

BK 712652  
INIS BR -- 2456

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

INIS - BR -- 2456

**DETECÇÃO DE NÊUTRONS RÁPIDOS UTILIZANDO DETECTORES SÓLIDOS**  
**DE TRAÇOS NUCLEARES**

**ÂUDICE CORREIA VILELA**

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para a obtenção do Grau de "Mestre em Tecnologia Nuclear".

**Orientadora: Dra. MARILIA T.F.CESAR KHOURI**

**SÃO PAULO**

**1990**

À minha mãe,  
meus tios, Maria e Raimundo,  
ao meu sobrinho que chega  
com a próxima estação.

# DETECÇÃO DE NÊUTRONS RÁPIDOS UTILIZANDO DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS NUCLEARES.

JUDICE CORREIA VILELA

## RESUMO

Os detectores sólidos de traços nucleares orgânicos CR-39 e Makrofol-E foram estudados visando a sua utilização como detectores de nêutrons rápidos. As condições ótimas de revelação destes detectores foram determinadas e são as seguintes: o Makrofol-E é submetido a um ataque eletroquímico em solução PEW (15% KOH, 40% álcool etílico e 45% água), durante 2 h com um campo alternado aplicado ao detector de 40 kV/cm (r.m.s.) e frequência de 2 kHz à temperatura ambiente; o detector CR-39 é submetido a um pré-ataque químico de 1 h em solução 20%, em massa, de NaOH a 70 °C seguido por um ataque eletroquímico de 13 h na mesma solução utilizada para o pré-ataque químico, o campo alternado aplicado ao detector é de intensidade 30 kV/cm (r.m.s.), frequência de 2 kHz, à temperatura ambiente.

Para a realização do ataque eletroquímico foi desenvolvida uma câmara especial para este tipo de revelação que é mostrada neste trabalho juntamente com o equipamento utilizado para irradiação e revelação dos detectores estudados.

Os detectores foram irradiados com nêutrons

provenientes de fontes de Cf-252 e  $^{241}\text{AmBe}$ , no ar.

A sensibilidade dos detectores foram determinadas para as energias médias do espectro do Cf-252 e  $^{241}\text{AmBe}$  (2,1 e 4,3 MeV, respectivamente). O detector mais sensível foi o CR-39 produzido pela Pershore Mouldings Ltda. cuja sensibilidade é  $(5,1 \pm 0,6) \cdot 10^5$  para a energia de 2,1 MeV e  $(3,5 \pm 0,5) \cdot 10^5$  para a energia média do  $^{241}\text{AmBe}$ . Para o Makrofol-E a sensibilidade é  $(4,1 \pm 0,6) \cdot 10^6$  para 2,1 MeV e  $(4,5 \pm 0,6) \cdot 10^6$  para 4,3 MeV.

O sistema de contagem dos detectores também foi estudado e um microscópio óptico (aumento de cerca de 140 x) foi utilizado para a análise do Makrofol-E e um projetor de "slide" para o CR-39 (aumento de aproximadamente 70x).

A faixa de fluência em que se pode utilizar estes detectores também foi determinada e está compreendida entre  $7,8 \cdot 10^4$  e  $2,0 \cdot 10^8$  n/cm<sup>2</sup> para o detector CR-39 e entre  $4,9 \cdot 10^6$  e  $2,4 \cdot 10^9$  n/cm<sup>2</sup> para o Makrofol-E. A reprodutibilidade do método foi verificada como sendo 3% para os detectores CR-39 e 2% para os detectores Makrofol-E.

# **FAST NEUTRON DETECTION USING SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS**

**JUDICE CORREIA VILELA**

## **ABSTRACT**

CR-39 and Makrofol-E solid state nuclear track detectors were studied aiming their application to fast neutron detection.

Optimum etching conditions of those two kinds of materials were determined the followings

- the Makrofol-E detector is electrochemically etched in a PEW solution (15% KOH, 40% ethilic alcohol and 45% water) for 2 h., with an applied electric field strength of 30 kV/cm (r.m.s.) and frequency of 2 kHz, at room temperature;
- the CR-39 detector is chemically pre-etched during 1 h in a 20%(w/v) NaOH solution at 70°C, followed by 13 h electrochemical etch using the same solution at room temperature and an electric field strength of 30 kV/cm (r.m.s.) and frequency of 2 kHz.

The electrochemical etch was carried out in a special cell for this kind of etching which was developed for this study. The electrochemical etching cell and the associated apparatus and the experimental equipment employed for the irradiation of the detectors is showed in this work.

The detectors were irradiated with fast neutrons from Cf-252 and AmBe sources. The Cf-252 source has a fission spectrum which average energy is 2.1 MeV and the  $^{241}\text{AmBe}$  source has a continuum spectrum which average energy is 4,3 MeV.

The counting system was also studied. An optical microscope was used for Makrofol-E detector readout and a slide projector for CR-39 detector analysis.

The most sensitive detector studied is the CR-39 made by Pershore Mouldings Ltd. This detector sensibility obtained is  $(5.1 \pm 0.6) \times 10^{-5}$  t/n and  $(3.5 \pm 0.5) \times 10^{-5}$  t/n for 2.1 MeV and 4.3 MeV average neutron energies, respectively. The Makrofol-E sensibilities are  $(4.1 \pm 0.6) \times 10^{-6}$  and  $(4.5 \pm 0.6) \times 10^{-7}$  for the neutron energies earlier mentioned.

These materials can be used in the fluence range between  $7.8 \times 10^4$  and  $2.0 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup> for CR-39 detector and between  $4.9 \times 10^6$  and  $2.4 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup> for Makrofol-E.

The method reproducibility was verified to be 3 % for CR-39 detectors and 2 % for Makrofol-E.

# ÍNDICE

pag.

**Capítulo I - Introdução e objetivos.....1**

**Capítulo II - Detectores sólidos de traços nucleares  
no estado sólido.....7**

II.1 - Introdução.....7

II.2 - Formação do traço.....10

II.3 - Tipos de revelação.....13

II.3.1 - Revelação química.....13

II.3.1.1 - Geometria do traço.....14

II.3.1.2 - Parâmetros que afetam a revelação  
química.....17

II.3.2 - Revelação eletroquímica.....19

II.3.2.1 - Definição e forma do traço.....21

II.3.2.2 - A formação da arborescência.....23

II.3.2.3 - Os diferentes processos de revelação  
eletroquímica.....24

II.3.2.3.a - Revelação eletroquímica com pré-  
ataque químico.....24

II.3.2.3.b - Revelação eletroquímica sem pré  
ataque químico.....28

II.4 - Leitura dos traços.....31

II.4.1 Observação num microscópio óptico.....31

II.4.2 - Contador por descarga elétrica.....32

II.4.3	- Sistema de contagem por analisador de imagem.....	34
II.4.4	- Outras técnicas de leitura automática.....	35
<b>Capitulo III - Detecção de nêutrons utilizando</b>		
	SSNTD's.....	37
III.1	- Interação dos nêutrons com o tecido humano.....	37
III.2	- Classificação dos nêutrons por energia.....	40
III.3	- Fontes de nêutrons rápidos.....	41
III.3.1	- Fonte de $^{241}\text{AmBe}$ .....	41
III.3.2	- Fonte de Cf-252.....	44
III.4	- Principais reações utilizadas para a detecção de nêutrons com Detectores Sólidos de Traços Nucleares orgânicos.....	44
III.4.1	- A detecção de nêutrons utilizando a reação (n,f).....	45
III.4.2	- Detecção de nêutrons térmicos utilizando a reação (n,alfa).....	46
III.4.3	- Detecção de nêutrons rápidos utilizando reações (n,alfa) e recuo dos núcleos de C, O e N.....	48
III.4.4	- A detecção de nêutrons utilizando reação (n,p).....	50

III.5 - Os SSNTD's mais utilizados para a detecção de nêutrons.....	51
III.5.1 - Os policarbonatos.....	51
III.5.2 - Os derivados celulósicos.....	52
III.5.2.1 - Os nitratos de celulose.....	52
III.5.2.2 - Os acetatos, triacetatos e acetobutiratos de celulose.....	55
III.5.3 - O carbonato diglicol alílico.....	55
<b>Capitulo IV- Parte experimental e resultados.....</b>	<b>59</b>
IV.1 - Introdução.....	60
IV.2 - Os detectores.....	60
IV.2.1 - Makrofol-E.....	62
IV.2.2 - CR-39.....	66
IV.3 - Irradiação.....	68
IV.4 - Revelação dos detectores.....	69
IV.4.1 - A câmara de ataque eletroquímico..	71
IV.4.2 - A fonte de tensão utilizada.....	72
IV.4.3 - Condições de revelação dos detectores Makrofol-E.....	72
IV.4.3.1 - Determinação do campo aplicado durante a revelação.....	72
IV.4.3.2 - Determinação do tempo de revela- ção.....	78
IV.4.3.3 - Determinação da frequência a ser utilizada.....	83
IV.4.3.4 - Verificação da influência de um pré ataque químico na revelação dos detectores Makrofol-E.....	85

IV.4.4 - Determinação das condições de revelação dos detectores CR-39.....	88
IV.5 - Leitura dos detectores.....	93
IV.6 - Verificação da linearidade da resposta dos detectores com a variação da fluência de nêutrons incidentes sobre os mesmos.....	95
IV.7 - Limite mínimo de detectabilidade....	107
IV.8 - Limite máximo de detectabilidade....	112
IV.9 - Sensibilidade dos detectores a nêutrons rápidos.....	112
IV.10 - A reprodutibilidade do método.....	112
Capítulo V- Conclusão.....	115

## **CAPÍTULO I**

### **INTRODUÇÃO E OBJETIVOS**

A técnica de utilização dos detectores sólidos de traços nucleares (SSNTD's - Solid State Nuclear Track Detectors) é conhecida desde o final da década de cinquenta. O princípio desta técnica consiste em detectar partículas utilizando determinados materiais dielétricos, como por exemplo: plásticos, mica, vidro, etc. nos quais a ação de partículas ionizantes pesadas resulta em danos na estrutura sob a forma de traços. Utilizando-se, então, reagentes químicos, estes danos são ampliados até dimensões visíveis em um microscópio óptico. Esta ampliação é denominada de revelação sendo a mais comum chamada revelação química, que consiste em se submergir o material detector em uma solução química apropriada. Ocorre, então, o processo de ampliação do dano existente no material detector.

No início da década de setenta, Tommasino e colaboradores(1) sugeriram um novo método de revelação dos SSNTD's para casos de densidades de traços relativamente baixa, que associava ao ataque químico convencional uma tensão elétrica pulsada. Este tipo de revelação foi denominada de ataque eletroquímico e resultava em traços revelados com dimensões bem maiores que os obtidos com a revelação química, além de um contraste bem mais acentuado

que era ideal para a realização de uma contagem automática dos traços, o que torna este tipo de ataque atraente para utilizações em que é necessário a análise de um grande número de detectores. Esta técnica é, então, bastante indicada para ser utilizada em dosimetria pessoal neutrônica.

O ataque eletroquímico associado à descoberta das propriedades de registro de traços nucleares do material CR-39, feita por Cartwright e outros (2) em 1978, levaram os pesquisadores, principalmente da área de dosimetria, à tentativa de otimizar a técnica dos SSNTD's para a utilização em dosimetria pessoal de nêutrons.

As características mais desejáveis para um dosímetro pessoal de nêutrons são:

- 1.resposta não dependente da energia dos nêutrons incidentes;
- 2.ser utilizável em uma grande faixa de energia (desde  $10^{-2}$  a  $10^7$  eV);
- 3.ser leve, de dimensões reduzidas e de baixo custo;
- 4.ser não radioativo;
- 5.ser insensível a outros tipos de radiação( $\alpha$ mas, X, elétrons, etc.) para que possa ser utilizado em lugares onde se tem campos de radiação mistos;
- 6.a leitura e análise dos dados deve ser rápida e não muito complicada;
- 7.fornecer um registro permanente.

