

MAURICIO MOREIRA CORREA

"EFEITOS DE "ANNEALING" NAS CARACTERÍSTICAS DE REGISTRO DE
PARTÍCULAS CARREGADAS NO DETETOR SÓLIDO DE TRAÇOS CR-39"

TESE DE
MESTRADO

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS
Rio de Janeiro, 1989

A meus Pais

MANOEL E EMÍLIA

AGRADECIMENTOS

- Ao Prof. ODILON A.P. TAVARES, pelo apoio, compreensão e segurança com a qual conduziu a orientação deste trabalho;
- Ao Prof. TOM M.J. KNÜFEL, que gentilmente cedeu as amostras de CR-39 utilizadas;
- À equipe de apoio bibliográfico do CBPF/CNPq, pela ajuda na busca de referências especializadas, indispensáveis para a elaboração deste trabalho;
- À colega ELIZABETH MOREIRA, pela assistência dada ao trabalho experimental, e pelo empenho na obtenção das fotografias;
- Aos colegas JOÃO LUCIO, RENATO, JOÃO DE DEUS, EMIL, MIOCO, EDGARD e SÉRGIO, pela colaboração e incentivo;
- Aos Professores JADER B. MARTINS, CHUNG KAI CHEONG, TAKESHI KODAMA e ALFREDO MARQUES, pelos ensinamentos transmitidos;
- À MYRIAM S. COUTINHO, pela eficiência e capricho na composição gráfica deste trabalho;
- Ao CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS/CNPq, que me proporcionou a oportunidade de estudo e desenvolvimento científico.

SUMÁRIO

	Págs.
AGRADECIMENTOS	iii
SUMÁRIO	iv
LISTA DE FIGURAS	vi
LISTA DE TABELAS	viii
RESUMO	ix
INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO I - PRINCÍPIOS DE DETEÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETE- TORES SÓLIDOS DE TRAÇOS	4
1.1 - O polímero CR-39	4
1.2 - Mecanismos de formação de traços latentes	7
1.3 - Revelação do traço latente	12
1.4 - Aspecto do traço revelado	13
1.5 - Perda de energia de fragmentos nucleares em deteto- res sólidos de traços	19
1.5.1 - Perda de energia por ionização e sua represen- tação gráfica	20
1.6 - Geometria do traço revelado	25
1.7 - Conceituação de "annealing"	32
1.8 - Conceituação de energia mínima de ativação	33
1.9 - Modelos para o cálculo da energia mínima de ativação.	36
CAPÍTULO II - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	42
2.1 - Amostras de CR-39	42
2.2 - Exposição das amostras a partículas alfa e fragmen- tos de fissão	42
2.3 - Tratamento térmico	45
2.4 - Ataque químico	48
2.4.1 - Sistema termostático	48
2.4.2 - Condições de Revelação	48

2.5 - Análise dos traços revelados	50
CAPÍTULO III - RESULTADOS EXPERIMENTAIS - DISCUSSÃO	53
3.1 - Efeitos de "annealing" sobre parâmetros caracterís- ticos do CR-39 e dos traços revelados	53
3.1.1 - Velocidade geral de ataque químico	53
3.1.2 - Diâmetro do traço revelado	55
3.1.3 - Densidade de traços revelados	56
3.1.4 - Tempos de indução associados às taxas de dis- solução V_g e V_t	56
3.2 - Caracterização dos modelos e cálculo da energia mí- nima de ativação	60
3.3 - Discussão dos resultados	68
3.3.1 - Efeito de "annealing" sobre o diâmetro dos traços	68
3.3.2 - Comparação entre os resultados calculados e ex- perimentais	68
3.3.3 - Efeito de "annealing" sobre a densidade de traços	70
3.4 - Representação do espectro de energia de ativação para o CR-39 através a curva de Arrhenius	77
3.5 - Conclusões	85
BIBLIOGRAFIA	89

LISTA DE FIGURAS

<u>FIGURAS</u>	<u>Págs.</u>
1.1.1 - Fórmula estrutural do polímero CR-39	4
1.2.1 - Modelo para a formação de um traço latente em detetores do tipo inorgânico	9
1.2.2 - Modelo para a formação de um traço latente em polímero orgânico	10
1.4.1 - Representação esquemática do perfil microscópico do traço formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula	14
1.4.2 - Evolução do traço de fragmento de fissão em função da revelação, considerando V_T constante para diferentes valores de $-dE/dx$	16
1.4.3 - Representação da forma da superfície do traço para V_T crescente(a), constante(b) e decrescente(c), em relação à distância de penetração no detetor	17
1.4.4 - Esquema ilustrando como se distribuem os danos provocados por partículas ionizantes. (a) fragmentos de fissão; (b) partícula alfa	18
1.5.1.1 - Alcance residual em função da energia para prótons no CR-39	22
1.5.1.2 - Perda de energia por ionização de diversos ions no CR-39	23
1.6.1 - Geometria do traço com V_T e V_g constante para partícula com incidência normal à superfície(a) e com ângulo θ de inclinação da trajetória(b)	26
1.6.2 - Representação esquemática da evolução de um traço ao longo do tempo t de revelação	28
1.6.3 - Ilustração da geometria de registro de traço	30
1.6.4 - Representação esquemática do ângulo sólido contendo os traços reveláveis	31
1.7.1 - Ilustração do processo de difusão atômica em detetores sólidos inorgânicos em função do fornecimento de energia térmica através o tratamento de "annealing" .	34

2.2.1	- Representação esquemática da exposição das amostras de CR-39	44
2.3.1	- Representação esquemática do arranjo experimental para tratamento térmico das amostras de CR-39	46
2.4.1	- Representação esquemática do sistema termostático utilizado no ataque químico das amostras de CR-39	49
2.5.1	- Ilustração da distribuição de campos para a contagem de traços na área exposta em cada amostra. (a) partículas alfa; (b) fragmentos de fissão	51
3.1.1.1	- Variação da taxa de dissolução média \bar{V}_g com o aumento do grau de "annealing"	54
3.1.3.1	- Fotografias de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão, registrados em amostras de CR-39 e submetidos a tratamento térmico de "annealing" [escala:1(cm):40(μ m)]	57
3.2.1	- Representação logarítmica da taxa de "annealing" v_a versus $10^3/T(K)$	65
3.2.2	- Representação logarítmica da função $\Delta D/D_0$ versus $10^3/T(K)$	66
3.2.3	- Representação logarítmica da função $-\ln D/D_0$ versus $10^3/T(K)$	67
3.3.2.1	- Variação do diâmetro relativo de traços de partículas alfa registradas no CR-39 em função da temperatura e para diferentes tempos de "annealing"	71
3.3.3.1	- Variação da densidade relativa de traços de partículas alfa registradas no CR-39 em função da temperatura e para diferentes tempos de "annealing"	73
3.3.3.2	- Representação gráfica da variação da razão dos diâmetros em relação à variação da densidade relativa de traços	76
3.4.1	- Curvas de Arrhenius para traços de partículas carregadas registradas em detectores sólidos de traços	77
3.4.2	- Curvas de Arrhenius para traços de partículas alfa no CR-39. (a) valores de energia de ativação obtidos em função da variação relativa da densidade de traços; (b) valores de energia de ativação obtidos em função da variação relativa de diâmetro	79
3.4.3	- Curvas de Arrhenius para traços de fragmentos de fissão registrados em apatita[7]	80

LISTA DE TABELAS

<u>TABELAS</u>	<u>Págs.</u>
3.2.1 - Dados experimentais referentes a traços de partículas alfa registradas no CR-39	63
3.2.2 - Valores de energia mínima de ativação E_{am} calculados a partir das representações gráficas segundo os diferentes modelos	64
3.3.2.1 - Valores obtidos para os parâmetros n , n' , A , B e α_0 , associados aos modelos de "annealing" propostos	68
3.3.2.2 - Comparação entre valores medidos e calculados de v_a , $\Delta D/D_0$ e D/D_0	70
3.3.3.1 - Valores obtidos para os parâmetros β_0 e E_{am} associados à equação 3.3.3.1	74
3.3.3.2 - Variação da densidade de traços de partículas alfa registrados em CR-39 para diferentes condições de "annealing"	75
3.4.1.a - Comparação entre valores de energia de ativação para diferentes combinações de detetor e partículas ionizantes	81
3.4.1.b - Comparação entre valores de energia de ativação para diferentes percentuais de "fading" de origem térmica para registro de partículas carregadas em diferentes detetores	81

RESUMO

Amostras do detetor sólido de traços CR-39, previamente expostas a partículas alfa e fragmentos de fissão de uma fonte de Cf-252, foram submetidas a tratamento de "annealing" objetivando o estudo dos efeitos sobre as características de registro dos traços das partículas carregadas. Os parâmetros estudados foram densidade de traços (número de traços revelados por unidade de área) e diâmetro dos traços, como também foi feita a determinação da energia mínima de ativação do processo de "fading" (desaparecimento gradual dos traços latentes por efeito térmico).

As condições de "annealing" utilizadas no presente trabalho foram obtidas por aquecimento das amostras de 10 em 10°C no intervalo de 100 a 260°C, e durante tempos de aquecimento de 15, 30 e 45 minutos. A revelação dos traços latentes de partículas alfa e de fragmentos de fissão registrados nas placas de CR-39 foi realizada mediante ataque químico em soluções de NaOH 6,25N e à temperatura de 70°C durante 4 horas e 30 minutos. A análise das placas foi feita utilizando-se microscópio ótico de luz transmitida para o estudo das variações de densidade e diâmetro dos traços revelados.

Utilizando-se alguns modelos simples relacionados ao processo de difusão envolvido no "annealing", foi feita uma análise dos dados obtidos, sendo possível estimar em $0,72 \pm 0,05$ eV o valor da energia mínima de ativação do processo de "fading" associado aos traços de partículas alfa. Nas condições do presente trabalho não foi observado "fading" de origem térmica para traços de fragmentos de fissão.

INTRODUÇÃO

As pesquisas sobre detecção de partículas carregadas com o uso de detetores sólidos de traços tiveram início no final da década de cinquenta, quando Young, em 1958, irradiou cristais de fluoreto de lítio com fragmentos de fissão e observou os traços correspondentes após ter submetido estes cristais a um ataque químico com solução de ácido acético e fluorídrico^[1]. Um ano depois, Silk e Barnes^[2] observaram traços de fragmentos de fissão em folhas de mica, fotografando-os com o auxílio de um microscópio eletrônico. Embora alguns autores mencionem os nomes de Silk e Barnes como descobridores de traços de partículas carregadas em sólidos, esta descoberta deve ser atribuída a Young. Tal engano deve-se simplesmente ao fato de que os trabalhos de Young não foram publicados na época.

Após quatro anos, conseguiu-se observar traços de partículas carregadas em folhas de mica com o auxílio do mesmo tipo de microscópio utilizado por Young, o microscópio óptico. Isto foi conseguido graças à descoberta da utilização do ácido fluorídrico (HF) como solução para o ataque químico da mica^[3]. Nos anos de 1963 e 1964 aconteceu um grande avanço técnico em relação às pesquisas com detecção de traços. Foram observados, por Fleischer e Price, traços de partículas carregadas em materiais como polímeros, vidros e minerais, mediante ataque químico^[4-6]. Esta técnica de detecção ampliou não só o quadro de materiais apropriados para registro de traços, como au-

mentou, também, o número de aplicações em diversas áreas científicas relacionadas com a Física Nuclear, como, por exemplo, proteção radiológica, monitoração, medicina nuclear, física de raios cósmicos, alfagrafia, neutrongrafia, prospecção de urânio, medidas de emissão de radônio, etc^[7].

A partir do ano de 1978, com a descoberta e utilização do plástico "thermoset" CR-39 feita por Cartwright, Shirk e Price^[8] os resultados dos trabalhos experimentais relacionados com a detecção de partículas ionizantes mostraram estar completo o espectro de aplicações destes detetores já que, por se tratar de um material detetor extremamente sensível, apresenta excelente resposta para o registro de traços de partículas carregadas, inclusive as menos ionizantes, como prótons e partículas alfa^[9-13].

O objetivo do presente trabalho é caracterizar, de uma maneira geral, os efeitos causados por tratamento térmico ("annealing") a amostras do polímero CR-39 exposto a partículas alfa e fragmentos de fissão, como também fazer uma estimativa da energia de ativação para o processo de desaparecimento gradual da imagem latente, isto é, "fading" de origem térmica.

Fazendo-se um levantamento do que já foi publicado sobre efeitos de "annealing" em CR-39, desde 1979 até os dias de hoje, além de estar bem definido o comportamento da velocidade de dissolução de material, V_g (responsável, por exemplo, pela redução de espessura das amostras), e da velocidade de ataque químico na direção do traço latente V_t , são conhecidas apenas, as energias mínimas de ativação associadas a ions de URÂNIO-238 de energia 16 MeV/nucleon e à ions de NÍOBIO-93 de ener

gia 18 MeV/nucleon^[14]. Não se encontram na literatura trabalhos sobre a determinação, por exemplo, do valor da energia mínima de ativação relacionada ao "fading" de partículas alfa e fragmentos de fissão detectados no CR-39.

Partindo-se do princípio de que os efeitos produzidos por "annealing" em detetores sólidos orgânicos, como é o caso do CR-39, e inorgânicos, como por exemplo o vidro soda lime, são muito semelhantes, os dados experimentais foram tratados pelos mesmos modelos utilizados no estudo de "fading" de traços de fragmentos de fissão registrados em vidro.

No capítulo I é feita uma descrição, não só do detetor sólido de traços CR-39, como também de todo o formalismo teórico relacionado com formação, revelação e evolução geométrica dos traços nos detetores sólidos em geral mostrando, inclusive, as curvas de Perda de Energia por Ionização, tanto para fragmentos de fissão quanto para partículas alfa. Descreve-se, também, o processo de difusão e energia de ativação.

No capítulo II é feito um detalhamento de todo o procedimento experimental relacionado com a exposição das amostras à fonte de Cf-252, com o tratamento de "annealing", com o ataque químico e com o método de observação e contagem de traços, que é feito mediante técnicas de microscopia.

Por último, no capítulo III, calcula-se o valor da energia mínima de ativação para o "fading" inicial da imagem latente de traços de partículas alfa, interpretam-se graficamente os resultados experimentais, os valores dos parâmetros obtidos, e apresentam-se as conclusões.

CAPITULO I

PRINCÍPIOS DE DETEÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETETORES SÓLIDOS DE TRAÇOS

1.1 O Polímero CR-39

Este tipo de detetor sólido de traços é o resultado de um processo de polimerização do monômero líquido formado pelo carbonato de diglicol quando em presença de dois grupos funcionais alílicos $[CH_2 = CH - CH_2 \dots]$ dando origem a uma cadeia de ligações cruzadas (CROSS-LINKED).

A figura 1.1.1 mostra o tipo de estrutura formada pelo monômero e pelos dois grupos funcionais^[9].

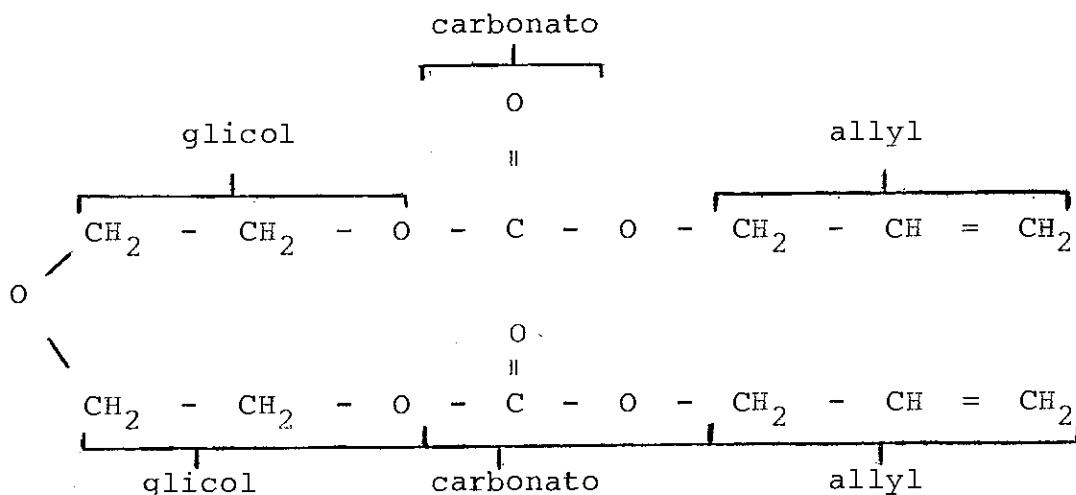


Fig. 1.1.1 - Fórmula estrutural do polímero CR-39

A cadeia de ligações cruzadas "cross-linked" é uma característica do plástico "thermoset" formado, cuja diferença para o tipo termoplástico está no fato de que a rigidez de sua estrutura não sofre modificações frente a variações bruscas de temperaturas. O termoplástico amolece quando aquecido e endurece quando resfriado.

A maioria dos detetores sólidos de traços comumente utilizados, como os polímeros e minerais, tem como características a não homogeneidade e anisotropia. Diferem numa mesma lâmina, após um mesmo ataque químico, em sensibilidade e em volume de material removido.

O plástico CR-39 parece, então, ter superado em muito a maioria dos problemas associados com os polímeros detetores de traços. Este plástico é totalmente amorfo e extremamente sensível a partículas carregadas. Ópticamente tem como característica a excelente transparência, sendo inclusive muito utilizado na fabricação de lentes. Podemos afirmar também que o CR-39 é altamente isotrópico e homogêneo. São solúveis apenas em alguns solventes, com fracas ligações entre as macromoléculas. Outras características do CR-39 que podem ser citadas são a dureza e a infusibilidade.

A polimerização do CR-39, a qual se dá a uma determinada taxa, depende da quantidade e tipo de iniciador e da temperatura do monômero. Os iniciadores mais utilizados são o Peroxidicarbonato de Isopropila (Diisopropyl Peroxidicarbonate-IPP) e o Peroxidicarbonato de Diciclohexila (Dicyclohexil Peroxydicarbonate - CHCP) [15].

Como todo detetor sólido de traços, o CR-39, a-

lêm de exibir também como uma de suas propriedades a alta sensibilidade para registro de partículas carregadas, esta sensibilidade varia com o lote de fabricação. Este comportamento tem sido atribuído a uma não uniformidade no processo de polimerização que, por ser exotérmico, faz com que surjam, de alguma forma, gradientes térmicos nas camadas internas das lâminas. Pode-se atribuir a este tipo de reação a principal causa de quebra da lâmina de CR-39 ao final da fase de endurecimento. A solução monômero-iniciador é injetada entre duas lâminas de vidro e o conjunto tem a temperatura aumentada gradualmente até que esteja completada a polimerização. Se este aumento de temperatura não for bem controlado, pode ocorrer um alto gradiente térmico no conjunto, pois as lâminas de vidro transferem muito pouco o calor gerado na exotermia, ocorrendo então a quebra do produto final.

Entre as cadeias poliméricas, dependendo do polímero, podem ocorrer dois tipos de transformação em função da exposição a partículas carregadas a que são submetidos. Tanto pode ocorrer a formação de ligações primárias, o que faz diminuir a reatividade química local, como pode ocorrer o rompimento da cadeia molecular.

A sensibilidade de um detetor sólido dos traços para registrar partículas carregadas pode ser definida como sendo o valor mínimo de (Z/β) associado à uma determinada

partícula a qual é capaz de produzir um traço revelável neste sólido, onde Z é a carga e β a razão v/c , sendo v a velocidade da partícula e c a velocidade da luz no vácuo. Detetores capazes de registrar partículas carregadas com valores pequenos de Z/β são os mais sensíveis. A sensibilidade para polímeros é tal que valores de Z/β estão situados entre 5 e 100, sendo igual a 1 para as emulsões nucleares, variando entre 150 e 450 para vidros e minerais.

1.2 Mecanismos de Formação de Traços Latentes

A passagem de uma partícula carregada num meio detetor é caracterizada por danos provenientes de interações existentes entre a partícula e a estrutura do material, produzindo uma trilha de defeitos que define a trajetória no meio, a qual denominamos imagem ou traço latente.

A formação desta imagem latente, assim como todo processo físico, pode ter sua explicação em um ou mais modelos, os quais devem estar de acordo com certas evidências experimentais, tais como:

- i) não ocorrência de formação de traços latentes em metais e semicondutores;
- ii) existência de uma perda de energia por unidade de comprimento crítica, $(-dE/dx)_c$ que deve ser característico de cada detetor,
- iii) estabilidade dos traços latentes em relação ao tempo;

Um destes modelos, intitulado "Ponta de Explosão Iônica" (Ion Explosion Spike), foi proposto por Fleischer, Price

e Walker em 1965^[16]. De acordo com este modelo, no caso do detector ter uma estrutura cristalina, ou seja, ser um sólido inorgânico, a partícula carregada ioniza os átomos da região pela qual ela passou (ionização primária), originando uma repulsão mútua entre os ions positivos e, conseqüentemente, a destruição da rede (figura 1.2.1). Caso o detector seja um sólido orgânico como, por exemplo, os polímeros, ocorrerá uma quebra de ligações químicas ou ruptura das longas cadeias moleculares, implicando, conseqüentemente, na formação de radicais livres (figura 1.2.2).

Um outro modelo, denominado "Restricted Energy Loss Model"^[17], também descreve a formação de traços latentes em polímeros. Neste modelo, Benton e Nix propõem que somente as transferências de energia realizadas pelas partículas acima de um dado valor limite de energia denominado "Energia de Corte", sejam responsáveis pela criação de danos efetivamente reveláveis. Benton e Nix ignoram, porém, neste modelo, a energia dissipada pelos elétrons secundários, ou seja, as deposições de energia efetuadas por raios delta cujas energias são superiores às energias de corte existentes no eixo do traço latente. Experimentalmente Benton e Nix constataram que partículas carregadas de baixo poder ionizante (partículas beta, por exemplo), podem produzir danos locais reveláveis nos polímeros, desde que eles absorvam doses de alguns milirads. Segundo Paretzke^[18], todas as deposições de energia realizadas dentro de um cilindro concêntrico à trajetória devem ser levadas em consideração na criação de danos reveláveis, o que torna o modelo de Perda Restrita de Energia, um tanto inconsistente.

