

TOM MICHAEL JOHANNES KNÖFEL

DETERMINAÇÃO EXPERIMENTAL DO LIMIAR DE DETECÇÃO  
DE PARTÍCULAS ALFA NO NITRATO DE CELULOSE

Tese de

MESTRADO

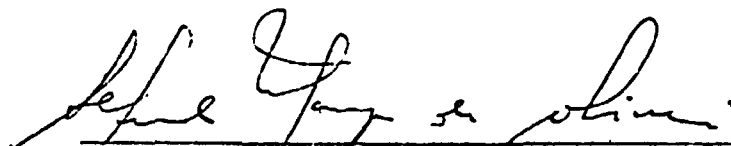
CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

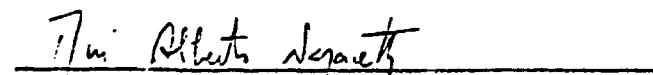
Rio de Janeiro

- 1978 -

T 149  
K 72

Tese apresentada ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas  
do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tec-  
nológico, fazendo parte da Banca Examinadora os seguintes  
professores:

  
Alfredo Marques de Oliveira - Presidente

  
Rui Alberto Mira dos Santos Nazareth

  
Jaçer Benuzzi Martins

T149  
K72

Rio de Janeiro, 27 de novembro de 1978

- À Maria Regina

- À Carmen Angelita e Heidemarie

## SUMÁRIO

	<u>Pág.</u>
AGRADECIMENTOS .....	iii
RESUMO .....	iv
LISTA DE FIGURAS .....	vi
LISTA DE TABELAS .....	viii
INTRODUÇÃO .....	1
<u>CAPÍTULO I</u> - PRINCÍPIOS DE DETEÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETE TORES SÓLIDOS DE TRAÇOS .....	7
1.1 - Mecanismos de Formação do Traço Latente .....	7
1.2 - Mecanismo de Revelação do Traço Latente .....	14
<u>CAPÍTULO II</u> - DETERMINAÇÃO EXPERIMENTAL DA ENERGIA CRÍTICA PARA DETE ÇÃO DE PARTÍCULAS ALFA EM NITRATO DE CELULOSE .....	22
2.1 - Base do Método .....	22
2.2 - Procedimentos Experimentais .....	27
<u>CAPÍTULO III</u> - RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO .....	30
3.1 - Energia das Partículas Alfa e Velocidade de Remoção do Nitrato de Celulose .....	30
3.2 - Observação de Traços de Partículas Alfa em Nitrato de Celulose .....	33
3.3 - Determinação da Energia Crítica .....	35
3.4 - Conclusões .....	39
BIBLIOGRAFIA .....	40

## AGRADECIMENTOS

- ao Prof. Alfredo Marques de Oliveira, pela orientação segura e dedicação;

- ao Prof. Odilon Antonio Paula Tavares, pela inestimável colaboração com valiosas sugestões e críticas;

- ao Eng. Ivanor Sachett, pelo valioso apoio prestado durante a execução do trabalho;

- ao Prof. Luis Tachata, pelo inestimável incentivo e apoio com os quais sempre me ajudou;

- ao Eng. João Marques Ferreira, pela confecção de equipamentos;

- ao Prof. Jader Benuzzi Martins, pelo otimismo e dedicação ao Grupo do DFNP do CBPF.

- ao Dr. Rex Nazaré Alves, ex-Diretor do Instituto de Radioproteção e Dosimetria, e à Dra. Dagmar Carneiro da Cunha Reis, atual Diretora, pelas oportunidades e facilidades concedidas;

- aos amigos do IRD e do CBPF, pela amizade e apoio;

- à Sra. Lésia Hryhorczuk, pelo seu formidável trabalho de microscopia;

- à Sra. Helena de Souza Ciccarino, pela excelente execução datilográfica deste trabalho;

- ao Instituto Militar de Engenharia, pela colaboração prestada para a análise da composição do detetor;

- ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas e ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria, pelo apoio recebido.

## RESUMO

Películas de nitrato de celulose LR 115, tipo II, da Kodak-Pathé, foram irradiadas perpendicularmente com feixes monoenergéticos de partículas alfa no intervalo de energia 2,5-5,5 MeV.

Uma fonte intensa de  $\text{Am}^{241}$  produziu os feixes de partículas alfa, e argônio foi usado como atenuador de energia. Após as irradiações, as amostras foram atacadas com soluções 4,0 N de NaOH, sem agitação, a  $60^{\circ}\text{C}$ , por períodos de tempo diferentes variando de 15 min a 3,5 h. Mediante observação num microscópio óptico, foram feitas medidas de densidade e de diâmetro dos traços revelados.

Um estudo da composição das amostras utilizadas pelo método CHN de análise de gases de combustão, revelou boa concordância com a composição do trinitrato de celulose.

Mediante um método desenvolvido neste trabalho para a determinação do limiar de detecção, e a partir dos resultados obtidos foi possível concluir que, nas condições de ataque químico acima citadas para nitrato de celulose, somente ocorre revelação de traços latentes de partículas alfa com poder frenador superior a  $0,87 \pm 0,06 \text{ MeV} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{mg}^{-1}$ .

LISTA DE FIGURAS

<u>Fig.</u>	<u>Pág.</u>
1 - (a) Traços de fragmentos de fissão no vidro e, (b) na mica .....	1
1.1.1 - Mecanismo de formação do traço latente segundo o modelo da ponta de explosão iônica. A região ionizada é instável ejetando íons, criando vacâncias e átomos intersticiais. Posteriormente a região relaxa elasticamente deformando a matriz original .....	8
1.1.2 - Dose calculada em função da distância radial da trajetória de uma partícula alfa no nitrato de celulose, devido à ionização, excitação e vibração (19) .....	11
1.1.3 - Efeito do pré-aquecimento prolongado (4 a 15 hs) sobre o diâmetro de traços de fragmentos de fissão (a), e sobre a densidade relativa de traços de partículas alfa (b), no NC Kodak-Pathé, LR 115, após a irradiação e revelação (26)...	14
1.2.1 - Representação esquemática do perfil sub-microscópico do traço, formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula .....	15
1.2.2 - Representação esquemática da forma da superfície do traço, para $V_p$ crescente (a), constante (b) e decrescente (c), em relação à distância de penetração no detetor .....	17
1.2.3 - Representação geométrica da evolução do traço .....	17
1.2.4 - Representação do perfil do traço latente de uma partícula alfa, associada à curva de Bragg .....	20
1.2.5 - Esquema ilustrando o conceito de ângulo crítico de incidência .....	21
2.1.1 - Traços de partículas alfa revelados no detetor de NC LR115, tipo II, da Kodak-Pathé .....	23

2.1.2 - Esquema ilustrativo do aspecto do traço em relação à camada residual do detetor .....	24
2.1.1 - Esquema de montagem do sistema de irradiação .....	27
2.2.2 - Esquema de montagem utilizado para os ataques químicos...	28
3.1.1 - Curva de calibração da energia do feixe de partículas alfa em função da pressão de argônio .....	30
3.1.2 - Espessura da camada residual de NC em função do tempo de ataque químico .....	31
3.1.3 - Densidade óptica da camada residual de NC em função do tempo de ataque químico .....	32
3.2.1 - Número médio de traços que perfuraram a camada residual de NC, em função da energia de incidência, para alguns tempos de ataque químico .....	34
3.2.2 - Diâmetro médio do traço sobre a base de poliéster, em função da energia de incidência, para vários tempos de ataque químico. A incerteza na energia é de $\pm 0.1$ MeV.....	35
3.2.3 - Energia de incidência $E_0(\Delta L)$ versus espessura da camada removida de nitrato de celulose .....	36
3.3.1 - $\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}$ de partículas alfa no trinitrato de celulose .....	37



## LISTA DE TABELAS

<u>Tab.</u>		<u>Pág.</u>
	1 - Condições de ataque químico para diversos tipos de detetores sólidos de traços ( <u>7,8</u> ) .....	4
	3.2.1 - Limites de detecção adotados em função do tempo de ataque químico .....	34

## INTRODUÇÃO

Na maioria dos sólidos dielétricos, orgânicos e inorgânicos, tais como vidros, quartzo, mica, polímeros (nitrato e acetato de celulose) e policarbonatos (makrofol e outros), a passagem de partículas carregadas pesadas cria estreitas regiões intensamente danificadas ao longo e ao redor de suas trajetórias. Estas regiões podem ser reveladas mediante um ataque químico apropriado, sendo rápida e preferencialmente dissolvidas, criando traços visíveis ao microscópio ótico, conforme mostra a Figura 1.

(a)

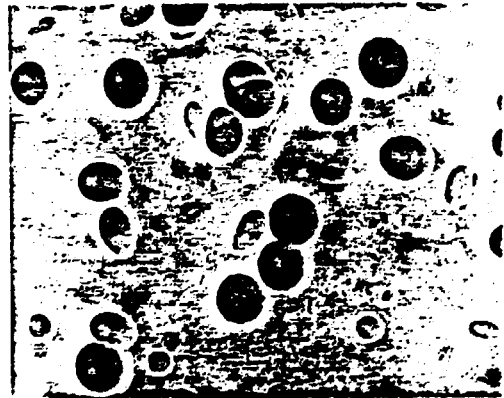
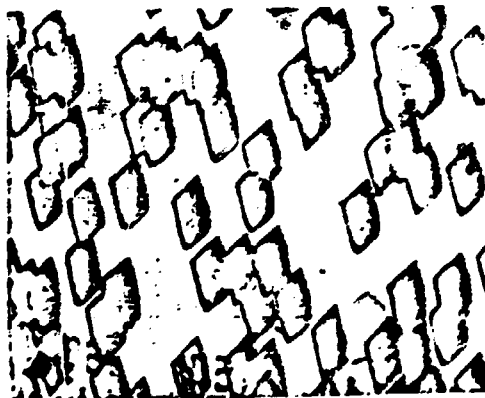


Figura 1 - (a) Traços de fragmentos de fission no vidro e,

(b) na mica.

(b)



A formação de traços visíveis ao microscópio óptico, resulta de um complexo processo físico-químico que pode ser melhor compreendido considerando dois estágios distintos: o primeiro consiste na formação de um traço latente ao longo da trajetória, resultante de modificações na estrutura e composição do meio; o segundo consiste em patentear o traço latente mediante um tratamento químico seletivo. As características do traço assim formado, podem ser relacionadas com os parâmetros físicos da partícula, com as propriedades do meio e com as condições de revelação (composição e concentração do reagente, temperatura e tempo de ataque químico).

Esta técnica, extremamente simples, de detecção de partículas carregadas pesadas com Detetores Sólidos de Traços (DST), foi inicialmente descrita por Young em 1958 (1). Young observou que, após um ataque químico com uma solução de ácido acético e fluorídrico, surgiram traços microscópicos na superfície de um cristal de fluoreto de lítio, irradiado com fragmentos de fissão. Posteriormente, foi observado que o aparecimento de traços ocorria também em outros materiais, como mica (2), vidros (3), e, especialmente nos polímeros (4), estes muito sensíveis, capazes de registrar traços de partículas alfa de até alguns MeV de energia.

A partir de 1962, a técnica de detecção com os DST ganhou grande impulso, criando amplas e numerosas aplicações na Física Nuclear, Datação Geológica e Arqueologia, Biofísica, Dosimetria das Radiações e Tecnologia Nuclear (5), já substituindo satisfatoriamente, em alguns casos, o uso de emulsões nucleares, devido a algumas vantagens que os DST apresentam, tais como:

- 1) são insensíveis à radiação eletromagnética, elétrons e prótons de alta energia, possibilitando a identificação de partículas pesadas na presença de um intenso fundo ("background") de partículas menos ionizantes;
- 2) apresentam menor desvanecimento dos traços latentes ("fading"), e maior estabilidade química à temperatura e umidade ambientais, possibilitando a revelação de traços de partículas que foram registradas em épocas remotas;
- 3) são mais econômicos, de fácil fabricação, manipulação e observação.

Foi constatado experimentalmente que a eficiência de detecção, mediante a técnica de revelação de traços, depende fundamentalmente do poder de frenamento do meio detetor ( $-dE/dx$ ). Em princípio, não existe um limiar para o valor de  $-dE/dx$ , abaixo do qual não sejam produzidos danos nos materiais dielétricos. Contudo, observou-se que, em determinadas condições de ataque químico, somente para valores superiores a um dado  $-dE/dx$ , conforme a natureza do dielétrico, ocorre a revelação dos traços. Este fato pode ser interpretado adotando o critério da perda crítica de energia (6), abaixo do qual a energia localmente absorvida, na vizinhança da trajetória (dose), não produz uma densidade suficiente de danos reveláveis. A Tabela I fornece alguns tipos de DST mais empregados, as condições de revelação e as respectivas partículas menos ionizantes detetáveis (7,8). As linhas contínuas separam os grupos de detetores com sensibilidade

TABELA I - Condições de ataque químico para diversos tipos de de tetores sólidos de traços (7,8).