A maior parte destas características foi encontrada nos

detectores de traços nucleares no estado sólido plásticos, quando submetidos a um ataque eletroquímico apropriado.

Para que um tratamento químico ou eletroquímico conduza a condições ótimas de utilização dos detectores de traço, os seguintes parâmetros devem ser determinados:

- o tipo de solução a ser utilizada;
- a temperatura e a concentração da solução utilizada para a revelação;
- a intensidade do campo alternado aplicado ao detector e a frequência a ser utilizada, no caso do ataque eletroquímico.

Cada um desses parâmetros deve ser determinado experimentalmente, pois dependem de fatores como: o clima da região em que se encontra o laboratório, o processo de armazenamento do detector, a idade do detector estudado, o modo como este é manipulado, etc.

Neste trabalho desenvolvemos técnica de detecção de nêutrons rápidos utilizando detectores plásticos revelados por ataque eletroquímico, levando em conta a possibilidade de se utilizar posteriormente estes detectores em dosímetros pessoais de nêutrons. Esta faixa de energia é de grande interesse para a dosimetria visto que, nêutrons nesta região são responsáveis por uma grande deposição de energia no tecido humano, da ordem de 40 vezes maior que nêutrons de energias menores que 500 keV (Figura I.1)(3).

Para atingir o nosso objetivo as seguintes etapas

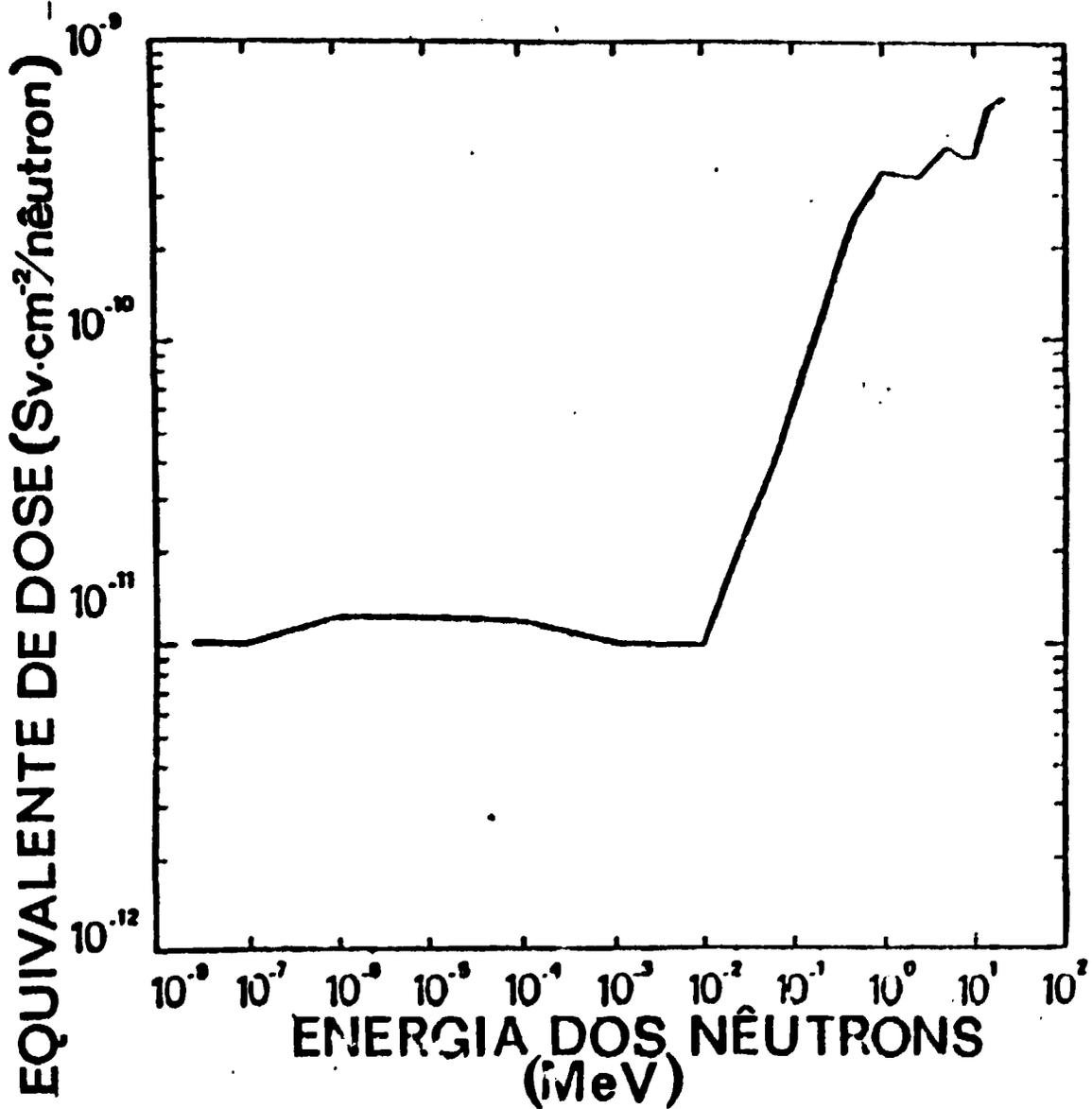


Figura I.1: Fatores de conversão de fluência de nêutrons em dose equivalente em função da energia dos nêutrons.

foram estabelecidas:

1. desenvolvimento de uma câmara de ataque eletroquímico que pudesse ser utilizada para a revelação simultânea de um número grande de detectores e que reproduzisse as condições de revelação;
2. determinação das condições de revelação para cada tipo de detector escolhido para o estudo;
3. estudar a resposta de diferentes detectores quando submetidos a irradiação com nêutrons rápidos;
4. verificar a linearidade da resposta dos detectores em função da fluência de nêutrons; e, finalmente,
5. determinar a sensibilidade destes detectores para nêutrons de diferentes energias.

Neste trabalho abordamos os seguintes tópicos:

- no capítulo II introduzimos os princípios básicos da técnica de detecção de partículas ionizantes pesadas utilizando detectores de traços nucleares no estado sólido, especialmente os detectores orgânicos, de modo que se possa ter uma visão básica de todo o processo envolvido, desde a formação do traço latente até a revelação e métodos de análise dos detectores;
- em seguida, no capítulo III, mostramos as diferentes interações de nêutrons com os os constituintes básicos do tecido humano, isto é, H, C, O e N, que também são os constituintes básicos dos SSNTD's. Tratamos, também, neste capítulo das técnicas de

registro de traços induzidos por nêutrons que resultam de reações dos nêutrons com os elementos acima citados, para os diversos tipos de detectores orgânicos;

- no capítulo IV, descrevemos o processo experimental desenvolvido para a realização do trabalho e apresentamos os resultados obtidos; e,
- no capítulo V estão as conclusões a que chegamos com este estudo, e comparamos os nossos resultados com trabalhos realizados por outros pesquisadores.

## CAPÍTULO II

### DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS NUCLEARES

#### II.1. Introdução

Em 1958, D.A. Young (4) observou que fragmentos de fissão ao incidirem em dielétricos sólidos deixavam defeitos, que ao serem observados num microscópio eletrônico podiam ser visualizados. Em 1959 Silk e Barnes demonstraram que partículas ionizantes pesadas ao incidirem em certos meios cristalinos produzem danos ao longo de sua trajetória que poderiam ser observados mesmo em um microscópio óptico (5). Em 1962 Price e Walker (6) verificaram que os danos causados por partículas carregadas pesadas em meios dielétricos podiam ser ampliados com o uso de reagentes químicos, ou seja, um ataque químico, até dimensões visíveis num microscópio óptico. As regiões que foram danificadas pela radiação são denominadas de traços latentes. Durante o ataque químico estas regiões são preferencialmente atacadas. Esta ampliação foi observada em vários polímeros de diferentes origens.

Os materiais que servem para a detecção de radiação por esta técnica são denominados de detectores de traços nucleares no estado sólido e estes podem ser de duas origens: minerais e orgânicos.

Os detectores minerais são a mica, o quartzo, o

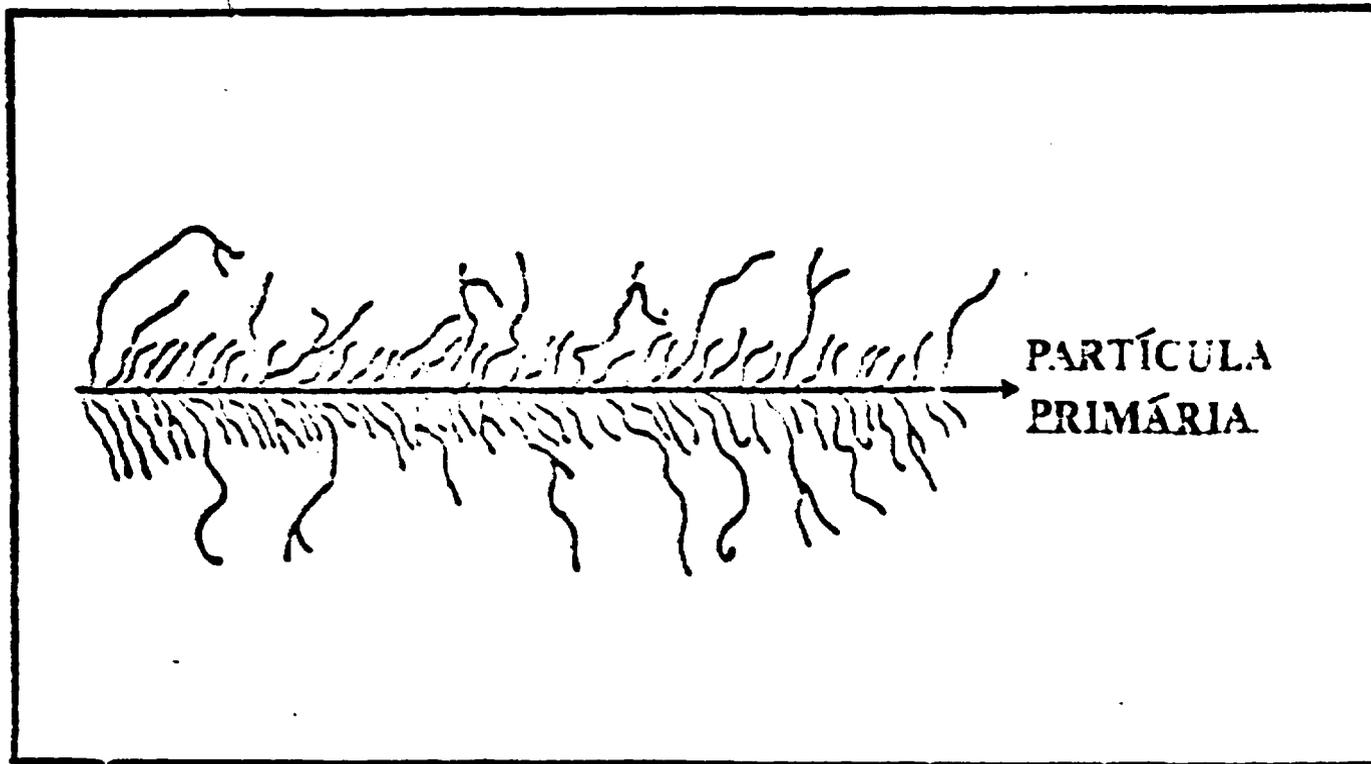
vidro, etc. Os detectores orgânicos são plásticos tais como os policarbonatos, os derivados celulósicos e o carbonato diglicol alílico.

A natureza das partículas ionizantes que podem deixar traços latentes durante a sua passagem num sólido depende de cada tipo de detector estudado. Existe um limiar energético da partícula incidente para que haja a formação do traço latente num detector. Este limiar é característico do material detector e é o que define a sensibilidade do mesmo.

Em geral, os detectores plásticos são mais sensíveis aos diferentes tipos de radiação, que os detectores minerais, e os traços só se formam em materiais de resistividade superior a  $2 \text{ k}\Omega\text{cm}$ (7,8). Neste trabalho pretendemos estudar apenas os detectores plásticos, por isso não trataremos a fundo dos detectores minerais.