Nem todos os modelos descritos, embora se mos-

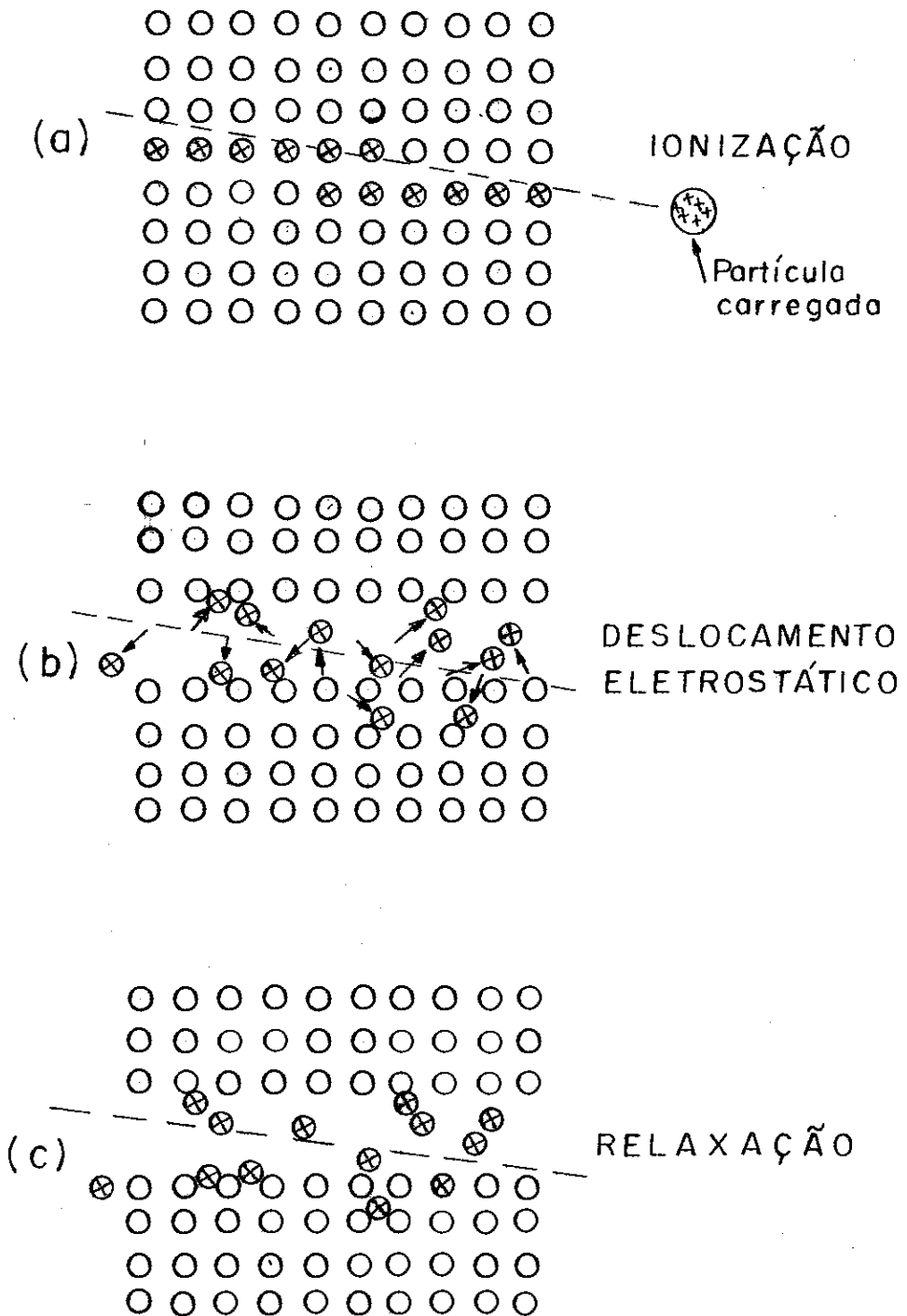


Fig. 1.2.1 - Modelo para a formação de um traço latente em detectores do tipo inorgânico

trem aceitáveis do ponto de vista teórico, estão em concordância com os resultados experimentais, como é o caso dos modelos denominados "Ponta Térmica" e "Ponta de Deslocamento" [19]. Segundo o modelo da Ponta Térmica, as deformações sofridas pela estrutura do meio detetor ao longo da trajetória da partícula carregada são

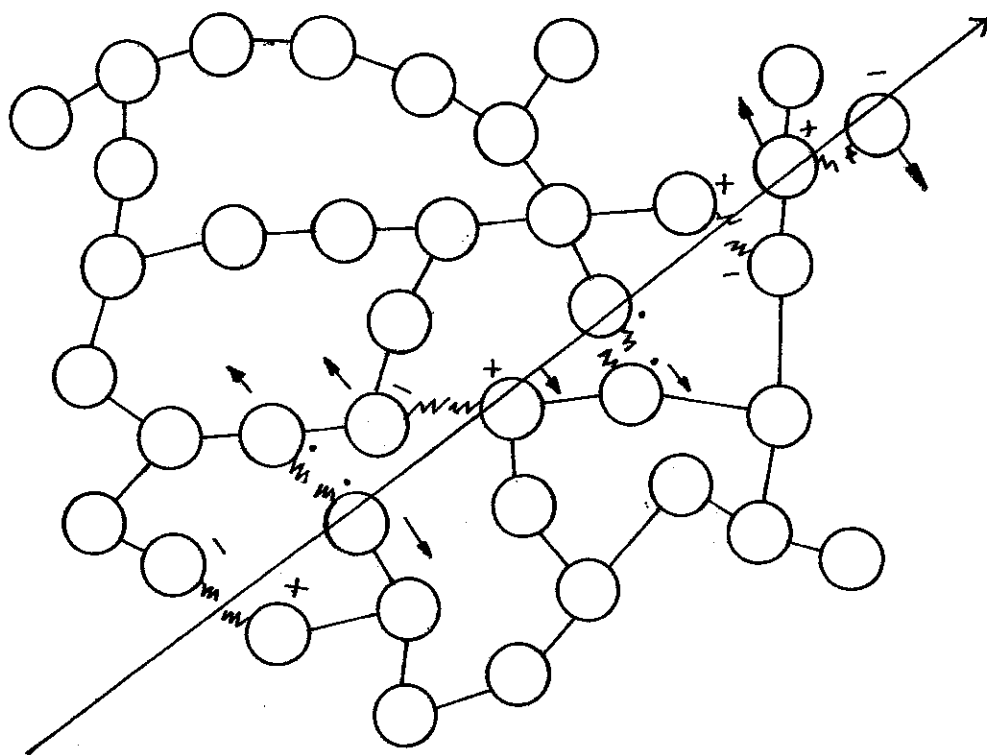


Fig. 1.2.2 - Modelo para a formação de um traço latente em polímero orgânico.

decorrentes de um rápido aquecimento à altas temperaturas, originado pela passagem da própria partícula, e fazendo com que os limiares de detecção tenham, de uma forma ou de outra, alguma relação com esta temperatura. Este modelo considera, inclusive, a hipótese de serem os semicondutores os materiais mais sensíveis. Já o modelo da Ponta de Deslocamento [20-22] define o traço latente como sendo uma formação de vacâncias atômicas ao longo da

trajetória da partícula, decorrentes de choques entre partículas carregadas e átomos. Estas vacâncias seriam os deslocamentos dos átomos para posições intersticiais. Este modelo perde sua confiabilidade ao prever erroneamente a formação de traços nos metais condutores para partículas de baixa energia (1 keV/uma), o que não se verifica experimentalmente, pois, para sólidos como metais e semicondutores, a grande mobilidade dos elétrons livres destes materiais faz com que os átomos existentes na trajetória da partícula sejam neutralizados, não permitindo, portanto, a formação do traço latente.

Dentre todos os mecanismos sobre formação de traços latentes em polímeros, o mais aceito é o mecanismo de danos radioquímicos [23-25], que consiste na criação de produtos reativos de baixo peso molecular devido a rompimentos ao longo das cadeias moleculares. Estes produtos, em comparação com o material do detetor não interceptado por partículas carregadas, tem como outras características, a variação da densidade e o aumento da solubilidade, que em outras palavras significa tornar o poder de dissolução da solução reveladora mais elevado.

Analisando-se mais detalhadamente todo o processo de formação do traço latente em polímeros, não só em função das interações que originam ionizações e excitações, podemos considerar que a formação do traço compreende três fases sucessivas, quais sejam:

- i) fase de absorção de energia ($\approx 10^{-5}$ s);
- ii) fase do estabelecimento do equilíbrio térmico ($\approx 10^{-12}$ a $\approx 10^{-9}$ s);
- iii) fase do estabelecimento do equilíbrio químico ($\approx 10^{-8}$ s a vários anos).

Na primeira fase, cerca de 30% da energia dissipada deve-se a ionizações e excitações primárias e secundárias que acontecem num cilindro de mais ou menos 100 angstroms de raio^[26], representativo da trajetória de partícula. Os danos primários são criados por elétrons com energias entre 9 e 15 eV, enquanto que os danos secundários, com energia de 6 eV.

A dissipação térmica, responsável por reorganizações moleculares, é predominante na fase do estabelecimento do equilíbrio térmico, fase esta que tem como característica a distribuição de energia sob a forma de calor e de criação de energia potencial.

A fase de estabelecimento do equilíbrio químico tem, como consequência, o direcionamento para níveis mais estáveis de moléculas excitadas, ions e radicais livres, pois são espécies formadas em função justamente do calor dissipado e do consequente aparecimento da energia potencial. A não ocorrência de "fading", ou seja, comprimento e densidade de traços mantidos constantes com o decorrer do tempo, desde que o detetor não seja submetido a nenhum tratamento térmico, como o "annealing", é justificada não só pelo aprisionamento dos elétrons em armadilhas, oriundos das ionizações, como também pela fixação de ions e radicais livres.

1.3 Revelação do Traço Latente

Uma vez formada a imagem latente do traço, para que ela se torne visível ao microscópio ótico, faz-se a imersão do detetor sólido numa solução de hidróxido de sódio no caso de

plásticos. Com esse procedimento, o diâmetro dos traços latentes, que é da ordem de 100 angstroms e visível apenas ao microscópio eletrônico, passa a ter dimensões que podem ser observadas ao microscópio ótico (ordem de unidades ou dezenas de micras). Isto é possível considerando-se que estas soluções, ao entrarem em contato com o material detetor, dissolvem mais rapidamente a região ionizada pela partícula carregada na direção de sua trajetória, já que com a quebra de ligações químicas, como no caso do CR-39, ou com a destruição da rede cristalina (no caso de minerais), as regiões de traços latentes tornam-se mais reativas do que as regiões não interceptadas pelas partículas ionizantes.

Ao mesmo tempo em que se dá a dissolução da região ionizada a uma taxa V_t (velocidade de dissolução ao longo do traço), as paredes internas que delimitam a região de danos, bem como a superfície do material, também sofrem ataque químico pela solução, a uma taxa V_g (velocidade geral de dissolução do material). Consequentemente, o diâmetro do traço tenderá a aumentar após um determinado tempo de ataque.

1.4 Aspecto do Traço Revelado

Como foi dito anteriormente, tanto a região ionizada do material detetor, quanto a região não danificada, são dissolvidas pela solução química a diferentes velocidades. Assim, além de fatores como condições de revelação e tipo de detetor utilizado, existe um outro, o qual é considerado como sendo o maior responsável pela forma cônica ou cilíndrica adquirida

pelo traço revelado, que é justamente a diferença existente entre os módulos destas duas velocidades (figura 1.4.1).

A taxa de perda de energia $-dE/dx$, a qual produz a densidade de danos provenientes da passagem da partícula carregada no detetor, ou seja, aquela que mede a ionização da par-

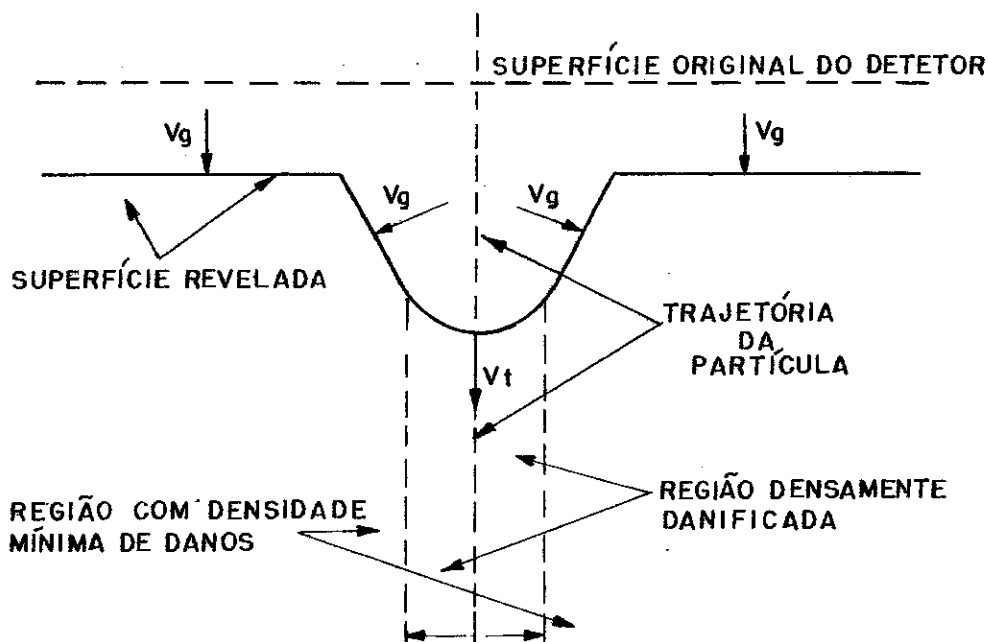


Fig. 1.4.1 - Representação esquemática do perfil microscópico do traço formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula.

tícula carregada, diminui, para fragmentos de fissão, ao longo do traço latente até a dissipação completa da energia do fragmento. Sendo V_t função dos danos provocados pela partícula carregada, será função também de $-dE/dx$. Se V_t for muito maior que V_g , significa que os limites laterais do traço latente serão dissolvidos numa velocidade bem menor do que a velocidade na direção da trajetória da partícula tornando, conseqüentemente, o traço aproximadamente cilíndrico, como é o caso de traços de fragmentos de fissão em mica e makrofol. Nesse caso, tem-se um

$-dE/dx$ muito elevado ao longo da trajetória da partícula. Como a abertura do ângulo de cone, que dá a forma inicial do traço, depende da razão V_t/V_g e, portanto, de $-dE/dx$, quanto maior for o valor de V_t/V_g , mais agudo será o ângulo de cone, de tal maneira que o traço passa a ter uma forma cilíndrica como podemos observar na figura (1.4.2) [27].

Em detetores como vidros, V_t já não é muito maior que V_g para fragmentos de fissão, como também é o caso de partículas alfa em detetores plásticos. Neste caso, os traços poderão apresentar diferentes formas, dependendo de como evolua V_t ao longo do traço, ou seja, se de maneira crescente, constante ou decrescente.

Pode-se compreender melhor estes três tipos de evolução fazendo-se uma analogia com um barco em movimento, onde a sua velocidade é representada por V_t . Considerando-se R como sendo o alcance da partícula incidente no detetor, podemos observar na figura 1.4.3 as possíveis formas de um traço revelado. Quando V_t é crescente, ou seja, dV_t/dR é maior que zero (figura 1.4.3.a), a ionização se dá fracamente na superfície do detetor, e mais intensamente nas camadas interiores. V_t vai aos poucos se tornando bem maior que V_g . Esta é uma característica dos traços de partículas alfa. Para fragmentos de fissão, a situação se inverte (figura 1.4.3.c). Este tipo de partícula ioniza fortemente junto à superfície do detetor e à medida que vai perdendo energia, o seu poder de ionização diminui cada vez mais, o que, em outras palavras, implica em se ter $dV_t/dR < 0$, isto é, decrescente. Esta diferença na maneira como se dá o processo de ionização referente a cada uma

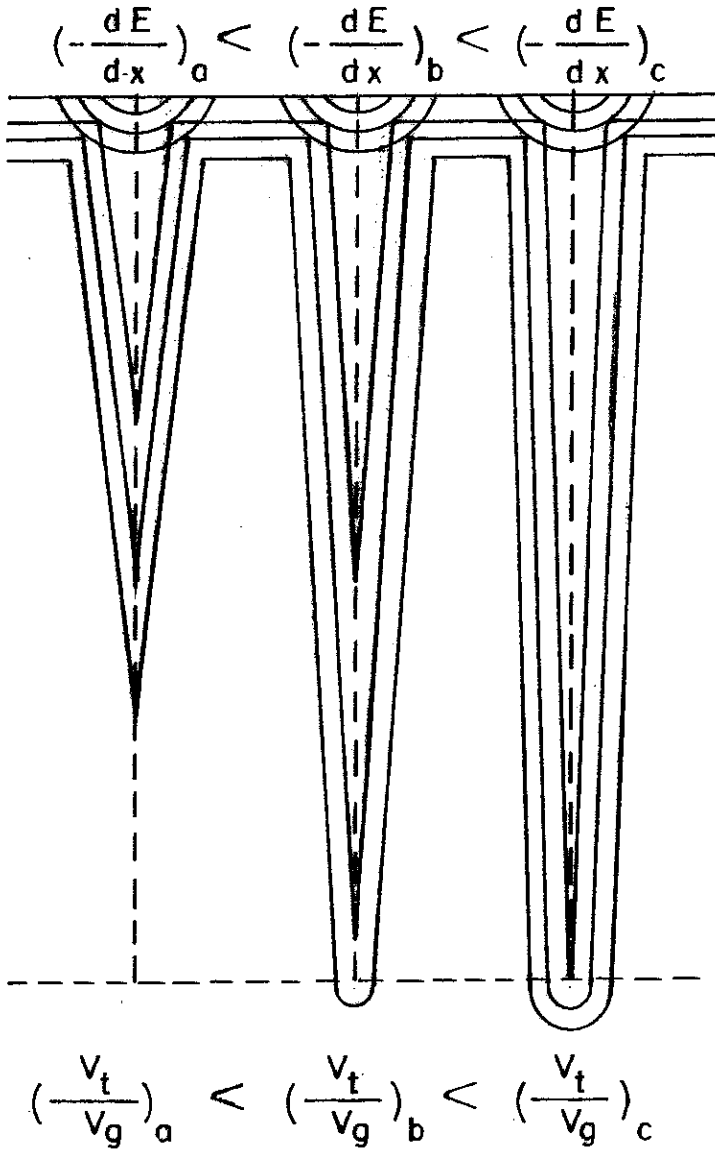


Fig. 1.4.2 - Evolução do traço de fragmento de fissão em função da revelação, considerando V_t constante para diferentes valores de $-\frac{dE}{dx}$

destas partículas, está ligado unicamente aos parâmetros carga Z , massa M e energia E que as caracterizam, podendo ser interpretado qualitativamente da seguinte forma: como partículas alfa têm carga muito pequena ($Z = 2$) e energia da ordem de unidades de MeV quando emitidas por fontes alfa emissoras de uso corrente,

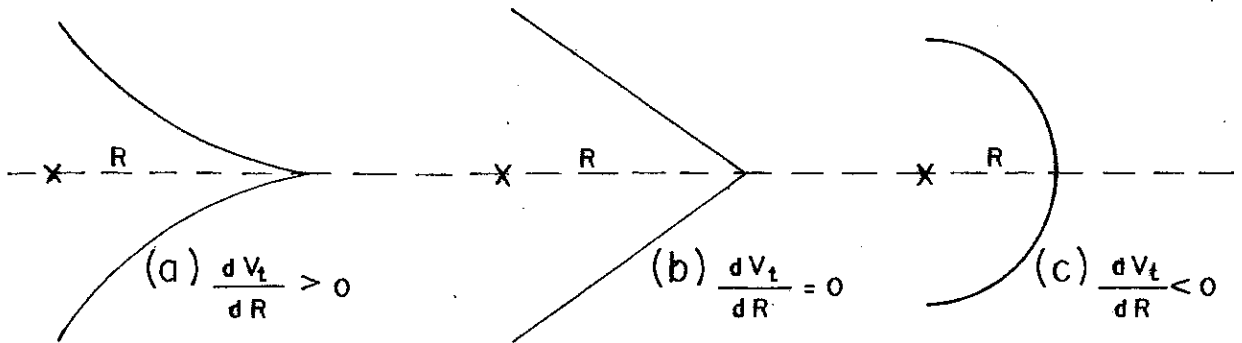


Fig. 1.4.3 - Representação da forma da superfície do traço para V_t crescente (a), constante (b) e decrescente (c), em relação à distância de penetração no detector

a sua velocidade no instante em que incide no detector é extremamente alta para que tenha chance de interagir com os elétrons atômicos das camadas mais superficiais do detector. Portanto, a imagem latente de seu traço nesta região possui uma pequena densidade de danos. Porém, com a redução de sua energia em função da penetração no interior do detector, sua velocidade vai se tornando também cada vez menor e, conseqüentemente, maiores serão as chances de interação com os elétrons do meio. Sendo assim, como a densidade de danos tende a crescer, quando a energia da partícula alfa adquire um valor característico ocorre, então, o grau máximo de ionização, ou seja, é criada a região de maior densidade volumétrica de danos da imagem latente (figura 1.4.4),

que está situada em camadas bem mais abaixo da superfície. A partir daí, com a energia da partícula decrescendo e se afastando do valor de máxima ionização até se anular no final de sua trajetória, o processo responsável pela formação destes defeitos

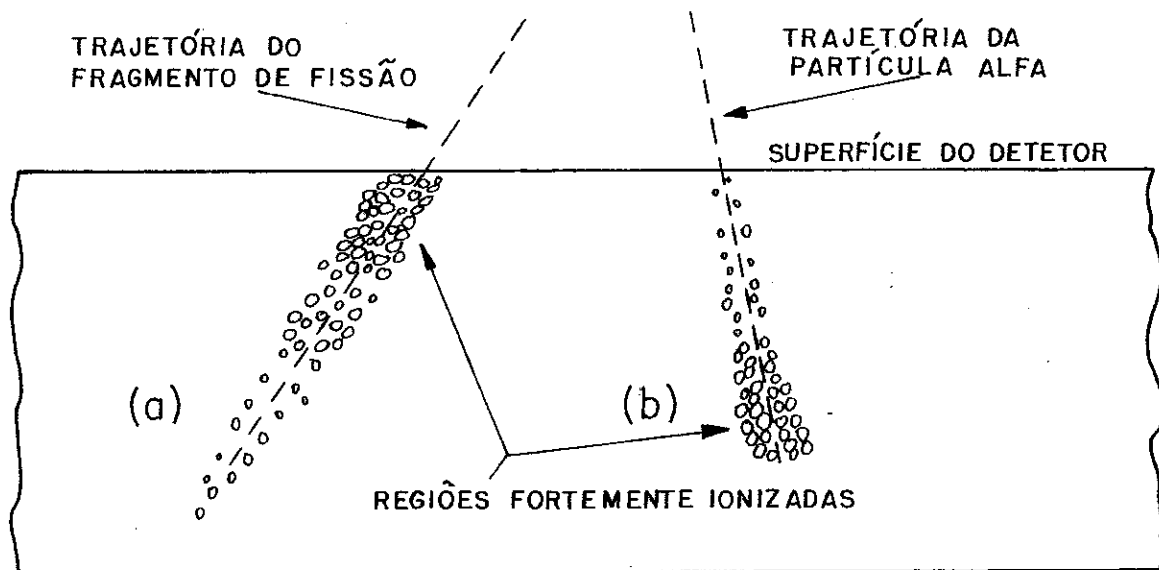


Fig. 1.4.4 - Esquema ilustrando como se distribuem os danos provocados por partículas ionizantes.
(a) fragmentos de fissão; (b) partícula alfa

também se anula e, assim, a imagem latente do traço é interrompida.

Em se tratando de fragmentos de fissão, como estes ions possuem quantidades de carga bem mais elevadas ($Z = 42$ para fragmento leve mais provável e $Z = 56$ para o fragmento pesado mais provável), o que acontece é que, ao atingirem o detector com uma velocidade praticamente igual à da emissão de partículas alfa, a interação com os elétrons atômicos dá-se mais fortemente nas camadas mais superficiais e, à medida que penetram no detector, a imagem latente do traço tende a diminuir até que o fragmento atinja o repouso. Uma análise quantitativa do aspecto de traços latentes será feita no próximo parágrafo.

1.5 Perda de Energia de Fragmentos Nucleares em Detetores Sólidos de Traços

Vários são os mecanismos pelos quais uma partícula carregada cede energia ao penetrar num determinado meio. Porém, os principais mecanismos responsáveis por essa perda de energia, são:

- i) ionização, ou interação com elétrons atômicos;
- ii) colisão elástica com núcleos atômicos;
- iii) emissão de radiação.

Assim, a expressão para a Perda Total de Energia por unidade de comprimento pode ser escrita da seguinte forma:

$$(-dE/dx)_{tot.} = (-dE/dx)_{ioniz.} + (-dE/dx)_{col.} + (-dE/dx)_{rad.} \quad (1.5.1)$$

Em se tratando de fragmentos nucleares, apenas um destes três processos, o de ionização, contribui para a quase totalidade da perda de energia. Os demais são muito pouco significativos. O de colisão elástica é muito pouco provável. Sua contribuição só pode ser considerada quando a partícula se encontra próximo do final de sua trajetória já que, a partir daí, a ionização torna-se menos importante. Em relação à perda de energia por emissão de radiação, esta também pode ser desprezada, uma vez que, para uma partícula emitir radiação ao ser acelerada ou desacelerada no campo coulombiano do núcleo, além de sua velocidade ter que ser superior à velocidade de fase da luz no meio, a intensidade da radiação emitida varia com o inverso do quadrado de sua massa. Portanto, para partículas alfa e fragmentos de

fissão, cujas velocidades são bem menores do que a velocidade da luz em qualquer meio, o fenômeno é praticamente desprezível, sendo significativo somente para partículas leves como os elétrons.

1.5.1 - PERDA DE ENERGIA POR IONIZAÇÃO E SUA REPRESENTAÇÃO GRÁFICA

A energia que um próton ou outro tipo de fragmento nuclear carrega ao penetrar num determinado meio material é perdida no processo de ionização. Partindo-se do princípio de que as cargas de fragmentos nucleares são maiores que a carga unitária do próton, se considerarmos suas velocidades como sendo iguais à desta partícula, isto é, iguais a $\beta = v/c$, onde c é a velocidade da luz no vácuo, podemos, então, afirmar que as ionizações provocadas pelos ions e pelo próton serão sempre diretamente proporcionais em qualquer instante. Nesse caso, tem-se para a expressão utilizada no cálculo da perda de energia por ionização de partículas alfa e de fragmentos de fissão, a seguinte forma:

$$(-dE/dx)_{\text{ioniz.}} = [Z^*(\beta)]^2 \cdot [-dE/dx(\beta)]_{\text{próton}} \quad (1.5.1.1)$$

sendo $Z^*(\beta)$ a "CARGA EFETIVA" do fragmento que, segundo Heckman e colaboradores^[28], é calculada pela equação de uma curva universal dada por:

$$Z^*(\beta) = Z(1 - e^{-125 \beta/Z^{2/3}}) \quad (1.5.1.2)$$

onde Z é a carga do íon.

As representações gráficas da equação (1.5.1.1), feitas em função das energias médias por núcleon E/N dos fragmentos nucleares cujas velocidades coincidem com a do próton, são justamente as curvas apresentadas pela figura (1.5.1.2).

É importante observarmos, como Heckman e colaboradores [28] primeiramente o fizeram quando estudaram perdas de energia por ionização de vários ions em emulsão "Ilford" e analisaram dados experimentais relacionados com ionizações no ar e no neônio, que na equação (1.5.1.2), a grandeza Z^*/Z necessária para produzir a quantidade de ionização observada experimentalmente não depende do meio onde o íon se desloca, e sim de sua velocidade reduzida $\beta/Z^{2/3}$.