MATERIAL	CUNDIÇÕES DE ATAQUE	$(-dE/dx)_{craft}$ (MeV cm <sup>2</sup> mg <sup>-1</sup> )	ION MENOS IONIZANTE DETETÁVEL
Olivina	KOH sol. norm., 6 min, 160°C	~ 20	
Hipersteno	HF 10%, 30 seg, 23°C		
Zirconita	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> 85%, 1 min, 450-500°C	~ 19	~ Ca
Labradorita	KOH sol. norm., 15 min, 210°C		
Vidro (P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> )	HF 48%, 30 min, 23°C	~ 15	~ S
Vidro Soda	HF 48%, 3 seg, 23°C		
Vidro Tektita	HF 48%, 30 seg, 23°C		
Ortoclase	HF 48%, 10 seg, 23°C		
Quartzo	KOH sol. norm., 10 min, 210°C		
Mica	HF 48%, 3 seg - 40 min, 23°C	~ 13	Si
Mylar	NaOH 6N, 10 min, 70°C	~ 4	O
Lexan	NaOH 6N, 8 min, 70°C		C
Poliester (C <sub>17</sub> H <sub>9</sub> O <sub>2</sub> )	NaOH 6N, 8 min, 70°C	~ 3	B
Acetato de Celulose	NaOH 6N, 12 min, 70°C	~ 2	~ He
Nitrato de Celulose	NaOH 6N, 2 - 4 h, 23°C		

des bastante diferentes, e, as pontilhadas, os grupos com sensibilidades semelhantes.

A eficiência de um dado material depende, também, além da composição do meio e das condições de revelação, das condições de tratamento físico-químico antes da irradiação ou revelação, tais como aquecimento, exposição à radiação gama e ultravioleta, presença de gases, umidade e tempo de latência. A relação entre as propriedades dos dielétricos e a capacidade de formação de traços, não é ainda bem conhecida, sendo difícil prever a sensibilidade de novos materiais. Os mecanismos de formação de traços nos dielétricos, tanto orgânicos e inorgânicos, são bastante complexos, igualmente ocorrendo quanto aos processos físico-químicos necessários para torná-los visíveis ao microscópio óptico, mediante a ação de um solvente específico.

A importância do conhecimento de  $-dE/dx$  crítico, reside no fato de que este, fundamentalmente, delimita a adequação de um dado tipo de material, conforme as aplicações e o espectro de energia que se deseja investigar. O objetivo do presente trabalho consiste na determinação experimental do valor crítico da energia de partículas alfa, correspondente ao valor de  $-dE/dx$  crítico, para a formação de traços no nitrato de celulose RL 115, tipo II, fabricado pela Kodak-Pathé (9), a partir da análise de traços formados por partículas alfa, colimadas e atenuadas (2,5 - 5,5 MeV) e revelados mediante ataques químicos com soluções de hidróxido de sódio, em condições fixas de concentração e temperatura (4,0 N, 60°C).

Devido à sensibilidade do nitrato de celulose, novas perspectivas surgiram quanto a seu uso como dosímetros de partí

culas alfa, e, indiretamente, de neutrons (mediante a detecção de partículas alfa e de fragmentos de fissão das reações do tipo  $B^{10}(n,\alpha)$ ,  $Li^6(n,\alpha)$  e  $U^{235}(n,f)$ ), particularmente como monitores pessoais em programas de proteção radiológica em áreas contaminadas por elementos emissores alfa (minas de urânio) e em reatores (10,11).

## CAPÍTULO I

### PRINCÍPIOS DE DETECÇÃO DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM DETETORES SÓLIDOS DE TRAÇOS

#### 1.1 - MECANISMOS DE FORMAÇÃO DO TRAÇO LATENTE

A elaboração de um modelo que explique os mecanismos de formação de traços latentes nos DST, deve ser consistente com as seguintes evidências experimentais:

- 1) não ocorre formação de traços latentes nos metais e na maioria dos semicondutores;
- 2) cada meio detetor é caracterizado por um  $-dE/dx$  crítico;
- 3) os traços latentes são razoavelmente estáveis no tempo.

Fleischer, Price e Walker (7) propuseram, para a formação de traços latentes nos vidros e minerais, o modelo da ponta de explosão iônica ("ion explosion spike"). Este modelo considera o fato de que a passagem de uma partícula carregada, através de um dielétrico, cria uma região positivamente carregada, ao longo da trajetória, e que, a mútua repulsão entre os íons criados pelas ionizações primárias, provoca deformações na estrutura do material, conforme mostra a Figura 1.1.1. Este processo conduz à criação de uma região de imperfeições (danos),



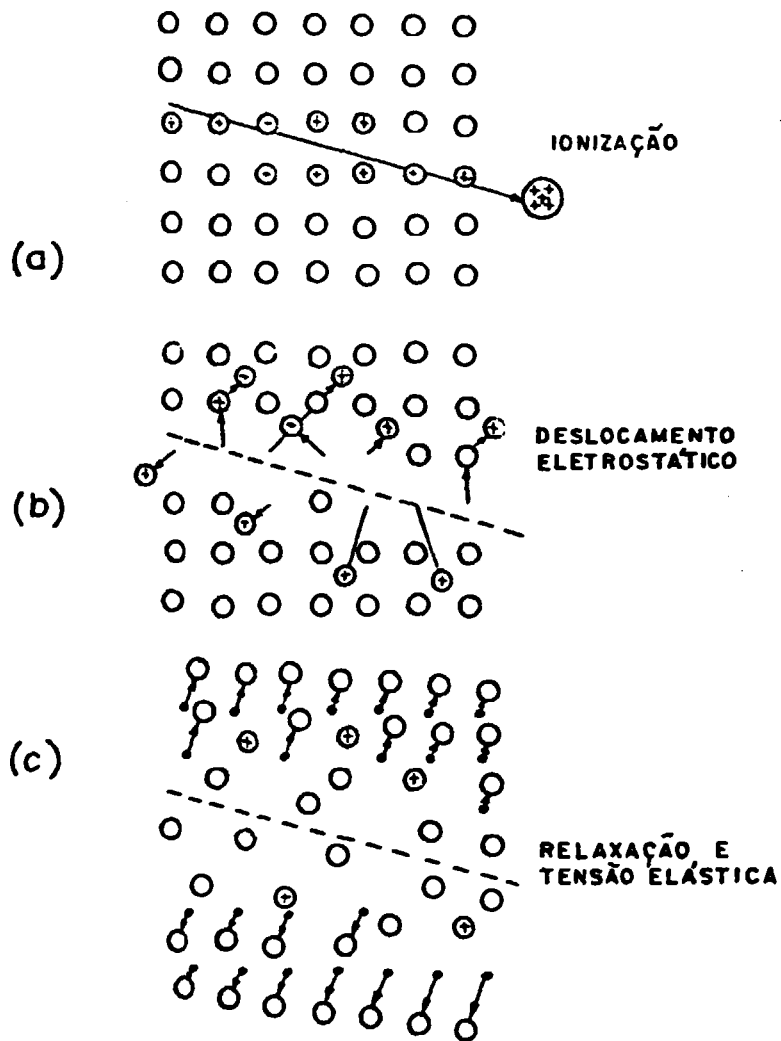


Figura 1.1.1 - Mecanismo de formação do traço latente segundo o modelo da ponta de explosão iônica. A região ionizada é instável ejetando íons, criando vacâncias e átomos intersticiais. Posteriormente a região relaxa elasticamente deformando a matriz original.

que é mais facilmente dissolvida por um reagente do que a vizinhança não danificada.

Outros modelos foram propostos, tais como o modelo da ponta térmica e o modelo da ponta de deslocamento. Segundo o modelo da ponta térmica, a região intensamente ionizada e excitada, ao longo da trajetória, pode ser visualizada em termos de

um estreito volume que sofre rápido aquecimento a alta temperatura, possivelmente desordenando ou criando deformações devidas à expansão térmica diferencial na estrutura do material (12,13). Conforme as previsões deste modelo, os limites de detecção devem estar de alguma maneira relacionados com a temperatura de decomposição ou de fusão. Nenhuma correlação, contudo, foi observada. Além disso, este modelo prevê que os semicondutores seriam os materiais mais sensíveis, em contradição com as observações experimentais. O modelo da ponta de deslocamento considera o fato de que as colisões diretas da partícula com os átomos do material, produzem defeitos resultantes de deslocamentos de átomos para posições intersticiais, criando vacâncias atômicas ao longo da trajetória da partícula (14,15,16). Segundo este modelo, além de prevê erroneamente a formação de traços nos metais condutores, esta somente ocorreria a baixas energias (1 keV/uma), quando, em geral, experimentalmente este fato não foi observado.

Dos três modelos descritos, o modelo da ponta de explosão iônica (ou ionização primária) parece ser o mais adequado para os materiais inorgânicos. No caso dos materiais orgânicos, além das ionizações e excitações primárias, as ionizações e excitações secundárias criadas pelos raios delta são também relevantes. Benton (17) constatou que radiações de baixo poder ionizante, partículas beta por exemplo, produzem danos locais reveláveis nos polímeros, após a absorção de doses de alguns Mrad, mediante irradiações com feixes estreitos. Foi calculado que doses idênticas podem ser produzidas mediante raios delta na vizinhança da trajetória de uma partícula carregada pesada (18).

A teoria atualmente aceita para a formação de traços

latentes nos polímeros, baseia-se num mecanismo de danos radioquímicos (17,19,20). Traços reveláveis são formados a partir de rupturas radiolíticas ao longo das cadeias moleculares, criando produtos reativos de baixo peso molecular, que são mais facilmente atacados por um reagente do que o meio não danificado.

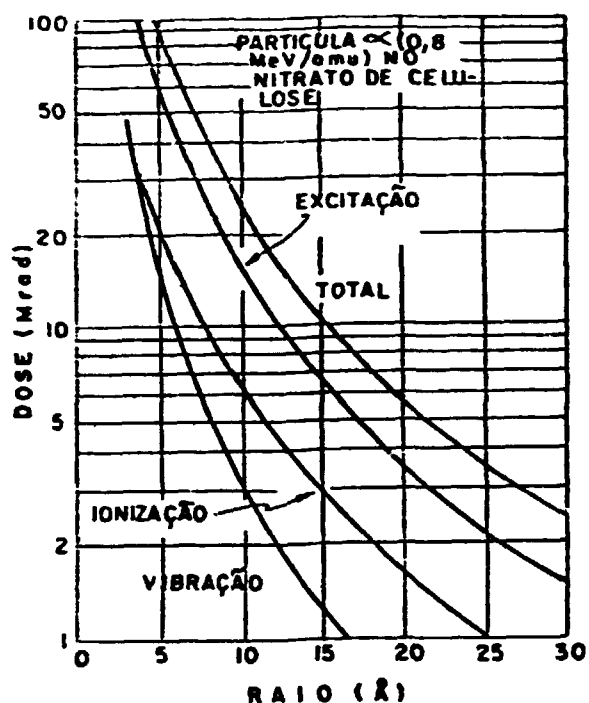
O fenômeno da formação do traço latente, nos polímeros, é melhor compreendido considerando que a evolução da formação é feita mediante três fases sucessivas:

- a) fase da absorção de energia ( $\approx 10^{-15}$  s);
- b) fase do estabelecimento do equilíbrio térmico ( $\approx 10^{-12}$  a  $10^{-9}$  s);
- c) fase do estabelecimento do equilíbrio químico ( $\approx 10^{-8}$  s a vários anos).

Na primeira fase, aproximadamente 30% da energia é dissipada mediante ionizações e excitações, primárias e secundárias, de moléculas muito próximas da trajetória (20 a 100 Å) (21). Nos polímeros, elétrons secundários com 9 a 15 eV, podem criar ionizações, e, com aproximadamente 6 eV, excitações e vibrações. A Figura 1.1.2 ilustra a dependência do valor calculado para a dose com a distância radial à trajetória de uma partícula alfa no nitrato de celulose, devido à ionização, excitação e vibração (19).

Outros tipos de interações, tais como efeito Cerenkov, radiação de frenamento e reações nucleares, são irrelevantes, considerando partículas carregadas pesadas não relativísticas. Segundo Katz e Kobetich (18,22), somente a energia dissipada pelos elétrons secundários (raios delta) até uma determinada dis-

Figura 1.1.2 - Dose calculada em função da distância radial da trajetória de uma partícula alfa no nitrato de celulose, devido à ionização, excitação e vibração (19).



tância, crítica, próxima da trajetória, é que determina a condição de revelação do traço latente ("secondary energy loss model"). O raio crítico, em cada tipo de detector, é o parâmetro livre de ajuste, e, baseados em experiências de efeito da radiação sobre dissoluções químicas, escolheram para o nitrato de celulose, Lexan e mica muscovita, os raios críticos de 15, 17 e 19 Å, respectivamente, cada qual correspondendo a doses médias críticas de  $2,8 \times 10^8$ ,  $7,5 \times 10^8$  e  $3,5 \times 10^9$  Rad, respectivamente. As dificuldades que este modelo apresenta, reside na seleção arbitrária de diferentes raios críticos, para diferentes materiais, e no fato de desprezar os eventos primários no núcleo do traço latente, os quais desempenham importante função no caso dos dielétricos inorgânicos, tal como a mica. Benton (17,23), segundo o modelo da Perda Restrita de Energia ("Restricted Energy Loss Model"), propõe que, somente as transferências de energia pela partícula, inferiores a um dado valor limite, são responsáveis pela criação de danos efetivamente reveláveis. A energia de corte, neste modelo, é o parâmetro livre de ajuste. Embora este modelo

apresente boa concordância com os resultados experimentais, ele apresenta uma inconsistência, devido ao fato de ignorar todas as deposições de energia efetuados por raios delta, cujas energias iniciais são superiores à energia de corte, no núcleo do traço latente. Paretzke (24) sugere que, em princípio, todas as deposições de energia realizadas dentro de um cilindro, concêntrico à trajetória, devem ser relevantes na criação de danos reveláveis.