Atualmente, o material mais sensível conhecido é o carbonato diglicol alílico, mais conhecido como CR-39 (Columbia Resin) (2).

A simplicidade da técnica de detecção e o baixo custo do material têm feito com que este tipo de detector seja amplamente utilizado nos mais diferentes campos da ciência e tecnologia (9-12). Para a aplicação em dosimetria neutrônica estes detectores não se mostraram, inicialmente, muito interessantes devido à baixa sensibilidade e ao processo de contagem dos detectores ser muito cansativo.



9

**Figura II.1:** Esquema mostrando a deposição de energia da partícula incidente em um SSNTD.

No início da década de setenta Tommasino (1,13) propôs um novo método de revelação que permite a ampliação dos traços até dimensões bem maiores que aquelas obtidas com uma revelação química. Este método de revelação foi denominado de ataque eletroquímico porque associa ao ataque químico um campo elétrico alternado de alta intensidade.

## II.2. Formação do traço

Para compreender o mecanismo da formação do traço e sua revelação, é útil descrever qualitativamente a estrutura do traço de uma partícula carregada que atravessa a matéria.

Para uma partícula carregada a distribuição de energia depositada, em função da distância percorrida, depende fortemente da sua velocidade. Uma partícula com pouca velocidade perde sua energia através de muitas colisões nas quais pouca energia é trocada com as partículas alvo. Esta perda de energia está limitada a um pequeno volume cilíndrico ao redor da trajetória da partícula incidente (Figura II.1). Este tipo de interação difere bastante das interações de partículas com alta velocidade. Neste caso uma fração substancial da energia perdida é utilizada para produção de elétrons de altas energias (raios delta) (14). Estes elétrons ao longo do seu percurso fazem com que a energia seja depositada em um volume bem maior do material sobre o qual a partícula incidiu.

Nos detectores convencionais, os semicondutores, os cintiladores, as câmaras de ionização e os materiais termoluminescentes a resposta resultante obtida é devida à deposição de energia ao longo de todo o volume ao redor da trajetória da partícula incidente, sendo, portanto, uma medida da energia total depositada pela partícula. Nos detectores de traços nucleares no estado sólido a quantidade de energia depositada na vizinhança da trajetória da partícula incidente é a fração de energia mais importante para a detecção da partícula. É esta fração que vai causar a formação de íons no material detector, e estes íons serão os responsáveis pela reatividade química no interior do traço de modo que o ataque químico ocorrerá preferencialmente nesta região.

A característica mais importante destes detectores é a necessidade de uma densidade mínima de danos ao longo do traço que permita a este ser aumentado quimicamente. O total da energia perdida não contribui para o dano. A energia liberada pelos raios delta danifica o material porém de modo não expressivo.

Na figura II.2 temos a ionização primária proporcional à energia depositada na vizinhança da trajetória da partícula incidente, em função da velocidade desta partícula, para diferentes íons (7). Os pontos cheios indicam que os traços são revelados no detector. Podemos observar que as linhas pontilhadas mostram a existência de

TAXA DE IONIZAÇÃO PRIMÁRIA  
(UNIDADES ARBITRÁRIAS)

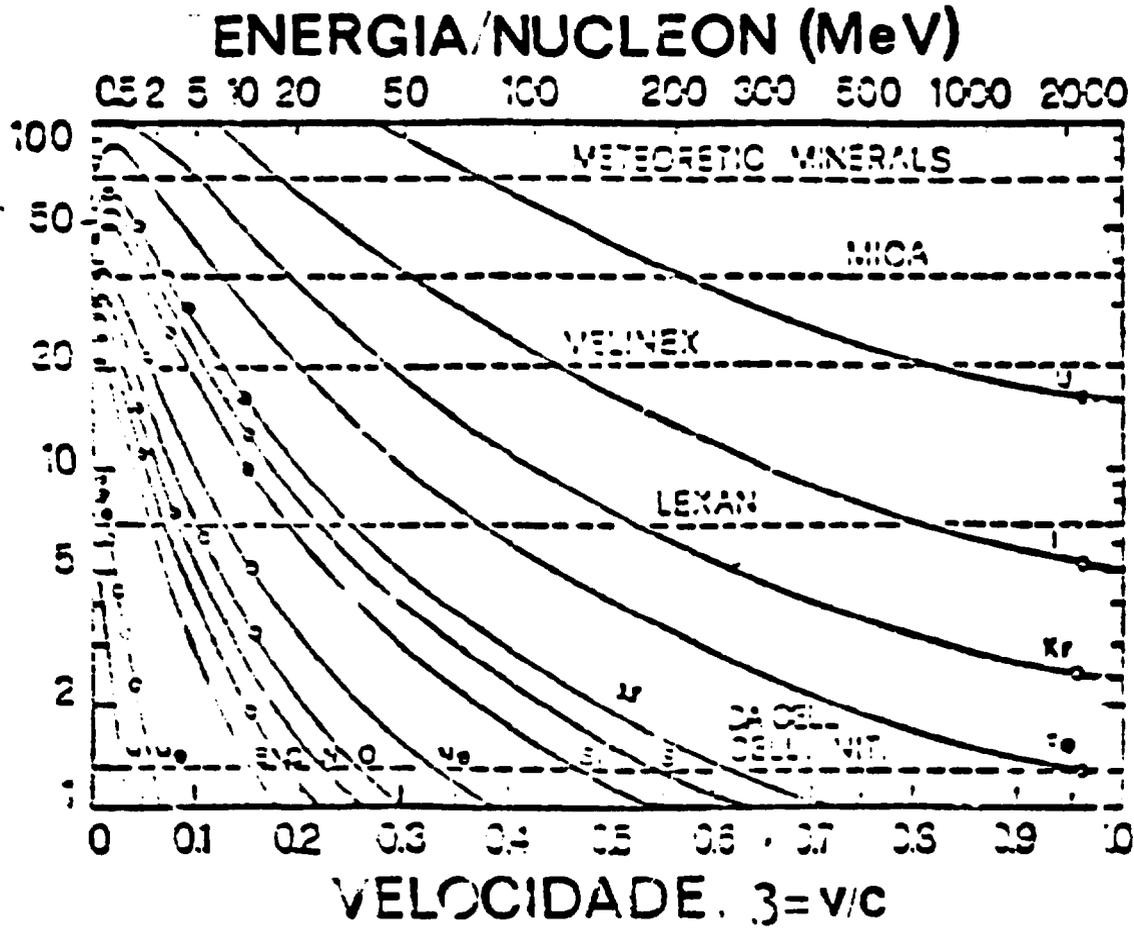


Figura II.2: Taxa de ionização primária em função da energia e limiar de detecção para diferentes materiais detectores de traços nucleares (7).

um limiar de taxa de ionização primária para cada material, cujo valor depende de fatores como os processos de fabricação dos plásticos e do tratamento térmico, antes e após a irradiação do detector.

A existência do limiar de energia é uma das características mais significativas dos detectores de traços nucleares no estado sólido já que as partículas cuja taxa de ionização primária está abaixo deste valor crítico, para um dado material, não serão registradas. Isto explica a razão de altos fluxos de elétrons, raios-X e raios gama serem facilmente discriminados por estes detectores.

### **II.3. Tipos de revelação**

#### **II.3.1. Revelação química**

Os reagentes químicos mais utilizados para o tratamento dos detectores orgânicos são as soluções aquosas de hidróxido de potássio (KOH) e hidróxido de sódio (NaOH).

Neste processo de revelação o detector é submerso em um reagente químico adequado. O reagente químico se difunde pelas regiões danificadas durante um certo intervalo de tempo que é denominado tempo de indução do detector. Durante este período o ataque químico é insignificante (15). Em seguida, o reagente químico degrada a zona danificada dissolvendo e deslocando as moléculas do detector. Com o decorrer do tempo esta reação se torna mais efetiva e um canal ao longo da trajetória da partícula

incidente é formado. Simultaneamente as superfícies do detector são atacadas, mas a taxa de ataque nestas regiões é menos violenta. Após um intervalo de tempo de ataque conveniente, conseguimos com que o traço seja aumentado até dimensões convenientes para a análise. Estas dimensões dependem do método de análise a ser utilizado.

#### II.3.1.1. Geometria do traço

De um modo simplificado podemos condicionar a geometria do traço revelado a dois fatores

- a velocidade de ataque químico ocorrido no interior do traço ( $V_t$ ); e
- a velocidade de ataque químico ocorrido na superfície do detector ( $V_s$ ).

Um traço é revelado por um reagente químico apenas se a velocidade de ataque ao longo do traço,  $V_t$ , excede a velocidade na qual a superfície é atacada,  $V_s$ . Se o traço não for perpendicular à superfície do detector (incidência normal da partícula), a componente de  $V_t$ , (perpendicular à superfície) deve ser superior a  $V_s$  para que a revelação ocorra.

A figura II.3.a mostra a geometria de ataque de um traço para uma partícula de incidência normal à superfície do detector. Neste caso, que é o mais simples de ser estudado, a velocidade de ataque ao longo do traço,  $V_t$ , é suposta constante e a velocidade superficial,  $V_s$ , isotrópica. O diâmetro do traço,  $D$ , é o comprimento do

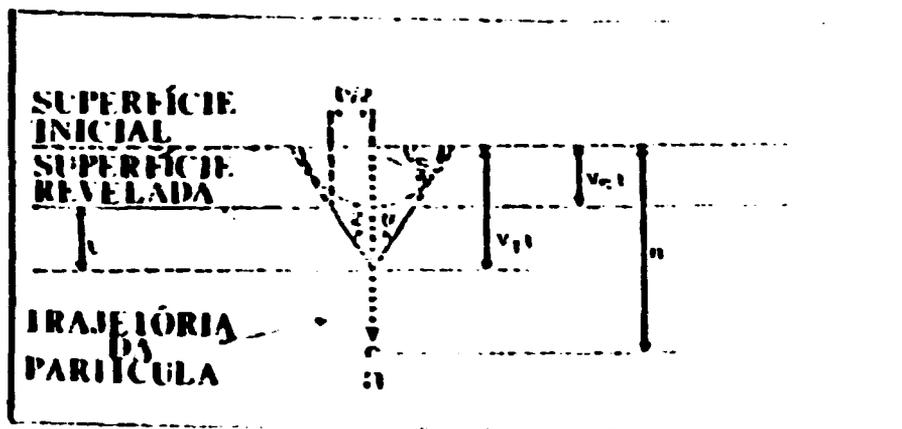


Figura II.3.a: Geometria de ataque de um traco para uma partícula de incidência normal.

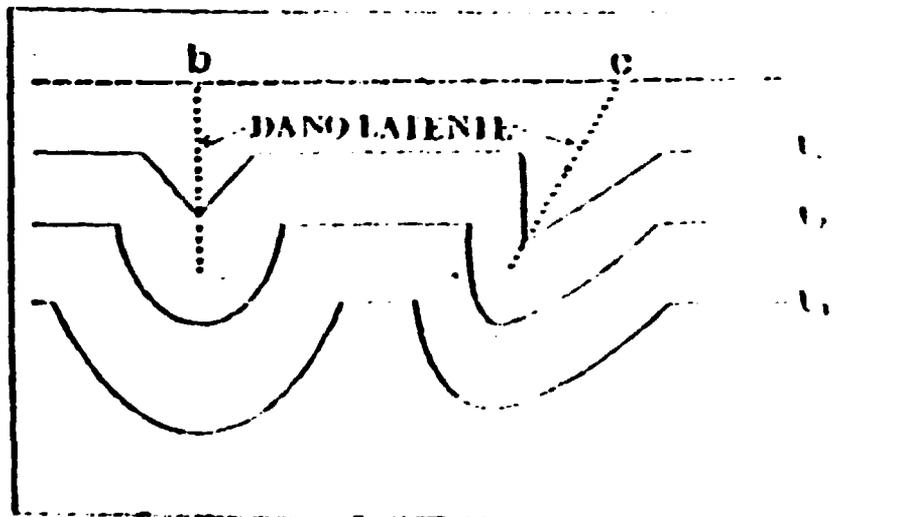


Figura II.3.b: Geometria de ataque de um traco para diferentes tempos de revelação.

traço revelado,  $L$ , dependem essencialmente dos efeitos competitivos entre  $V_t$  e  $V_s$ . Da figura II.3.a podemos tirar que:

$$L = (V_t - V_s) \cdot t \quad (1)$$

onde  $t$  é o tempo de ataque químico realizado, e

$$D = 2V_s \cdot t \cdot [(V_t - V_s) / (V_t + V_s)] \quad (2)$$

Para  $V_t = V_s$  é evidente que  $L = D = 0$ .