Para se obter as curvas apresentadas na figura (1.5.1.2), procedeu-se da seguinte maneira: com os dados numéricos fornecidos por uma tabela de alcance (X) - energia (E), para prótons de $E < 2$ MeV incidentes no CR-39 [29], construiu-se um gráfico (X) versus (E), (figura 1.5.1.1) conhecendo-se assim, os valores para as ionizações [$-dE/dx$ (β)] para o próton. Em seguida, substituindo-se na equação (1.5.1.2) as velocidades β correspondentes a cada uma das energias da tabela, calculadas por intermédio da expressão:

$$\beta = 0,0463 \cdot [E(\text{MeV}) / M(\text{a m u})]^{1/2}, \quad (1.5.1.3)$$

foram então determinadas as cargas efetivas $Z^*(\beta)$ dos ions e, conseqüentemente, as perdas de energia $-dE/dx$ pela equação (1.5.1.1).

Analisando-se a figura (1.5.1.2), onde se mostra

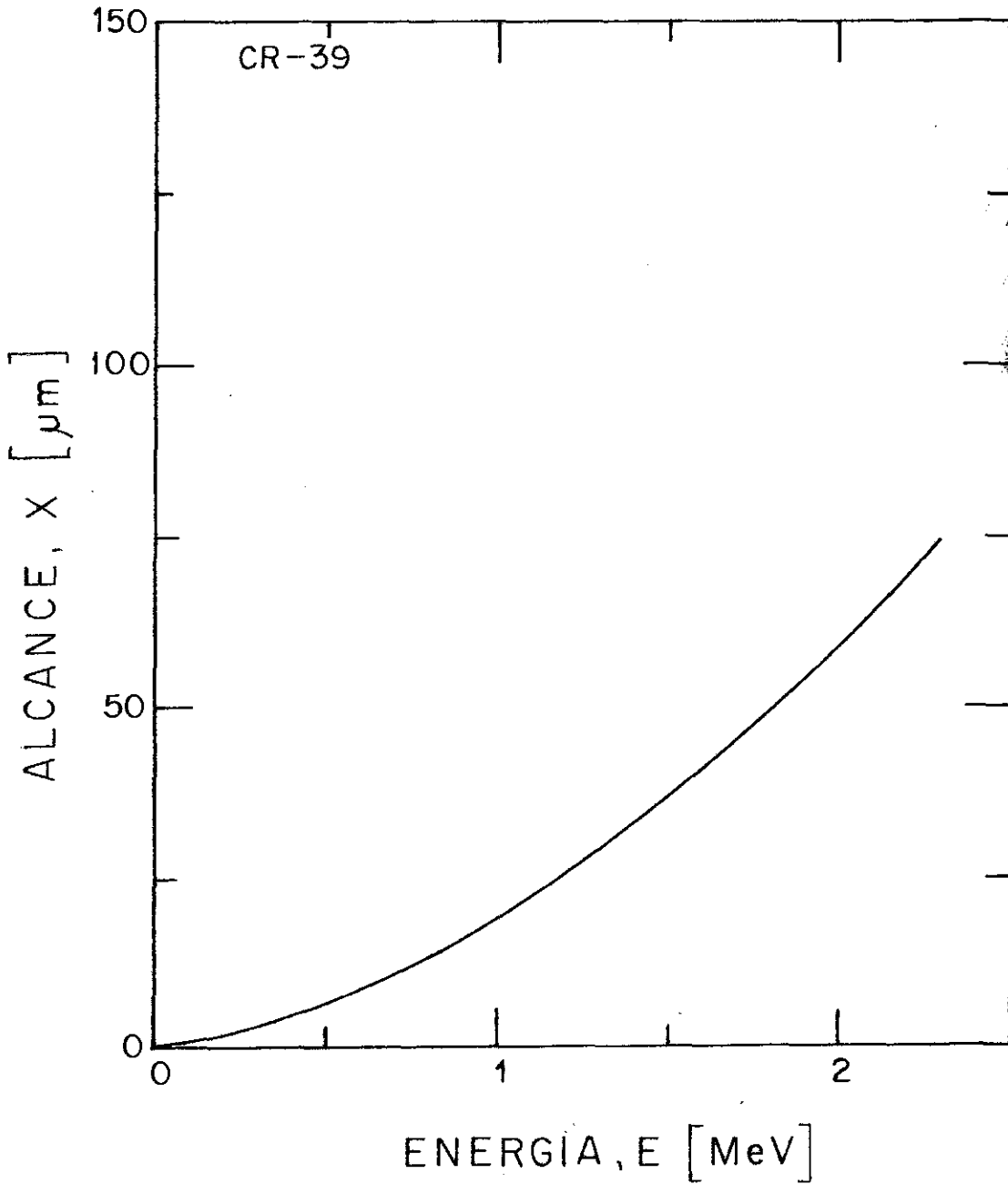


Fig. 1.5.1.1 - Alcance residual em função da energia para prótons no CR-39

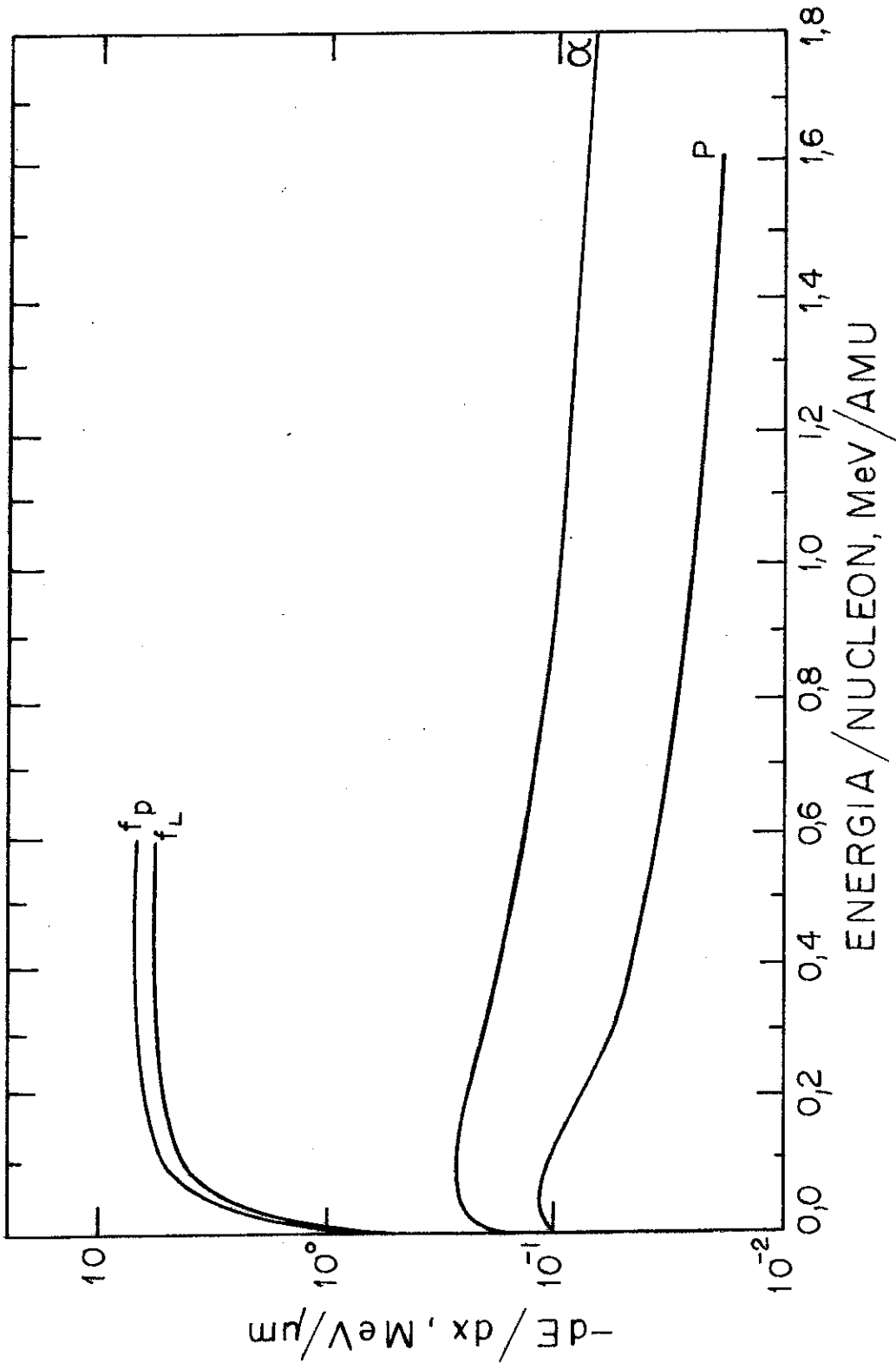


Fig. 1.5.1.2 - Perda de energia por ionização de diversos ions no CR-39

a perda de energia $-dE/dx$ no CR-39 versus a energia por núcleon E/N dos fragmentos nucleares emitidos do califórnio-252, em relação à curva da partícula alfa, percebe-se claramente que para 1,5 MeV/N aproximadamente, que é justamente a energia com a qual ela incide no detetor, o valor correspondente a $-dE/dx$ é o menor possível, significando que na superfície do material, a produção de danos foi mínima. Para $-dE/dx$ alcançar o valor máximo, indicando uma produção máxima de danos, a partícula deverá perder boa parte de sua energia inicial no meio em que penetrou estando, portanto, localizada em camadas inferiores. Ao valor de cerca de 0,15 MeV/N está associado o $-dE/dx$ máximo indicado no gráfico, o que corresponde à máxima densidade de danos. Quando a partícula com velocidade quase nula já se aproxima do final de sua trajetória, tendo valores de energia abaixo da correspondente máxima ionização, sabemos que a criação de defeitos tende a cessar. Como a perda de energia neste instante ainda é grande, certamente $-dE/dx$ decrescerá acentuadamente durante o percurso que falta para ser absorvida no material. A queda brusca da curva que se observa na figura (1.5.1.2), entre 0,15 MeV/N e seu final, indica esta rápida diminuição.

Quanto às curvas para fragmentos de fissão leve e pesado, verifica-se que a curva de ionização é sempre descendente, o que explica, de modo qualitativo, a distribuição de danos ao longo da trajetória do fragmento de fissão (figura 1.4.4).

1.6 Geometria do traço revelado

Considerando-se a isotropia e homogeneidade dos sólidos não cristalinos, como é o caso do polímero CR-39, podemos estudar geometricamente o traço de uma partícula carregada, supondo a taxa V_g constante. Quanto a V_t , embora seja evidente, segundo a figura 1.4.3, que esta velocidade se modifica para pontos de ionização afastados da superfície do detetor, ela também é considerada constante pois, do contrário, se tornaria muito complexa a análise teórica. A figura 1.4.3.b representa a situação em que tanto V_t quanto V_g são constantes, e com V_t maior que V_g .

Tanto para partículas alfa quanto para fragmentos de fissão, já é sabido que eles criam regiões com uma densidade muito grande de danos, seja na superfície ou abaixo dela. No caso dos fragmentos de fissão, para que V_t seja considerada constante, o tempo de revelação terá que ser relativamente curto para que se possa ter uma pequena parte do traço revelada ao longo do tempo e, com isso, estudar-se uma geometria num trecho onde qualquer variação de V_t possa ser considerada desprezível. Este tempo de revelação é contado a partir do instante em que o detetor é imerso na solução reveladora. Já para partículas alfa, este tempo será um pouco maior, simplesmente pelo fato de que a região fortemente ionizada fica abaixo da superfície do detetor, a qual demanda algum tempo para ser dissolvida.

Como se sabe, uma partícula carregada pode incidir na superfície do detetor perpendicularmente ou obliquamente a ela. Como foi abordado anteriormente, o traço revelado segundo as condições em que V_t e V_g são constantes, tem o aspecto

mostrado pela figura 1.6.1.a, onde o ângulo de cone dado por $\theta = \arcsin V_g/V_t$ relaciona V_t com V_g quanto ao tipo de cone forma

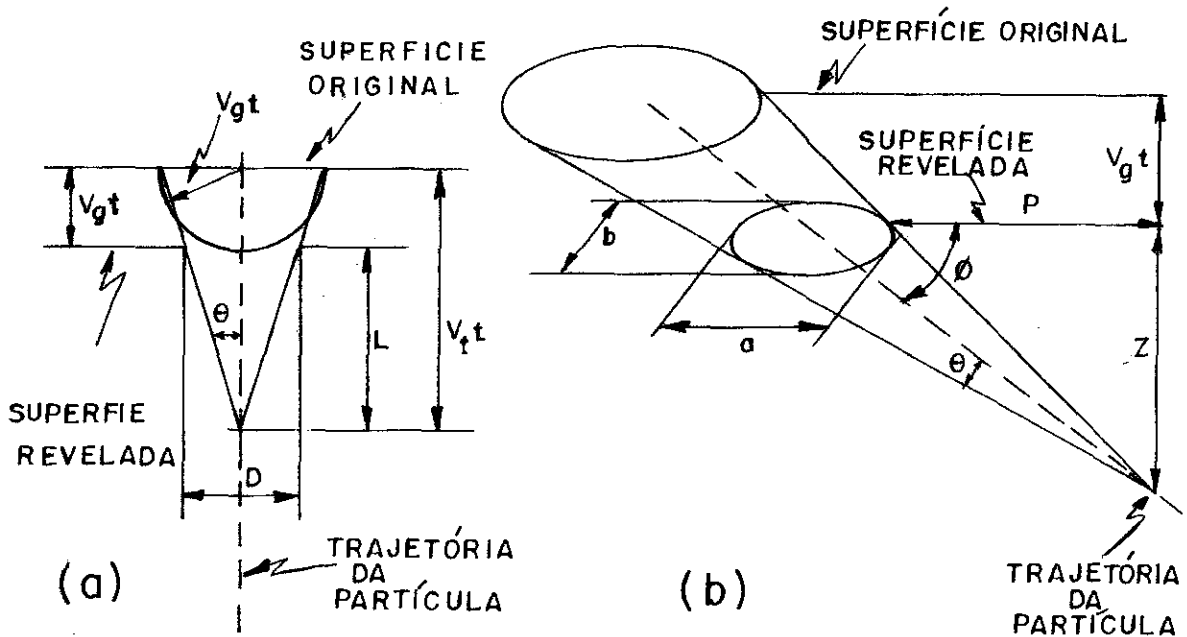


Fig. 1.6.1 - Geometria do traço com V_t e V_g constante para partícula com incidência normal à superfície (a) e com ângulo θ de inclinação da trajetória (b).

do. Pode-se observar por esta expressão que, quando V_t é muito maior que V_g , θ tende a um valor muito pequeno, fazendo com que o traço assumira a forma cilíndrica. O comprimento visível do traço L e o seu diâmetro D , são dados pelas expressões [7]:

$$L = (V_t - V_g) \cdot t \tag{1.6.1}$$

$$D = 2V_g t \sqrt{\frac{V_t - V_g}{V_t + V_g}} \tag{1.6.2}$$

os quais se anulam para $V_t = V_g$.

Algumas considerações relacionando o tempo t de revelação com as expressões para L e D , devem ser levadas em

conta. Como já sabemos, o traço revelado tem a forma cônica justamente por considerarmos V_t e V_g constantes e, conseqüentemente, um dos parâmetros mensuráveis, no caso o comprimento L , seja amarrado a estas condições. A expressão para L é válida, então, para valores de $[(V_t) \cdot (\text{tempo})]$ menores que a distância R percorrida pela partícula, na qual se considera V_t constante. Já a expressão para o diâmetro D é válida para um tempo maior, dado por^[7]:

$$t < R/V_g \cdot \left\{ 1 + \left[\frac{(1 - \text{sen } \theta) \cdot (\cos \theta/2 + \text{sen } \theta/2)}{(\cos \theta/2 - \text{sen } \theta/2) \cdot \cos \theta} \right] \right\} , \quad (1.6.3)$$

o que significa que uma evolução sofrida pelo traço, como mostra a figura 1.6.2, por exemplo, não impede que seja determinado um valor para D .

A figura 1.6.1.b, representando a incidência oblíqua de uma partícula carregada, tem como grandezas mensuráveis o eixo maior (a), o eixo menor (b), a profundidade do vértice do traço (Z), a distância P e os ângulos θ e ϕ , os quais podem ser determinados pelas seguintes expressões^[7]

$$a = \frac{2V_g \cdot t \cos \theta (\text{sen } \phi - \text{sen } \theta)}{\text{sen } (\phi + \theta) \text{ sen } (\phi - \theta)} \quad (1.6.4)$$

$$b = 2V_g t \cdot \left(\frac{\text{sen } \phi - \text{sen } \theta}{\sqrt{\text{sen } \phi + \text{sen } \theta}} \right) \quad (1.6.5)$$

$$Z = L \text{ sen } \phi - V_g \cdot t \quad (1.6.6)$$

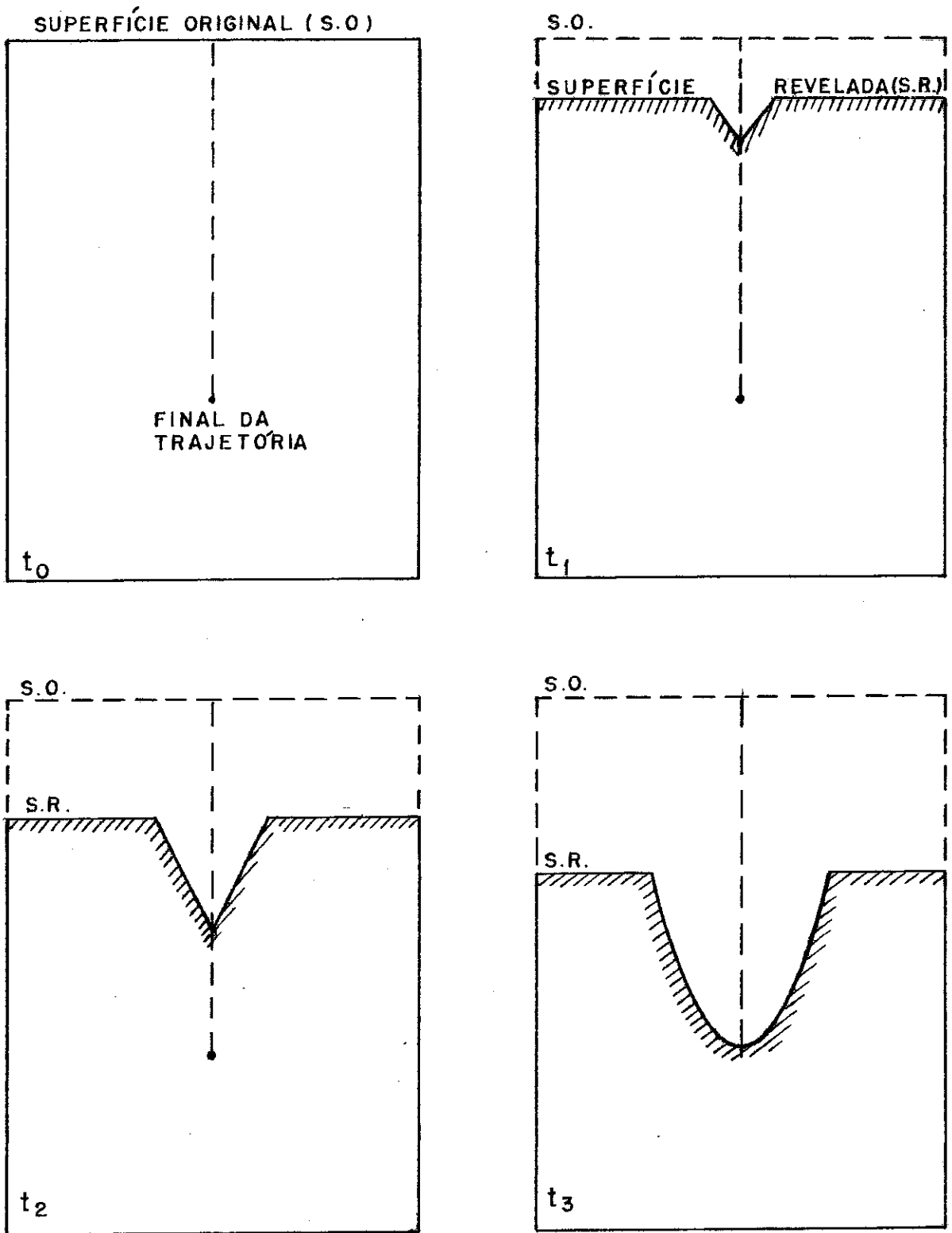


Fig. 1.6.2 - Representação esquemática da evolução de um traço ao longo do tempo t de revelação

$$\begin{aligned} \phi &= [\text{arc tg} \left(\frac{Z}{a+p} \right) + \text{arc tg} \left(\frac{Z}{p} \right)] / 2 = \\ &= \text{arc sen} \left(\frac{\sqrt{Z^2 + p^2} \cdot \sqrt{(a+p)^2 + Z^2} - p^2 - (a \cdot p) + Z^2}{2 \sqrt{Z^2 + p^2} \sqrt{(a+p)^2 + Z^2}} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (1.6.7)$$

$$\begin{aligned} \theta &= [-\text{arc tg} \left(\frac{Z}{a+p} \right) + \text{arc tg} \left(\frac{Z}{p} \right)] / 2 = \\ &= \text{arc sen} \left(\frac{\sqrt{Z^2 + p^2} \cdot \sqrt{(a+p)^2 + Z^2} - p^2 - (a \cdot p) - Z^2}{2 \sqrt{Z^2 + p^2} \sqrt{(a+p)^2 + Z^2}} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (1.6.8)$$

Considerando novamente a incidência da partícula como sendo do tipo normal à superfície do detetor, podemos determinar valores para V_t e V_g através as expressões:

$$V_t = V_g \cdot \left(\frac{1+r^2}{1-r^2} \right) \quad (1.6.9)$$

$$\text{com } r = \frac{D}{2V_g t}$$

$$\frac{V_t}{V_g} = \frac{1 + [D/2V_g(t - t_0)]^2}{1 - [D/2V_g(t - t_0)]^2} \quad (1.6.10)$$

onde $V_g t$ é a espessura removida, e t_0 o tempo de indução para que seja iniciado o ataque químico do traço latente, contado a partir do momento em que é feita a imersão do detetor na solução.

Em princípio, quando uma placa de CR-39 está em contato com a fonte de Cf-252, o número de traços revelados na lâmina do detetor, compreendidos na área irradiada, deveria ser bem próximo do número de partículas emitidas, já que a área irradiada coincide exatamente com a área da fonte. Porém, por mais eficiente que seja o detetor, isto não acontece, mesmo com

as partículas sendo emitidas em todas as direções, formando um espectro angular para incidência na superfície bastante amplo.