Na fase do estabelecimento do equilíbrio térmico, quando ocorre a distribuição da energia absorvida, esta é feita principalmente sob a forma de calor e criação de energia potencial. A dissipação térmica é o processo predominante, resultando em reorganizações moleculares importantes (a temperatura localmente poderá se elevar a várias centenas de graus). A criação de energia potencial realiza-se através da produção de novas espécies reativas, sob o ponto de vista químico. Na fase do estabelecimento do equilíbrio químico, as novas espécies reativas criadas, tais como moléculas excitadas, íons e radicais livres, evoluem para níveis estáveis. Os elétrons, oriundos de ionizações, permanecem em "armadilhas" e, os íons e radicais livres, ficam fixos, justificando assim a grande estabilidade dos traços latentes em função do tempo. Resumidamente, a região danificada caracteriza-se pelas seguintes propriedades (17):

- redução da massa molar;
- aumento do número de rupturas nas cadeias moleculares;
- aumento da solubilidade;
- variação da densidade;

- presença de novas espécies químicas, tais como radicais livres e gases ( $O_2$ ,  $CO_2$ ,  $H_2$ , etc);
- aumento do coeficiente de absorção óptica, particularmente na região ultravioleta.

Após a revelação, a visibilidade do traço é limitada somente pelo amolecimento, fusão ou decomposição química do detector. Antes da revelação, porém, o traço latente pode ser parcial ou completamente destruído, após longos períodos de latência a baixas temperaturas, sem ocorrer, contudo, alteração na sensibilidade do material. Todavia, para os polímeros mais sensíveis, particularmente os compostos de celulose, aquecimentos prolongados produzem modificações permanentes, alterando a sensibilidade do material (25). Nenhum desvanecimento de traços latentes foi observada nos polímeros a temperaturas inferiores a  $50^{\circ}C$ . Contudo, à medida que a temperatura se aproxima do ponto de fusão, rápido desvanecimento ocorre, conforme mostra a Figura 1.1.3, no caso de traços de fragmentos de fissão e de partículas alfa no nitrato de celulose (26).

Outros fatores concorrem para o desvanecimento dos traços latentes, além da temperatura. Uma exposição intensa do nitrato de celulose à radiação ultravioleta, por exemplo, induz 50% de desaparecimento do número inicial de traços de partículas alfa, em aproximadamente 30 minutos (27). Há, também, evidências experimentais, de que a estabilidade dos traços latentes depende da composição da atmosfera na qual o detector é armazenado durante o período de latência, antes da revelação, como por exemplo, a presença de oxigênio e umidade (20,28,29).

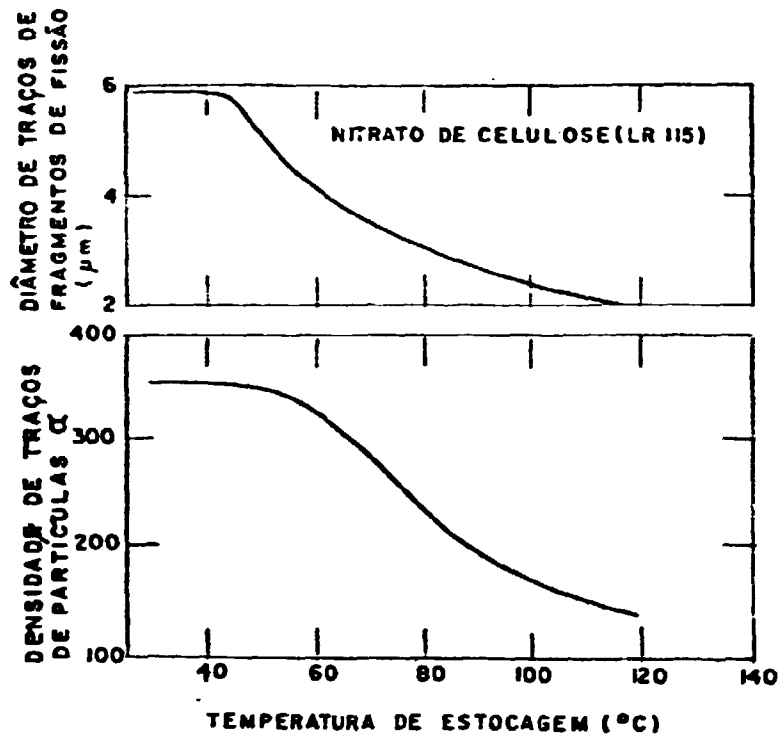


Figura 1.1.3 - Efeito do pré-aquecimento prolongado (4 a 15 hs) sobre o diâmetro de traços de fragmentos de fissão (a), e sobre a densidade relativa de traços de partículas alfa (b), no NC Kodak-Pathé, LR 115, após a irradiação e revelação (26).

## 1.2 - MECANISMO DE REVELAÇÃO DO TRAÇO LATENTE

Numa escala sub-microscópica, a formação do traço pode ser visualizada em termos de uma dissolução química preferencial de uma região muito estreita, ao longo e ao redor da trajetória da partícula, conforme mostra a Fig. 1.2.1.

A densidade de danos é maior na vizinhança imediata à trajetória, conforme o valor da dose absorvida pelo meio. Portanto, é ao longo da trajetória que a velocidade de dissolução possui maior valor. Por outro lado, a densidade de danos diminui lateralmente, e, aproximadamente a partir de 50 Å, atinge um

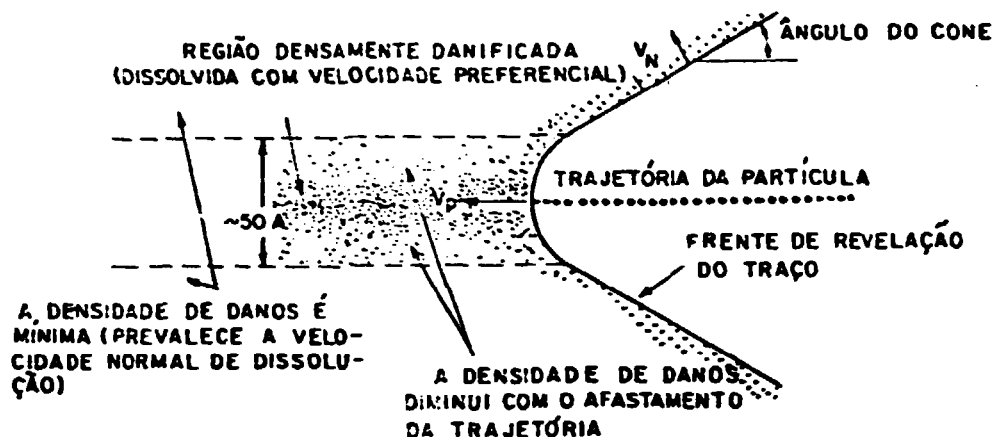


Figura 1.2.1 - Representação esquemática do perfil sub-microscópico do traço, formado mediante dissolução química preferencial ao longo da trajetória da partícula.

valor mínimo, de modo que a dissolução lateral é feita doravante com valor normal do material não danificado.

Portanto, sob o ponto de vista macroscópico, a evolução geométrica do traço é ditada pela ação simultânea de dois processos de dissolução, aos quais estão associadas duas velocidades lineares, que determinarão fundamentalmente os parâmetros geométricos e a eficiência de revelação:

- 1) a velocidade de dissolução normal,  $V_n$ , função da composição do detetor, das condições de ataque químico (tipo e concentração do reagente, temperatura, procedimentos durante a revelação) e das condições prévias de tratamento físico-químico (30,31,32,33).  $V_n$  é isotrópica para os vidros e para a maioria dos polímeros, mas não o é para a maioria dos cristais (5).

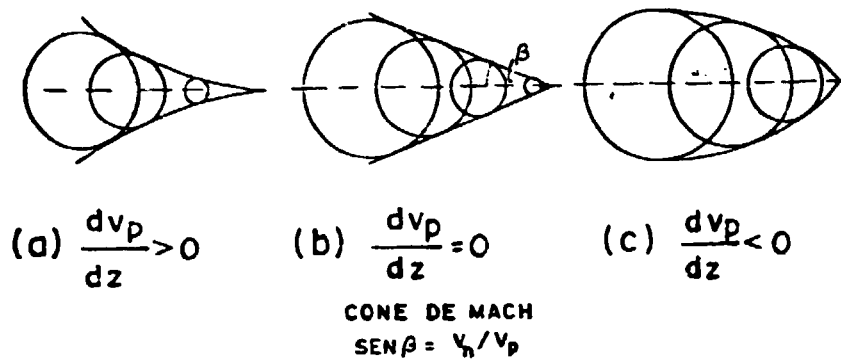


2) a velocidade de dissolução preferencial,  $V_p$ , atuando somente ao longo da trajetória, resultado do efeito da reação do solvente com uma distribuição de danos muito localizada, e que depende, além dos fatores citados para  $V_n$ , dos parâmetros da partícula (massa, carga, energia). Experimentalmente foi observado que nos vidros (34), plásticos (35) e cristais (36), o valor de  $V_p$  aumenta com a densidade linear de ionização.

Vários modelos foram propostos para descrever a evolução geométrica dos traços nos DST (34,37,38,39,40,41,42), em meios tanto isotrópicos quanto anisotrópicos, sendo desenvolvidos vários métodos para a determinação dos parâmetros da partícula em função dos parâmetros do traço, tais como diâmetro, comprimento e alcance residual, no sentido de utilizá-los como discriminadores e espectrômetros de partículas carregadas pesadas.

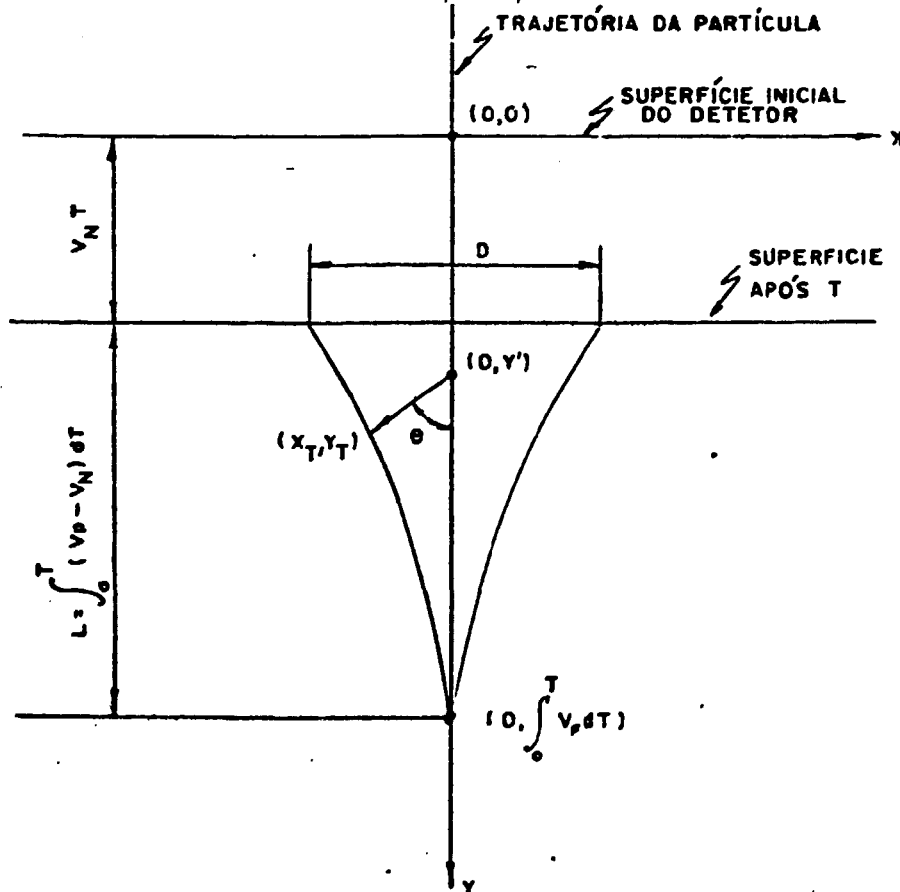
Considerando  $V_n$  isotrópica e, desprezando efeitos de gradientes de concentração e produtos de reação, o problema da evolução do traço pode ser simulado considerando a posição de uma frente de onda, produzida por um ponto deslocando-se ao longo da trajetória da partícula, com velocidade variável,  $V_p$ , função da posição, em um meio onde a velocidade de propagação de onda é constante, igual a  $V_n$  (34). A superfície do traço, num dado instante, é constituída pela superfície envoltória de sucessivas esferas crescentes de dissolução, conforme mostra a Fig. 1.2.2.