Para as partículas que incidem fazendo um ângulo com a superfície, a componente de  $V_t$  perpendicular à superfície,  $V_t \sin \theta$ ,  $\theta$  deve ser superior a  $V_s$ , para que produzam traços reveláveis.

$$V_t \cdot \sin \theta > V_s \quad (3)$$

portanto,

$$\sin \theta > V_s / V_t \quad (4)$$

Donde, a existência de um ângulo crítico para o registro de traços dado por:

$$\theta_c = \text{arc sen } (V_s / V_t) \quad (5)$$

abaixo do qual, o dano não é revelado, não havendo, portanto, a formação de um traço.

A figura II.3.b ilustra também a geometria de dois traços (b e c) com diferentes ângulos de incidência

revelados por três diferentes intervalos de tempo de ataque químico:  $t_1$ ,  $t_2$  e  $t_3$ . As formas dos traços mudam de maneira significativa com o tempo de revelação. Um traço terá uma extremidade pontual apenas quando ele não for revelado após a extremidade do traço latente ser atingida. Assim que o fim do traço é atingido a extremidade pontual começa a se arredondar. O diâmetro do traço continua a aumentar mas, uma vez que o traço tenha perdido a sua forma cônica ele se torna menos claro e mais difícil de ser distinguido. Continuando a revelação os traços se tornam coplanares com a superfície inicial e não são mais visíveis.

Apenas por simplicidade consideraremos a forma e a geometria dos traços nos casos em que temos  $V_t$  constante num meio de ataque isotrópico. Na prática,  $V_t$  muda ao longo do traço e apenas os vidros podem ser considerados como tendo um ataque isotrópico (16).

#### 11.3.1.2. Parâmetros que afetam a revelação química

Para um dado material detector, os parâmetros da revelação química que mais afetam os resultados obtidos são: o tipo de reagente químico utilizado, a concentração e a temperatura da solução atacante.

Uma solução ideal deve atacar quimicamente as moléculas apenas da interface sólido-líquido, arrancando-as e quebrando-as em moléculas menores, tal que o solvente seja absorvido pelo material detector, retirando as moléculas não desligadas e dissolvendo-as na solução (7).

As soluções atacantes mais utilizadas para detectores orgânicos são as soluções aquosas de hidróxido de potássio (KOH) e de hidróxido de sódio (NaOH). Estas soluções podem se tornar muito mais efetivas quando álcool (etanol ou metanol) é adicionado à solução aquosa (16). Em particular para policarbonatos a adição de álcool aumenta a velocidade de ataque dos traços latentes, aumentando em muito a sensibilidade destes detectores a determinados tipos de radiação ionizante (17). Entretanto, quando esta solução é utilizada com o detector CR-39 observa-se uma diminuição da sensibilidade destes detectores para registrar certos tipos de partículas (18), o que, entretanto, pode ser uma vantagem quando se deseja determinado tipo de comportamento destes detectores que justificam a diminuição da sensibilidade do detector em prol de outras características mais interessantes (18).

Existe na literatura diversos dados de diferentes estudos em que se determina a influência da composição da solução atacante, sua concentração e temperatura, o grau de agitação da solução durante o ataque químico e diferentes tratamentos dos detectores antes de se realizar a revelação (19-23). Entretanto, todos estes parâmetros não podem ser previstos teoricamente, cabendo, portanto, a cada laboratório a determinação experimental das condições ótimas de utilização de seus detectores.

Na prática, os parâmetros mais importantes para

controlar a velocidade de ataque do detector são a temperatura e a concentração da solução. Desde que  $V_t$  e  $V_s$  podem ser facilmente alteradas, pela variação destes parâmetros, estes devem ser rigidamente controlados. Os efeitos da temperatura são mais pronunciados em detectores mais frágeis como os nitratos de celulose, nos quais se encontram diminuição acentuada da sensibilidade de registro de tracos à temperaturas superiores a  $40^\circ\text{C}$  (24,25).

### II.3.2. Revelação eletroquímica

Este tipo de revelação explora a ação combinada de um ataque químico e de um campo elétrico para a produção de avalanches ao longo da zona danificada.

O ataque eletroquímico consiste basicamente em se colocar um detector sólido plástico entre duas células, em geral, de lucite, contendo, uma delas solução atacante e a outra solução condutora, como exemplificado na Figura II.4. Eletrodos são introduzidos nas células de modo que o pólo positivo fique na célula com a solução atacante e o pólo negativo fique na célula com solução condutora. A tensão alternada é, então, aplicada entre estes dois eletrodos que em geral são de aço-inoxidável. O campo aplicado é de algumas dezenas de quilovolts e estudos iniciais indicavam que as frequências mais indicadas estavam entre 1 e 10 kHz (26). Os estudos mais recentes indicam, entretanto, frequências bem mais baixas para a revelação eletroquímica (27).

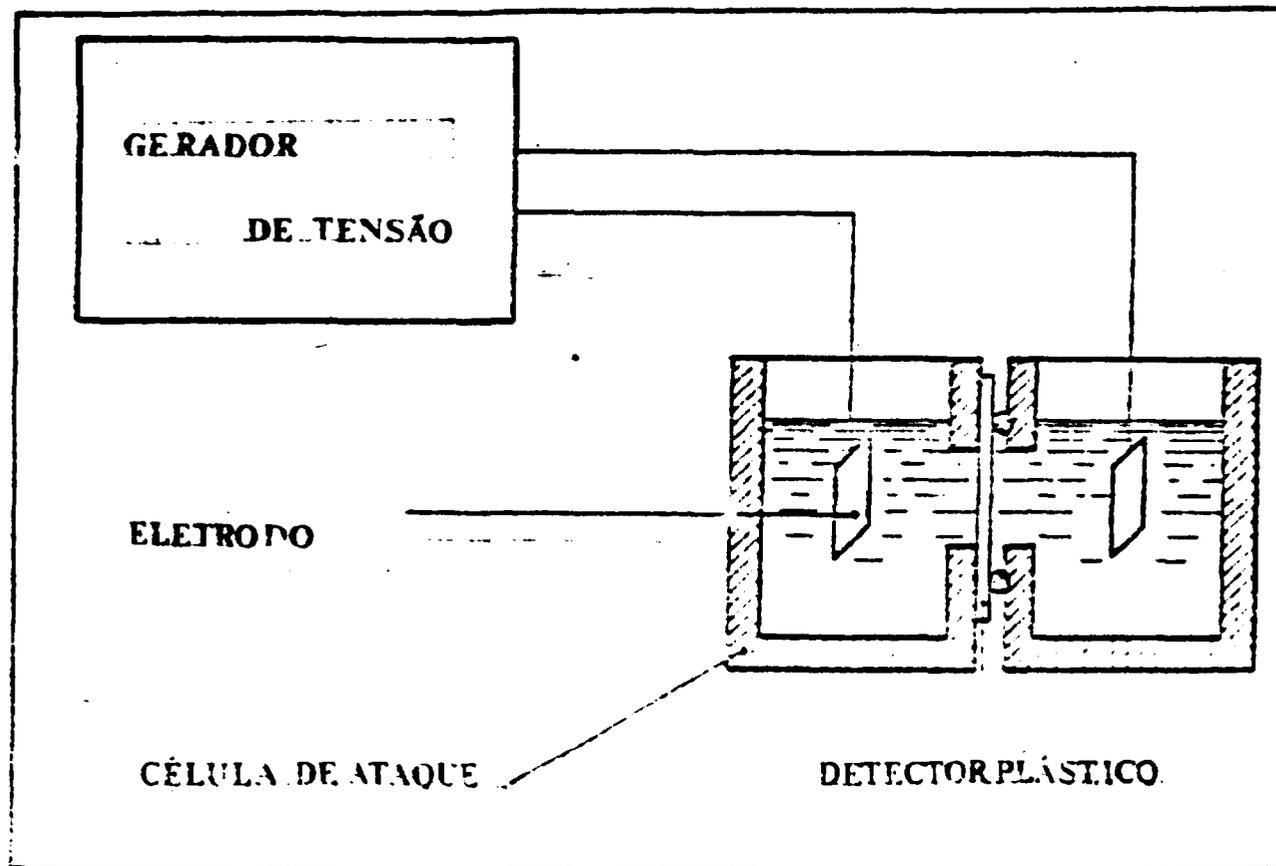


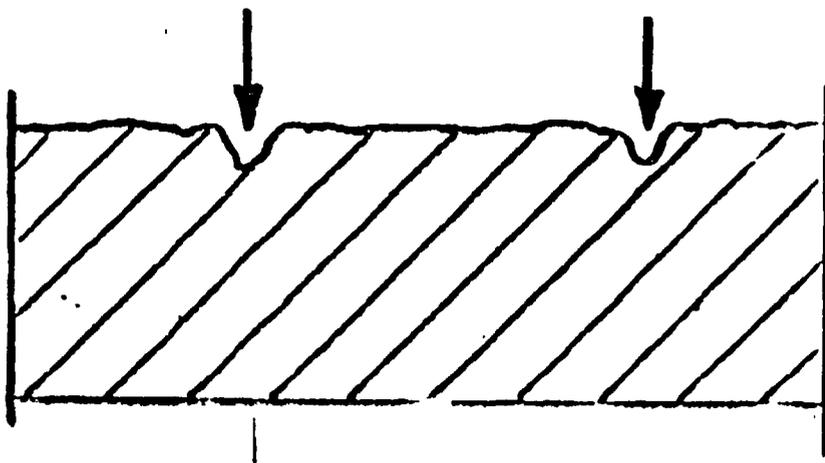
Figura II.4: Esquema de uma câmara de ataque eletroquímico proposto por Tommasino em 1970 (1).

Os processos internos que ocorrem durante a revelação eletroquímica, como no caso da revelação química, não são de todo conhecidos. Um modelo foi proposto por Tommasino em 1981 (28) que tentou explicar os fenômenos que ocorrem durante este tipo de revelação, e é este modelo que discutiremos aqui. Este modelo propõe que o ataque eletroquímico ocorre em duas etapas: a formação do traço e o fenômeno de arborescência, como sugerido pela Figura II.5.