Partindo-se da expressão para o ângulo de cone do traço revelado dado por $\theta = \text{arc sen } V_g/V_t$, e considerando-se tempos de revelação curtos para não fugirmos da condição de V_t constante, podemos verificar pela figura (1.6.3) que, enquanto a projeção vertical de $[(V_t) \cdot (\text{tempo})]$ for menor que $[(V_g) \cdot (\text{tempo})]$, o traço não será revelado. Serão revelados, apenas,

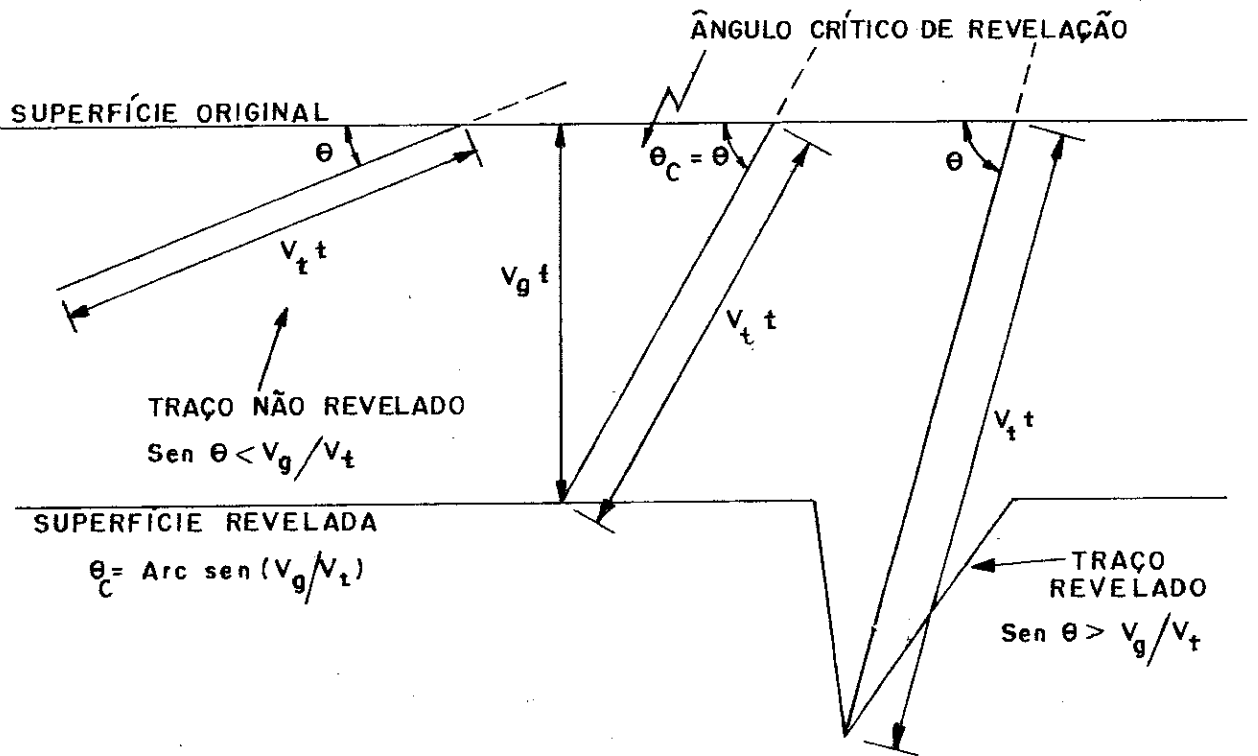


Fig. 1.6.3 - Ilustração da geometria de registro de traço

os traços de partículas com ângulo de profundidade maior ou igual ao ângulo crítico θ_c . Em outras palavras, o traço latente tem que ter o final de sua trajetória abaixo da camada que será dissolvida pela solução reveladora. Uma vez tendo surgido esta conceituação de ângulo crítico, e considerando-se também o tipo de exposição feita no presente trabalho, isto é, uma

exposição em que as partículas penetram no plástico em todas as direções (geometria $\approx 2\pi$), podemos concluir que existe uma grandeza característica para cada tipo de detetor, ou seja, cada detetor possui uma eficiência de detecção obtida a partir da relação entre o ângulo sólido Ω no qual os traços latentes são revelados (figura (1.6.4)) e o espaço que contém γ , numa geometria 2π .

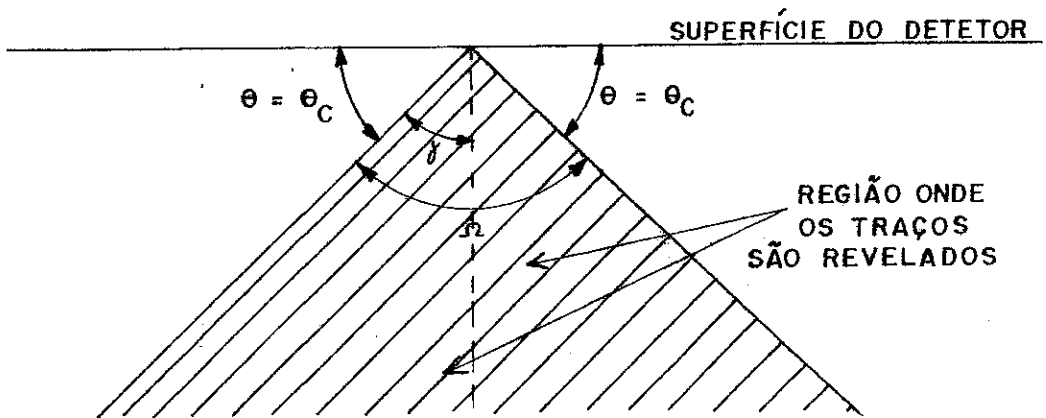


Fig. 1.6.4 - Representação esquemática do ângulo sólido contendo os traços reveláveis

Analisando-se a figura (1.6.4), observamos que o ângulo γ forma um ângulo Ω dado pela expressão:

$$\Omega = 2\pi (1 - \cos \gamma) \quad (1.6.11)$$

Sendo θ o ângulo complementar do ângulo γ , a expressão para Ω pode ser escrita sob a seguinte forma:

$$\Omega = 2\pi (1 - \text{sen } \theta) \quad (1.6.12)$$

Como a eficiência de detecção ε relaciona todos os traços latentes reveláveis compreendidos no ângulo sólido Ω , com o espaço 2π , podemos escrever que a eficiência é dada por:

$$\varepsilon = \frac{\Omega}{2\pi} = 1 - \text{sen } \theta \quad (1.6.13)$$

Considerando-se o tempo de ataque químico suficientemente curto para que V_t seja dado como constante, pode-se escrever ε em função das grandezas mensuráveis D e L (figura (1.6.1.a)), ou seja:

$$\varepsilon = 1 - \text{sen} \left[\text{arc tg } \frac{D}{2L} \right] \quad (1.6.14)$$

É importante notar que como a eficiência de detecção ε é obtida considerando-se tempos de revelação curtos, alguns traços latentes deixam de ser revelados. Sendo assim, podemos admitir que, para tempos adicionais de revelação, o valor de ε tende a aumentar, seja pela revelação dos traços latentes das camadas mais internas, seja pela ampliação dos traços já revelados que, por sua pequena dimensão, não se apresentavam ainda visíveis ao microscópio.

1.7 Conceituação de "Annealing"

Como vimos anteriormente, os danos causados na estrutura dos detetores sólidos, devido à passagem de partículas carregadas e originando as imagens latentes dos traços, são consequência do fenômeno da ionização do meio material.

Submeter a tratamento térmico ("annealing") um

detetor que sofreu exposição a partículas e que, portanto possui várias regiões de sua estrutura atômica ou molecular danificadas, significa fazer justamente com que, através de energia térmica fornecida a todo o material, estes danos sejam restaurados obtendo-se, assim, o "fading" total ou parcial das imagens latentes. O efeito de "annealing" depende dos parâmetros tempo e temperatura, como também do tipo de material detetor utilizado.

1.8 Conceituação de Energia Mínima de Ativação

Quando uma partícula carregada penetra um detetor sólido do tipo inorgânico, como vidro soda-lime por exemplo, vários ions com diferentes cargas são produzidos na região próxima à sua trajetória, em consequência de interações de ordem puramente elétrica com os átomos da rede cristalina. Com o deslocamento destes ions de suas posições normais para posições intersticiais, em função do surgimento da repulsão coulombiana entre eles e os átomos vizinhos, são criados na estrutura do material, o que se denomina de "danos" ou "defeitos", dando, assim, origem à formação das imagens latentes dos traços.

Fornecendo-se energia térmica ao material detetor, isto é, submetendo-o à um determinado tratamento de "annealing", alguns elétrons livres absorvem, cada um, uma pequena quantidade $E(e)$ desta energia e se recombina com os ions, formando assim, átomos novamente neutros. Com o conseqüente desaparecimento da repulsão coulombiana, a única barreira de potencial capaz de impedir a migração destes átomos para uma outra posição in-

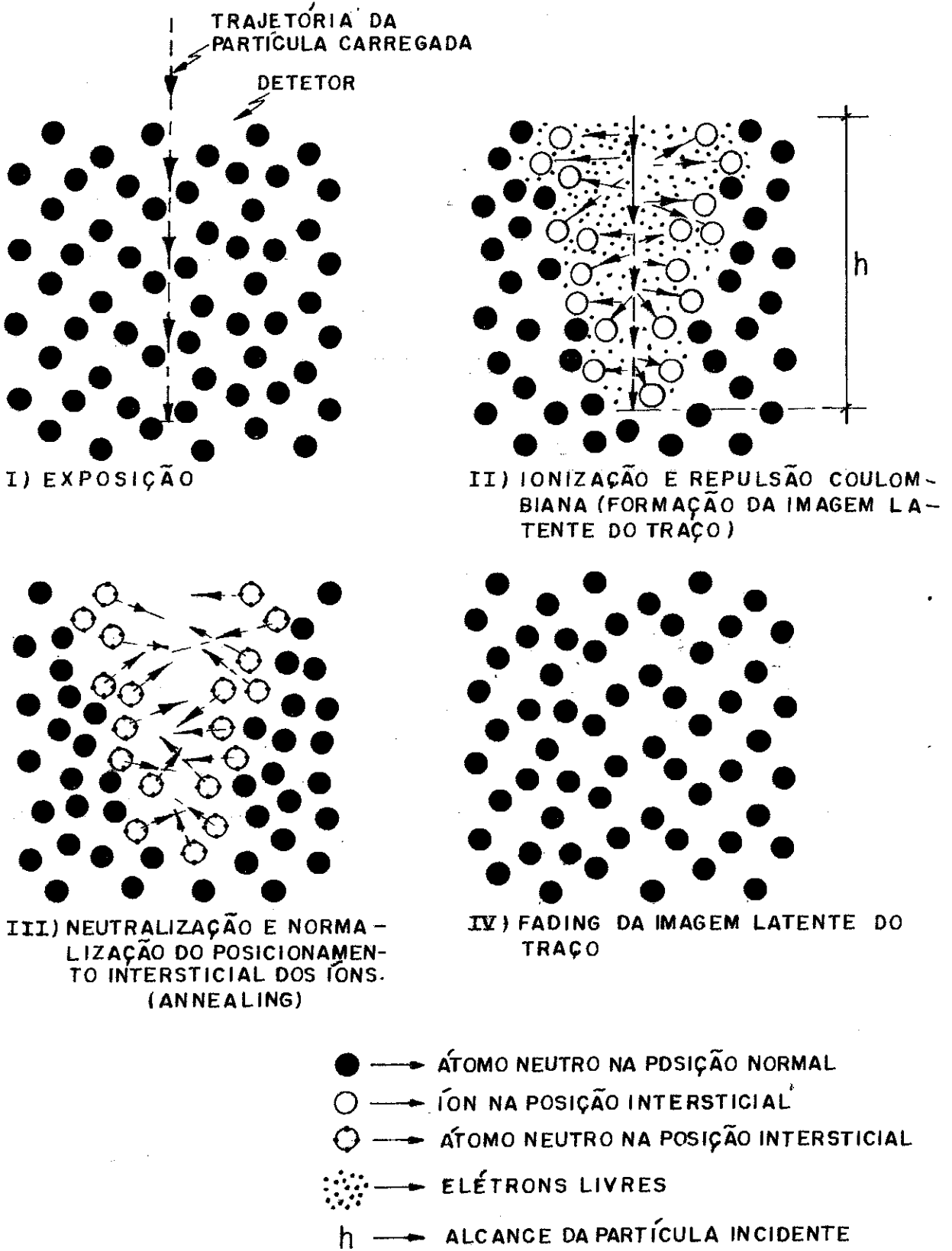


Fig. 1.7.1 - Ilustração do processo de difusão atômica em detectores sólidos inorgânicos em função do fornecimento de energia térmica através o tratamento de "annealing"

tersticial. passa a ser, então, a força de interação existente entre os átomos vizinhos, a qual, por sua vez, é uma característica do próprio material detetor utilizado.

Se o "annealing" for suficientemente intenso, alguns átomos intersticiais já neutros absorverão, cada um, assim como os elétrons, uma outra parcela $E(at)$ desta mesma energia, que é no mínimo igual à barreira. Pode haver, a seguir, deslocamento desses átomos em direção ao centro do traço latente (figura (1.7.1)), ocupando então um posicionamento normal e, dessa forma, restaurando parte dos danos causados à estrutura (ou, em outras palavras, produzindo o "fading" parcial da imagem). À menor quantidade de energia absorvida necessária para que os elétrons se recombinem transformando um ion em um átomo neutro, voltando este, em seguida, a ocupar sua posição intersticial normal é o que denominamos de "Energia de Ativação".

A partir de valores mais elevados de tempo e temperatura, isto é, com o grau de "annealing" tornado mais intenso, verifica-se uma maior quantidade de energia absorvida $E(el)$ e $E(at)$ e, portanto, uma quantidade maior de danos num determinado traço vai sendo restaurada até que ocorra o "fading" total deste traço latente, implicando no início da redução da densidade de traços revelados ou, em outras palavras, implicando num percentual de redução de 0%, que é justamente quando o átomo mais fortemente ionizado após ser neutralizado, desloca-se, também, para a posição intersticial normal. A Energia Mínima de Ativação, a qual é representada por E_{a_m} é a soma das parcelas $E(el)$ e $E(at)$ responsáveis pela restauração do defeito produzido pelo processo de ionização em sua parte

mais intensa.

Como se sabe, são muitas as partículas carregadas que penetram um detetor sólido de traços e, devido a uma série de obstáculos localizados entre os núcleos emissores e a superfície das amostras (como, por exemplo, a camada de ar que os separa e o próprio posicionamento desses núcleos na fonte) estas partículas incidirão na superfície do detetor com diferentes valores de energia. Em consequência, a cada traço latente estarão associadas diferentes densidades de danos. Partindo-se do princípio de que toda energia térmica fornecida ao material detetor se distribui uniformemente por todos os traços latentes e que, a medida em que se eleva o grau de "annealing" mais defeitos vão sendo restaurados, ocorrerá, após o processo de revelação, o desaparecimento não só parcial como também total dos traços latentes. Dessa forma, como veremos no último Capítulo, sendo E_a responsável pela recuperação dos defeitos, existirá para cada percentual de redução do número de traços, um determinado valor de energia E_a que contribuirá para este particular tipo de "fading".

Finalizando esta conceituação de Energia de Ativação, resta dizer que, em relação à E_{a_m} devemos ressaltar que o seu valor, por ser característico do material, independe do grau de "annealing" a que o detetor for submetido, ao contrário da energia E_a associada a um dado percentual de "fading".

1.9 Modelos para o Cálculo da Energia Mínima de Ativação

A maioria dos pesquisadores tem interpretado

suas experiências com "annealing" baseando-se unicamente na equação relacionada com o processo de difusão, que assim se escreve [30]:

$$t = A \exp (E_a/kT) \quad , \quad (1.9.1)$$

onde E_a é a energia de ativação, k é a constante de Boltzmann, A é uma constante do material, e o termo $\exp (E_a/kT)$ é conhecido como sendo a exponencial de Arrhenius, a qual é responsável pela formação de uma série de valores de E_a que compõem o espectro de energias de ativação para diferentes graus de "annealing".

O conceito de um único valor para E_a foi inicialmente proposto por Virke e colaboradores [31], sem, no entanto, recorrerem à relação de Arrhenius. Green e colaboradores [32] também tentaram sustentar esta hipótese, mas a dificuldade em se interpretar a existência de um grupo de valores de energia de ativação para um mesmo detetor sólido de traços, obrigou estes pesquisadores a deixarem de lado tal procedimento.

Diferentes interpretações tem sido dadas na tentativa de se explicar como varia a densidade de traços não apagados por "annealing", ou em outras palavras, a densidade de traços retidos. Em 1969, Naeser e Faul [33] consideraram a densidade de traços retidos como sendo uma função linear decrescente do logarítimo do tempo de "annealing". Mark e colaboradores [34], em 1973, estabeleceram experimentalmente que o logarítimo da densidade de traços retidos é uma função linear decrescente com o tempo. Um ano depois, Mantovani [35] propôs uma relação linear entre retenção de traços e tempo de aquecimento.

Nos anos de 1981 e 1982, algumas outras interpretações surgiram, como, por exemplo, a extrapolação da lei de Arrhenius defendida por Cantelaube^[36], para "fading" de traços em função da variação da temperatura com o tempo, e a sugestão de Dartyge e colaboradores^[37] para que se considere não só diferentes valores para a taxa de "annealing" em diferentes pontos do traço como também valores críticos para temperatura em torno da qual a taxa de "annealing" é muito acelerada. Mesmo sendo frequentemente utilizados, a validade destes modelos não foi ainda suficientemente comprovada, com alguns deles, inclusive, apresentando deficiências.

Dentre os vários modelos existentes para o cálculo da energia mínima de ativação, E_{a_m} , para o processo de "annealing" em detetores, os que melhores resultados apresentaram até o momento foram os modelos propostos por Mark e colaboradores^[34], em 1973, Modgil e Virk^[38], em 1984, e o proposto por Green e colaboradores^[32], em 1985.

De acordo com o modelo proposto por Märk e colaboradores^[34], ele foi considerado com boa aproximação que a redução na população de traços está relacionada com a redução no comprimento ou no diâmetro dos traços. O processo de "annealing" para a variação na população de traços é descrito por:

$$\rho(t) = \rho_0 \exp[-\alpha(T)t], \quad (1.9.2)$$

onde $\rho(t)$ é a densidade de traços após um tempo t de "annealing", ρ_0 é a densidade de traços inicial, e $\alpha(T)$ é uma constante de decaimento ou coeficiente de "annealing", dado pela soma de duas

exponenciais, ou seja:

$$\alpha(T) = \alpha_{01} \exp\left(-\frac{E_{a1}}{kT}\right) + \alpha_{02} \exp\left(-\frac{E_{a2}}{kT}\right), \quad (1.9.3)$$

onde α_{01} e α_{02} são valores constantes, k é a constante de Boltzmann, T é a temperatura absoluta de "annealing" e E_{a1} e E_{a2} são duas diferentes energias de ativação correspondentes a dois processos de difusão, um para "annealing" com temperaturas consideradas altas, e outro para "annealing" com temperaturas consideradas baixas.

A partir de 1981, Mark e colaboradores [39] propuseram, então, uma reformulação conceitual deste modelo, no qual o "annealing" deveria ser função de apenas um processo de difusão. Com isso, a expressão (1.9.3) passou a ser escrita sob a forma

$$\alpha(T) = \alpha_0 \exp\left(-\frac{E_{am}}{kT}\right) \quad (1.9.4)$$

Combinando-se as equações (1.9.2) e (1.9.4), tem-se que:

$$\rho(t) = \rho_0 \exp\left[-\alpha_0 t \exp\left(-\frac{E_{am}}{kT}\right)\right] \quad (1.9.5)$$

que na forma logarítmica é representada por:

$$-\ln\left[\frac{\rho(t)}{\rho_0}\right] = \alpha_0 t \exp\left(-\frac{E_{am}}{kT}\right) \quad (1.9.6)$$

Tomando-se novamente o logarítmo, temos:

$$\ln \left[- \ln \frac{\rho(t)}{\rho_0} \right] = \ln \alpha_0 + \ln t - E_{a_m} / kT \quad (1.9.7)$$

Com a consideração feita por Mark e colaboradores^[39] de que:

$$\frac{\rho(t)}{\rho_0} = \frac{L(t)}{L_0} = \frac{D(t)}{D_0} \quad (1.9.8)$$

onde $L(t)$ e L_0 representam os comprimentos final e inicial do traço, e $D(t)$ e D_0 os diâmetros final e inicial do traço, respectivamente, podemos escrever a expressão para a razão dos diâmetros sob a seguinte forma:

$$\ln \left[- \ln D(t)/D_0 \right] = \ln \alpha_0 + \ln t - E_{a_m} / kT \quad (1.9.9)$$

O modelo empírico desenvolvido por Virk, Modgil e Singh^[31] difere um pouco daquele acima descrito. Neste outro, a energia mínima de ativação E_{a_m} aparece relacionada com a taxa de "annealing", v_a , definida como sendo a variação de comprimento ou de diâmetro do traço revelado em relação ao tempo de aquecimento a que o detetor foi submetido, ou seja:

$$v_a = \frac{L_0 - L(t)}{t} = \frac{D_0 - D(t)}{t} \quad (1.9.10)$$

Este modelo é representado pela forma linearizada da equação dada por:

$$v_a = A \cdot t^{-n} \exp \left(- E_{a_m} / kT \right) \quad (1.9.11)$$

ou seja:

$$\ln V_a = \ln A - n \ln t - E_{a_m} / kT \quad , \quad (1.9.12)$$

onde A e n são constantes.

O terceiro e último modelo, proposto por Green e colaboradores^[32], é representado por:

$$\ln [\Delta D / D_0] = \ln B + n' \ln t - E_{a_m} / kT \quad . \quad (1.9.13)$$

Este modelo possui basicamente a mesma estrutura dos outros dois, diferindo apenas em relação à constante e a uma das variáveis, a qual é dada por $\Delta D / D_0 = [D_0 - D(t)] / D_0$, sendo D_0 e $D(t)$ os diâmetros dos traços nos tempos inicial e final, respectivamente.

CAPITULO II

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

2.1 Amostras de CR-39

Uma folha de CR-39 obtida da American Acrylics & Plastics, Inc. (Stratford, Conn., USA), foi cortada em várias alíquotas de 20 mm por 10 mm. Após terem sido identificadas, tiveram suas espessuras determinadas com o auxílio de um micrômetro. Embora a folha de CR-39 utilizada tivesse a espessura especificada pelo fabricante como sendo de 400 μm , devido à uma não uniformidade na espessura, tornou-se necessário determinar a espessura média para cada placa, fazendo-se a medida em nove pontos diferentes, distribuídos na superfície. Esta medida é de fundamental importância para se determinar, por exemplo, o tipo de comportamento que V_g pode apresentar frente a um determinado grau de "annealing".

2.2 Exposição das Amostras a Partículas Alfa e Fragmentos de fissão

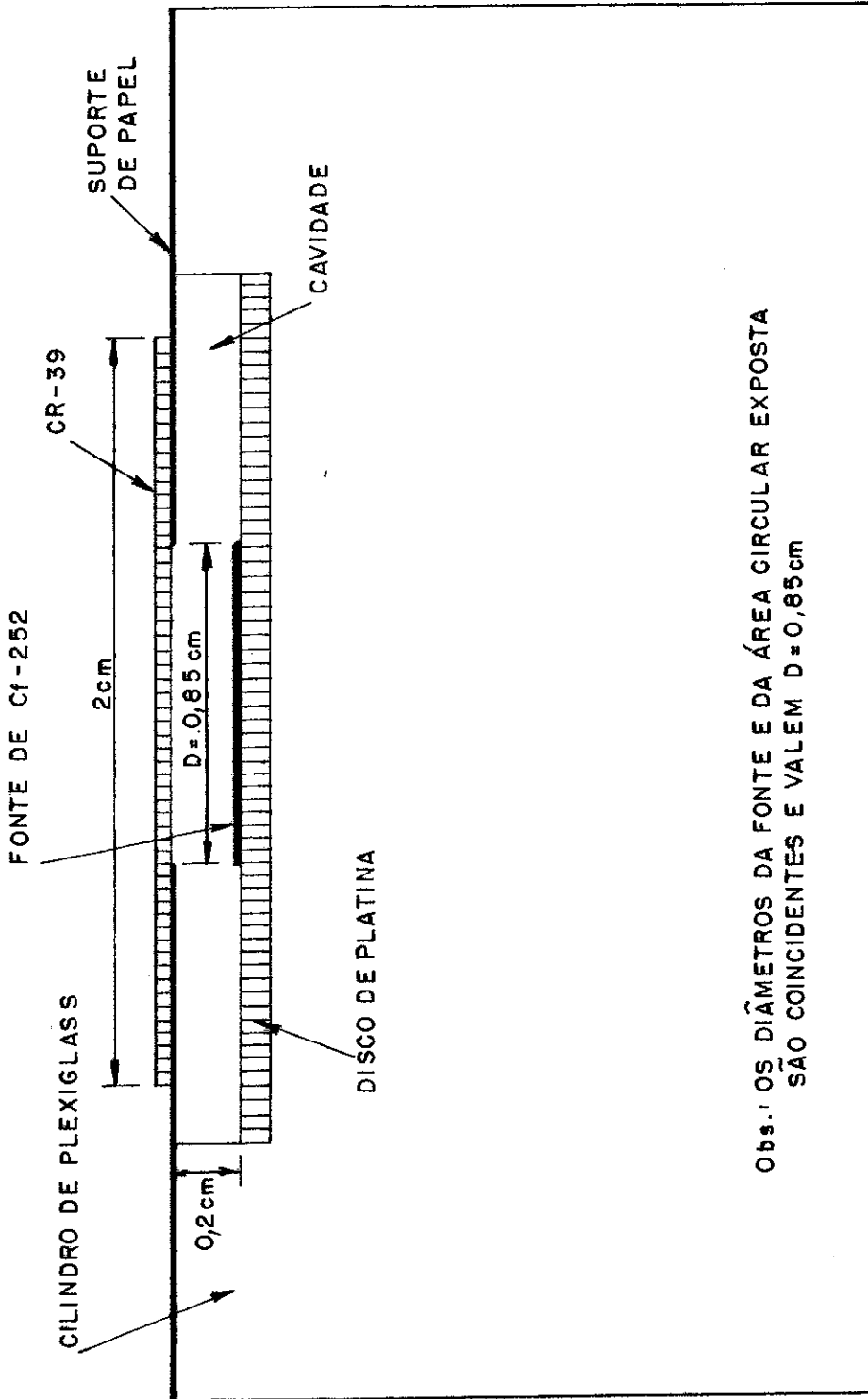
As placas de CR-39 foram expostas a partículas alfa e fragmentos de fissão proveniente de uma fonte ordinária de Cf-252. Esta fonte foi preparada em 1967 no OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY (Tennessee, USA), sendo sua atividade à época das exposições

de $\sim 2 \times 10^4$ fissões/min e $\sim 2 \times 10^6$ partículas alfa/min. O material ativo está depositado sobre uma base circular de platina de 20 mm de diâmetro, colocada numa cavidade feita na parte superior de um suporte cilíndrico de plexiglass.