As coordenadas dos pontos da superfície do traço podem ser determinadas utilizando-se o princípio das ondas ele -



**Figura 1.2.2** - Representação esquemática da forma da superfície do traço, para  $v_p$  crescente (a), constante (b) e decrescente (c), em relação à distância de penetração no detector.

mentares de Huygens-Fresnel, ou o princípio do tempo mínimo, de Fermat. A Fig. 1.2.3 ilustra bidimensionalmente o problema, considerando uma incidência normal à superfície atacada e  $v_p$  crescente a partir do início do ataque químico.



**Figura 1.2.3** - Representação geométrica da evolução do traço.

Visto que  $V_n$  é isotrônica e  $V_p$  atua somente ao longo da trajetória, há simetria em relação à trajetória. O tempo de ataque químico necessário para o reagente alcançar o ponto  $(x_t, y_t)$ , da superfície do traço, ao longo do trajeto indicado na Figura, é dado por:

$$T = \int_0^{y'} \frac{dy'}{V_p(y')} + \left[ (y_t - y')^2 + x_T^2 \right]^{1/2} / V_N \quad (1.2.1)$$

O primeiro termo fornece o tempo de ataque entre os pontos  $(0,0)$  e  $(0,y')$ ; o segundo entre os pontos  $(0,y')$  e  $(x_t, y_t)$ . Visto que, por hipótese, a trajetória real é aquela que é realizada no menor período de tempo, igualando-se a zero a derivada de  $T$  em relação a  $y'$ , obtemos:

$$y' = y_T - x_T / \left[ (V_p(y')/V_N)^2 - 1 \right]^{1/2} \quad (1.2.2)$$

a qual, junto com a equação (1.2.1) define  $x_t$  e  $y_t$  para um dado conjunto de valores de  $T$ ,  $y'$  e  $V_p(y)$ . Como o ângulo  $\theta$  é dado por  $\text{arc tang} \left( \frac{x_T}{y_T - y'} \right)$ , podemos reescrever as equações anteriores na forma paramétrica em relação a  $y'$ :

$$\begin{cases} x_T = \left[ (y_T - y')^2 + x_T^2 \right]^{1/2} \text{sen}\theta \\ y_T = y' + \left[ (y_T - y')^2 + x_T^2 \right]^{1/2} \text{cos}\theta \end{cases} \quad (1.2.3)$$

ou ainda,

$$x_T = V_N \left[ T - \int_0^{y'} \frac{dy}{V_p(y)} \right] \left[ 1 - \left( V_N/V_p(y) \right)^2 \right]^{1/2} \quad (1.2.4)$$

$$x_T = y' + V_N^2/V_p(y') \left[ T - \int_0^{y'} \frac{dy}{V_p(y)} \right] \quad (1.2.5)$$

as quais são válidas para quaisquer valores de  $y'$  e  $T$ . Para se obter o diâmetro do traço, na superfície rebaixada do detetor, utiliza-se o seguinte procedimento: substituem-se valores para  $y'$ , na eq. (1.2.5), até que se obtenha um valor tal que  $y_t = V_N \cdot T$ ; este valor de  $y'$ , substituído na eq. (1.2.4) fornece o valor de  $D/2$ , diretamente. No caso particular de  $V_p$  ser constante, aproximadamente válido para períodos pequenos de ataque químico, o comprimento, o diâmetro e o ângulo de abertura do traço são dados respectivamente por:

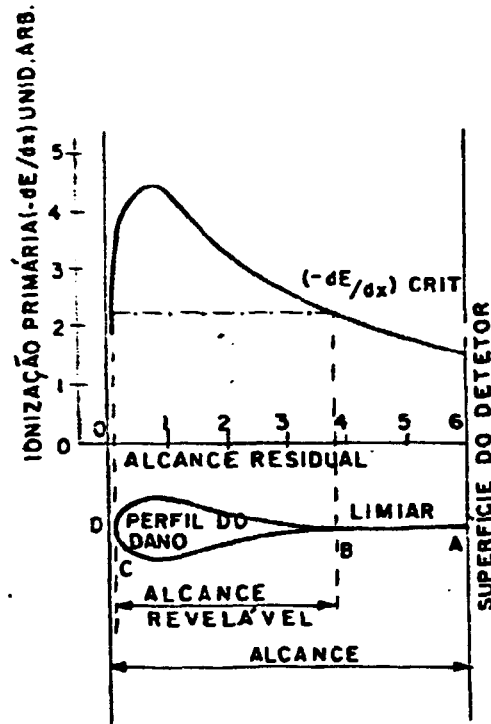
$$\begin{cases} L = (V_p - V_N)T \\ D = 2V_N T \left[ (V_p - V_N)/(V_p + V_N) \right]^{1/2} \\ \beta = \text{arc sen } (V_N/V_p) \end{cases} \quad (1.2.6)$$

O desenvolvimento descrito aplica-se somente até o instante em que o reagente alcançar o fim da trajetória e,  $V_p$  ser superior a  $V_N$ , a partir do início do ataque químico, o que equivale ao fato da partícula possuir um  $-dE/dx$  inicial superior ao crítico.

Ao contrário do que ocorre com partículas mais pesadas, tais como fragmentos de fissão, cujo  $-dE/dx$  é uma função sempre decrescente, o  $-dE/dx$  para partículas alfa segue a curva de Bragg.

A Fig. 1.2.4 é uma representação do perfil do traço latente de uma partícula alfa associada à curva de Bragg, ilustrando o conceito de  $-dE/dx$  crítico.

Figura 1.2.4 - Representação do perfil do traço latente de uma partícula alfa, associada à curva de Bragg.

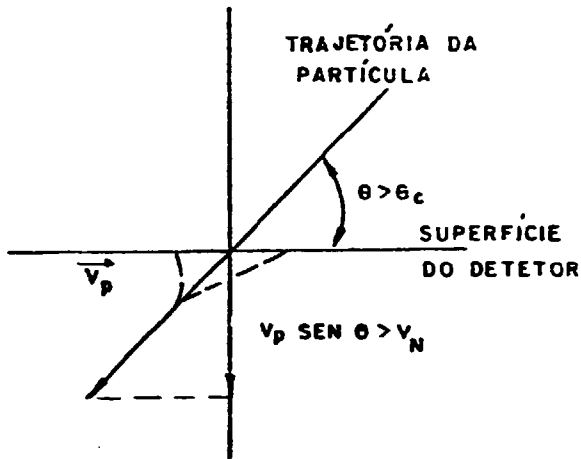


Conforme ilustra a Fig. 1.2.4, para um dado valor arbitrário de  $-dE/dx$  crítico, corresponderá duas energias críticas, as quais delimitarão o alcance revelável no detector.

No caso de incidências inclinadas, os buracos na superfície rebaixada do detector, ficam tanto mais elípticos quanto maior for o ângulo de incidência em relação à normal à superfície atacada. Além da restrição imposta pela regra do  $-dE/dx$  crítico, também é necessário que a componente de  $V_p$  em relação à normal à superfície seja maior do que  $V_n$ , caso contrário a dissolução do detector será feita sem que ocorra a revelação do traço, conforme mostra a Fig. 1.2.5.

Denomina-se ângulo crítico de incidência, o ângulo  $\theta_c$  tal que  $V_n = V_p \text{ sen } \theta_c$ , ou seja  $\theta_c = \text{arc sen } (V_n/V_p)$  (8). Visto que  $V_p$  varia com a densidade linear de ionização, o valor do ângulo crítico de incidência dependerá do valor da energia de incidência. Portanto, para um feixe monoenergético e isotrópico de partículas, com energia de incidência inferior à crítica

Figura 1.2.5 - Esquema ilustrando o conceito de ângulo crítico de incidência.



ca, a fração do número total de traços latentes criados que serão revelados a partir do início do ataque químico, é dado por:

$$F = 1 - \text{sen} \theta_c \quad (E) \quad (1.2.7)$$

Entre os DST já testados, o Lexan foi aquele que apresentou a maior eficiência de detecção para fragmentos de fissão, igual aproximadamente a 96%, correspondendo a um ângulo crítico de incidência de  $2^{\circ}30'$  (44).

## CAPÍTULO II

### DETERMINAÇÃO EXPERIMENTAL DA ENERGIA CRÍTICA PARA A DETEÇÃO DE PARTÍCULAS ALFA EM NITRATO DE CELULOSE

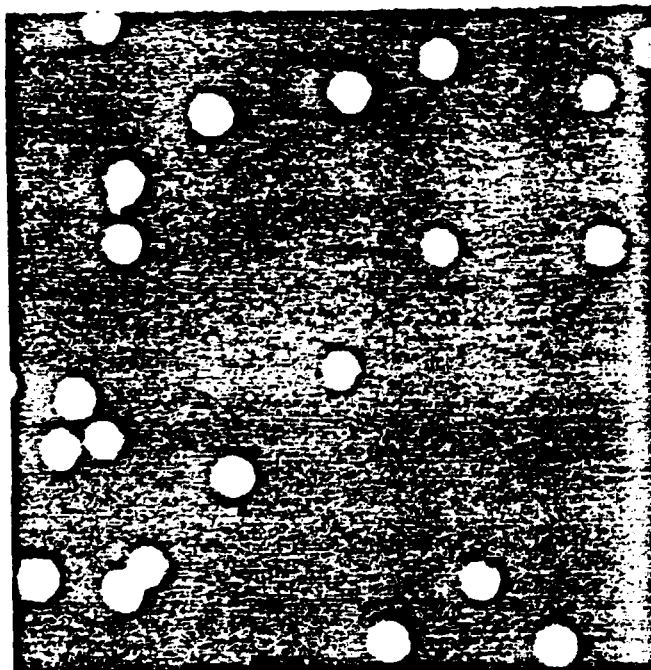
#### 2.1 - BASE DO MÉTODO

O detetor de nitrato de celulose LR 115, tipo II, da Kodak-Pathé, é constituído por uma película avermelhada de nitrato de celulose ( $\approx 13 \mu\text{m}$ ), depositada sobre uma base transparente de poliéster ( $\approx 0,1 \text{ mm}$ ). Somente o nitrato de celulose é sensível às partículas alfa, e, a vantagem desta configuração, reside no excelente contraste obtido entre os traços e o restante do material, principalmente quando os traços perfuram a camada residual de NC, quando apresentam um fundo transparente, facilitando a identificação dos eventos, conforme mostra a Fig. 2.1.1.

Foi constatado experimentalmente neste trabalho que, quanto maior for o valor da energia de incidência das partículas alfa (e menor o  $-dE/dx$ ), maior deverá ser o período de tempo de ataque necessário para que os traços perfurem a película residual de NC. Este fato pode ser interpretado da seguinte maneira: a densidade de danos deve ser uma função crescente do  $-dE/dx$ ; visto que a velocidade de dissolução deve ser proporcional à densidade de danos, quanto menor for o valor do  $-dE/dx$  mé

dio ao longo da trajetória no detetor, maior deverá ser, consequentemente, o período de tempo de ataque para a perfuração. Este fato sugeriu o seguinte método para a determinação da energia crítica (a maior) conforme mostrado na Fig. 1.2.4, correspondente ao  $-dE/dx$  crítico, o qual foi utilizado neste trabalho.

Figura 2.1.1 - Traços de partículas alfa revelados no detetor de NC LR 115, tipo II, da Kodak-Pathé.



Quando a partícula incide com energia inferior à energia crítica, o início da revelação ocorre a partir da superfície original do detetor. Contudo,

quando incide com valor superior, o início da revelação somente ocorrerá quando a superfície atacada alcançar, no interior do material, o ponto da trajetória onde a energia da partícula alcançou o valor crítico. A Fig. 2.1.2 ilustra 3 possibilidades quanto ao aspecto do traço, considerando, por hipótese, uma energia de incidência superior à crítica e alcance superior à espessura do detetor.

No primeiro caso (a), o tempo de ataque não foi o suficiente para perfurar a película residual de NC. No segundo caso (b), o traço inicia a perfuração, e, a partir daí (c), ocorre o alargamento do diâmetro do traço (d) sobre a base de poliester.