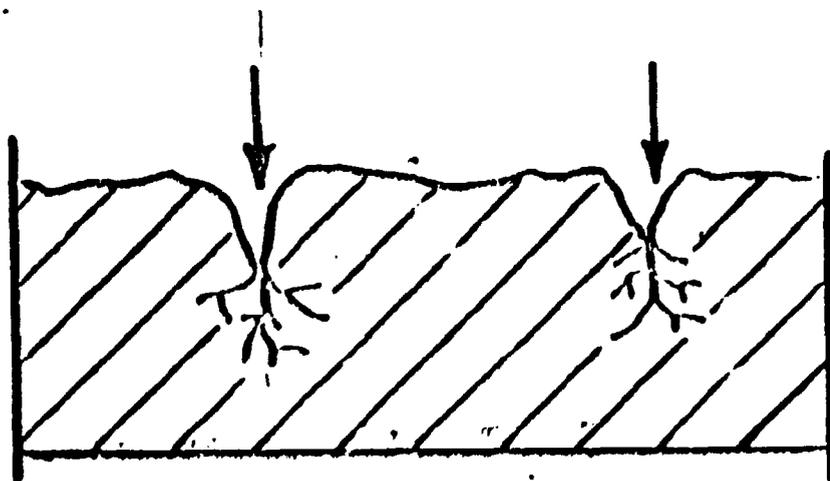
### II.3.2.1. Definição e forma do traço

Num primeiro estágio da revelação eletroquímica o processo mais importante é a formação do traço. Nesta etapa também é válida a condição de que a velocidade no interior do traço deve ser maior que a velocidade de ataque superficial, como já visto anteriormente no caso da revelação química. As diferenças entre os dois tipos de revelação resultam da ação do campo elétrico alternado, que poderá aumentar a penetração dos íons do eletrólito no interior do traço e no volume detector (28). As perdas de energia dielétrica produzidas nos detectores isolantes pela ação do campo elétrico alternado são de fundamental importância para a revelação eletroquímica, principalmente, durante a fase de formação do traço. A potência dissipada por unidade de volume,  $P_d$ , num dielétrico, somada a tensão alternada uniforme é dada pela seguinte expressão:

$$P_d = W E^2 \epsilon_0 \epsilon' \quad (6)$$



**ETAPA 1: FORMAÇÃO DO TRAÇO**



**ETAPA 2: FORMAÇÃO DA ARBORESCÊNCIA**

**Figura II.5:** Etapas de formação e definição do traço no ataque eletroquímico.

onde:  $\omega$  é a frequência expressa em Hz;  
 $E$  é o campo elétrico alternado aplicado;  
 $\epsilon_0$  é a permissividade dielétrica do vácuo;  
 $\epsilon'$  e o fator de perda dielétrica.

A potência dissipada por unidade de volume é função de  $\omega$  e de  $\epsilon'$  que já é por si só função da frequência. Na associação de um eletrólito com um isolante, a passagem dos portadores de carga no campo elétrico produz fenômenos de polarização interfacial ou polarização de Maxwell-Wigner (29). Estes fenômenos de polarização podem conduzir a grande aumento do fator de perda dielétrica,  $\epsilon'$ , e, portanto, às perdas de energia dielétrica. Eles poderão, portanto, aumentar a ação do ataque na direção preferencial do traço, já que o máximo dos fatores de perda dielétrica e da frequência são dependentes das formas das inclusões do eletrólito (29).

Estas conclusões, no entanto, devem ser tiradas com alguma cautela visto que não são completamente provadas ainda (28).

#### **II.3.2.2. A formação da arborescência**

Uma vez formado o traço, apresentando uma forma pontiaguda, representa uma inclusão condutora que penetra o isolante. Na extremidade desta inclusão o campo elétrico resultante é maior que o campo elétrico médio aplicado ao detector dielétrico, isto devido especialmente ao "efeito

das pontas". Este aumento na intensidade do campo elétrico pode ser calculado pela fórmula de Mason (30) e sob condições normais utilizadas no ataque eletroquímico (cerca de 30 kV/cm), o campo elétrico na extremidade do traço pode chegar a valores da ordem de 10 MV/cm. Este campo elétrico de alta intensidade localizado num ponto na extremidade do traço pode iniciar fissuras que levam à forma típica dos traços, que denominamos, em geral, como forma de árvore ou fenômeno de arborescência.

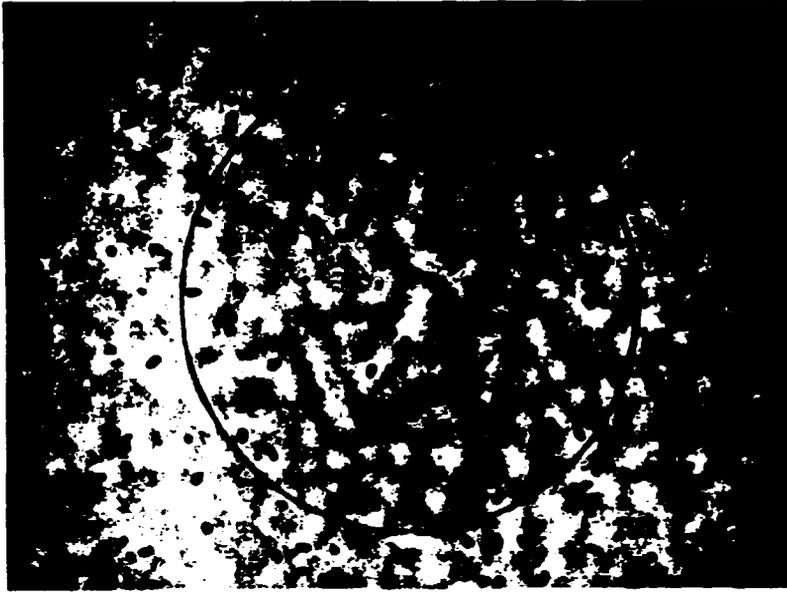
Estes fenômenos combinados com o ataque químico produzem danos catastróficos na extremidade do traço que facilmente são revelados.

O mencionado acima fica mais nítido ao observarmos a figura II.6 onde temos na parte (a) da figura traços devidos a prótons de recuo induzidos por nêutrons do Cf-252 no detector CR-39 revelados quimicamente, e na parte (b) o mesmo tipo de traços revelados pelo processo de revelação eletroquímica.

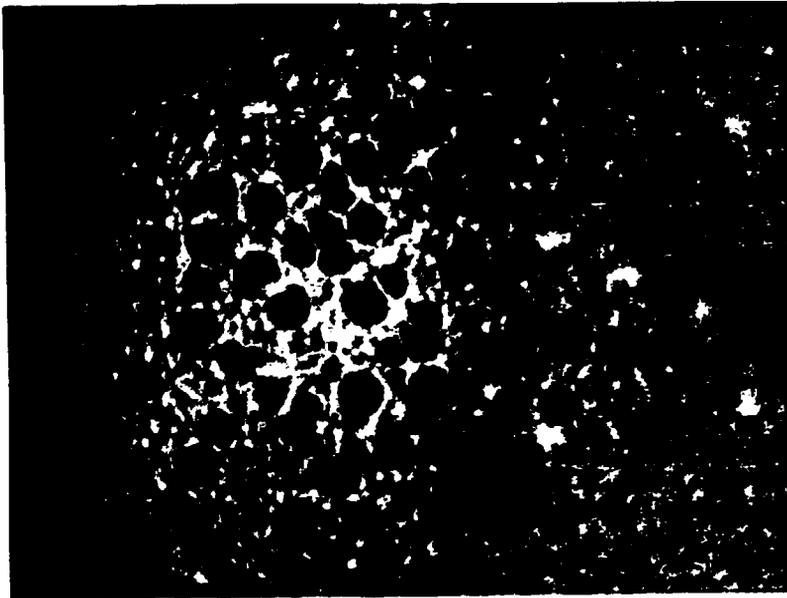
### **II.3.2.3. Os diferentes processos de revelação eletroquímica**

#### **II.3.2.3.a. A revelação eletroquímica com pré-tratamento químico**

Este processo de revelação combina a revelação química com a eletroquímica. O tratamento químico tem por objetivo fazer com que os traços adquiram uma forma pontiaguda antes de ser aplicado o campo elétrico alternado que ampliará os



**Figura II.6.a:** Detector Makrofol-E irradiado com nêutrons (Cf-252) revelado quimicamente por 50 min. em solução PEW a 70° C.

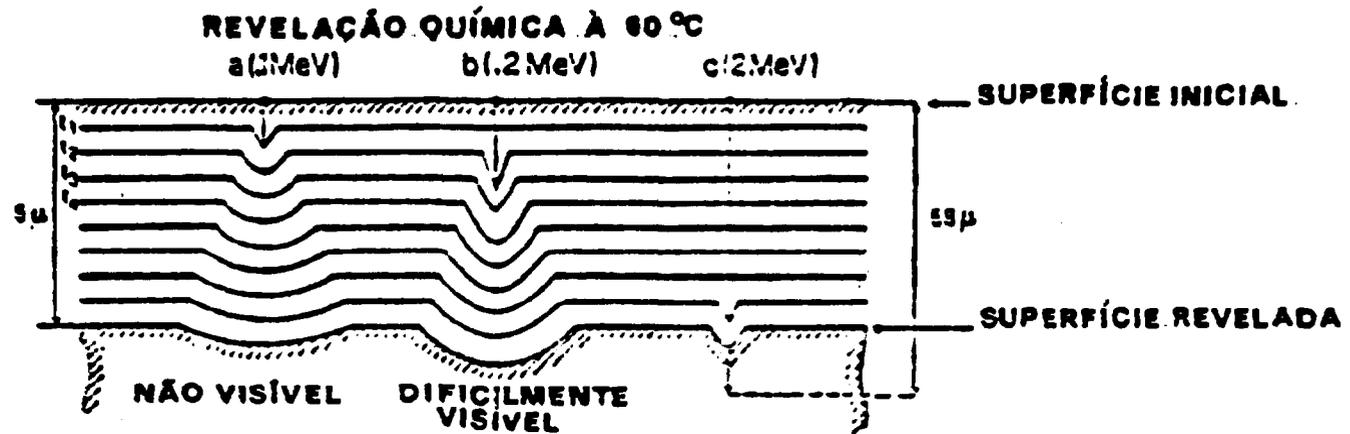


**Figura II.6.b:** Detector Makrofol-E irradiado com nêutrons (Cf-252) revelado eletroquimicamente por 2h em solução PEW a temperatura ambiente com campo elétrico de intensidade 40 kV/cm(r. m. s) e frequência 2 kHz.

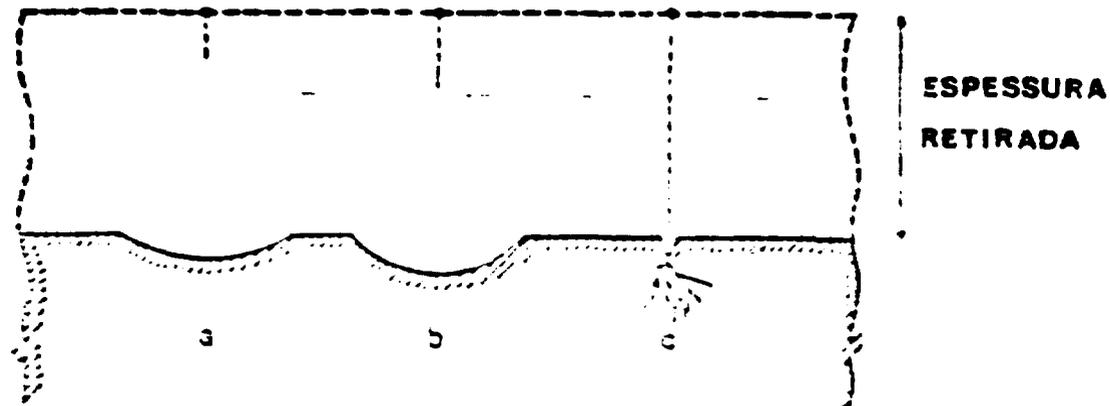
traços. Neste processo apenas os traços com forma pontiaguda entram na fase de arborescência, de modo que os traços que não possuem a forma pontiaguda não sofrem a ação do campo elétrico, e continuam a se arredondar até desaparecerem (figura II.7).

Este tipo de revelação combinado é ideal para a revelação de partículas carregadas que possuam o mesmo tempo de revelação do traço, como no caso de partículas alfa monoenergéticas, quando um só pré-tratamento químico é conveniente para todos os traços. Entretanto, não é aconselhado para o caso em que se tem traços latentes induzidos por partículas de diferentes energias com a mesma eficiência. Este processo, entretanto, se mostra bastante adequado quando se trabalha com detectores que tenham uma alta densidade de traços de "radiação de fundo" (background). Os traços devidos ao background são devidos às partículas alfa provenientes do radônio existente nos ambientes de laboratório e a danos de manuseio, sendo, portanto, traços superficiais que com um tratamento químico adequado adquirem uma forma arredondada não sofrendo a ação do campo elétrico alternado durante o ataque eletroquímico, não sendo, então, revelados.

