy Ions in Emulsion, Phys. Rev. 117 (1960) 544.
- (54) - Gy. Almási and G. Somogyi, Range and REL Data for Light and Heavy Ions in CR-39, CN-85 and PC Nuclear Track Detectors, Institute of Nuclear Research Debrecen, PF51 Hungary, Atomki Közlemenyek 23 (1981) 99.
- (55) - J. Tripier, G. Remy, J. Ralarosy, M. Debeauvais, R. Stein and D. Huss, Range and Energy Loss Rate for Hea

vy Ions in Makrofol and Cellulose Nitrate, Nucl. Instr. and Meth. 115 (1974) 29.

- (56) - E.S. da Fonseca, T.M.J. Knöfel and O.A.P. Tavares , Bulk Etching Characteristics of CR-39 Track Detectors in Hydroxide Solutions, CBPF-NT-002/82, Dezembro 1983.
- (57) - E.S. da Fonseca, Algumas Características do Detector Sólido de Traços CR-39 para Registro de Prótons e Partículas Alfa de Baixa Energia, Tese de Mestrado - CBPF-CNPq, RJ, 1983.
- (58) - E.V. Benton, A Study of Charged Particle Tracks in Cellulose Nitrate, U.S. Naval Radiological Defense Laboratory, San Francisco, U.S.A., 68 (1968) 14.
- (59) - R. Henke, K. Ogura and E.V. Benton, Standard Method for Measurement of Bulk Etch in CR-39, Nucl. Tracks 12(1986) 307.
- (60) - H.A. Khan and N.A. Khan, Fast Neutron Dosimetry Using a CR-39 Plastic Track Detector, Nucl. Instr. and Meth. 178 (1980) 491.
- (61) - T.A. Gruhn, W.K. Li, E.V. Benton, R.M. Cassou and C. S. Johnson, Etching Mechanism and Behaviour of Polycarbonates in Hydroxide Solution: Lexan and CR-39, Solid State Nuclear Track Detectors, Proceedings of the 10th International Conference, Lyon 2-6 July 1979, H. François et al. Editors (Pergamon Press, 1980), pag. 291.
- (62) - F.H. Ruddy, H.B. Knowles, S.C. Luckstead and G. E. Tripard, Etch Induction Time in Cellulose Nitrate; A New Particle Identification Parameter, Nucl. Instr. and Meth. 147 (1977) 25.
- (63) - B. Grabez, P. Vater and R. Brandt, The Etch-Induction Time (T^{ind}) and Other Registration Properties in CR-39 Detectors for Well-Defined Ions, Nucl. Tracks 5 (1981) 291.
- (64) - H.A. Khan and S.A. Durrani, Efficiency Calibration of Solid State Nuclear Track Detectors, Nucl. Instr. Meth.

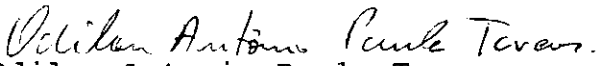
98 (1972) 229.

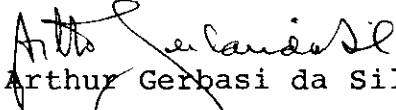
- (65) - T.M.J. Knöfel, I.A. Sachett, A. Marques, J.B. Martins, and O.A.P. Tavares, Critical Rate of Energy Loss for Registration of Charged Particles in Cellulose Nitrate, Nucl. Instr. Meth., 171 (1980) 339.

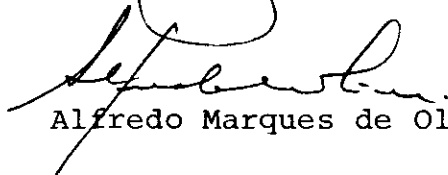
"DETECÇÃO DE FRAGMENTOS DE FISSÃO E PARTÍCULAS ALFA
UTILIZANDO O DETECTOR SÓLIDO DE TRAÇOS CR-39"

RENATO CARDOSO SANTOS

Tese de Mestrado apresentada no Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, fazendo parte da Banca Examinadora os seguintes professores:


Odilon Antonio Paula Tavares
Presidente


Arthur Gerbasi da Silva


Alfredo Marques de Oliveira

Rio de Janeiro, 04 de novembro de 1988