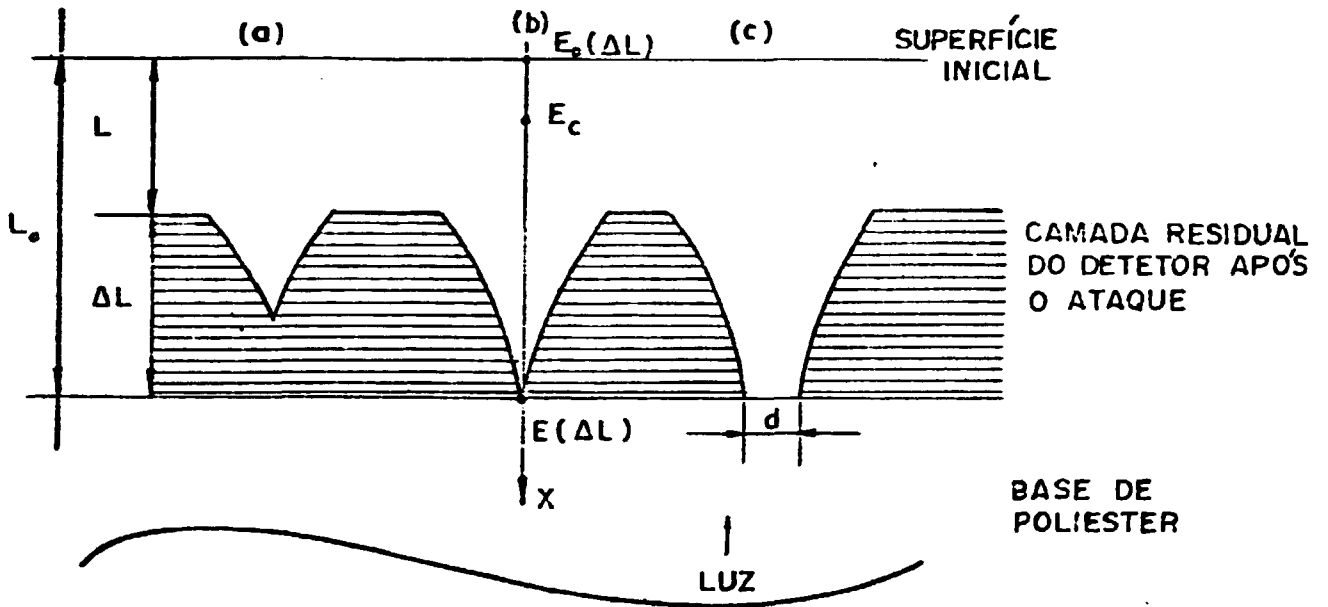


Figura 2.1.2 - Esquema ilustrativo do aspecto do traço em relação à camada residual do detector.

Seja  $V(x) = dx/dt$  a velocidade de dissolução química do detector, ao longo da trajetória da partícula entre os pontos  $x$  e  $x + dx$ , correspondentes aos instantes de ataque  $t$  e  $t + dt$ , respectivamente. Então:

$$- S^{-1} \cdot dE = V(x) \cdot dt \quad (2.1.1)$$

onde  $S = -dE/dx$  e  $dE$  foi a variação da energia da partícula entre os pontos  $x$  e  $x+dx$ . Dividindo e multiplicando ambos os membros da eq. (2.1.1), respectivamente, por  $V(x)$  e pelo valor normal de dissolução química do detector,  $V_n$ , obtemos:

$$-\left\{V_n/V(x)\right\} \cdot S^{-1} \cdot dE = V_n \cdot dt \quad (2.1.2)$$

Integrando entre os limites  $E_0(\Delta L)$  e  $E(\Delta L)$ , correspondentes ao período de tempo de ataque necessário para a perfuração da camada residual de NC,  $T(\Delta L)$ , quando então o comprimento dos traços é igual exatamente à espessura da camada residual do dete -

tor,  $\Delta L$ , conforme mostra a Fig. 2.1.2b, temos que:

$$L_0 - \Delta L = L = \int_0^{T(\Delta L)} v_n \cdot dt = - \int_{E_0(\Delta L)}^{E(\Delta L)} \left( v_n/v(x) \right) \cdot S^{-1} \cdot dE \quad (2.1.3)$$

onde  $L$  é a espessura do detector removida no tempo  $T(\Delta L)$ . Se  $E(\Delta L) < E_c < E_0(\Delta L)$ , e tendo em vista que  $v_n/v(x) = 1$  quando  $E \geq E_c$ , resulta:

$$L = - \int_{E_0(\Delta L)}^{E_c} S^{-1} dE - \int_{E_c}^{E(\Delta L)} \left( v_n/v(x) \right) S^{-1} dE \quad (2.1.4)$$

Quanto maior for o valor da energia de incidência, maior será a distância percorrida pela partícula até alcançar o valor crítico de energia, ou seja, maior será o valor de  $L$ , em relação aos traços cujo comprimento seja igual a  $\Delta L$ , conforme mostra a Fig. 2.1.2. Portanto, quando,

$$L \rightarrow L_0 \implies E_c \rightarrow E(\Delta L) \quad (2.1.5)$$

No caso limite, ou seja, quando  $L = L_0$ , ter-se-á:

$$L_0 = - \int_{E_0(\Delta L=0)}^{E_c} S^{-1} dE \quad (2.1.6)$$

$$\left( - \frac{dE}{dx} \right)_{\text{crit}} = - \frac{dE}{dx} (E_c) \quad (2.1.7)$$

Neste trabalho, o valor de  $E_0$  ( $\Delta L = 0$ ) foi avaliado mediante extrapolação dos valores obtidos para  $E_0(\Delta L)$ , em função da espessura da camada removida do detetor, no período de tempo de ataque químico necessário para se obter  $\Delta L = 0$ . Para a perda de energia de partículas alfa no nitrato de celulose, foi ajustada uma função do tipo  $S(E) = -dE/dx = CE^{-\alpha}$ , com a qual, integrando a equação (2.1.6) fornece as seguintes expressões para a  $E_c$  e o correspondente valor de  $(-dE/dx)_{crit}$ :

$$E_c = \left[ E_0^{(\alpha+1)} (\Delta L=0) - L_0 \cdot C(\alpha+1) \right]^{1/(\alpha+1)} \quad (2.1.8)$$

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{crit} = CE_c^{-\alpha} \quad (2.1.9)$$

Os erros associados a estas grandezas podem ser avaliados mediante as seguintes expressões:

$$\sigma_{E_c} = \left[ \sum \left( \frac{\partial E_c}{\partial x_i} \right)^2 \sigma_{x_i}^2 \right]^{1/2} ; \quad x_i = \{E_0(\Delta L=0), L_0, C, \alpha\} \quad (2.1.10)$$

$$\sigma_{S_c} = \left[ \sum \left( \frac{\partial S_c}{\partial x_i} \right)^2 \sigma_{x_i}^2 \right]^{1/2} ; \quad x_i = \{E_c, C, \alpha\} \quad (2.1.11)$$

No Capítulo III ver-se-á como foi aplicado este método para a determinação da energia  $E_c$  e  $(-dE/dx)$  críticos para a detecção de partículas alfa no nitrato de celulose.

## 2.2 - PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

## 2.2 - PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

Vários conjuntos de amostras de nitrato de celulose foram irradiados com feixes colimados de partículas alfa, aproximadamente monoenergéticos, cada amostra correspondendo a uma dada energia, entre 2,5 e 5,5 MeV. Para a irradiação das amostras foi utilizada uma câmara de vácuo contendo argônio, que foi utilizado como elemento atenuante, e uma fonte intensa de  $\text{Am}^{241}$ , a uma distância fixa dos detetores, conforme mostra a Fig. 2.2.1. A energia do feixe de partículas alfa foi medida

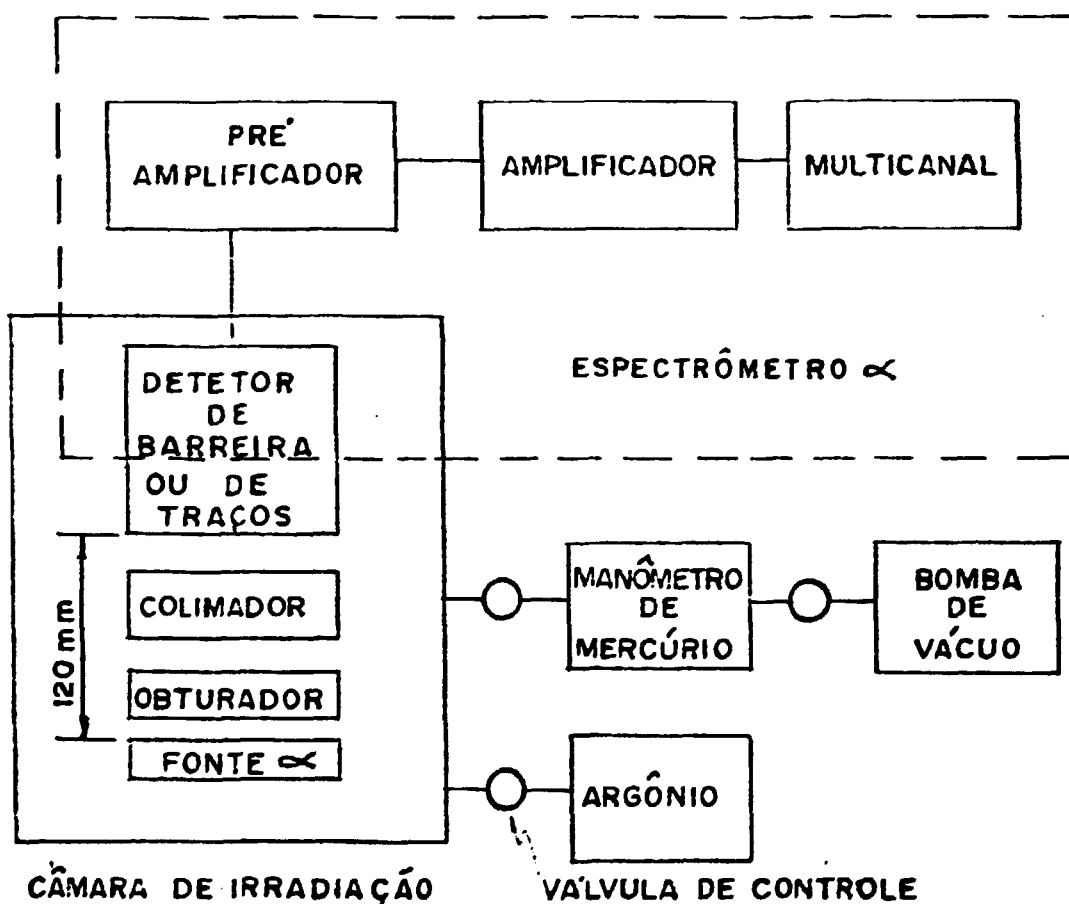


Figura 2.2.1 - Esquema de montagem do sistema de irradiação.

por intermédio da variação da pressão do argônio na câmara de irradiação. A calibração do sistema foi feita mediante um espectrômetro de partículas alfa, composto basicamente de um detetor de barreira de superfície e um sistema analisador multicanal, previamente calibrados com fontes padrões de  $\text{Am}^{241}$ ,  $\text{Pu}^{239}$ ,  $\text{U}^{233}$  e  $\text{Cm}^{244}$ .

Após as irradiações, cada conjunto foi quimicamente atacado, com soluções 4,0 N de NaOH, à temperatura constante de  $60^{\circ}\text{C}$ , sem agitação, por um determinado período de tempo, entre 15 minutos e 3,5 horas, segundo um arranjo experimental conforme ilustra a Fig. 2.2.2.

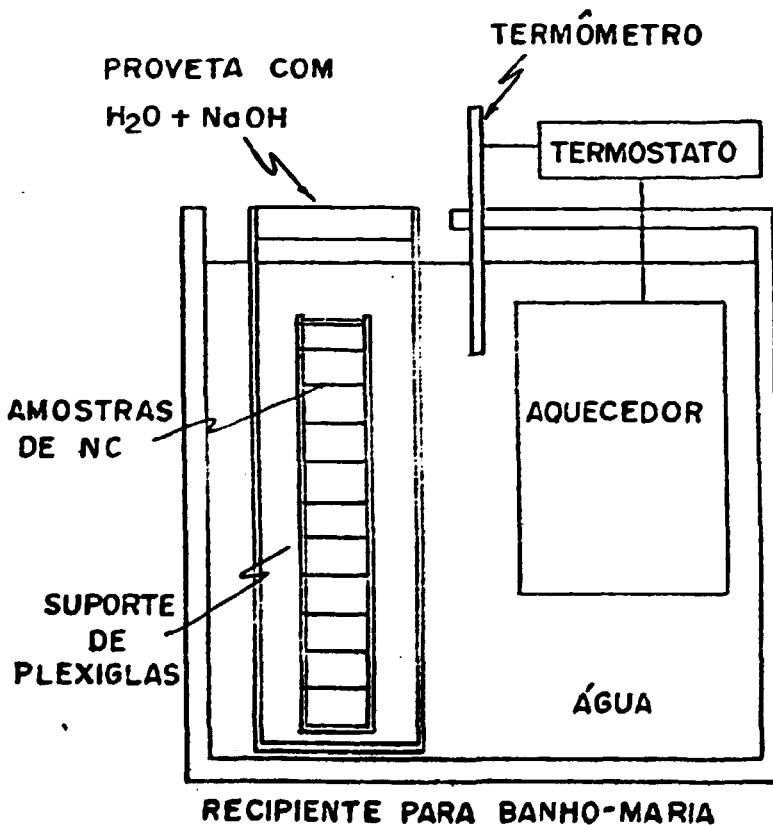


Figura 2.2.2 - Esquema de montagem utilizado para os ataques químicos.