Cada placa foi exposta durante dois minutos. Este tempo de exposição foi o resultado de algumas investigações feitas com outras amostras as quais mostraram que, para tempos de exposição maiores, a área observável ao microscópio ótico apresentava um número excessivo de eventos registrados, comprometendo não só a determinação de densidade de traços como também a medida dos diâmetros médios dos traços revelados.

A exposição de cada placa consistiu em colocá-las, uma a uma, na parte superior do cilindro de plexiglass, apoiadas sobre um suporte de papel no qual foi feito um orifício no centro, de diâmetro igual ao diâmetro da região circular que contém a fonte de Cf-252 (figura (2.2.1)). Este suporte tem como função fazer com que as lâminas sejam expostas sem sofrerem nenhuma contaminação por parte da própria fonte. Sem uma separação entre detetor e fonte, que é da ordem de 2 mm, haveria, devido ao contato direto, uma contaminação das amostras, comprometendo assim, uma correta determinação do número de partículas e fragmentos incidentes na superfície do detetor.

Após as exposições, as placas de CR-39 foram submetidas, durante alguns segundos, a um banho em ácido nítrico diluído, com a finalidade de se eliminar qualquer possibilidade de contaminação do CR-39 pelo material ativo.



Obs.: OS DIÂMETROS DA FONTE E DA ÁREA CIRCULAR EXPOSTA
SÃO COINCIDENTES E VALEM $D = 0,85$ cm

Fig. 2.2.1 - Representação esquemática da exposição das amostras de CR-39

2.3 Tratamento Térmico

Para que se consiga fazer experiências envolvendo tratamento térmico, é necessário que se disponha, em primeiro lugar, de um forno ou sistema semelhante de aquecimento. Como o forno que se utilizaria na experiência apresentou problemas, mostrando-se confiável apenas para temperaturas bem acima do desejado, foi necessária a montagem de um outro sistema, que mostrou-se extremamente eficiente, mantendo todas as temperaturas pré-determinadas constantes durante todo o tempo de aquecimento desejado. Este novo sistema (figura (2.3.1)) é constituído de um termômetro, uma pinça, um cadinho de porcelana contendo óleo e uma placa de aquecimento. A pinça é utilizada para fazer com que a lâmina de CR-39 a ser submetida a "annealing" fique submersa no óleo aquecido pela placa de aquecimento e, o termômetro é responsável pela indicação permanente da temperatura em que o óleo se encontra.

Inicialmente, antes das amostras terem sido submetidas ao tratamento térmico acima descrito ("annealing"), foram escolhidos, para cada lâmina exposta, os dois parâmetros característicos do tratamento térmico, quais sejam temperatura e tempo de "annealing".

Para esta primeira fase, procedeu-se da seguinte forma: em relação ao fator tempo, como as amostras foram reunidas em três grupos, atribuiu-se a cada um destes grupos diferentes tempos de aquecimento: 15 minutos para o primeiro, 30 para o segundo e 45 para o terceiro. Em relação à temperatura, foram fixadas as características do "annealing" da seguinte maneira: os limites inferior e superior foram de 100 e 260°C, res

pectivamente, aumentando-se a temperatura de 10 em 10°C. Assim

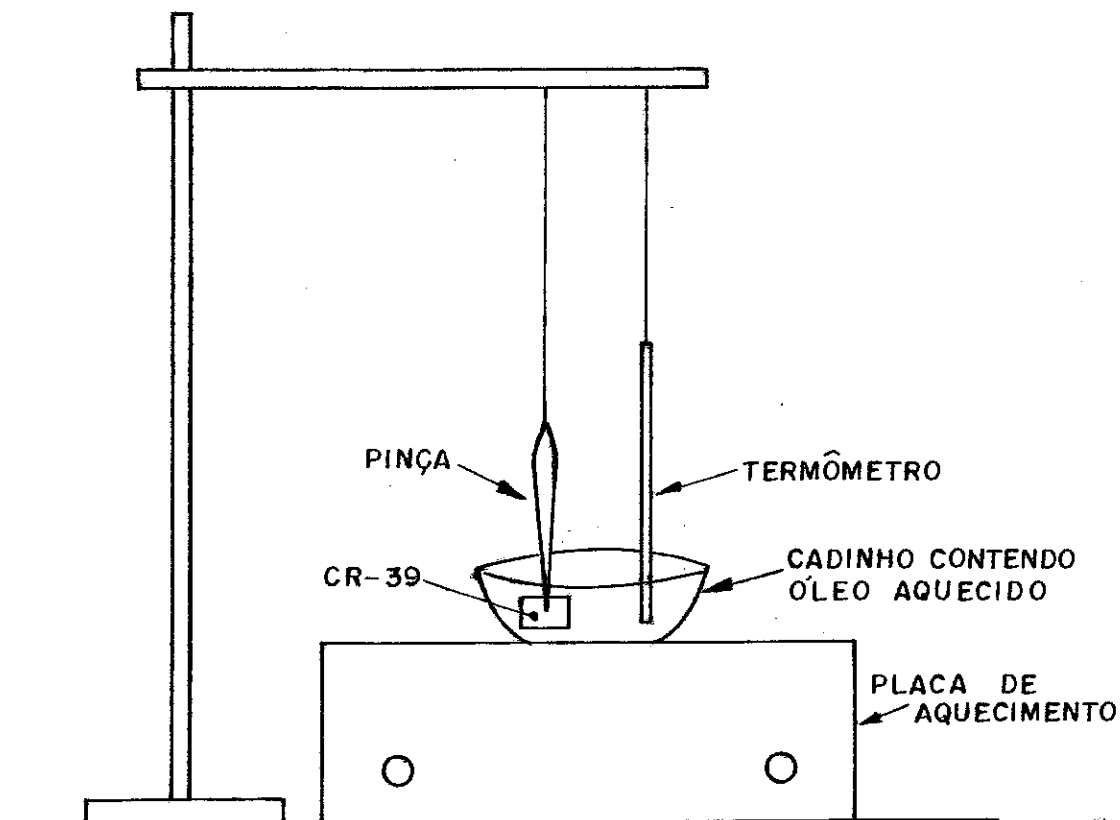


Fig. 2.3.1 - Representação esquemática do arranjo experimental para tratamento térmico das amostras de CR-39

sendo, ficou evidenciado que o "annealing" poderia ser feito em dezessete temperaturas diferentes para cada grupo de amostras. Desse modo, a cada lâmina de CR-39 fica associado um par de medidas, uma de temperatura e outra de tempo.

Deu-se início, então, ao tratamento térmico propriamente dito. Começando pelo grupo de quinze minutos, a primeira lâmina foi imersa no óleo exatamente à 100°C, a segunda a 110°C, a terceira à 120°C, e assim por diante até se atingir a

260°C. Procedendo-se da mesma maneira, fez-se o "annealing" das demais lâminas pertencentes aos grupos correspondentes a 30 e a 45 minutos.

Quanto aos limites de tempo e temperatura adotados, pode-se dizer que eles foram fixados em função dos resultados de alguns testes preliminares feitos com amostras de CR-39. Os limites inferiores de 100°C e de 15 minutos, foram adotados devido ao fato de, somente a partir daí, surgirem alterações seja nas características dos traços quanto em V_g . Em relação aos limites superiores, o que se observou é que, para valores acima de 260°C mantidos durante 45 minutos, o material detetor, além de perder praticamente toda sua transparência, adquirindo no final do banho um tom marrom escuro, a maioria dos eventos registrados após o ataque químico deixam de ter suas formas bem definidas de tal maneira que, os traços de partículas carregadas, passam a ser confundidos com os defeitos do próprio material de detetor. Em consequência, estas mudanças nas características do polímero, tornam a observação ao microscópio ótico bastante prejudicadas. É importante que se saiba que o tempo de 45 minutos não é necessariamente o limite máximo. Tempos maiores também poderiam ter sido adotados, desde que a temperatura fosse inferior a 260°C. Porém, como os resultados obtidos com este grau máximo de "annealing" se mostraram satisfatórios, não houve necessidade de modificação destes parâmetros.

2.4 Ataque Químico

2.4.1 - SISTEMA TERMOSTÁTICO

Este sistema (figura 2.4.1) é, em parte, muito semelhante ao que foi utilizado no tratamento de "annealing". Difere, no entanto, quanto às suas dimensões e quanto ao mecanismo de aquecimento. Dele fazem parte um termostato, um recipiente contendo óleo vegetal (~ 35 l), uma resistência circundando todo o recipiente e uma lâmina metálica móvel que garante a uniformidade da temperatura de todo o volume de óleo. Completando o sistema, temos uma proveta contendo solução de NaOH, que é um dos banhos de revelação apropriados para revelação de traços no CR-39, e um suporte de plexiglass, o qual é colocado no interior de uma proveta. Desse modo é possível fazer a revelação simultânea de quinze amostras, que são engavetadas no suporte, submergindo-as na solução.

A escolha do óleo vegetal deve-se ao fato de que, por ele possuir grande capacidade térmica, é possível minimizar o problema da variação de temperatura.

2.4.2 - CONDIÇÕES DE REVELAÇÃO

As placas de CR-39 posicionadas no suporte, são imersas na proveta contendo uma solução de 6,25 N de hidróxido de sódio (NaOH) à temperatura de 70°C durante o tempo de 4 horas e trinta minutos.

Assim como em todas as etapas anteriores, para se realizar um bom ataque químico, alguns cuidados tiveram de ser tomados como, por exemplo, impedir variações da temperatura

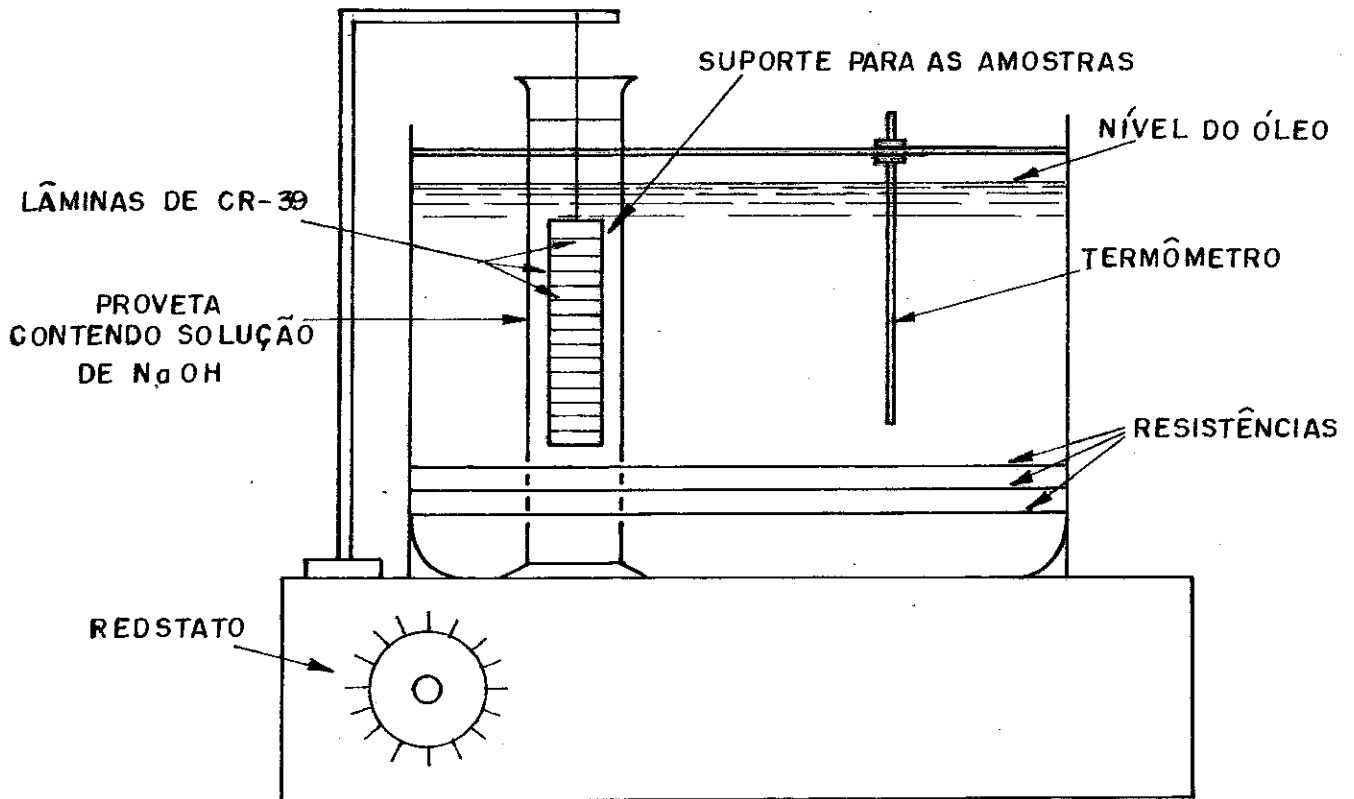


Fig. 2.4.1 - Representação esquemática do sistema termostático utilizado no ataque químico das amostras de CR-39

como também não permitir a ocorrência de evaporação da solução, o que tornaria a concentração de NaOH diferente durante o ataque químico. Concluído o ataque químico, as placas foram lavadas em água corrente e depois postas a secar, estando prontas para o trabalho de microscopia feito a seguir.

2.5 ANÁLISE DOS TRAÇOS REVELADOS

A análise dos traços revelados foi feita mediante microscopia ótica. Esta etapa complementar, permite determinar os parâmetros importantes associados aos eventos registrados, tais como diâmetro médio e comprimento dos traços, e número de traços por unidade de área (densidade de traços).

O trabalho de microscopia realizado na presente experiência de "annealing" teve como objetivo mostrar quantitativamente de que maneira o diâmetro e a população de traços se modificam à medida que se altera o grau de "annealing" das amostras de CR-39.

Na determinação das densidades de traços, tanto de partículas alfa quanto de fragmentos de fissão registrados nas lâminas, foi utilizado um microscópio de luz transmitida E. LEITZ WETZLAR, equipado com ocular 10 X e objetiva 45 X, e para a determinação do diâmetro médio dos traços, foram empregadas uma FILAR 12.5 X e uma objetiva 25 X.

Para se fazer a contagem dos traços, principalmente de partículas alfa sem o risco de se contar alguns traços mais de uma vez, foi escolhida uma objetiva de bom poder de ampliação (45 X), evitando-se, assim, uma quantidade excessiva de traços por cada campo observado.

Um outro cuidado que se tomou foi quanto à presença de traços revelados que não estão associados às partículas carregadas emitidas da fonte de Cf-252, isto é, o "background" como, por exemplo, aquelas provenientes de contaminações espúrias que poderiam também contribuir para a densidade de traços. Para se

evitar este tipo de problema, fez-se também a contagem numa região de mesma área no lado não exposto da lâmina e, em seguida, fez-se a diferença entre as quantidades de traços pertencentes a cada área. Esta diferença é o número de eventos originados pelas partículas emitidas pela fonte.

Na figura (2.5.1) tem-se a ilustração do método experimental para a determinação da densidade de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão nas lâminas, mostrando como foi feita a distribuição de campos nos quais foram contados os eventos.

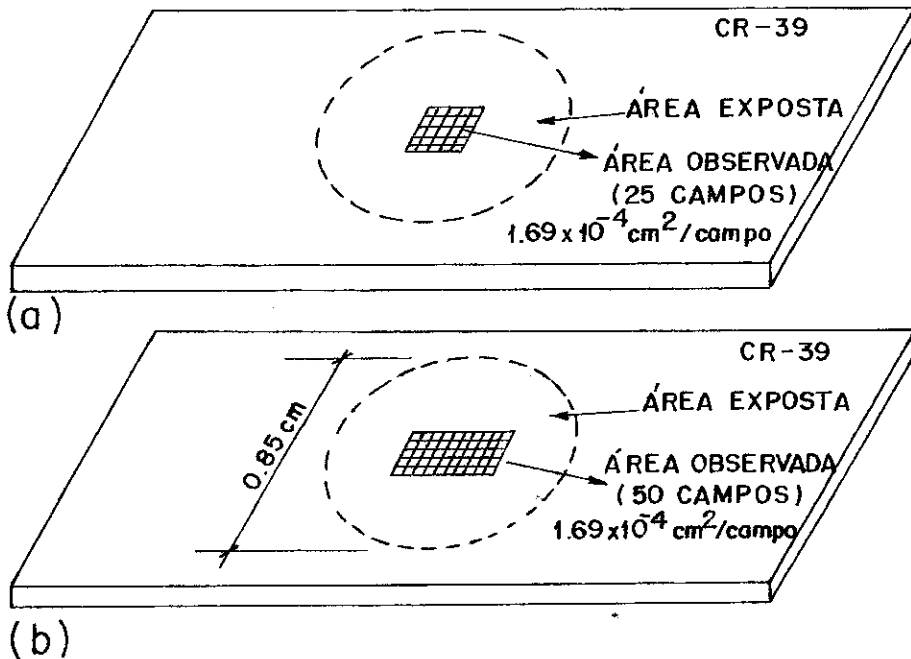


Fig. 2.5.1 - Ilustração da distribuição de campos para a contagem de traços na área exposta em cada amostra (a) partículas alfa; (b) fragmentos de fissão

Em número de 25, simplesmente por razões de estatística, este tipo de distribuição foi feita com o objetivo de se fazer com que todas as lâminas tivessem em comum a mesma área irradiada e a mesma localização. No caso de fragmentos de fis-

são, o procedimento foi idêntico, alterando-se apenas a quantidade de campos, de 25 para 50, já que estes traços além de possuírem dimensões bem maiores, são emitidos pela fonte em número bem menor.

Para facilitar o trabalho de microscopia, embora os traços apresentassem formas circulares e elípticas, foram medidas apenas as formas que se apresentaram circulares, as quais correspondem no caso, à incidência de partículas carregadas na direção normal ou próxima da normal à superfície do detetor.

CAPITULO III

RESULTADOS EXPERIMENTAIS - DISCUSSÃO

3.1 Efeitos de "annealing" sobre parâmetros característicos do CR-39 e dos traços revelados

3.1.1 - VELOCIDADE GERAL DE ATAQUE QUÍMICO

O valor de V_g correspondente ao grau de "annealing" experimentado por cada placa foi determinado através a seguinte expressão:

$$V_g = \frac{e_i - e_f}{2t} \quad (3.1.1.1)$$

onde t é o tempo de ataque químico e e_i e e_f são as espessuras médias inicial e final das placas de CR-39, medidas antes e depois do ataque químico, respectivamente. Os valores de e_i e e_f foram obtidos da média de medidas de espessura tomadas com um micrômetro de precisão em nove pontos da superfície do detector.

Conforme está apresentado na figura 3.1.1.1, para tempos iguais ou superiores a 15 minutos de "annealing", a taxa de dissolução do material, V_g , cresce significativamente no intervalo de temperatura de 220°C a 260°C.

Ficou constatado também que, entre 100 e 200°C,

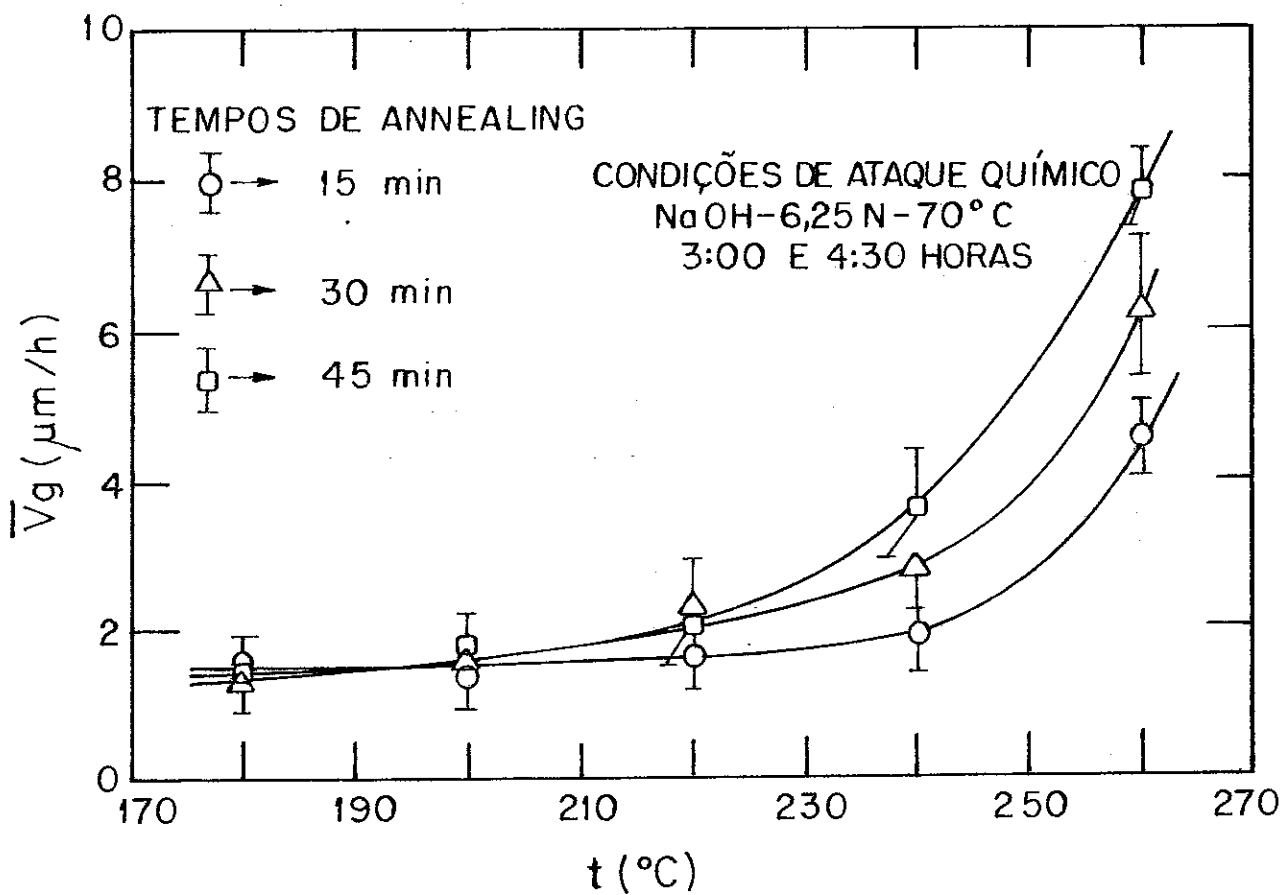


Fig. 3.1.1.1 - Variação da taxa de dissolução média \bar{V}_g com o aumento do grau de "annealing"

a taxa V_g permaneceu com valor constante de $1,3 \pm 0,2 \mu\text{m/h}$, significando que um percentual médio inicial de 3% atribuído à diminuição da espessura inicial de todas as amostras não está associado ao tratamento térmico realizado, e sim às condições de ataque químico. Além disso, a placa de referência (a que não sofreu "annealing"), tendo sido apenas exposta, apresenta esta mesma taxa após ter sido submetida ao mesmo processo de revelação.

3.1.2 - DIÂMETRO DO TRAÇO REVELADO

Nas condições em que se realizaram o "annealing" e o ataque químico, embora o CR-39 tenha registrado traços tanto de partículas alfa quanto de fragmentos de fissão, foram observadas reduções de diâmetro de até 28%, mas somente em relação a traços de partículas alfa. Provavelmente, no caso dos traços de fragmentos de fissão, por ser grande a densidade volumétrica de danos produzidos ao longo de suas trajetórias, e o grau máximo de "annealing" ao qual as amostras de CR-39 puderam resistir não ter sido suficiente para fornecer energia térmica necessária para restaurá-los, é a explicação da não observação de variação de diâmetro desses traços.

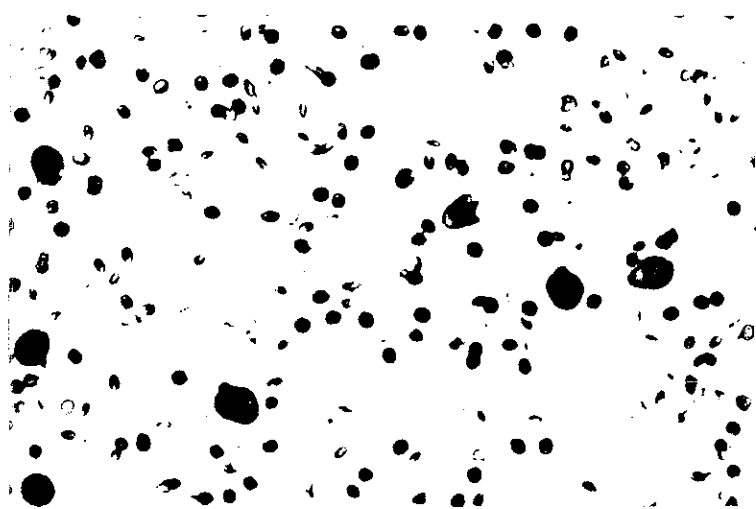
Podemos verificar, de acordo com a fig. 3.3.2.1, que a diminuição dos diâmetros não só ocorre a partir de uma determinada temperatura ($\approx 180^\circ\text{C}$), cujo valor está bem acima do limite inferior de 100°C estipulado para se fazer a experiência, como também independe de como é feito o tratamento térmico.