Outra vantagem deste método de revelação reside em uma considerável redução do tempo de revelação eletroquímica. Em muitos casos quando não se faz a revelação eletroquímica à temperatura elevada, há a necessidade de longos períodos de ataque eletroquímico (mais de 24 horas de revelação) à



**REVELAÇÃO ELETRQUÍMICA A 24 °C  
COM PRÉ-REVELAÇÃO QUÍMICA**



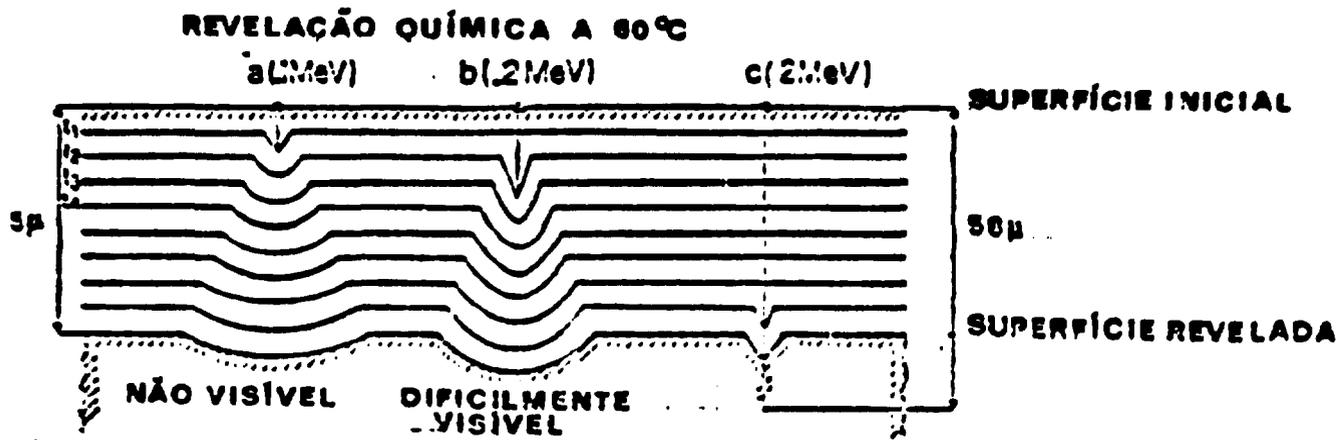
**Figura II.7:** Diagramas esquematicos da formacao de tracos com diferentes tempos de revelacao respectivamente para ataque quimico (parte superior) e ataque eletroquimico com pre ataque quimico (parte inferior).

temperatura ambiente. O pré-ataque químico que é realizado com aquecimento (40-70 °C) faz com que o traço adquira a forma cônica em um curto período de tempo (1 a 3 horas de revelação).

#### **II.3.2.3.b. Revelação eletroquímica sem pré-tratamento químico**

Na revelação eletroquímica com pré tratamento químico, descrita acima, a formação do traço não ocorre durante o processo de ataque eletroquímico. Para explorar todas as vantagens deste tipo de revelação a formação do traço deve ocorrer durante o ataque eletroquímico, de modo que traços que já estejam na fase de arborescência não prejudiquem a formação de novos traços que ainda não tenham a forma pontiaguda necessária para a formação da arborescência. Para este fim, utiliza-se uma temperatura para ataque eletroquímico da ordem daquela em que se realiza o ataque químico, (geralmente entre 60-70 °C).

A figura II.8 mostra os diagramas esquemáticos de comparação dos dois processos de revelação para diferentes tempos de revelação. A parte superior da figura é idêntica àquela da figura II.7, enquanto a parte inferior evidencia a iniciação e a propagação do fenômeno de arborescência para traços formados recentemente. De fato, uma vez que o traço adquira uma forma cônica ele entra na fase de arborescência. Se a revelação eletroquímica continua a ocorrer os traços já ampliados continuam a se expandir,



**Figura II.8:** Diagramas esquemáticos da formação de tracos com diferentes tempos de revelação respectivamente para ataque químico (parte superior) e revelação eletroquímica sem pré-tratamento químico (parte inferior).

enquanto que traços novos começam a entrar em fase de arborescência. Este processo, portanto, é quase o inverso do processo de revelação química, já que no processo de revelação química com o aumento do tempo de revelação os traços mais antigos começam a desaparecer enquanto novos traços vão surgindo.

Este tipo de ataque parece mais apropriado para a realização de revelação nos detectores em que há traços latentes devidos a partículas de diferentes energias, visto que, com o aumento do tempo de ataque o máximo de traços possíveis são revelados e seus diâmetros devem ser distintos, maior diâmetro, menor energia das partícula incidente, e podendo-se com um único ataque revelar todos os traços possíveis. Entretanto, se uma alta frequência é utilizada associada à uma alta temperatura (31), ocorre a saturação dos detectores devido aos efeitos destes dois parâmetros associados. Deve-se, portanto, utilizar uma frequência mais baixa, da ordem da frequência da rede elétrica o que possibilita uma ataque preferencial na direção perpendicular à superfície do detector e um menor ataque na direção do plano do detector o que faz com que não haja um aumento substancial do diâmetro do traço, possibilitando registrar uma densidade maior de traços. Outras vantagens da utilização da frequência da rede neste tipo de ataque são:

- o equipamento utilizado é mais simples;
- os traços obtidos não são muito grandes, mas se

distinguem facilmente dos defeitos do detector e se adaptam facilmente aos diferentes sistemas de contagem automática.

#### **II.4. Leitura dos traços**

Para a análise dos dados obtidos com os detectores de traços nucleares no estado sólido a etapa final (após a irradiação e a revelação dos traços) é a leitura dos detectores revelados, isto é, a contagem do número de traços obtidos por unidade de área, o que definimos como densidade de traços.

A leitura dos detectores de traços pode ser feita manualmente, ou seja, a contagem é feita diretamente observando os detectores após ampliação num microscópio óptico, existem outras possibilidades como : coloração dos traços, contagem por descarga elétrica, etc. que permitem a contagem dos traços automaticamente, algumas destas técnicas de contagem serão discutidas nesta secção.

##### **II.4.1. Observação num microscópio óptico**

Esta técnica de contagem é a mais simples e consiste em se utilizar um microscópio óptico de transmissão com projeção ou não, para a realização da contagem diretamente. Uma área contínua do detector é contada utilizando-se um filme quadriculado sobreposto ao detector o que permite a localização da posição da imagem de modo que a pessoa que realiza a contagem não se perca durante o processo de

contagem, além de permitir uma melhor medida da área que foi contada.

Esta técnica de contagem é a mais eficiente visto que, não há perda de traços durante a contagem, além de ser possível ao leitor identificar, pelo menos em parte traços devidos ao background e durante a própria contagem já eliminá-los.

A técnica de contagem por observação direta dos traços revelados, embora seja bastante eficiente, tem a desvantagem de ser cansativa e bastante demorada, além de ser afetada pelo fator humano durante a sua realização, isto é, a leitura varia de uma pessoa para outra, devido a problemas visuais, cansaço, etc.

#### **II.4.2. O contador por descarga elétrica**

Uma das técnicas mais utilizadas para contagem de pequenas densidades de traços (até cerca de  $3000 \text{ t/cm}^2$ ) (32) é a de descarga elétrica através de furos nos plásticos (33,34).

Os detectores utilizados nesta técnica de contagem não podem ter espessuras além de cerca de  $12 \mu\text{m}$ , o que limita a técnica a materiais como o Makrofol-KG e LR-115, e outros fabricados especialmente com esta finalidade.

Nesta técnica, após a revelação apropriada dos detectores estes são levados a um dispositivo no qual são

submetidos a uma descarga elétrica contínua de intensidade suficiente para romper os traços completamente, formando, portanto, um pequeno furo no detector. Isto é conseguido inserindo-se o filme entre duas folhas de Mylar aluminizado que é um plástico no qual foi depositado, por vaporização uma fina camada de alumínio. As folhas aluminizadas são conectadas aos pólos positivo e negativo de uma fonte de alta tensão que faz parte do sistema, e, então, uma descarga elétrica suficiente para romper o filme é aplicada. A tensão aplicada é determinada previamente e é adequada a determinado detector e varia dependendo da espessura do mesmo.

Apos esta primeira etapa, o filme será efetivamente contado. Para isto, o filme é recolocado entre duas novas folhas de Mylar e uma nova tensão é aplicada entre estas sendo que, agora um contador tipo "scaler" é acionado. As folhas de Mylar funcionam como se fossem placas de um capacitor, ou seja, uma das folhas ao ficar carregada se descarrega através dos furos existentes no detector. Durante esta descarga um pulso elétrico aciona o "scaler" registrando uma contagem. Com o aquecimento decorrente da descarga elétrica o alumínio do Mylar evapora impedindo que o furo seja contado duas vezes. Como cada furo só é contado uma vez temos no final do processo a contagem total de traços do detector. A ação do Mylar é fundamental neste processo visto que sem a evaporação do alumínio um único traço poderia ser contado duas ou mais vezes, pois com cada

recarregamento dos eletrodos ocorreria uma nova descarga elétrica e um novo pulso seria registrado pelo "scaler". O Mylar após sua utilização serve como uma réplica da distribuição dos traços no detector plástico.

Esta técnica foi bastante utilizada em dosimetria de nêutrons com dosímetros em que os traços eram obtidos a partir de conversores físséis (35). Estes dosímetros apesar de utilizados em alguns laboratórios têm o inconveniente de submeter o usuário a doses indesejáveis. O uso desta técnica se justifica pela facilidade, rapidez de contagem dos detectores e baixo custo do equipamento utilizado.

No caso deste trabalho para a detecção de nêutrons rápidos pelos traços de recuo dos átomos do material detector utilizamos detectores mais espessos, tais como o Makrofol-E (200-300  $\mu\text{m}$ ) e o CR-39 (500-1100  $\mu\text{m}$ ) esta técnica não pode ser utilizada.

#### **II.4.3. Sistema de contagem por analisador de imagem**

Com o surgimento do detector CR-39 que é um plástico transparente e no qual o tratamento químico ou eletroquímico fornece traços cujo contraste é bem acentuado em relação aos outros detectores foi possível o desenvolvimento de técnicas de leitura bem mais simples. Uma destas técnicas é a utilização de um analisador de imagem de vídeo.

O sistema de contagem utilizando um analisador de

imagem é composto por:

- uma câmara de vídeo acoplada a um microscópio óptico;
- uma unidade de tratamento da imagem que digitaliza esta imagem; e
- um microcomputador que analisa os dados obtidos discriminando os traços, contando-os e/ou medindo-os.

O princípio básico de funcionamento do sistema de leitura consiste em apresentar uma imagem, dada por intermédio do microscópio, a uma câmara de vídeo e analisar o sinal resultante para obter as informações quantitativas sobre o campo observado. A seleção das imagens é feita por discriminação entre diferentes níveis de cinza. apenas as formas que têm resposta acima de um determinado nível de cinza são selecionadas. Este sistema pode medir parâmetros tais como diâmetro e comprimento de traços ou simplesmente fazer a contagem dos traços.

#### **II.4.4. Outras técnicas de leitura automática**

As técnicas acima citadas são as mais utilizadas e difundidas atualmente, outras técnicas automáticas existem e podem ser utilizadas para diferentes objetivos. Estas técnicas utilizam detectores de traços nucleares bastante finos de modo que se possa perfurá-los por algum processo químico. Uma destas técnicas consiste em se utilizar um ataque químico do alumínio de folhas de Mylar. O filme é colocado justaposta ao Mylar e um reagente químico apropriado é espalhado sobre o filme detector. O reagente

químico atravessa os orifícios do detector e ataca a camada de alumínio deixando, assim, um ponto transparente que pode ser facilmente observado a olho nu (36).

Uma outra técnica é a utilização de soluções coloridas que são forçadas para o interior dos orifícios do detector. O excesso de solução é, então, retirado e a superfície na qual foi colocada a solução colorida é colocada em contato com um filtro branco, onde aparecem manchas coloridas devidas à precipitação da solução colorida. Estas manchas podem ser contadas facilmente (37). Uma outra variação desta técnica é a utilização de um equipamento chamado Ozalid que força a passagem de um gás de amônia através de orifícios dos detectores. Após sua passagem o gás de amônia é recolhido em um papel tornassol onde deixa manchas que também podem ser contadas com facilidade (38).