O mesmo esquema de montagem foi usado para a estimativa da espessura residual de nitrato de celulose, sobre a base de poliéster, em função do tempo de ataque utilizando amostras não irradiadas. O método consistiu em medir a diferença

entre o peso da amostra, após o ataque e a remoção de resíduos com sabão neutro, e o peso da base de poliéster após a remoção do nitrato de celulose residual com acetona. Desprezando-se os efeitos de borda, a espessura da camada residual de NC, em unidades de  $\text{mg}/\text{cm}^2$ , é dado por:

$$L = \frac{\Delta M}{A} \quad (2.2.1)$$

onde  $\Delta M$  é a massa do nitrato de celulose residual, após o ataque, e  $A$  é a área da amostra. Leituras de densidade óptica, antes e após os ataques químicos, revelaram, considerando a precisão da medida, homogeneidade de espessura, para períodos de tempo de ataque não muito próximos ao necessário para a remoção total do nitrato de celulose, de modo que a equação (2.2.1) pode ser considerada válida.

Após os ataques químicos, as amostras de NC foram examinadas ao microscópio óptico, sendo efetuadas medidas de densidade de traços, em aproximadamente 16 campos de  $0,09 \text{ mm}^2$ , por amostra, utilizando os aumentos de 220 a 400x. Foram também medidos os diâmetros de 25 traços por amostra, mediante oculares de aumento 25x e objetiva de 40x.

## CAPÍTULO III

### RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO

#### 3.1 - ENERGIA DAS PARTÍCULAS ALFA E VELOCIDADE DE REMOÇÃO DO NITRATO DE CELULOSE

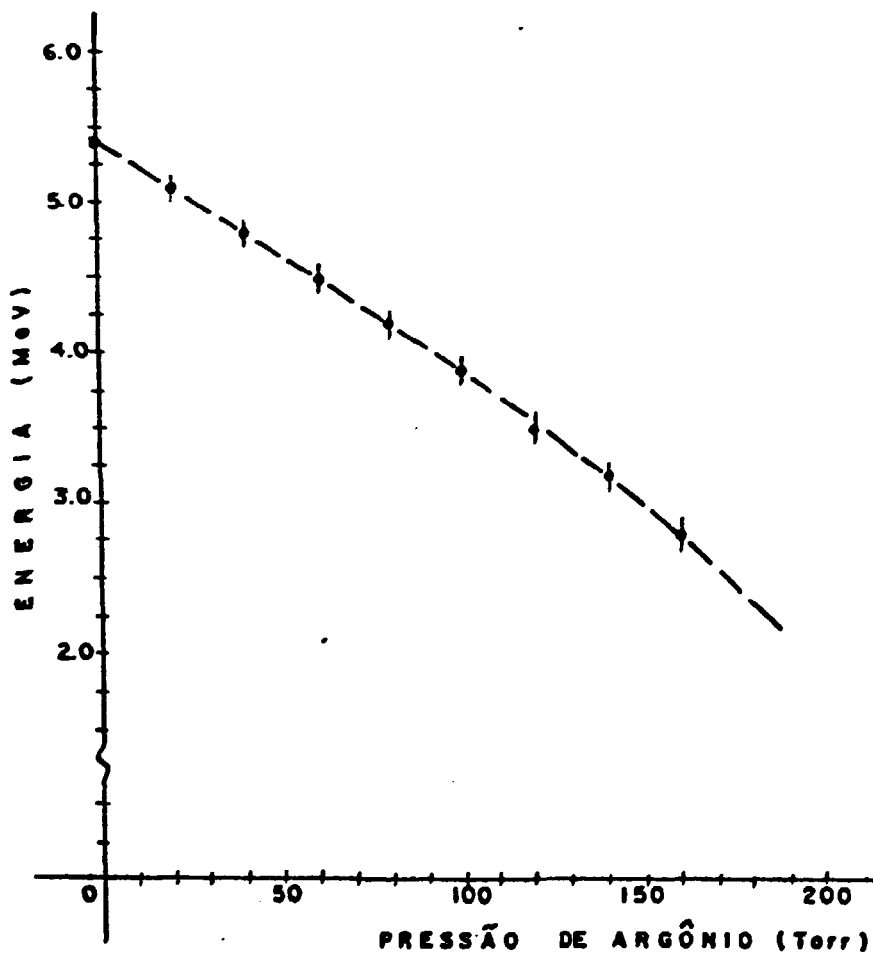


Figura 3.1.1 - Curva de calibração da energia do feixe de partículas alfa em função da pressão de argônio.

A Figura 3.1.1 ilustra a dependência da energia do feixe de partículas alfa com a pressão de argônio obtida de uma série de medidas. O erro médio na pressão foi de  $\pm 2$  Torr, e na energia,  $\pm 0,1$  MeV.

A espessura média da camada de nitrato de celulose , fornecida pelo fabricante, era de  $13\mu\text{m}$ , sendo que a por nós medida foi de  $2,00 \pm 0,10 \text{ mg/cm}^2$ . A dependência da espessura da camada residual de nitrato de celulose com o tempo de ataque químico, é ilustrada na Fig. 3.1.2. Aos pontos experimentais

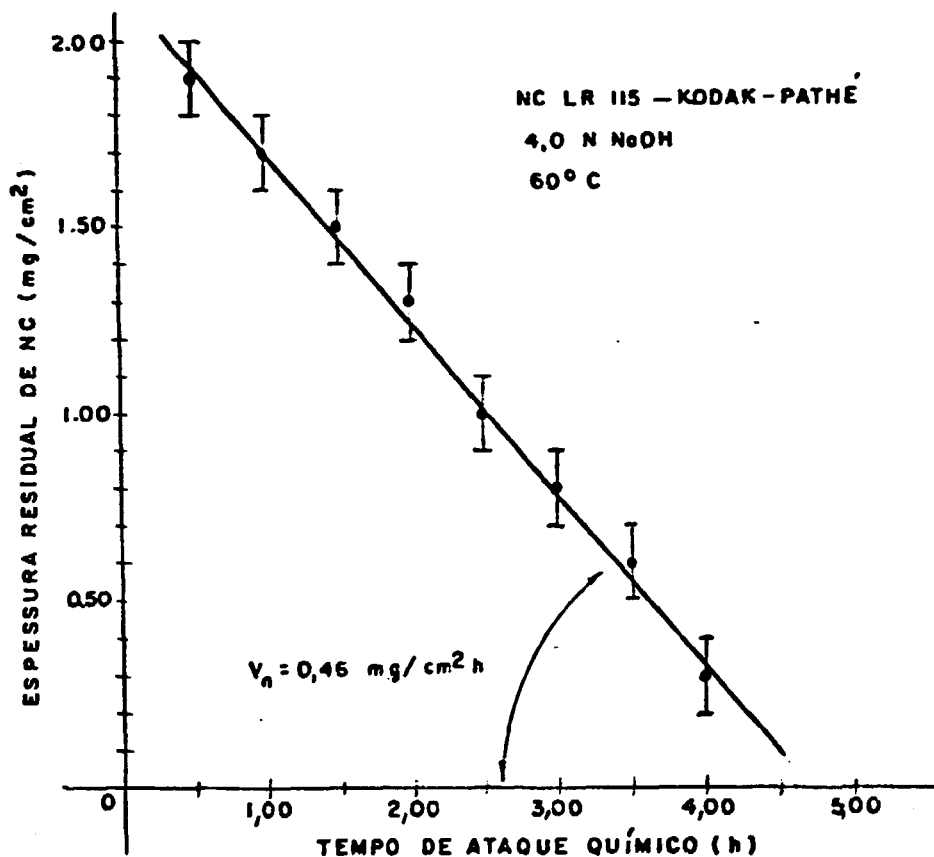


Figura 3.1.2 - Espessura da camada residual de NC em função do tempo de ataque químico.

foi ajustada uma reta, cujo coeficiente angular fornece o valor da velocidade normal de dissolução química. Para uma concentração de 4,0 N de NaOH, a  $60^\circ \text{C}$ , obteve-se o valor de  $0,46 \pm 0,02 \text{ mg/cm}^2 \text{ h}$ .

Conforme mostra a Fig. 3.1.2, há indicação quanto à ocorrência de um possível período de latência ( $\approx 20 \text{ min}$ ) entre



o início do ataque e a dissolução do NC propriamente dito, em virtude da reta não passar pelo ponto (0, 2,0), fato este não completamente provado devido à imprecisão de medidas. Acreditamos, contudo, que a dissolução inicialmente é feita muito lentamente, e somente após algum tempo a velocidade de dissolução atinge um valor constante. Tanto a Fig. 3.1.2 como a 3.1.3, que ilustra a dependência da densidade óptica ( $\log I_0/I$ ) da camada residual de NC com o tempo de ataque, indicam que o tempo de ataque para a remoção de todo o NC está compreendido entre 4,5 e 5,0 h.

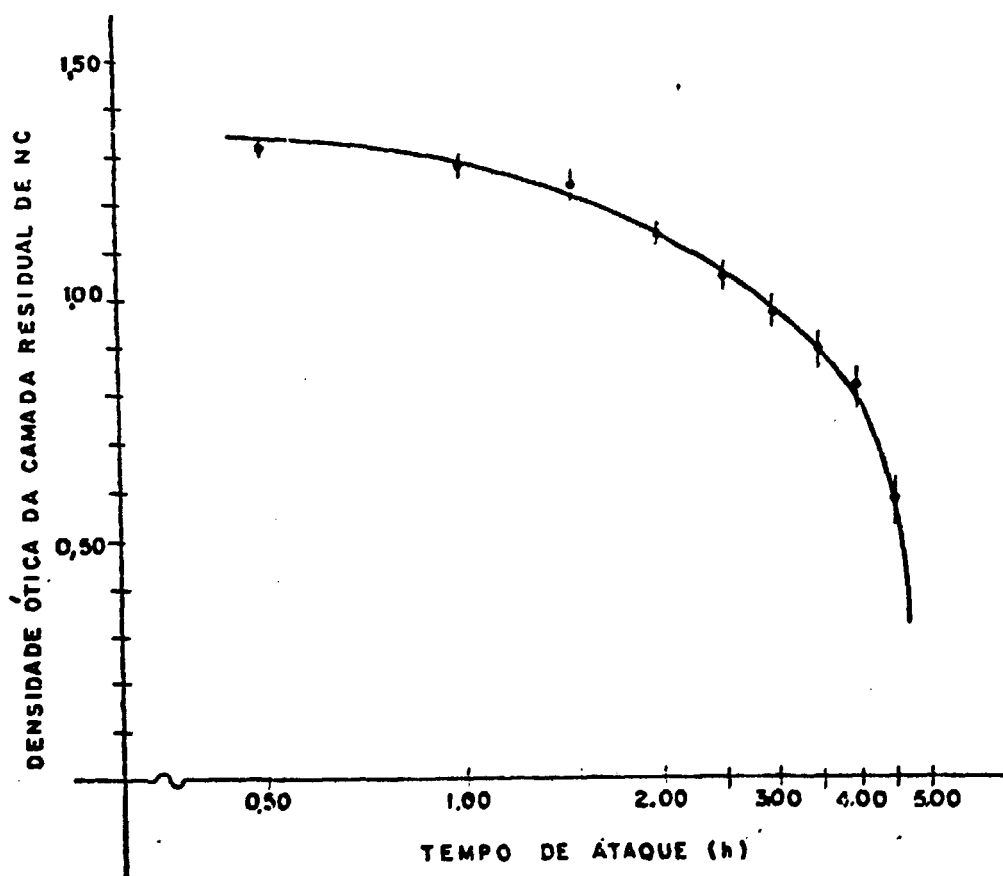
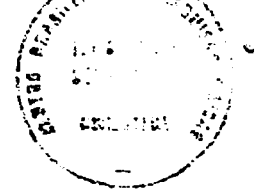


Figura 3.1.3 - Densidade óptica da camada residual de NC em função do tempo de ataque químico.



### 3.2 - OBSERVAÇÃO DE TRAÇOS DE PARTÍCULAS ALFA EM NITRATO DE CELULOSE

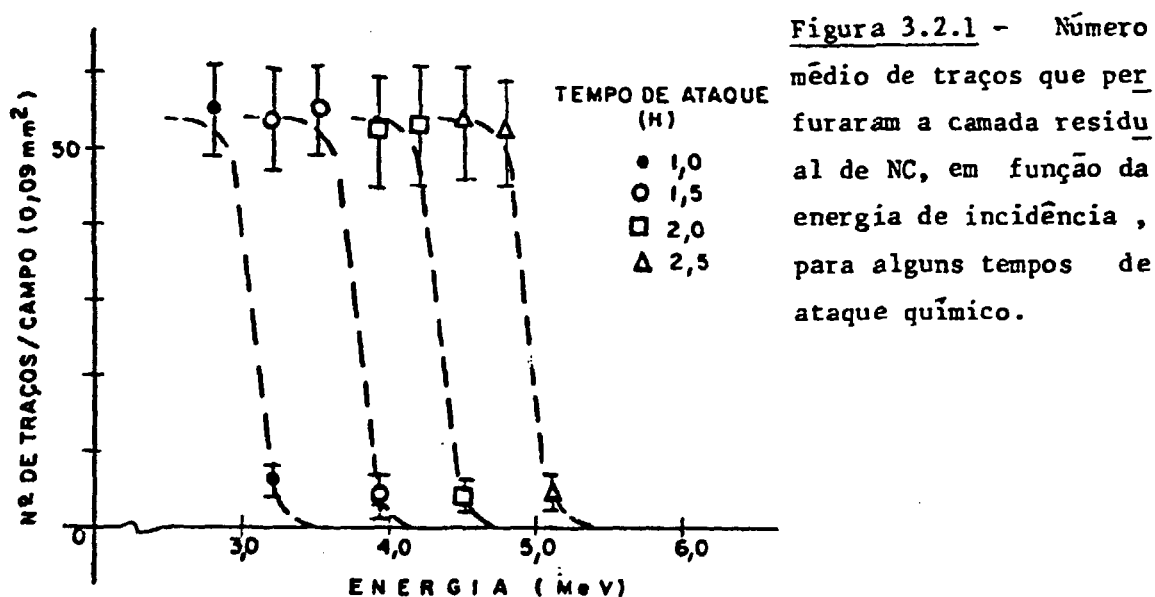
Nas condições da presente experiência não foi observado nenhum traço para o tempo de ataque de 15 min, fato este que sugere um período de latência, ou que, devido à falta de contraste ou ao reduzido tamanho dos diâmetros, não foi possível observá-los. Para tempos de ataque iguais ou superiores a 0,5h, ocorre o aparecimento visual dos traços, cujos diâmetros tornam-se tanto maiores quanto maior for o tempo de ataque, e tanto menores quanto maior for o valor da energia de incidência.