3.1.3 - DENSIDADE DE TRAÇOS REVELADOS

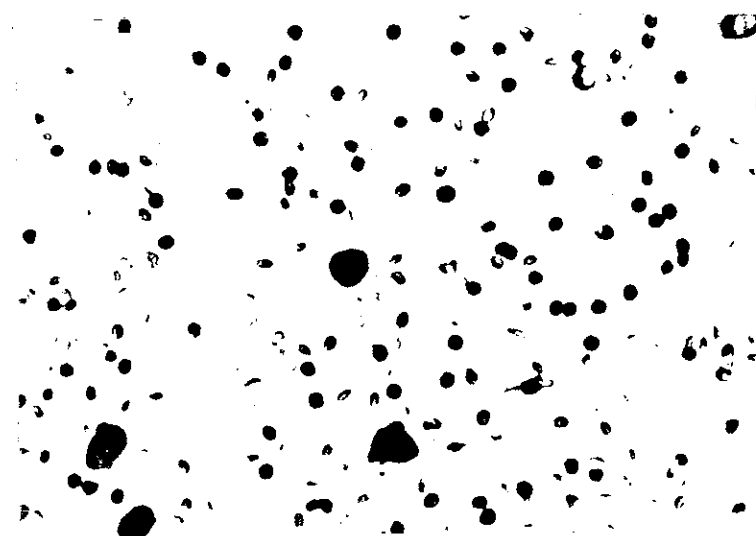
Como era de se esperar, já que os diâmetros dos traços de fragmentos de fissão permaneceram inalterados, o valor da densidade superficial de traços ρ para fragmentos de fissão, em qualquer das amostras analisadas, manteve-se praticamente igual ao valor de ρ_0 determinado na placa padrão. As reduções de densidade de traços de até 28% observadas nas placas para temperaturas superiores a 160°C , conforme se pode perceber nos gráficos da figura 3.3.3.1 (ver também as fotografias mostradas a seguir na figura 3.1.3.1), estão associadas unicamente a traços de partículas alfa. É uma consequência não só do próprio "fading" das imagens latentes, mas também do crescimento da taxa V_g de dissolução das camadas superficiais que contém os traços revelados.

3.1.4 - TEMPOS DE INDUÇÃO ASSOCIADOS ÀS TAXAS DE DISSOLUÇÃO V_g E V_t

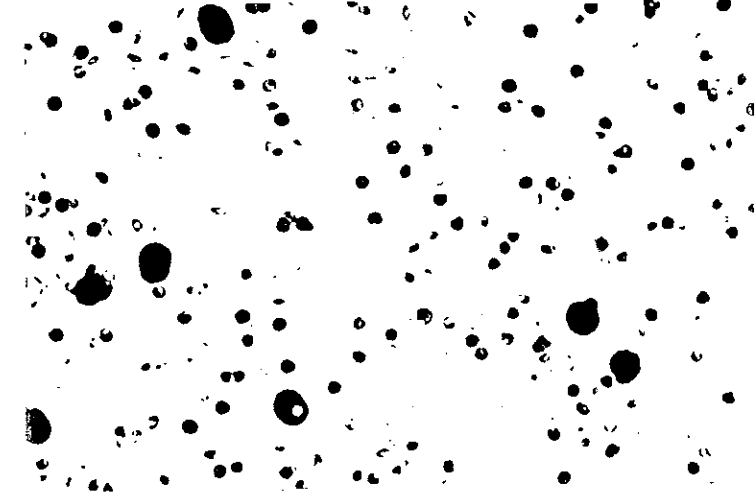
Seja qual for o tipo do detetor sólido de traços utilizado, sempre que se faz o ataque químico destes materiais, banhando-os em soluções ácidas ou alcalinas após terem sofrido exposições, tanto a formação de traços, isto é, a revelação das imagens latentes, quanto a redução de espessura das amostras, as quais obedecem às taxas V_t e V_g , respectivamente, demandam algum tempo para terem início, ou seja, não se dão de imediato. Diz-se então que existe um tempo de indução τ_0 para o surgimento destas taxas. Como V_t é bem mais elevada que V_g , significa que o processo de dissolução das camadas superficiais



(a) Amostra padrão (sem "annealing")

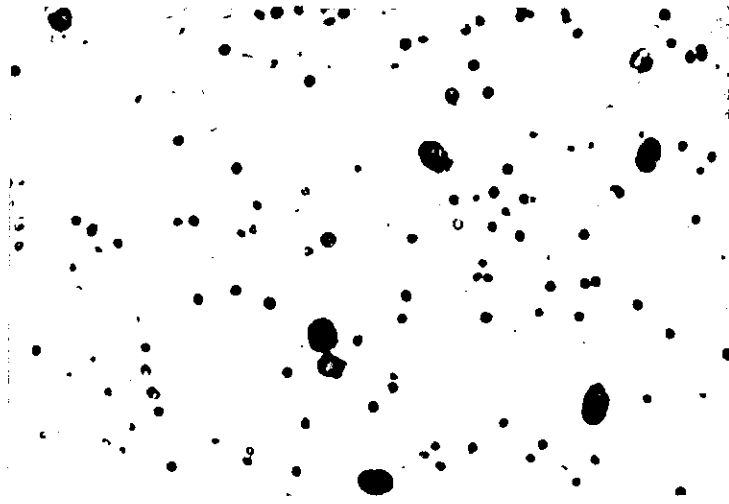


(b) 100°C - 45 minutos

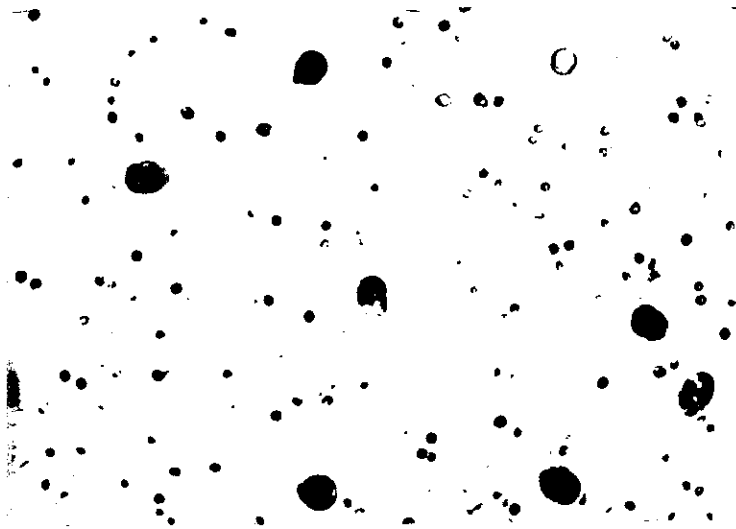


(c) 180°C - 45 minutos

Fig. 3.1.3.1 - Fotografias de traços de partículas alfa (diâmetros menores) e fragmentos de fissão (diâmetros maiores) registrados em amostras de CR-39 e submetidos a tratamento térmico de "annealing". [escala: 1cm = 40µm].



(d) 220°C - 45 minutos



(e) 240°C - 45 minutos

pertencentes às regiões ionizadas ocorre com muito mais facilidade, iniciando-se, conseqüentemente, antes daquelas não ionizadas. Portanto, o tempo de indução τ_t para o início de formação de traço revelado deve certamente ser menor do que o tempo de indução τ_g para redução de espessura das amostras. A evidência da existência de tempos de indução associados a V_g e a V_t , está no fato de que a variação total de espessura, Δe , e de diâmetro de traço, ΔD , numa amostra submetida a dois ataques consecutivos, com um intervalo de tempo entre um e outro, é menor do que a variação destes mesmos parâmetros numa lâmina idêntica, submetida a um ataque químico ininterrupto nas mesmas condições, e de mesmo tempo total.

No presente trabalho, como o tempo de ataque químico das amostras não foi suficientemente longo para que fosse possível determinar com precisão o valor de τ_g , foi, no entanto, possível estimar grosseiramente que o tempo de indução não deve ultrapassar 60 min, não só para a placa padrão, mas também para todas as amostras tratadas termicamente no intervalo de 100 a 180°C com tempo de "annealing" de até 45 minutos. Para temperaturas de "annealing" mais altas espera-se que o tempo da indução seja praticamente nulo.

Considerando-se a superioridade da taxa de dissolução na direção do traço, V_t , sobre a taxa V_g , e levando-se em conta também as condições em que foram feitas as exposições das amostras, originando imagens latentes próximas à superfície do detetor, estima-se que nas mesmas condições de "annealing", para temperaturas inferiores a 160°C, o tempo de indução associado a V_t deva ser bastante inferior a 60 minutos,

tornando-se igualmente nulo para temperaturas superiores a 160° C.

A determinação do tempo de indução τ_g para V_g , pode ser obtido a partir da expressão:

$$\frac{\Delta e}{2} = V_g (t - \tau_g) \quad (3.1.4.1)$$

onde t representa o tempo de ataque químico, $\frac{\Delta e}{2}$ representa a variação de espessura sofrida pela placa durante este tempo numa superfície. A partir de um conjunto de medidas de $\frac{\Delta e}{2}$ e t , ambas as quantidades V_g e τ_g são obtidas do ajuste dos dados à equação 3.1.4.1.

3.2 Caracterização dos modelos e cálculo da energia mínima de ativação

Associada à redução do diâmetro D dos traços, como descrito na seção 3.1.2, está a energia de ativação correspondente ao "fading" das imagens latentes dos traços. Associada à redução da população de traços ρ , (seção 3.1.3), além de se ter esta mesma energia de ativação, tem-se também, devido ao ataque químico, o processo de remoção de traços das camadas superficiais das placas de CR-39. Portanto, o que se conclui, é que não se pode atribuir unicamente à energia de ativação, o fato de um traço ter sido apagado. Como o que nos interessa é a determinação do valor mínimo desta energia, independente dos efeitos causados pelo processo de revelação, é fundamental que os modelos a serem utilizados sejam função não só da relação de Arrhenius, mas também de algum parâmetro que caracterize os tra

ços revelados. Uma vez que o diâmetro D dos traços é a grandeza que se mede após a revelação dos traços, e que estão localizados em regiões situadas abaixo das camadas dissolvidas, o modelo deve conter as variações de diâmetro dos traços como se acha descrito na seção 1.9. Como vimos, o modelo proposto por Mark e colaboradores^[39], admite que a variação do diâmetro dos traços revelados em função das condições de "annealing" é dada por:

$$D = D_0 \exp \left[\alpha_0 t \exp \left(- \frac{E_{a_m}}{kT} \right) \right] \quad , \quad (3.2.1)$$

onde D e D_0 são os diâmetros de traços observados, t é o tempo de "annealing", α_0 é uma constante (coeficiente de "annealing"), E_{a_m} é a energia mínima de ativação, k é a constante de Boltzmann e T é a temperatura absoluta de aquecimento das amostras. Da mesma forma, vimos que tanto o modelo

$$v_a = \frac{\Delta D}{\Delta t} = A t^{-n} \exp \left(- \frac{E_{a_m}}{kT} \right) \quad (3.2.2)$$

proposto por Virk e colaboradores^[31], como o modelo

$$\frac{\Delta D}{D_0} = B t^{n'} \exp \left(- \frac{E_{a_m}}{kT} \right) \quad (3.2.3)$$

proposto por Green e colaboradores^[32], também admitem tal variação do diâmetro dos traços, onde $v_a = \frac{\Delta D}{\Delta t}$ é a taxa de "annealing", $\frac{\Delta D}{D_0}$ é a variação relativa do diâmetro e A , B , n e n' , são constantes.

Em princípio, do ponto de vista teórico, como E_{a_m}

independe do tempo e temperatura de "annealing", poder-se-ia estimar o seu valor para um único tempo t . Porém, como nesse caso uma única distribuição de pontos poderia contribuir para a determinação de um valor pouco preciso de E_{a_m} , pois é muito difícil se evitar uma flutuação térmica no sistema de aquecimento, foram utilizados os três tempos de "annealing". Daí, temos sempre que considerar E_{a_m} como sendo o valor médio da energia de ativação obtida para os três tempos de "annealing" considerados (ver tabela 3.2.2).

Para se determinar o valor médio da energia mínima de ativação associado a cada modelo, o que se fez foi aplicar o método dos Mínimos Quadrados aos dados experimentais reunidos na tabela 3.2.1.

Sob a condição de que a energia mínima de ativação deve ser constante para o processo de "annealing", torna-se obrigatório o paralelismo entre as retas nas representações gráficas de cada modelo (figuras 3.2.1, 3.2.2 e 3.2.3), pois, em virtude do valor de E_{a_m} ser único (valor médio), o coeficiente angular resulta o mesmo para cada grupo de retas.

Convém salientar que os valores calculados de v_a , $\frac{\Delta D}{D_0}$ e $-\ln \frac{D}{D_0}$, como também das constantes n , A , n' , B e α_0 , foram obtidos em função das energias médias de ativação e não em função do valor da energia de ativação associado a cada uma das retas.

Tabela 3.2.1 - DADOS EXPERIMENTAIS DE ANNEALING REFERENTES A TRAÇOS DE PARTÍCULAS ALFA REGISTRADAS NO CR-39

CONDIÇÕES DE "ANNEALING"		DIÂMETRO D (μm)	TAXA DE "ANNEALING"* $v_a = \frac{\Delta D}{\Delta t} \left(\frac{\mu\text{m}}{\text{min}} \right)$	VARIACÃO RELATIVA DO DIÂMETRO* $\frac{\Delta D}{D_0}$	RAZÃO DOS DIÂMETROS $\frac{D}{D_0}$
TEMPO t (min)	TEMPERATURA T (K)				
15	453	$6,4 \pm 0,1$	-	-	-
	473	$6,3 \pm 0,1$	0,013	0,031	0,97
	503	$6,0 \pm 0,1$	0,033	0,077	0,92
	513	$5,8 \pm 0,1$	0,047	0,11	0,89
30	453	$6,4 \pm 0,1$	-	-	-
	473	$6,2 \pm 0,1$	0,010	0,046	0,95
	503	$5,6 \pm 0,1$	0,030	0,14	0,86
	513	$5,2 \pm 0,1$	0,043	0,20	0,80
45	453	$6,3 \pm 0,1$	0,0044	0,031	0,97
	473	$6,1 \pm 0,1$	0,0089	0,062	0,94
	503	$5,2 \pm 0,1$	0,029	0,20	0,80
	513	$4,7 \pm 0,1$	0,040	0,28	0,72

* $\Delta D = D_0 - D$, onde $D_0 = 6,5 \pm 0,1 \mu\text{m}$, é o diâmetro médio do traço na placa que não sofreu "annealing".

Tabela 3.2.2 - VALORES DE ENERGIA MÍNIMA DE ATIVAÇÃO E_{a_m}
CALCULADOS A PARTIR DAS REPRESENTAÇÕES
GRÁFICAS SEGUNDO OS DIFERENTES MODELOS

REPRESENTAÇÃO GRÁFICA.	TEMPO DE "ANNEALING" (min)	ENERGIA MÍNIMA DE ATIVAÇÃO E_{a_m} (eV)	VALOR MÉDIO DE E_{a_m} (eV)
v_a versus $\frac{10^3}{T(K)}$ (fig. 3.2.1)	15	0,66	$0,72 \pm 0,05$
	30	0,75	
	45	0,75	
$\frac{\Delta D}{D_0}$ versus $\frac{10^3}{T(K)}$ (fig. 3.2.2)	15	0,65	$0,72 \pm 0,05$
	30	0,76	
	45	0,74	
$-\ln \frac{D}{D_0}$ versus $\frac{10^3}{T(K)}$ (fig. 3.2.3)	15	0,69	$0,75 \pm 0,04$
	30	0,75	
	45	0,80	

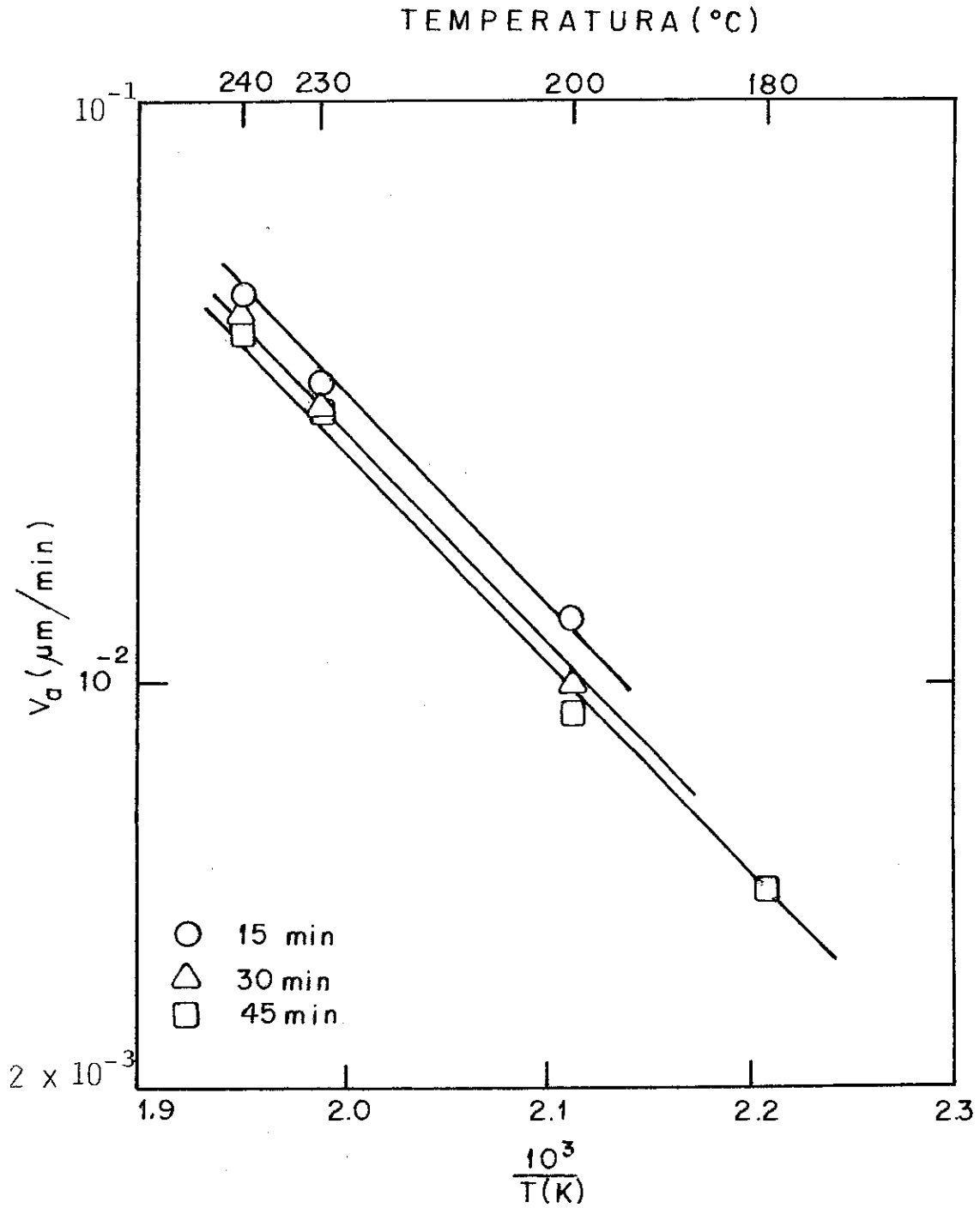


Fig. 3.2.1 - Representação logarítmica de taxa de "annealing" v_a versus $10^3/T(K)$

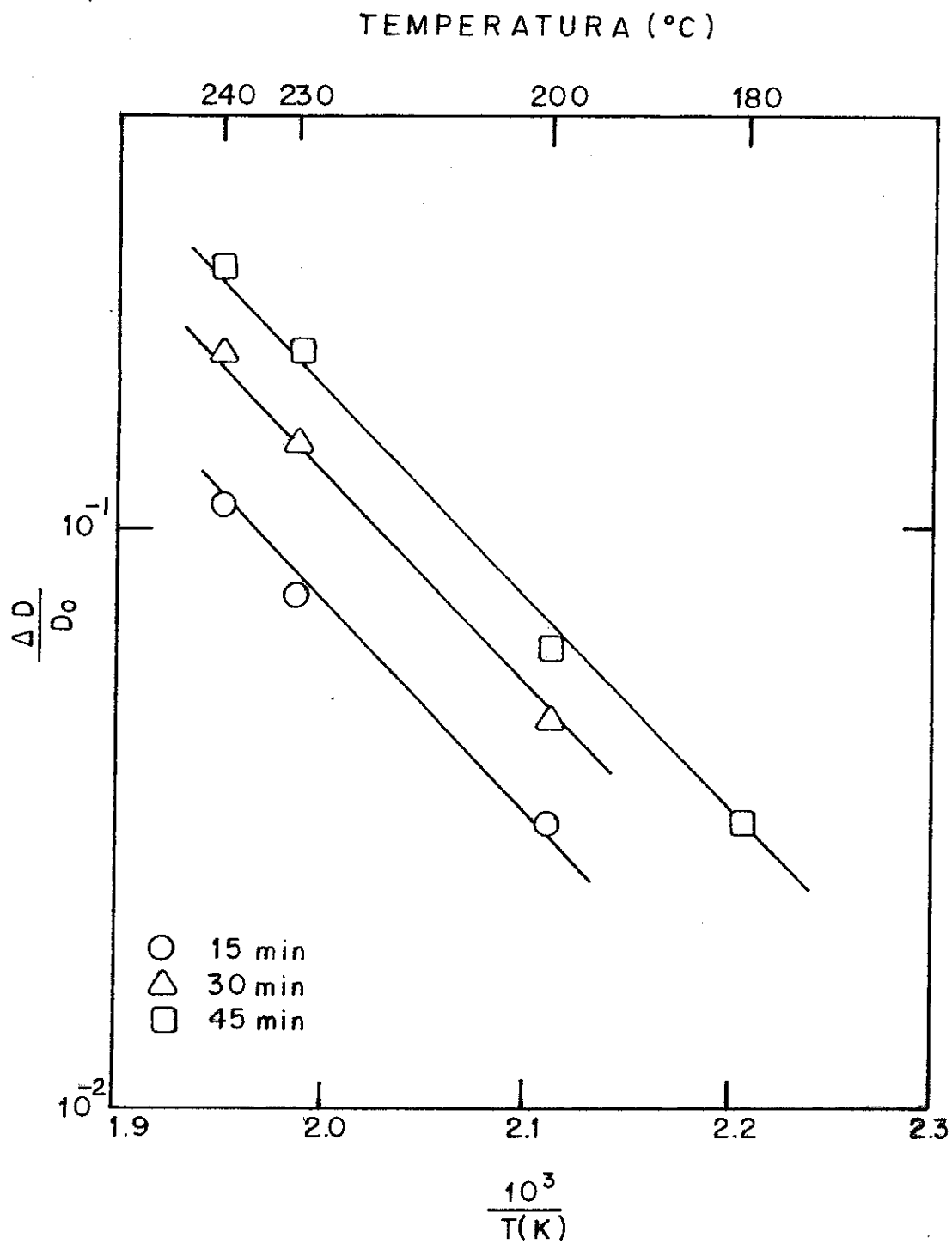


Fig. 3.2.2 - Representação logarítmica da função $\Delta D/D_0$ versus $10^3/T(K)$

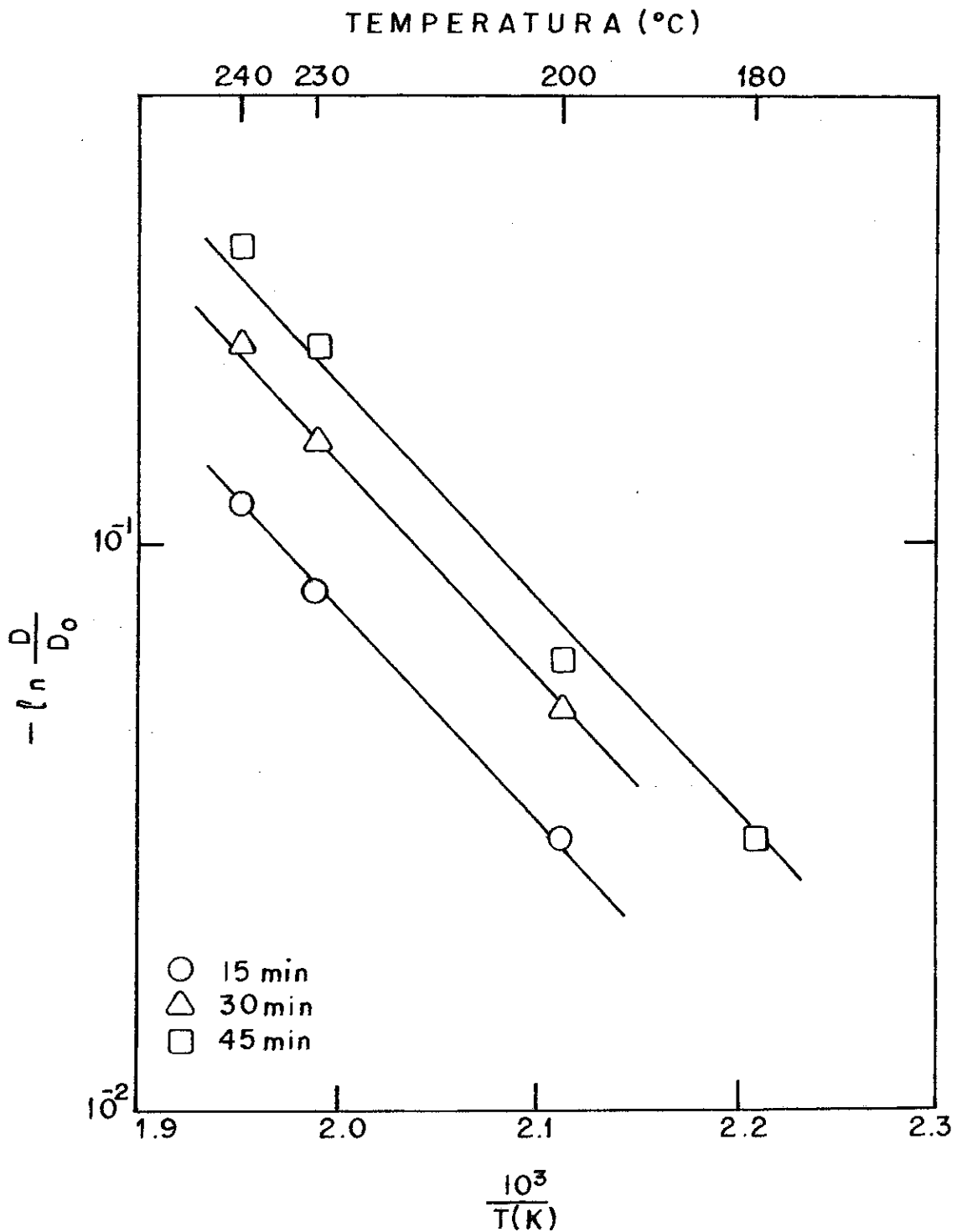


Fig. 3.2.3 - Representação logarítmica da função

$$-\ln \frac{D}{D_0} \text{ versus } 10^3/T(K)$$

3.3 Discussão dos resultados

3.3.1 - EFEITO DE "ANNEALING" SOBRE O DIÂMETRO DOS TRAÇOS LATENTES

Analisando-se as figuras 3.2.1, 3.2.2 e 3.2.3, do ponto de vista das condições de "annealing", pode-se chegar a conclusões importantes, ou sejam: os modelos utilizados revelaram-se adequados na análise dos dados de diâmetro de traços de partículas alfa, verificando-se a independência da energia média de ativação E_{a_m} , tanto em relação às condições de "annealing", quanto ao tipo de modelo utilizado. Isto, portanto, faz com que a energia mínima de ativação possa ser considerada realmente um parâmetro que caracteriza o efeito de "annealing" para partículas alfa no CR-39.