## CAPÍTULO III

### DETECÇÃO DE NÊUTRONS COM SSNTD's

#### III.1. Introdução

Os principais processos de interação de nêutrons de energia menor que 20 MeV com os elementos constituintes básicos do tecido humano são (39):

- a) espalhamento elástico;
- b) espalhamento inelástico;
- c) captura radioativa; e
- d) interações nucleares com produção de partículas carregadas.

#### a) Espalhamento elástico

Neste tipo de interação a energia cinética e a quantidade de movimento das partículas que interagem são conservadas. A energia do nêutron espalhado é distribuída entre o nêutron e o núcleo alvo. Entre os constituintes do tecido humano o elemento de maior importância para dosimetria é o hidrogenio visto que é o que existe em maior abundância no tecido humano. O hidrogênio embora represente apenas 10% em massa do tecido humano tem a secção de choque mais elevada para reações (n,p), sendo que neste tipo de interação os nêutrons podem perder até 100% de sua energia em uma única colisão com o átomo de

hidrogênio. Os prótons de recuo ficam com a maior parte da energia transferida pelo nêutron o que pode corresponder a 90% da dose absorvida pelo tecido humano(40). O espalhamento elástico com os átomos dos elementos C, N e O contribuem apenas com 10% da dose total absorvida na faixa de energia até 10 MeV(41).

#### **b) Espalhamento inelástico**

É o processo no qual um nêutron é capturado por um núcleo que em seguida reemite um nêutron com energia diferente daquela do nêutron que interagiu inicialmente. Este processo ocorre preferencialmente em materiais de número atômico alto, e após a colisão, o núcleo fica num estado excitado formando assim um núcleo composto que se desexcita por emissão de raio gama, geralmente de alta energia. Quando o núcleo é excitado para níveis mais energéticos que o primeiro nível excitado, a probabilidade de emissão de raios gama em cascata aumenta(42). Estas reações não são cineticamente possíveis se a energia do nêutron não for maior que o limiar energético necessário para a conservação do momento e energia.

Este processo tem sua maior importância para a deposição de doses em energias de nêutrons de cerca de 5 MeV a 10 MeV. Sendo que este processo não contribui significativamente para dose absorvida localmente pelo tecido humano.

### **c) A captura radioativa**

Neste processo o núcleo captura um nêutron de baixa energia emitindo em seguida um fóton. Este é o principal processo de deposição de energia para nêutrons na faixa de energia térmica e epitérmica. Entretanto, a reação de captura radioativa mais comum,  ${}^1\text{H}(n,\text{gama}){}^2\text{H}$ , que emite um fóton com energia de aproximadamente 2,2 MeV, não contribui significativamente para a deposição de energia no tecido humano visto que este fóton dificilmente será absorvido no local em que foi formado.

### **d) Interações nucleares com produção de partículas carregadas**

É o processo no qual partículas carregadas são emitidas pelo núcleo residual. Este processo é mais provável para núcleos leves interagindo com nêutrons rápidos ( $E_n > 5$  MeV). As seções de choque para este processo aumentam até cerca de 15 MeV.

Este é um processo importante para a deposição de energia porque apesar da maior parte destas reações serem acompanhadas de desexcitação por emissão de raios gama, os prótons e as partículas alfa produzidas têm uma importância especial devido ao alto LET (linear energy transfer) e a absorção total de suas energias ocorrem nas proximidades do local onde ocorreu a reação.

A reação mais importante neste tipo de interação é a  $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$  cujo núcleo composto se desexcita emitindo um raio gama de 0,58 MeV que é absorvido localmente.

### III.2. Classificação dos nêutrons por energia

De um modo geral, os nêutrons podem ser classificados em três grupos distintos em função da energia dos mesmos :

#### - Nêutrons lentos

são os nêutrons que possuem energia inferior a 1 keV. Sendo os nêutrons térmicos definidos como sendo aqueles que estão em equilíbrio térmico com o meio em que se encontram (energia da ordem de 0,025 eV).

A forma mais importante de interação destes nêutrons com a matéria é a captura radioativa, embora , haja casos em que temos altas secções de choque para reações com nêutrons térmicos com o lítio-6 (975 b) e o boro-10 (3836 b), que são casos típicos de interações nucleares com produção de partículas carregadas (41).

#### - Nêutrons intermediários

são nêutrons com energia na faixa de 1 keV a 500 keV. Nesta faixa de energia podem ocorrer ressonâncias nas secções de choque de interações nucleares com produção de partículas carregadas e os processos mais significativos de interação destes nêutrons com a matéria são a captura radioativa e o espalhamento inelástico.

## - Nêutrons rápidos

são nêutrons com energia superior a 500 keV. O processo de interação preferencial destes nêutrons com a matéria é o choque elástico, sendo que na faixa de energia superior a 10 MeV podem ocorrer fragmentações dos núcleos, pois, os nêutrons nesta faixa superam a energia de ligação dos nucleons.

### III.3. Fontes de Nêutrons Rápidos

As fontes de nêutrons utilizadas neste trabalho foram : Cf-252 e  $^{241}\text{AmBe}$ .

#### III.3.1. A fonte de $^{241}\text{AmBe}$

A reação que resulta na geração de nêutrons provenientes desta fonte e a seguinte (43):



onde a partícula alfa que bombardeia o átomo de  ${}^9\text{Be}$  para que haja a produção do átomo de C-12 e o nêutron é obtida de uma fonte de Am-241, que é um emissor alfa espontâneo de meia vida de 458 anos. Esta fonte é obtida pela compactação do radioisótopo Am-241 com o Be-9.

A reação  ${}^9\text{Be}(n,\text{alfa})$  tem um rendimento de um nêutron para cada 10.000 alfas emitidas pelo Am-241. O espectro obtido com esta fonte é contínuo como mostra a figura III.1. Este espectro é o resultado da combinação dos

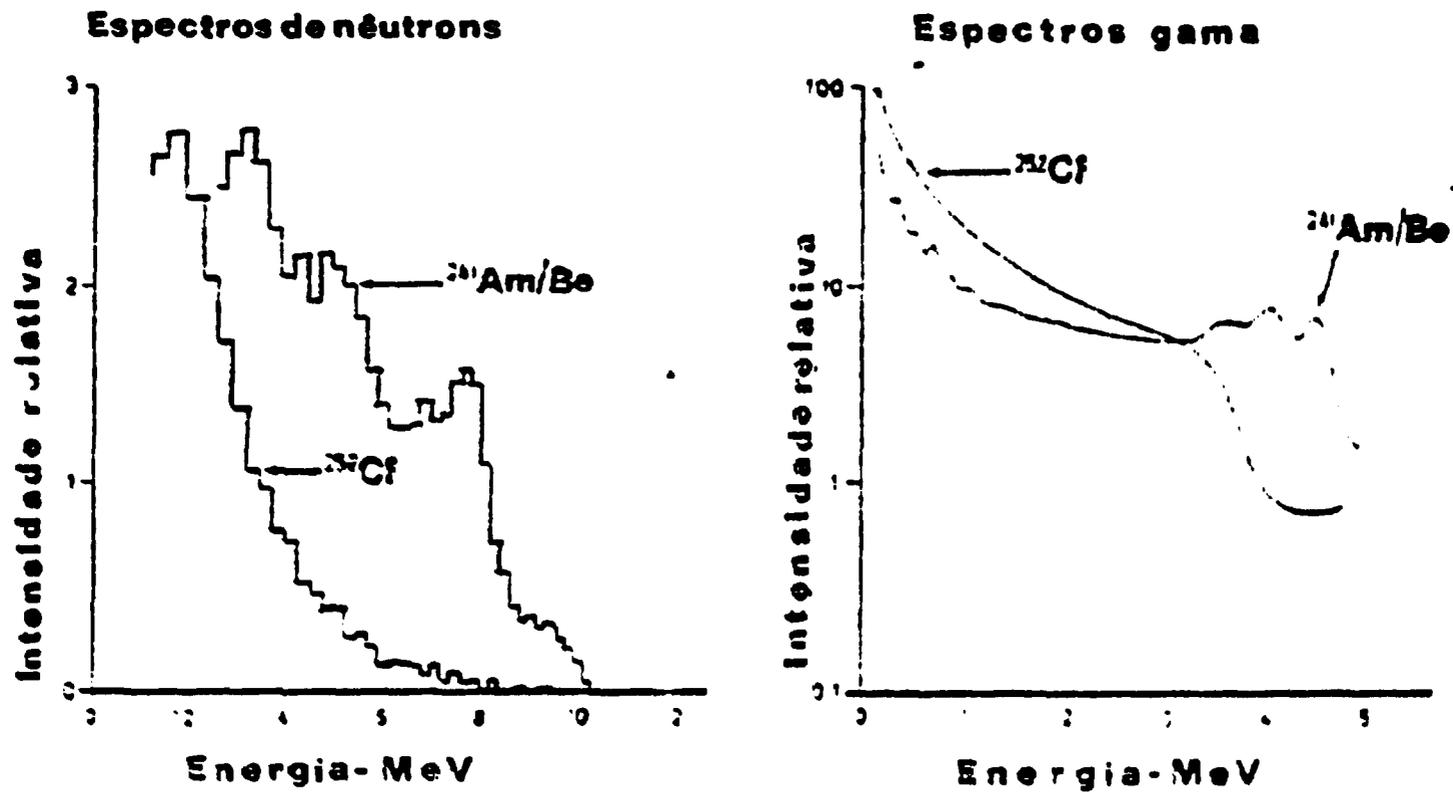


Figura III.1: Espectros de neutrons e gama emitidos pelas fontes de Cf-252 e AmBe (10%).

seguintes fatores :

1.a contínua perda de energia da partícula alfa na sua interação com o meio em que se encontra.

2.para cada energia da partícula alfa, são possíveis diferentes energias de nêutrons devido às diferentes direções de emissão possíveis;

3.o fato do núcleo produto , C-12, poder ser deixado em um estado excitado podendo se desexcitar por emissão de nêutrons de outras energias diferentes de 5,71 MeV, que é a energia do nêutron quando o núcleo do C-12 é deixado em repouso após a interação com a partícula alfa; e

4.a existência de um número significativo de nêutrons com energia menor que 1 MeV, que resultam nas seguintes reações, que ocorrem juntamente com a reação (1) (44):



As fontes de  ${}^{210}\text{AmBe}$  são bastante utilizadas por terem características atraentes para diferentes aplicações, por exemplo, serem de pequenas dimensões, terem alta atividade específica do emissor alfa , baixa taxa de emissão de raios gama (45,46), espectro de energia de nêutrons emitidos reprodutível para diferentes fontes, meia vida longa e boa estabilidade mecânica.

A atividade da fonte utilizada é de 5 Ci e a energia média do espectro de nêutrons é de 4,3 MeV (43).

### **III.3.2. A fonte de Califórnio-252**

A fonte de califórnio-252 utilizada foi produzida pela E.I. du Pont de Nemours Company - Atomic Energy Division Savannah River Laboratory, é duplamente encapsulada em aço inox, tendo externamente forma cilíndrica com as seguintes dimensões: 9,6cm de altura e 3,05 cm de diâmetro. Na parte superior da fonte há uma haste de 7,0 cm de altura, terminado em uma argola de 1,28cm de diâmetro externo. A atividade nominal desta fonte em junho de 1983, era de 11,2 mCi, com uma massa de 21,1 mg de Cf-252 tendo uma taxa teórica de emissão de  $4,85 \times 10$  nêutrons por segundo.

Os nêutrons emitidos pela fonte de califórnio são provenientes da fissão espontânea do califórnio-252, sendo emitidos  $(3,733 + 0,0082)$  nêutrons por fissão (50) tendo o espectro de energia média de 2,1 MeV(43). O espectro de energia dos nêutrons emitidos por esta fonte é mostrado na figura III.2.