Para tempos de ataque superiores a 1,5 h, e para energias compreendidas entre 2,8 e 5,5 MeV, a densidade de traços permanece constante, igual aproximadamente à fluência de partículas ( $\approx 600/\text{mm}^2$ ), até próximo ao final do detetor, quando então ocorre superposição dos traços, devido ao aumento dos diâmetros. Também, à medida que se aproxima o final do detetor, os traços assumem formas irregulares, dificultando a diferenciação com os defeitos. Para tempos de ataque compreendidos entre 0,5 e 1,5 h, e a partir de uma dada energia, a observação dos traços torna-se exaustiva e difícil, devido ao reduzido tamanho dos diâmetros dos traços, os quais tornam-se facilmente confundíveis com os defeitos embora a densidade de traços permaneça aproximadamente constante. A Tabela 3.2.1 relaciona os limites de detecção por nós adotados, utilizando um aumento de 400x.

As Figs. 3.2.1 e 3.2.2 ilustram, respectivamente, a variação do número de traços que perfuraram a camada residual do detetor e os diâmetros sobre a base de poliéster em função da energia de incidência, para alguns tempos de ataque químico.

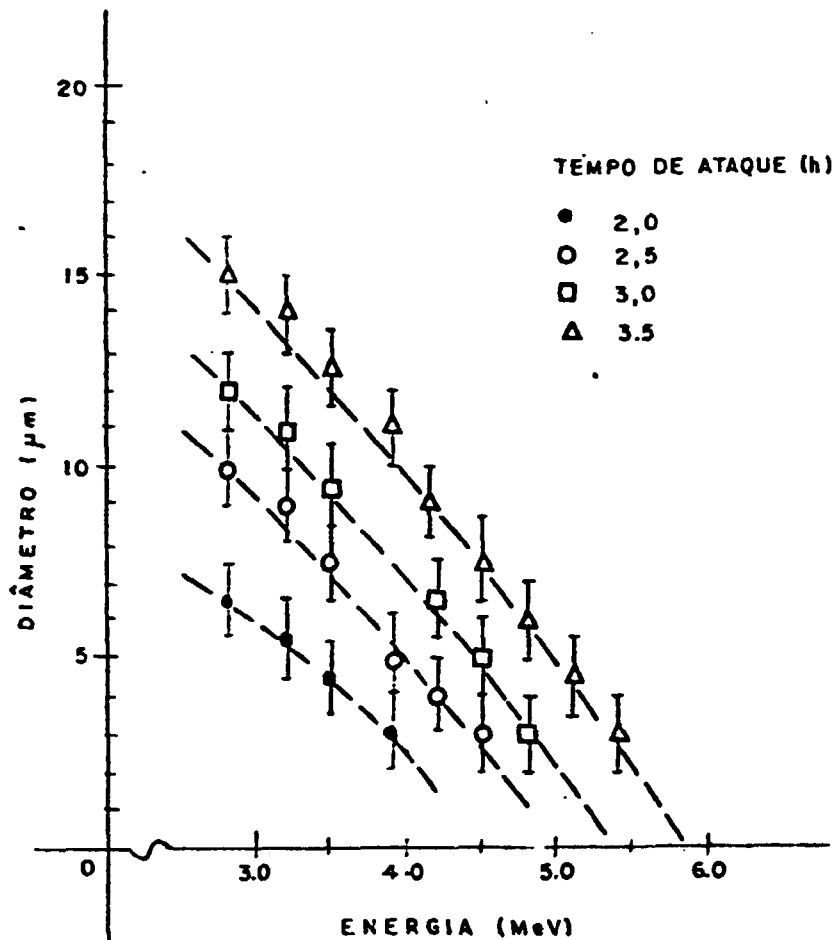
TABELA 3.2.1 - Limites de detecção adotados em função do tempo de ataque químico.

TEMPO DE ATAQUE (h)	ENERGIA (MeV)
0,5	≈ 4,0
1,0	≈ 4,6
1,5	≈ 5,5



Conforme mostra a Fig. 3.2.1, a partir de uma dada energia e dependendo do tempo de ataque químico, ocorre uma abrupta queda no número total de traços que perfuraram a camada residual de NC. A energia de incidência,  $E_0(\Delta L)$ , para a qual o comprimento dos traços iguala o valor da espessura residual de NC,  $\Delta L$ , foi considerada como sendo aquela que corresponde a 50% do número inicial de traços que perfuraram o NC. Tendo em vista que a partir de 3,0 h de ataque químico, todos os traços

Figura 3.2.2 - Diâmetro médio do traço sobre a base de poliéster, em função da energia de incidência, para vários tempos de ataque químico. A incerteza na energia é de  $\pm 0.1$  MeV.



perfuraram o detector, o valor de  $E_0(\Delta L)$  foi obtido mediante a extrapolação para

zero do diâmetro do traço sobre a base de poliéster para 3,5 h de ataque químico, conforme mostra a Fig. 3.2.2.

A Fig. 3.2.3 ilustra a variação de  $E_0(\Delta L)$  com a camada removida do detector, L, no correspondente tempo de ataque químico.

### 3.3 - DETERMINAÇÃO DA ENERGIA CRÍTICA

De acordo com o método descrito na Seção 2.1, a energia crítica poderá ser obtida a partir do valor da energia de incidência que corresponde à remoção de todo o NC para ocorrer a "perfuração". Este valor foi obtido mediante extrapolação da

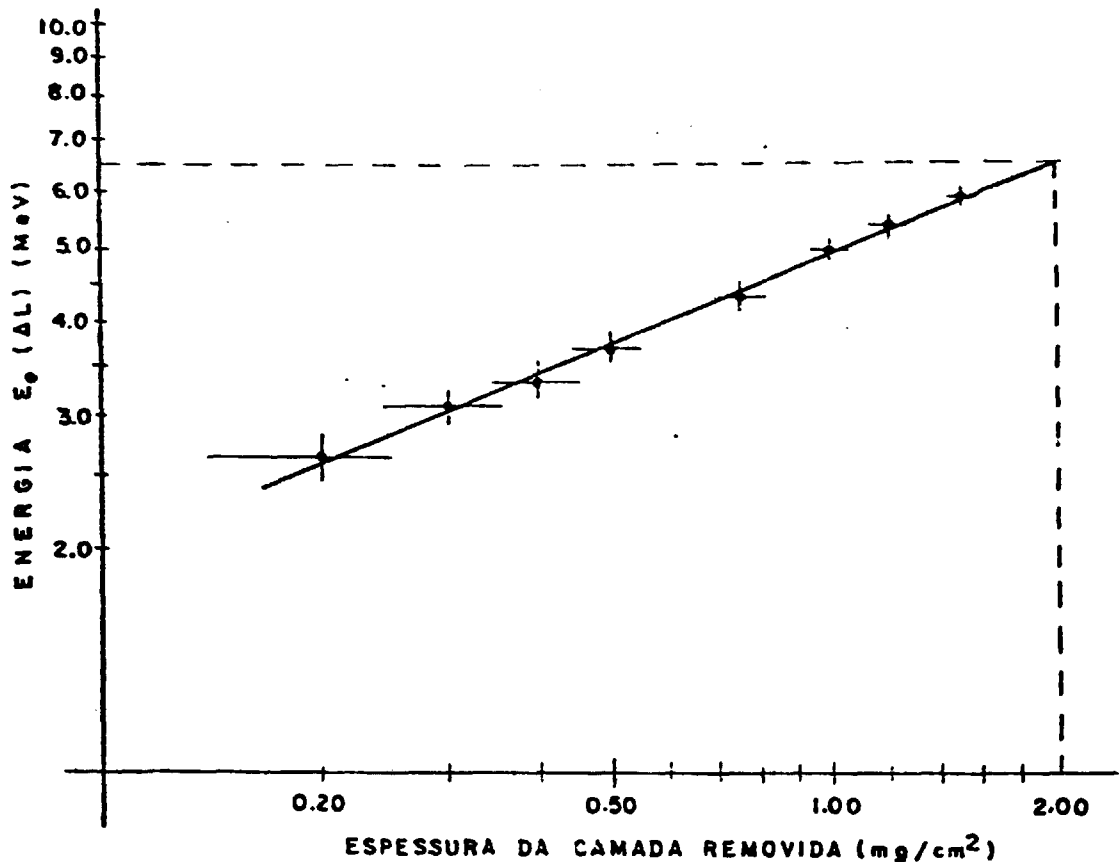


Figura 3.2.3 - Energia de incidência  $E_0(\Delta L)$  versus espessura da camada removida de nitrato de celulose.

curva ajustada aos pontos da Fig. 3.2.3 para a espessura de  $2,00 \text{ mg/cm}^2$ , dando como resultado  $6,5 \pm 0,3 \text{ MeV}$ .

Embora os fabricantes do detetor especifiquem o material como sendo nitrato de celulose, não indicam, contudo, qual a espécie (hexa, penta, tetra ou trinitrato de celulose), nem o teor de impurezas. Visto que para a determinação da energia crítica é fundamental que se conheça a composição do material, foi feita uma análise do detetor pelo grupo de química do IME, quanto aos teores de carbono, hidrogênio e nitrogênio, pelo método CHN de análise de gases de combustão. Tendo em vista os resultados obtidos, embora não tenha sido possível se determinar o teor de oxigênio, boa concordância foi obtida com o trinitrato de

celulose, considerando os percentuais obtidos de carbono ( cujo número de átomos em todas as fórmulas mínimas das espécies de NC é constante) em relação aos teores de hidrogênio e nitrogênio.

Para o cálculo de  $-dE/dx$  de partículas alfa no trinitrato de celulose ( $C_{12}H_{17}N_3O_{16}$ ), cuja composição foi adotada para o nosso detetor, utilizou-se a regra de adição de Bragg, tomando para o  $-dE/dx$  de partículas alfa nos elementos do composto os valores tabelados por Northcliff e col. (43). A Fig. 3.3.1 ilustra a curva obtida para o  $-dE/dx$  de partículas alfa no trinitrato de celulose, na região de interesse para o nosso propósito.