A conclusão de que o diâmetro D sofre redução, está no fato de que as quantidades v_a , $\frac{\Delta D}{D_0}$ e $-\ln \frac{D}{D_0}$ crescem com a temperatura quando se mantem o tempo de "annealing" constante.

3.3.2 - COMPARAÇÃO ENTRE RESULTADOS CALCULADOS E EXPERIMENTAIS

Com o cálculo através o método dos Mínimos Quadrados dos parâmetros n e A na equação 3.2.2, de n' e B na equação 3.2.3 e de α_0 na equação 3.2.1, obtivemos os valores mostrados na tabela 3.3.2.1.

n	n'	A	B	α_0 [min ⁻¹]		
				15 min	30 min	45 min
0,206	0,782	$0,987 \times 10^6$	$1,60 \times 10^5$	$1,86 \times 10^5$	$1,68 \times 10^5$	$1,53 \times 10^5$

Tabela 3.3.2.1 - Valores obtidos para os parâmetros n, n', A, B e α_0 associados aos modelos de "annealing" propostos.

Uma vez conhecidos os valores calculados da taxa de "annealing" v_a , da variação relativa de diâmetro $\frac{\Delta D}{D_0}$, e da razão dos diâmetros $\frac{D}{D_0}$, para graus de "annealing" pré-estabelecidos, é feita uma comparação com os resultados obtidos experimentalmente. Analisando-se a qualidade dos dados apresentados na tabela 3.3.2.2, torna-se evidente a boa descrição dos efeitos de "annealing" feita pelos modelos utilizados. A figura 3.3.2.1, mostrando a variação da razão dos diâmetros com o grau de "annealing", é a melhor forma de se avaliar a qualidade dos resultados. As curvas apresentadas são representações gráficas de um dos modelos propostos, no caso o modelo desenvolvido por Mark e colaboradores^[39] (equação 3.2.1), com os valores das constantes relacionados nas tabelas 3.3.2.1 e 3.2.2.

Como se pode notar na tabela 3.2.1, com relação à temperatura de 180°C os tempos de "annealing" de 15 e de 30 minutos demonstraram ser insuficientes para originar uma redução mensurável do diâmetro D dos traços em relação ao diâmetro padrão D_0 , uma vez que o desvio padrão é da ordem de $\pm 0,1 \mu\text{m}$. Sendo assim, os resultados experimentais encontrados para as grandezas $v_a = \frac{\Delta D}{\Delta t}$, $\frac{\Delta D}{D_0}$ e $\frac{D}{D_0}$ em função destes dois graus de "annealing" não foram considerados.

t (min)	t (°C)	Taxa de "annealing" v_a ($\mu\text{m}/\text{min}$)		Variação Relativa do Diâmetro D/D_0		Razão dos Diâmetros D/D_0	
		CAL	EXP	CAL	EXP	CAL	EXP
15	180	0,0055	-	0,013	-	0,99	-
	200	0,012	0,013	0,028	0,031	0,97	0,97
	230	0,035	0,033	0,082	0,077	0,92	0,92
	240	0,048	0,047	0,11	0,11	0,89	0,89
30	180	0,0048	-	0,022	-	0,98	-
	200	0,010	0,010	0,049	0,046	0,95	0,95
	230	0,030	0,030	0,14	0,14	0,86	0,86
	240	0,042	0,043	0,19	0,20	0,81	0,80
45	180	0,0044	0,0044	0,031	0,031	0,97	0,97
	200	0,0096	0,0089	0,067	0,062	0,93	0,94
	230	0,028	0,029	0,19	0,20	0,81	0,80
	240	0,038	0,040	0,27	0,28	0,74	0,72

TABELA 3.3.2.2 - Comparação entre valores medidos e calculados de v_a , $\frac{\Delta D}{D_0}$ e $\frac{D}{D_0}$

3.3.3 - EFEITO DE "ANNEALING" SOBRE A DENSIDADE DE TRAÇOS

Um outro estudo importante que se pode fazer, visando ainda a comparação entre os resultados calculados e experimentais, é através a variação da densidade relativa de traços com o crescimento do grau de "annealing", mostrada pelas curvas da figura 3.3.3.1.

Uma vez que o modelo elaborado por Mark e colaboradores^[39] nos permite fazer a consideração de que diâmetro e densidade de traços podem ser descritos por expressões análogas, as curvas da figura 3.3.3.1 são, do mesmo modo que na figura 3.3.2.1, a representação gráfica da equação

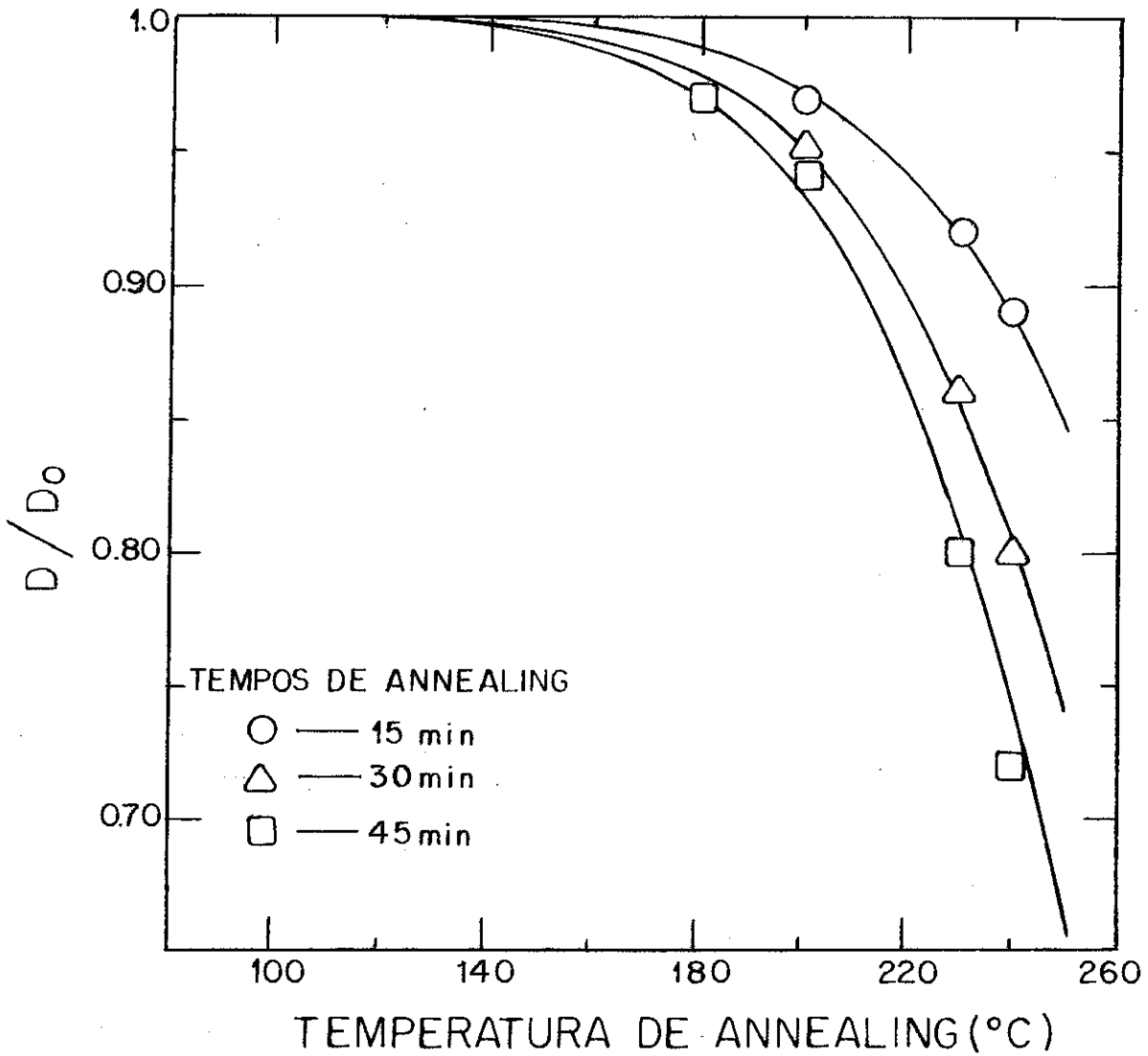


Fig. 3.3.2.1 - Variação do diâmetro relativo de traços de partículas alfa registradas no CR-39 em função da temperatura e para diferentes tempos de "annealing"

$$\rho_t / \rho_0 = e^{-\beta_0 t} e^{-E_{a_m}/kT} \quad (3.3.3.1)$$

onde β_0 é uma constante.

Verificamos que os percentuais de redução de diâmetro e de densidade diferem entre si para cada grau de "annealing". A incidência das partículas carregadas não sendo exclusivamente normal à superfície do detetor, um grande número de traços menores, originados por incidências oblíquas à esta mesma superfície, sofre "fading" total, enquanto que os diâmetros dos traços maiores sofrem "fading" parcial. Conseqüentemente, tanto os valores de α_0 , quanto o da energia mínima de ativação E_{a_m} não devem ser os mesmos que os correspondentes β_0 e E_{a_m} associados a redução de população de traços.

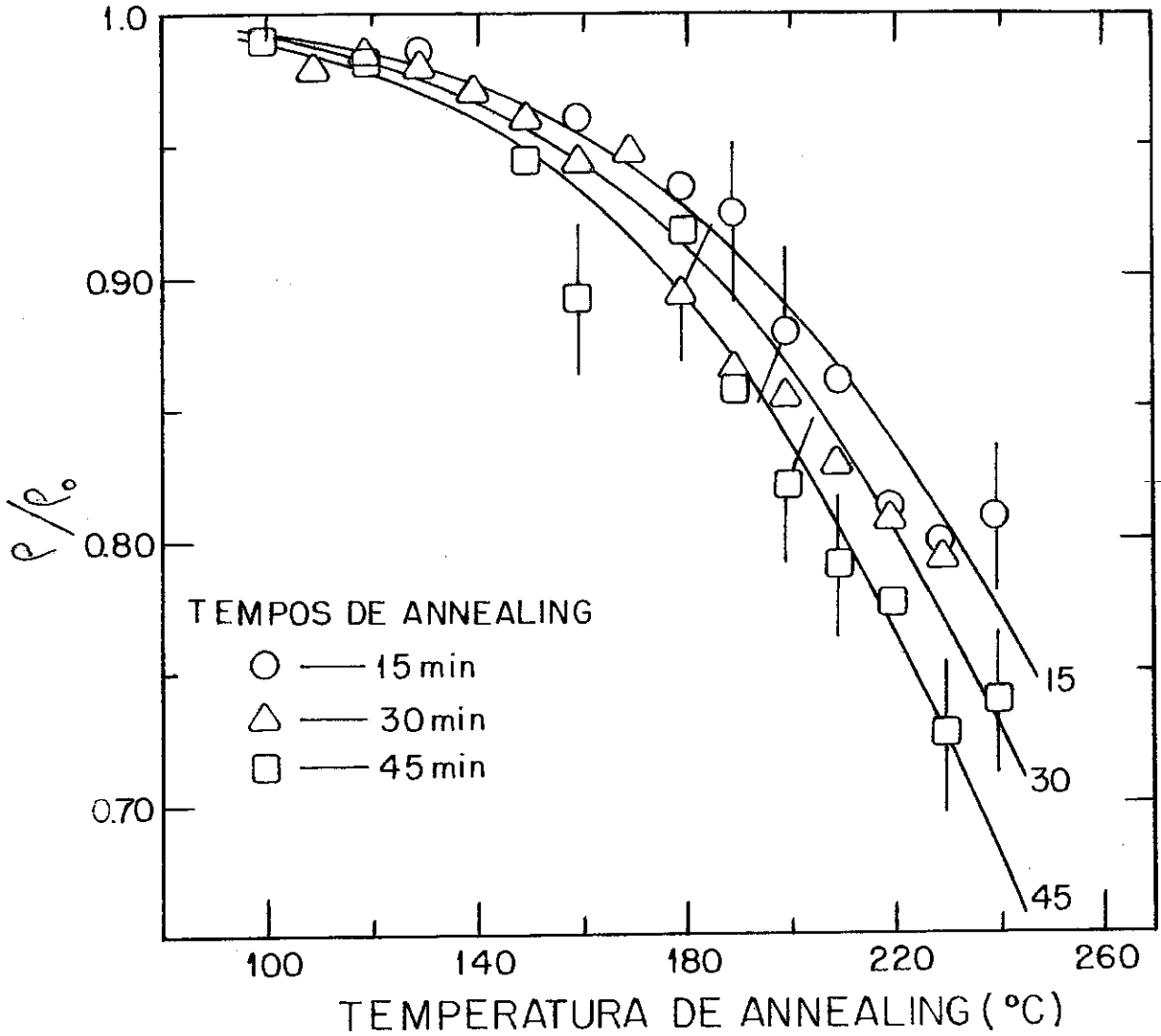


Fig. 3.3.3.1 - Variação da densidade relativa de traços de partículas alfa registradas no CR-39 em função da temperatura e para diferentes tempos de "annealing"

As curvas da figura 3.3.3.1 foram construídas com os valores da constante β_0 e da energia mínima de ativação E_a mostrados na Tabela 3.3.3.1 e que foram obtidos ajustando-se, pelo método dos mínimos Quadrados, os dados experimentais listados na Tabela 3.3.3.2 à equação 3.3.3.1.

TEMPO DE "ANNEALING" t (min)	β_0 [min ⁻¹]	E_a (eV)
15	182	0,41 ± 0,01
30	112	
45	91,4	

TABELA 3.3.3.1 - Valores obtidos para os parâmetros β_0 e E_a associados à eq. 3.3.3.1

O modo como ocorrem as reduções da razão dos diâmetros, $\frac{D}{D_0}$, e da densidade relativa de traços, $\frac{\rho}{\rho_0}$, com o aumento do grau de annealing, e um em relação ao outro, ou seja, $\frac{D}{D_0}$ versus $\frac{\rho}{\rho_0}$ (veja figura 3.3.3.2), indica serem diferentes os percentuais de redução relacionados a cada uma das razões. Seja qual for o grau de "annealing" realizado dentro dos limites de tempo e temperatura pré-determinados, o percentual de redução da densidade relativa de traços ρ/ρ_0 será sempre superior ao percentual de redução de $\frac{D}{D_0}$.

TABELA 3.3. 3. 2 - Variação da densidade de traços de partículas alfa registrados em CR-39 para diferentes condições de annealing

TEMPERATURA (°C)	$\frac{10^3}{T}$ (K ⁻¹)	DENSIDADE DE TRAÇOS ρ (TRAÇOS/UNIDADE DE ÁREA)		
		15 min	30 min	45 min
25*	3,35	19,8 ± 0,5 (ρ_0)	19,8 ± 0,5 (ρ_0)	19,6 ± 0,5 (ρ_0)
100	2,68	19,6 ± 0,4	-	19,4 ± 0,5
110	2,61	-	19,4 ± 0,5	-
120	2,54	-	19,5 ± 0,5	19,2 ± 0,5
130	2,48	19,5 ± 0,4	19,4 ± 0,5	-
140	2,42	19,2 ± 0,5	19,2 ± 0,5	-
150	2,36	19,0 ± 0,5	19,0 ± 0,5	18,5 ± 0,4
160	2,31	19,0 ± 0,5	18,7 ± 0,4	17,5 ± 0,4
170	2,26	-	18,8 ± 0,4	-
180	2,21	18,5 ± 0,4	17,7 ± 0,4	18,0 ± 0,4
190	2,16	18,3 ± 0,4	17,1 ± 0,4	16,8 ± 0,4
200	2,11	17,4 ± 0,4	16,9 ± 0,4	16,1 ± 0,4
210	2,07	17,0 ± 0,4	16,4 ± 0,4	15,5 ± 0,4
220	2,03	16,1 ± 0,4	16,0 ± 0,4	15,2 ± 0,4
230	1,99	15,8 ± 0,4	15,7 ± 0,4	14,2 ± 0,4
240	1,95	16,0 ± 0,4	-	14,5 ± 0,4

* Placas padrões (sem annealing)

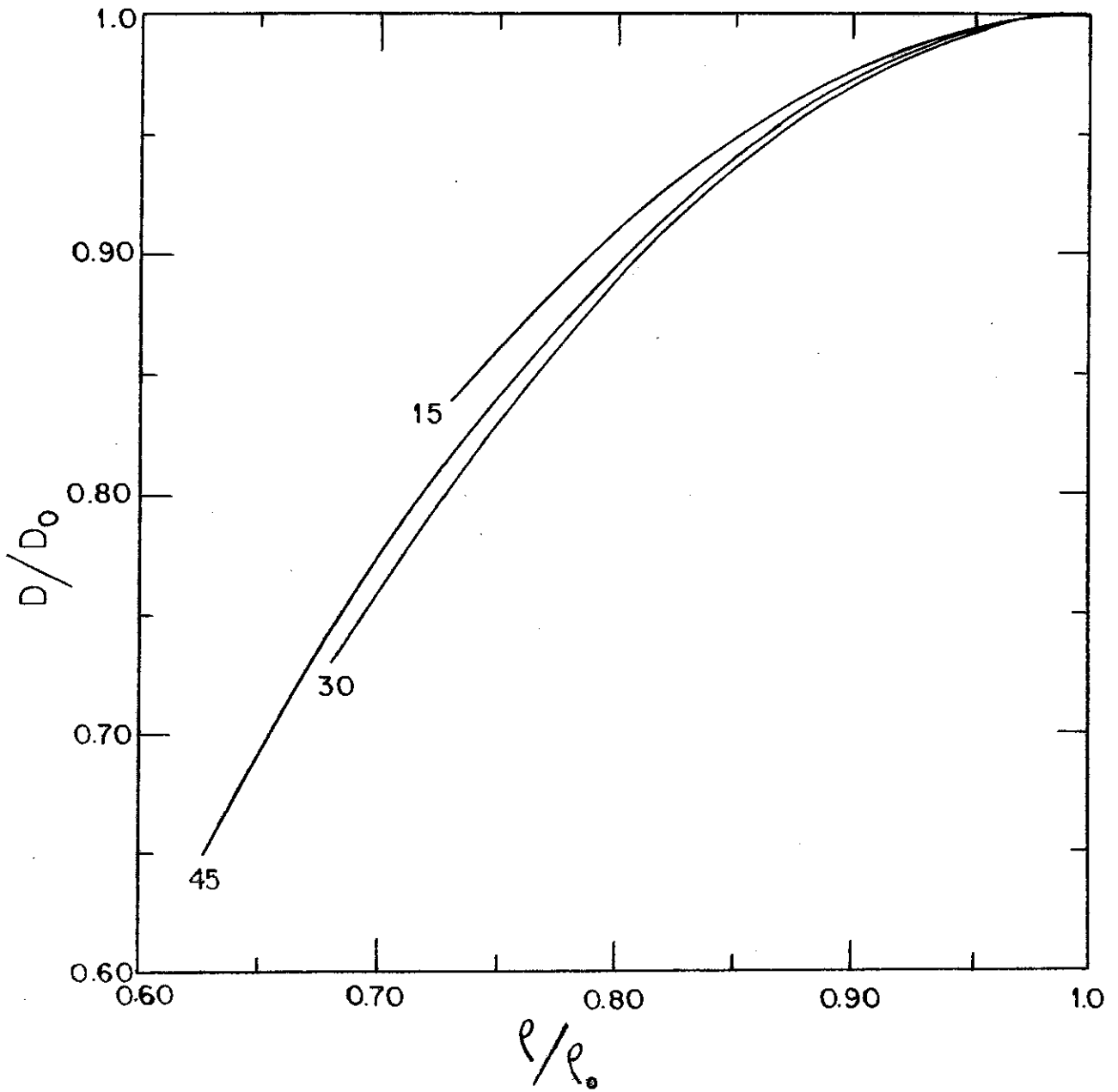


Fig. 3.3.3.2 - Representação gráfica da variação da razão dos diâmetros em relação à variação da densidade relativa de traços

3.4 Representação do espectro de energia de ativação para o CR-39 através a curva de Arrhenius

Ao intensificarmos o grau de "annealing" de detetores sólidos de traços que tenham sido expostos a partículas ionizantes, o que se faz é fornecer uma quantidade maior de energia térmica à sua estrutura interna. Conseqüentemente, maior será o percentual de redução da densidade de traços, ρ , a ela associado, que em algumas experiências, dependendo do detetor, pode atingir um valor de até 100%. A representação gráfica da forma linear da equação de Boltzmann (figura 3.4.1), dada por

$$\ln t = \ln A + \frac{E_a}{kT} \quad , \quad (3.4.1)$$

a qual denomina-se "CURVA DE ARRHENIUS", nos permite obter o espectro de valores de energia de ativação pertencentes ao intervalo 0% - 100% de redução de ρ .

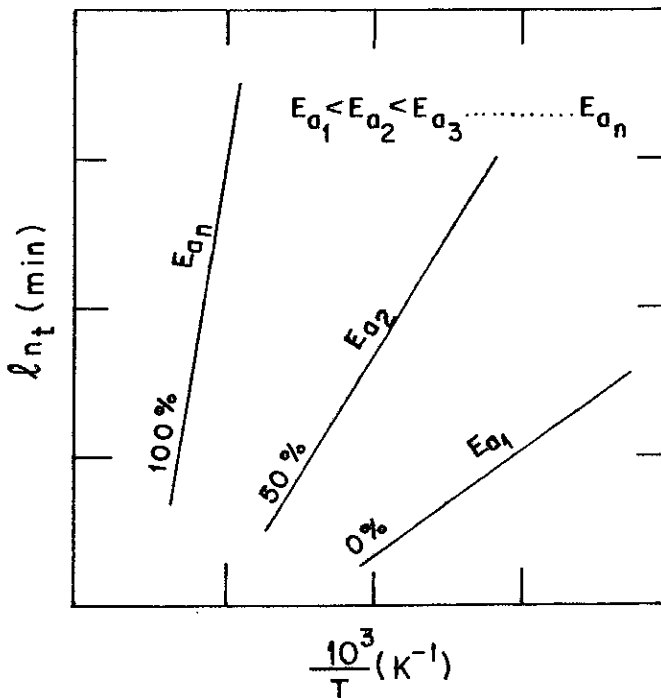


Fig. 3.4.1 - Curvas de Arrhenius para traços de partículas carregadas registradas em detetores sólidos de traços.