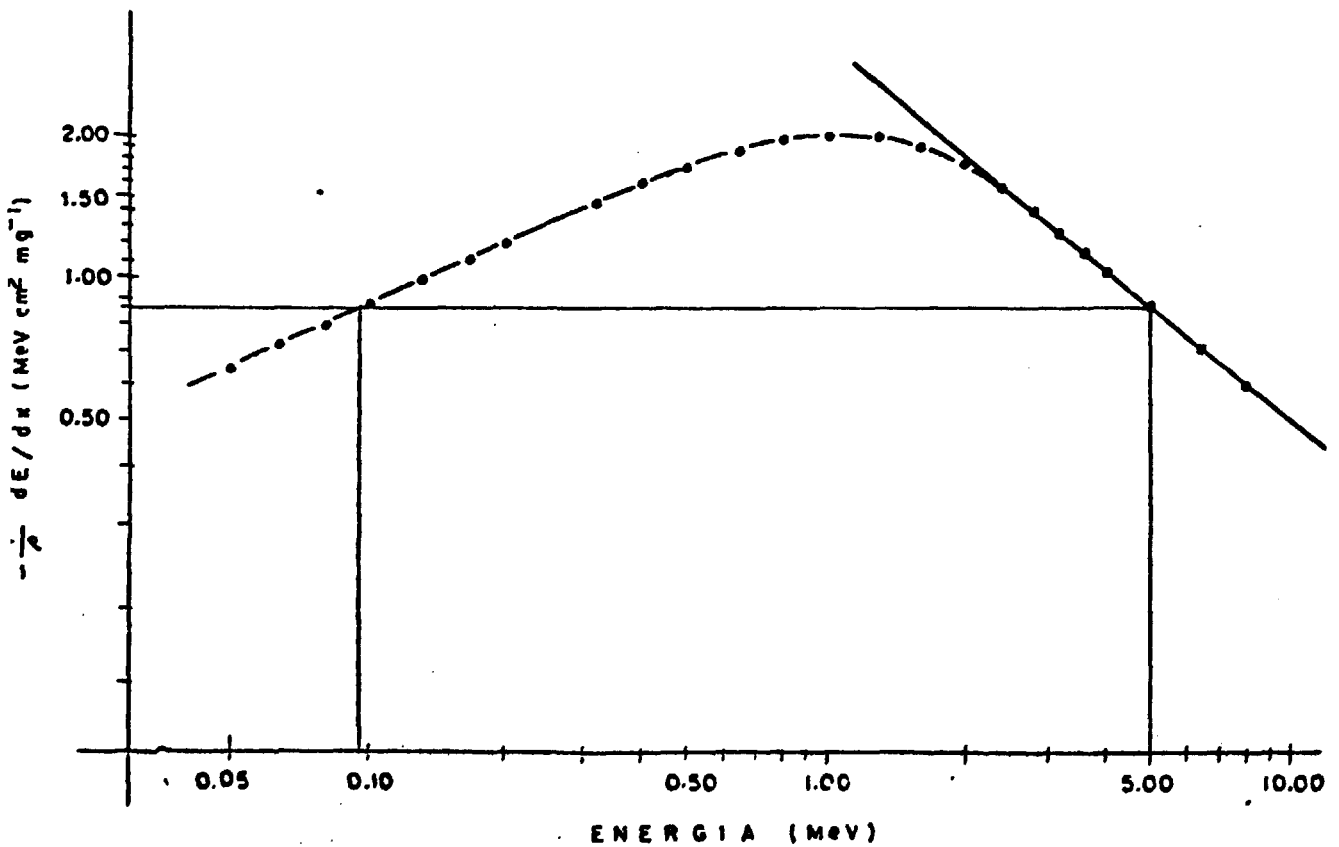


Figura 3.3.1 -  $\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx}$  de partículas alfa no trinitrato de celulose.

No intervalo de energia de 2,00 a 8,00 MeV, foi feito um ajuste do tipo  $-dE/dx = C.E^{-\alpha}$ , pelo método dos mínimos quadrados. Considerando um erro provável de  $\pm 5\%$  para o valor de  $-dE/dx$  obtido a partir dos valores tabelados por Northcliff, excelente reprodutibilidade foi obtida mediante os valores calculados para  $C$  e  $\alpha$ , respectivamente iguais a

$$\begin{cases} C = 3,14 \pm 0,09 \\ \alpha = 0,80 \pm 0,02 \end{cases} \quad (3.3.1)$$

quando  $E$  vem expresso em MeV e  $-\frac{dE}{dx}$  em  $\text{MeV cm}^2 \text{mg}^{-1}$ .

Substituindo nas eqs. (2.1.8), (2.1.9), (2.1.10) e (2.1.11) os valores  $E_0(\Delta L = 0) = 6,5 \pm 0,3 \text{ MeV}$ ,  $L_0 = 2,00 \pm 0,10 \text{ mg/cm}^2$ ,  $C = 3,14 \pm 0,09$  e  $\alpha = 0,80 \pm 0,02$ , obtemos para a energia crítica e  $(-dE/dx)_{\text{crit}}$  os seguintes resultados:

$$\begin{cases} E_c = 5,00 \pm 0,40 \text{ MeV} \\ (-dE/dx)_c = 0,87 \pm 0,06 \text{ MeV cm}^2 \text{mg}^{-1} \end{cases} \quad (3.3.2)$$

Tendo em vista que para  $\approx 0,1 \text{ MeV}$  corresponde o mesmo valor para o  $(-dE/dx)_c$  obtido (veja Fig. 3.3.1), concluímos que, nas condições de ataque químico empregadas, somente traços latentes formados no nitrato de celulose LR 115 por partículas alfa com energias compreendidas aproximadamente entre 0,1 e 5,0 MeV, poderão ser revelados.

### 3.4 - CONCLUSÕES

Segundo as especificações do fabricante (9), o nitrato de celulose LR 115 foi especialmente tratado para a revelação de traços dos seguintes tipos de partículas:

- prótons com energias inferiores a 100 keV;
- partículas alfa com energias inferiores a 4 MeV;
- Íons pesados e fragmentos de fissão.

A Kodak-Pathé recomenda que os ataques químicos sejam feitos com soluções aquosas com 2,5 N de NaOH, sem agitação, a 25° ou 60° C. Comparando o resultado obtido no presente trabalho para a energia crítica (5,0 = 0,4 MeV) com o limiar de detecção fornecido pelo fabricante (4 MeV), verificamos que o nosso valor difere daquele de aproximadamente 1 MeV. A diferença obtida, possivelmente, é devida ao fato de não termos utilizado para o detector uma idêntica composição, ou devido ao fato de não termos empregado o mesmo método de determinação e condições de revelação. No nosso trabalho, utilizamos uma concentração de 4,0 N de NaOH, ao passo que a recomendada é de 2,5 N. Há evidências experimentais de que a razão entre as velocidades de ataque preferencial e normal não varia com a temperatura do solvente, mas que aumenta sensivelmente com o aumento da concentração (33), possivelmente deslocando, por isso, o valor do limiar de detecção. Neste caso, o valor de  $(-\frac{dE}{dx})_{crit}$  dependerá, também da concentração do solvente, embora a pequena diferença observada entre o nosso resultado e o especificado pela Kodak-Pathé não seja absolutamente conclusiva sobre esta possibilidade, sendo requeridos trabalhos adicionais, utilizando amplas variações de condições de ataque químico para a comprovação desta hipótese.



## BIBLIOGRAFIA

- (1) - A. Young, "Etching of Damage in Lithium Fluoride", Nature 182 (1958), 375-377.
- (2) - P.B. Price e R.M. Walker, "Electron Observation of Etched Tracks Spallation Recoils in Mica", Phys. Rev. Lett. 8 (1962) 217.
- (3) - R.L. Fleischer e P.B. Price, "Charged Particles Tracks in Glass", J. Appl. Phys. 34 (1963), 2906.
- (4) - R.L. Fleischer e P.B. Price, "Tracks of Charged Particles in High Polymers", Science 140 (1963) 1221.
- (5) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "Nuclear Tracks in Solids", University of California Press (1975), Berkeley and Los Angeles, California.
- (6) - R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker e E.L. Hubbard, "Criterion for Registration in Dielectric Track Detectors" Phys. Rev. 156 (1967) 353-355.
- (7) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "The Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charged Particles Tracks in Solids", J. Appl. Phys. 36 (1965) 3645-3652.
- (8) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, Ann. Rev. Nucl. Sci., USA (1965), 15, 1.
- (9) - J. Barbier, "Détection et Dosimétrie de Particules Ionisantes - Film Kodak LR 115 Tipo II à Base de Nitrate de Cellulose", Radioprotection, vol. 8, n° 1 (1973).
- (10) - A.L. Frank e E.V. Benton, "Radon Dosimetry Using Plastic Nuclear Track Detectors", Nuclear Track Detectors, vol. 1, n° 3/4 (1977), 149-179.

- (11) - K. Becker, "Dosimetric Application of Track Etching", Topics in Radiation Dosimetry, Suppl. 1, 79-142.
- (12) - L.T. Chadderton e R.M. Montagn-Pollock, "Fission Fragment Damage to Crystal Lattices: Heat Sensitive Crystals," Proc. Roy. Soc. A274 (1933), 239-252.
- (13) - R. Bullough e J.J. Gilman, "Elastic Explosion in Solids Caused by Radiation", J. Appl. Phys. 37 (1966), 2283-2287.
- (14) - F. Seitz, "The Disordering of Solids by the Action of Fast Massive Particles", Disc. Faraday Soc. 5 (1949), 271-282.
- (15) - J.A. Brinkman, "Production of Atomic Displacements by High Energy Particles", Ann.J.Phys. 24 (1955), 246-267.
- (16) - J. Lindhard e P.V. Thomsen, "Sharing of Energy Dissipation Between Eletronic and Atom Motion", Radiation Damage in Solids 1 (1962), 66-76. Int. Atomic Energy Agency, Viena.
- (17) - E.V. Benton, "On Latent Track Formation in Organic Nuclear Charged Particle Track Detectors", Rad. Effects 2 (1970), 273-280.
- (18) - R. Katz e E.J. Kobetich, "Formation of Etchable Tracks in Dielectrics", Phys. Rev. 117 (1968), 401.
- (19) - J. Fain, M. Monnin e M. Montret, "Heavy Ion Effects in Polymers", Proc. Symp. Radiat., 3rd (1971), Tihany.
- (20) - R.H. Boyett, D.R. Johnson e K. Becker, "Some Studies on the Chemical Damage Mechanisms Along Charged Particle Tracks in Polymers", Rad. Research 42 (1970), 1-12.
- (21) - J. Fain, M. Monnin e M. Montret, "Spatial Energy Distribution Around Heavy Ion Paths", Rad. Research 57(1974), 379-289.
- (22) - E.J. Kobetich e R. Katz, "Energy Deposition by Eletrons

Beams and Delta Rays", Phys.Rev. 170 (1968), 391-396.

- (23) - E.V. Benton e R.P. Henke, "On Charged Particle Tracks in Cellulose Nitrate and Lexan", Technical Report N° 19, (1972), july. Dept. of Physics, Univ. of San Francisco.
- (24) - H.G. Paretzke, "Comparison of Track Structure Calculations with Experimental Results", 4th. Symp. on Microdosimetry, Verbania Pollanza, Italy (1973).
- (25) - G. Somogyi, "Influence of Thermal Effects on the Track Registration Characteristics of Plastics", Rad. Effects 13 (1972), 245-251.
- (26) - M. Marchetti, L. Tommasino e E. Casnati, "Damage Track Registration Related to the Thermal Stability of Polymers", Proc. 8th Int. Conf. Nucl. Photography and Solid-State Detectors, Bucharest (1972).
- (27) - H. Hasegawa, M. Matsuo, K. Yamakoshi, e K. Yamawaki, "Alfa Particle Tracks Detection with Celluloid Films", Radioisotopes 17 (1968), 419.
- (28) - K. Becker, "The Effect of Oxygen and Humidity on Charged Particle Registration in Organic Foils", Radiation Research 36 (1968), 107-118.
- (29) - R.P. Henke, E.V. Benton e H.H. Heekman, "Sensitivity Enhancements of Plastic Nuclear Track Detectors Through Photo-Oxidation", Rad. Effects 3 (1970), 43-49.
- (30) - W. Enge, K. Grabisch, R. Beayjean, e K.P. Bartholmá, "Etching Behavior of a Cellulose Nitrate Plastic Detector under Various Etching Conditions", Nucl. Instr. and Meth. 115 (1974), 263-270.
- (31) - H.A. Khan, "An Important Precaution in the Etching of Solid State Nuclear Track Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 109 (1973), 515-519.
- (32) - H.B. Lüch, "The Effect of Pre Etching on the Properties

- of CN-Track Detectors, Nucl. Instr. and Meth. 131 (1975), 105-109.
- (33) - W. Tanti-Wipawin, "A Method of Measuring Etching Velocities in Plastic Nuclear-Track Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 126 (1975), 597-598.
- (34) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.T. Woods, "Nuclear Particle Tracks Identification in Inorganic Solids". Phys. Rev. 88 (1969), 563-567.
- (35) - G.E. Blandford, Jr., R.M. Walker e J.P. Wefel, "Track Etching Parameters of Plastic", Rad. Effects 3 (1970), 267-270.
- (36) - P.B. Price, D. Lal, A.S. Tamhane e V.P. Perelygin, "Characteristic of Tracks of Ion with  $14 \leq Z \leq 36$  in Common Rock Silicates", Earth Planet Sci. Lett., 19 (1973), 377-395.
- (37) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.T. Woods, "Nuclear Particle Track Identification in Inorganic Solids", Phys. Rev. 88 (1969), 563-567.
- (38) - R.P. Henke e E.V. Benton, "On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 97 (1971), 483-489.
- (39) - G. Somogyi, "Diameter Kinetics in Dielectric Track Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 109 (1973), 211-232.
- (40) - H.G. Paretzke, E.V. Benton e R.P. Henke, "On Particle Track Evolution in Dielectric Track Detectors and Charge Identification Through Track Radius Measurements", Nucl. Instr. and Meth. 108 (1973), 73-80.
- (41) - A. Ali e S.A. Durrani, "Etched-Track Kinetics in Isotropic Detectors", Nuclear Track Detectors, vol. 1, N° 2 (1971), 99-106.
- (42) - G. Somogyi, R. Scherzer, K. Grabish e W. Enge, "A Spati

al Track Formation and its Use for Calculating Etch-Pit Parameters of Light Nuclei", Nucl. Instr. and Meth. 147 (1977), 11-18.

- (43) - L.C. Northcliff e R.F. Schilling, "Range and Stopping Power Tables for Heavy Ions", Nuclear Data Tables, Vol. 7, Nº 3/4 (1970).
- (44) - H.A. Khan e S.A. Durrani, "Efficiency Calibration of Solid State Nuclear Track Detectors", Nucl. Instr. and Meth. 98 (1972), 229-236.