No caso do presente trabalho, o procedimento foi o seguinte: analisando-se as curvas das figuras 3.3.2.1 e 3.3.3.1, verificou-se quais os tempos e temperaturas de "annealing" responsáveis pelo mesmo percentual de "fading" de traços. A seguir, num gráfico $\ln t$ versus $\frac{10^3}{T(K)}$ (figuras 3.4.2.a e 3.4.2.b), localizou-se os pontos cujas coordenadas são funções exatamente destes valores de tempo e de temperatura. Traçando-se retas através os pontos, ajustadas pelo método dos Mínimos Quadrados, calculou-se seus coeficientes angulares, os quais estão relacionados às energias de ativação. Temos, assim, para cada valor de energia E_a , um percentual de "fading" associado.

Comparando a Curva de Arrhenius para traços de fragmentos de fissão registrados no detetor apatita (figura 3.4.3) [7], com as figuras 3.4.2.a e b, fica de imediato evidenciado, no presente trabalho, não apenas a limitação das amostras de CR-39 quanto a sua resistência a tratamentos térmicos, mas também a impossibilidade de obtenção do espectro de energias de ativação para traços de partículas alfa registrados neste polímero. Podemos observar que, para valores superiores a 20%, não foi possível traçar nenhuma reta, pois como se sabe, temperaturas superiores a 240°C, para tempos acima de 15 minutos, tornam impossível qualquer estimativa de variação da densidade de traços. Tal fato está diretamente ligado ao tipo de espectro construído para o CR-39. Na experiência de "annealing" feita com a apatita, onde os intervalos de tempo e temperatura são de cerca de 10⁶ minutos e 350°C, respectivamente, é possível observar "fading" de até 100%, e que é consequência de uma distribuição muito grande de pontos. No caso do CR-39, tal distribuição

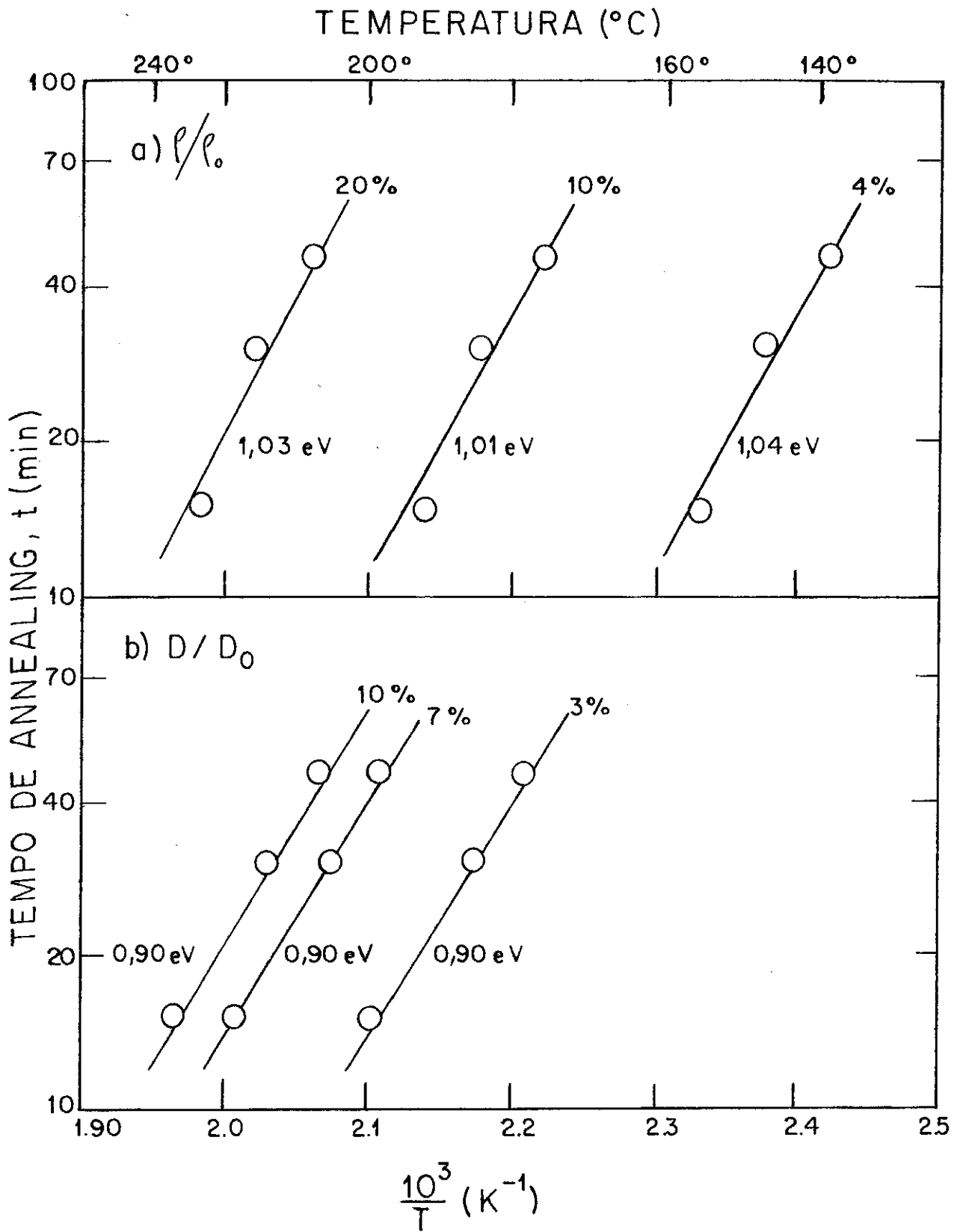


Fig. 3.4.2 - Curvas de Arrhenius para traços de partículas alfa no CR-39. Valores de energia de ativação obtidos em função da variação relativa da densidade de traços (a) e da variação relativa de diâmetro (b)

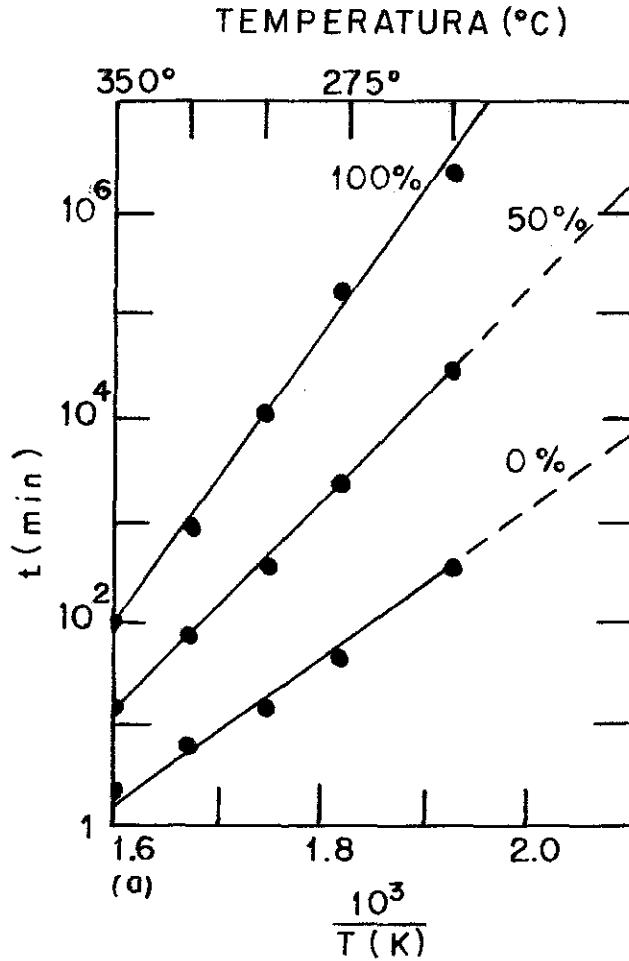


Fig. 3.4.3 - Curvas de Arrhenius para traços de fragmentos de fissão em Apatita^[7].

é muito reduzida. A curva de Arrhenius se apresenta com todas as retas praticamente paralelas entre si. Não se consegue, com isso, distinguir qualquer acréscimo do valor de energia de ativação no intervalo 0% - 20% de "fading".

Embora sejam muitos os tipos de detetores sólidos de traços conhecidos, é muito reduzido o número daqueles sobre os quais se conhece o espectro de energia de ativação.

Material Detetor	Partícula Ionizante	Energia Mínima de Ativação para "annealing" (eV)	Ref.
Vidro Soda Lime	Fragmento de fissão	0,16	[29]
Tektita	Fragmento de fissão	0,53	[29]
Muscovita	Fragmento de fissão	1,00	[29]
CR-39	^{238}U de 3,8 GeV	0,185	[14]
CR-39	^{93}Nb de 1,6 GeV	0,193	[14]
CR-39	^4He de 6,1 MeV	0,72	presente trabalho

TABELA 3.4.1.a - Comparação entre valores de energia mínima de ativação para diferentes combinações de detetor e partículas ionizantes

Material Detetor	Partícula Ionizante	% de "fading"	Energia de Ativação (eV)	Ref.
Apatita	Fragmento de fissão	50	2,1	[7]
		100	2,8	[7]
Vidro Soda Lime	Fragmento de fissão	0 - 5	0,7 - 1,2	[7]
		50	1,5 - 2,0	[7]
Tektita	Fragmento de fissão	50	2,51	[7]
Muscovita	Fragmento de fissão	50	2,8	[7]
Zircão	Fragmento de fissão	50	3,6	[7]
CR-39	^4He de 6,1 MeV	4 - 20	1,0	presente trabalho

TABELA 3.4.1.b - Comparação entre valores de energia de ativação para diferentes percentuais de "fading" de origem térmica para registro de partículas carregadas em diferentes detetores.

Fazendo-se uma análise de alguns valores de energia de ativação E_{a_m} já estabelecidos (tabela 3.4.1.a), o que se verifica é que para cada tipo de sistema detetor-partícula utilizado numa determinada experiência de "annealing", existirá um valor de energia E_{a_m} correspondente. Significa que se submetermos diferentes tipos de detetores sólidos de traços a exposição de um mesmo feixe de partículas ionizantes, obteremos diferentes valores para a energia mínima de ativação. Pode-se, assim, afirmar que, dependendo do tipo de partícula, alguns detetores poderão se mostrar bem mais estáveis do que outros ao "fading" de traços. No caso do CR-39, por exemplo, se tivesse sido possível obter o valor da energia mínima de ativação para "fading" inicial de traços de fragmentos de fissão, certamente teríamos obtido um valor bastante superior a 0,16 eV, encontrado para 0% de "fading" de traços de fragmentos de fissão no vidro soda-lime. Este resultado seria devido não apenas ao fato de serem os fragmentos de fissão muito mais ionizantes do que as partículas alfa, já que ionizam cerca de trinta vezes mais, mas também por ser de 0,72 eV a energia mínima de ativação para "fading" de traços de partícula alfa no CR-39.

Uma prova de que o grau de dificuldade para ocorrência de "fading" de traços de um mesmo tipo de partícula varia de detetor para detetor está, por exemplo, no grau de "annealing" para 0% de "fading" de traços de fragmentos de fissão no vidro soda-lime e no CR-39. No caso do vidro, basta aquecê-lo a 50°C durante 10 minutos apenas^[7]. Já com relação ao CR-39, teríamos que aquecê-lo a uma temperatura superior a 250°C e durante um tempo de no mínimo 45 minutos, o que torna-se impossível de

ser realizado devido as transformações físicas sofridas pelo plástico.

Uma outra conclusão a que se pode chegar é que, ao contrário do que ocorre com os detetores sólidos inorgânicos, torna-se muito difícil a construção da Curva de Arrhenius para os traços de partículas altamente ionizantes registrados pelas amostras de CR-39, como os fragmentos de fissão, por exemplo. Certamente, a reta correspondente a 0% de "fading" estará localizada numa região contendo somente pontos referentes a temperaturas bem acima de 260°C , e esta região é praticamente inexistente na figura 3.4.2.a,b.

Finalmente, comparando-se os resultados de uma experiência de "annealing" apresentados recentemente por H.S. Virk, S.K. Modgil e R.K. Bhatia^[14], com os resultados obtidos no presente trabalho, podemos também constatar que, dependendo da procedência do material detetor utilizado, a energia mínima de ativação que se obtém, e que em princípio pode ser considerado como sendo um parâmetro que caracteriza o tipo de sistema de detetor/partícula, poderá apresentar diferentes valores. No trabalho realizado por estes pesquisadores, onde amostras de CR-39 fabricadas pela PERSHORE MOULDINGS Ltda., foram expostas a feixes de ^{238}U de 10 e 16 MeV/N e a feixes de ^{93}Nb de 18 MeV/N obtidos com o auxílio do acelerador UNILAC. A energia mínima de ativação determinada para ambos os tipos de partículas foi de $\sim 0,19$ eV. Considerando-se que as partículas alfa possuem um poder de ionização bem menor do que estes ions, e que, no presente trabalho, a energia mínima de ativação a elas associadas foi estimada em 0,72 eV utilizando-se lâminas de CR-39 produzidas

pela AMERICAN ACRYLICS & PLASTICS, INC., certamente obteríamos para estes íons pesados, um valor bem superior à 0,19 eV, caso não ocorresse, como já foi mencionado anteriormente, a deformação superficial do polímero com o fornecimento excessivo de calor.

3.5 Conclusões

O objetivo do presente trabalho foi o de estudar a resposta do detetor sólido de traços CR-39 ao registro de partículas carregadas quando submetido a diferentes condições de "annealing". Foram analisadas as variações de velocidade geral de ataque químico, de diâmetro dos traços revelados, de densidade de traços, como também procurou-se obter informação a respeito dos tempos de indução. A principal grandeza determinada experimentalmente foi a energia mínima de ativação para "fading" de traços de partículas alfa registrados no polímero CR-39. Como meio de se obter as partículas carregadas, foi utilizada uma fonte ordinária de ^{252}Cf . Feita a exposição à fonte, realizou-se o ataque químico das amostras com solução de NaOH mantida a temperatura constante de 70°C durante 4,5 horas. Com os dados experimentais analisados, obtidos das medidas feitas ao microscópio ótico, fez-se um estudo através alguns modelos propostos por diferentes autores, o qual nos permitiu estimar, não apenas o valor da energia mínima de ativação, mas também definir o espectro de energias de ativação associadas à diferentes percentuais de "fading". Os resultados por nós obtidos foram, então, confrontados com os de outros autores em experiências semelhantes. Mesmo considerando-se as limitações de ordem experimental, principalmente no que se refere à ótica utilizada na observação dos traços revelados originando, conseqüentemente, erros inerentes às medidas realizadas, nossos resultados são suficientes para concluirmos que:

1. A velocidade geral de ataque químico V_g , ou taxa de dissolução do material, cresce significativamente com o grau

de "annealing", a partir de um determinado par de valores de tempo e temperatura (figura 3.1.1.1).

2. As reduções de diâmetro dos traços revelados, observados aqui apenas para traços de partículas alfa, crescem com o grau de "annealing". Embora também tenham sido registrados traços de fragmentos de fissão, seus diâmetros não se alteraram com as condições de "annealing" do presente trabalho. A conclusão a que podemos chegar é de que os valores adotados para as variáveis tempo e temperatura de "annealing" foram insuficientes para iniciar o processo de "fading" das imagens latentes dos traços de fragmentos de fissão.

3. Da mesma forma que na redução de diâmetro, a redução da densidade de traços foi observada apenas para traços de partículas alfa e é igualmente crescente com o grau de "annealing". Podemos ainda afirmar que a redução de densidade de traços deve-se, em parte, a existência da variação de V_g com as condições de "annealing". Dentro dos limites de tempo e temperatura utilizados para o tratamento térmico, não foi observada nenhuma variação na densidade de traços de fragmentos de fissão.

4. Devido ao fato do ataque químico não ter sido suficientemente longo, fez-se apenas uma estimativa para o valor do tempo de indução para redução de espessura das amostras, bem como para o valor do tempo de indução para início de formação dos traços revelados de partícula alfa.

5. O processo de "annealing", bem como a remoção de traços das camadas superficiais das placas de CR-39 devido ao ataque químico, podem ser responsáveis pelo decréscimo na popula

ção de traços.

6. O valor obtido para a energia mínima de ativação ($0,72 \pm 0,05$ eV) independe tanto do grau de "annealing" quanto do tipo de modelo utilizado, porém existem valores mínimos de tempo e temperatura abaixo dos quais os resultados experimentais obtidos não nos permitem determinar a energia mínima de ativação.

7. A incidência de partículas carregadas sendo normal e oblíqua à superfície do detetor, faz com que os percentuais de redução de diâmetro de traço sejam sempre inferiores aos percentuais de redução de densidade de traços para qualquer grau de "annealing" (figura 3.3.3.2).

8. Devido à resistência limitada do polímero CR-39 a tratamentos térmicos de "annealing", não foi possível constatar através a construção da Curva de Arrhenius o aumento da energia de ativação com o crescimento do percentual de "fading" de traços de partículas alfa. Pelo mesmo motivo, não pode ser calculada a energia mínima de ativação para "fading" de traços de fragmentos de fissão.

9. Para cada tipo de detetor existe uma dependência do valor da energia mínima de ativação com o tipo de partícula ionizante. Para uma partícula com determinadas características, certos detetores mostraram-se bem mais resistentes ao "fading" das imagens latentes dos traços.

10. Fazendo-se uma comparação dos resultados obtidos no presente trabalho com os resultados de experiências semelhantes apresentados por outros autores, verificamos que o valor calculado para a energia mínima de ativação para "fading" de

traços de partículas alfa mostra-se bastante de acordo frente a resistência oferecida pelo CR-39 aos efeitos de "annealing".

Finalizando, queremos destacar a importância de se realizar estudos experimentais de "annealing" com o CR-39, visando a determinação de energias mínimas de ativação, tanto para "fading" de traços de partículas alfa, quanto de fragmentos de fissão através os modelos propostos. Esperamos, com isso, que os nossos resultados, quando confrontados com os de futuros trabalhos nesta mesma linha, venham a ser confirmados.

BIBLIOGRAFIA

- [1] D.A. Young, "Etching of Radiation Damage in Lithium Fluoride", *Nature* 182, (1958), 375-377.
- [2] E.C.H. Silk e R.S. Barnes, "Examination of Fission Fragment Tracks with an Electron Microscope", *Phil. Mag.*, 4, (1959), 970-971.
- [3] P.B. Price e R.M. Walker, "Chemical Etching of Charged Particle Tracks", *J. Appl. Phys.*, 33, (1962), 3407-3412.
- [4] R.L. Fleischer e P.B. Price, "Tracks of Charged Particles in High Polymers", *Science*, 140, (1963), 1221-1222.
- [5] R.L. Fleischer e P.B. Price, "Charged Particles Tracks in Glass", *J. Appl. Phys.*, 34, (1963), 2903-2904.
- [6] 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), 1705-1714.
- [7] R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications", University of California Press (1975).
- [8] B.G. Cartwright, E.K. Shirk e P.B. Price, "A Nuclear Track Recording Polymer of Unique Sensitivity and Resolution", *Nucl. Instr. and Meth.*, 153, (1978), 457-460.
- [9] R.M. Cassou e E.V. Benton, "Properties and Applications of CR-39 Polymeric Nuclear Track Detector", *Nucl. Track Det.*, 2, (1978), 173-179.
- [10] H.A. Khan e N.A. Khan, "Fast Neutron Dosimetry Using a CR-39 Plastic Track Detector", *Nucl. Instr. and Meth.*, 178 (1980), 491-497.
- [11] E.V. Benton, C.C. Preston, F.H. Ruddy, R. Gold e Y.M. Roberts, "Proton and Alpha Particle Response Characteristics of CR-39 Polymer for Reactor and Dosimetry Applications",

- Solid State Nuclear Track Detectors, Proceedings of The 10th Internacional Conference, Lyon 2-6 July, 1979, (H. François et al., Ed.), Pergamon Press (Oxford, 1980), 459-467.
- [12] E.S. da Fonseca, "Algumas Características do Detetor Sólido de Traços CR-39 para Registro de Prótons e Partículas Alfa de Baixa Energia", Tese de Mestrado, CBPF (1983).
- [13] M.A.R. Franco e S.B. Herdade, "Desenvolvimento da Técnica de Detecção de Fotoprótons e Fotoalfas no CR-39". IX Reunião de Trabalhos sobre Física Nuclear no Brasil, Caxambu/MG, 30/08 a 03/09, 1986, Comunicação de Física Nuclear Aplicada e Instrumentação, pág. 50.
- [14] H.S. Virk, S.K. Modgil e R.K. Bhatia, "Activation Energy for the Annealing of Radiation Damage in CR-39: An intrinsic Property of the Detector", Nucl. Tracks Radiat. Meas. 11, (1986), 323-325.
- [15] D.L. Henshaw, N. Griffiths, O.A.L. Landen, E.V. Benton, "A Method of Producing thin CR-39 Plastic Nuclear Detectors and their Application in Nuclear Science and Technology", Nucl. Inst. and Meth, 180 (1981), 65-77.
- [16] R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Wlaker, "The Ion Explosion Spike mechanism for Formation and Charged Particle Tracks in Solids", J. Appl. Phys., 36, (1965), 3645-3652.
- [17] E.V. Benton e W.D. Nix, "The Restricted Energy Loss Criterion for Registration of Charged Particles In Plastics", Nucl. Inst. and Meth., 67, (1969), 343-347.
- [18] H.G. Paretzke, "Comparison of Track Structure Calculations with Experimental Results", 4th Symp. on Microdosimetry, Verbania Pollanza, Italy, (1973).
- [19] S.A. Durrani e R.K. Bull, "Solid State Nuclear Track Detection, Principles, Methods and Applications", Pergamon Books Ltd., (1987), pág. 41.
- [20] F. Seitz, "The Disordering of Solids by the Action of Fast Massive Particles", Disc. Faraday Soc., 5, (1949), 271-282.

- [21] J.A. Brinkman, "Production of Atomic Displacements by High Energy Particles", Am. J. Phys., 24, (1955), 246-267.
- [22] J. Lindhard e P.V. Thomsen, "Sharing of Energy Dissipation between Electronic and Atomic Motion", Radiation Damage in Solids, 1 (1962), 66-76. Int. Atomic Energy Agency, Viena.
- [23] E.V. Benton, "On Latent Track Formation in Organic Nuclear Charged Particle Track Detectors", Rad. Effects, 2, (1970) 273-280.
- [24] J. Fain, M. Monnin e M. Montret, "Heavy Ion Effects in Polymers", 3rd Symp. Radiat. Chemistry, Tihany (Hungary), 10-15 May, 1971.
- [25] R.H. Boyett, D.R. Johnson e K. Becker, "Some Studies on the Chemical Damage Mechanism Along Charged Particle Tracks in Polymers", Rad. Research, 42, (1970), 1-12.
- [26] J. Fain, M. Monnin e M. Montret, "Spatial Energy Distribution Around Heavy Ion Paths", Rad. Research, 57, (1974), 379-389.
- [27] M.L.C.P. de Carvalho, "Efeitos de Irradiação nas Propriedades de Policarbonatos como Detetores de Traços de Fissão Induzida em Reator", Tese de Mestrado, PUC/RJ, (1984).
- [28] H.H. Heckman, B.C. Perkins, W.G. Simon, F.M. Smith e W.H. Barkas, "Range and Energy-Loss Processes of Heavy Ions in Emulsions", Phys. Rev., 117, (1960), 544.
- [29] Gy. Almási e G. Somogyi, "Range and REL Data for Light and Heavy Ions in CR-39, CN-85 and PC Nuclear Track Detectors", Atomki Közlemények, 23, (1981), 99-112.
- [30] S.K. Modgil e H.S. Virk, "Annealing of Fission Fragment Tracks in Inorganic Solids", Nucl. Inst. and Meth., B 12, (1985), 212-218.
- [31] H.S. Virk, S.K. Modgil e G. Singh, "Fission Track Annealing Models and the Concept of a Single Activation Energy", Nucl. Inst. and Meth., B 21, (1987), 68-71.
- [32] P.F. Green, I.R. Duddy, A.J.W. Gleadow e P.R. Tingate,

“EFEITOS DE ANNEALING NAS CARACTERÍSTICAS DE REGISTRO
DE PARTÍCULAS CARREGADAS NO DETETOR SÓLIDO DE TRAÇOS
CR-39”

MAURÍCIO MOREIRA CORREA

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 Antônio Paula Tavares - Presidente

Kazuo Fuzikawa

Sérgio Joffily

Rio de Janeiro, 12 de outubro de 1989