### **III.4. Principais reacões utilizadas para a detecção de nêutrons com Detectores Sólidos de Traços Nucleares orgânicos.**

Devido ao fato dos nêutrons serem partículas não carregadas eles não produzem traços latentes nos SSNTD's. Métodos de detecção destas partículas, entretanto, podem ser desenvolvidos utilizando-se reacões nucleares. Estas reacões podem ocorrer no interior do próprio detector ou

em materiais que são colocados adjacentes aos detectores, que são denominados de conversores. Os produtos das reações vão produzir danos reveláveis, nos detectores de traços.

#### III.4.1.A detecção de nêutrons utilizando a reação (n,f)

A reação de fissão induzida por nêutrons é interessante para a detecção de nêutrons porque um só átomo produz uma grande quantidade de energia (cerca de 200 MeV) que não depende muito da energia do nêutron incidente (47); a maior parte da energia produzida numa fissão é dividida entre os dois fragmentos da fissão, que são facilmente detectáveis em detectores de traços nucleares orgânicos. Os fragmentos da fissão, para a maior parte dos isótopos físséis, e nêutrons de energia menor que 7 MeV, são distribuídos mais ou menos isotropicamente no que diz respeito à direção de incidência do nêutron(48,49); a independência energética da resposta de diferentes métodos de detecção dos fragmentos de fissão é insensível à variações, do método de tratamento dos detectores e da leitura utilizada.

Todos os materiais que são utilizados para fissão por nêutrons, na faixa de 0 a 20 MeV, que é a que mais interessa à dosimetria de nêutrons, são também radioativos e de custo elevado, o que torna o uso destes conversores em dosimetria pessoal não muito atraente.

Na escolha do elemento radioativo a ser utilizado como conversor físsil deve ser levado em conta a taxa de fissão

espontânea, a atividade alfa, beta e gama, a toxicidade do elemento, o custo, a pureza requerida e a correspondência entre a secção de choque para a reação (n,f) e a resposta que se deseja obter. Essas exigências limitam a escolha dos conversores físséis para dosimetria de nêutrons rápidos ao Np-237 e o Th-232 e para nêutrons térmicos ao U-235.

Os conversores físséis mais interessantes são aqueles destinados a detecção de nêutrons rápidos. O Th-232 não tem praticamente resposta para nêutrons abaixo de 1MeV (51), o Np-237 tem uma resposta média para nêutrons de energias intermediárias e térmicas (52), entretanto, o Np-237 tem uma atividade específica muito mais elevada que o Th-232, e mesmo quando utilizado numa quantidade da ordem de 1 mg em um dosímetro, ele necessita de algum tipo de proteção no suporte (53).

Devido à atividade alfa dos materiais físséis, a escolha dos detectores sólidos de traços é limitado aos materiais insensíveis a fluxos elevados de partículas alfa.

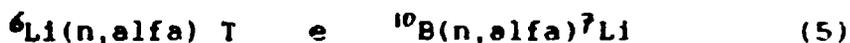
A despeito dos problemas ligados aos materiais radioativos como conversores físséis estes são utilizados em algumas instalações nucleares(54-56).

#### **III.4.2. Detecção de nêutrons térmicos utilizando a reação (n,alfa)**

A utilização de detectores sensíveis à partícula alfa em dosimetria neutrônica tem a vantagem de os conversores

alfa utilizados não serem radioativos, entretanto, o alcance das partículas alfa das reações normalmente utilizadas é pequeno (da ordem de  $7 \mu\text{m}$ ), o que torna a revelação e observação dos tracos formados nos SSNTD's não muito fácil.

Duas reações são mais utilizadas para a detecção de nêutrons térmicos:



O isótopo Li-6 é mais utilizado na forma de  ${}^6\text{LiF}$  (material termoluminescente). O boro é mais utilizado na forma de carbeto de boro, tetraborato de lítio ou nitrato de boro e às vezes na forma de uma fina camada de boro natural sobre o detector (por evaporação).

As partículas alfas provenientes das reações acima têm percursos e energias relativamente pequenos nos detectores plásticos (cerca de  $7 \mu\text{m}$ ).

No caso da reação que ocorre com o Li-6 o outro produto da reação, o trítio, é emitido com energia de aproximadamente 2,74 MeV e com sentido oposto ao da emissão da partícula alfa, sendo seu alcance no conversor de aproximadamente  $20 \mu\text{m}$  e nos plásticos de aproximadamente  $40 \mu\text{m}$ .

Na reação com boro o Li-7 é emitido com energia de 0,9 MeV e o seu percurso no boro natural é de

aproximadamente  $3\mu\text{m}$ . Esta partícula é menos detectável que o trítio da reação do  $\text{Li-6}$  que pode ser facilmente detectado com um detector sensível a prótons (57,58).

Devido às secções de choque para as reações com lítio e boro serem relativamente elevadas, 975 b e 3836 b, respectivamente, a contribuição devida a traços provenientes dos prótons da reação  $^{14}\text{N} (n,p) ^{14}\text{C}$ , cuja secção de choque é 1,7 b (59), que poderiam interferir em detectores de nitrato de celulose, é insignificante.

### III.4.3. Detecção de nêutrons rápidos utilizando as reações (n,alfa) e recuo dos núcleos C,O e N.

Neste tipo de detecção a fonte de partículas carregadas que irão impressionar o detector plástico poderá ser o próprio detector assim como um conversor externo. Se o próprio detector serve como conversor dizemos que a geometria utilizada é  $4\pi$ , e este deve ter uma espessura maior que o percurso das partículas de recuo. Os traços latentes, neste caso, são distribuídos de modo homogêneo ao longo de todo o volume do detector irradiado. Neste caso, quanto mais revelamos mais traços obteremos por  $\text{cm}^2$  de detector até atingirmos um ponto a partir do qual o número de traços novos que aparecem no detector é igual ao número de traços que desaparecem.

Se o conversor é constituído por um material diferente do detector a geometria é dita  $2\pi$  e o aumento da densidade de traços em função do tempo de revelação depende

da composição química do conversor e da sua espessura.

O caso mais comum é a combinação das duas contribuições de modo que se possa obter o máximo de traços possíveis. As duas situações descritas acima se aplicam a detectores espessos, ou seja, em que o alcance da partícula ionizante é muito menor que a espessura do detector.

As reações (n,alfa) com os constituintes básicos dos detectores orgânicos, com excessão do hidrogênio, são todas endoenergéticas com limiares para nêutrons de alguns MeV's e secções de choque entre 200 e 400 mbarns, enquanto que as secções de choque para colisões elásticas é da ordem de 2 a 4 barns (60). Da conservação da energia e da quantidade de movimento demonstra-se que as energias das partículas alfa são muito baixas e que o máximo de energia transferida nas colisões elásticas com os átomos de C, O e N é uma pequena fração da energia do nêutron incidente.

Devido aos alcances das partículas carregadas serem pequenos neste tipo de interação, os traços latentes produzidos estão no limite de revelação, o que dificulta a sua observação. Levando em conta este fato e o de que os limiares das reações com recuo dos núcleos e (n,alfa) serem elevados (1-2 MeV) verifica-se que estas reações não são muito eficientes quando se deseja <sup>utilizá-las</sup> para a detecção de nêutrons com detectores de traços orgânicos.

#### III.4.4. A detecção de nêutrons utilizando a reação (n,p)

A detecção de nêutrons rápidos pelas reações (n,p) é limitada aos detectores de traços orgânicos sensíveis a prótons. Os detectores que registram prótons produzidos pelas reações (n,p), registram, necessariamente o recuo dos núcleos de hidrogênio, sendo portanto, impossível se distinguir os prótons provenientes de reações (n,p) originárias de reações com C, N e O ou provenientes de reações com o hidrogênio. As reações com o carbono, o nitrogênio e o oxigênio são todas endoenergéticas possuindo limiares de diferentes valores para a reação com nêutrons e secções de choque de até no máximo 100 mb. A maior contribuição ao número total de traços de prótons no detector provém dos prótons de recuo que possuem secções de choque da ordem de alguns barns (61,62).

Embora a contribuição predominante, para a resposta de um detector de nêutrons rápidos, seja devida aos prótons de recuo não se deve negligenciar a contribuição das reações (n,p) e dos núcleos de recuo porque eles reforçam a resposta em altas energias.

O registro dos prótons de recuo nos detectores de traços nucleares no estado sólido orgânicos é o melhor meio para se obter um bom dosímetro de nêutrons rápidos visto que:

-a secção de choque para colisão (n,p) é, relativamente, elevada e sua dependência com a energia é razoavelmente

baixa;

-a eficácia da transferência de energia dos nêutrons às partículas de recuo é bastante elevada para os prótons; e

-os percursos dos prótons de recuo são maiores que os das partículas alfa e dos núcleos de recuo.

### **III.5. Os SSNTD's mais utilizados para a detecção de nêutrons**

#### **III.5.1 Os policarbonatos**

O policarbonato foi um dos primeiros materiais orgânicos utilizados em detecção de nêutrons devido às suas propriedades ópticas adequadas, ele é disponível em uma grande faixa de espessuras (desde 2  $\mu\text{m}$  a alguns mm).

Os policarbonatos registram, em geral, os traços de partículas carregadas pesadas, ou seja, massa superior ou igual a 4 u.m.a. (63), embora se deva notar que o tipo de partícula a ser registrada depende além do plástico detector, também do tipo de reagente químico que é utilizado na revelação do detector, por exemplo, o Makrofol-E é insensível a partículas alfa quando tratado com soluções alcalinas, mas se ele for tratado com solução alcalina na qual foi adicionada etanol, os traços produzidos pelas partículas alfa são revelados podendo ser separados dos fragmentos de fissão com facilidade (64).

As primeiras utilizações dos policarbonatos na detecção de nêutrons foram com conversores físséis, pois,

estes detectores são ótimos para a detecção de fragmentos de fissão. Os detectores utilizados foram de espessura menor que 10  $\mu\text{m}$  o que viabilizava a sua contagem por câmaras de descarga (65,66).

Para evitar a utilização de conversores físeis, durante a década de setenta, foram investigados policarbonatos com conversores alfa, estes, entretanto, não conseguiram bons resultados porque os filmes utilizados para a detecção de partículas alfa têm espessuras tais que inviabilizam a utilização de câmaras de descarga para a contagem destes filmes (67), que era na época o método mais adequado para dosimetria.

As folhas de policarbonatos de maior espessura (100-300  $\mu\text{m}$ ) são apropriados para o ataque eletroquímico, permitindo, devido ao aumento bem maior dos traços, a utilização de outros sistemas de contagem que não as câmaras de descargas elétricas(68).

Os policarbonatos não apresentam uma resposta muito boa para nêutrons rápidos e possuem um limiar de detecção muito elevado(68), de 1 a 2 MeV, entretanto, podem ser utilizados como detectores de nêutrons para dosímetros de acidente.

### **III.5.2 Os derivados celulósicos**

#### **III.5.2.1 Os nitratos de celulose**

Os nitratos de celulose mais utilizados são

comercialmente conhecidos pelos nomes : CN-85 e LR-115(I e II). Estes são fabricados pela Kodak-Pathé (França) especialmente para a sua utilização como detectores de traços nucleares no estado sólido.

Os nitratos de celulose têm na sua constituição o elemento nitrogênio além do carbono, hidrogênio e oxigênio, como é o caso dos policarbonatos.

O CN-85 é um detector espesso, tem 100 microns de espessura, sendo possível, portanto, a revelação química e a revelação eletroquímica destes detectores. A utilização destes detectores na detecção de nêutrons não se mostrou muito atraente, devido à baixa sensibilidade destes a nêutrons rápidos (68). A sua utilização para a detecção de nêutrons térmicos, entretanto, se mostra interessante, visto que estes detectores são bons registradores de partículas alfa, sendo, então, fácil a sua utilização com conversores alfa (depósitos de lítio e boro colocados adjacentes aos detectores) (69).

Os dois tipos de detectores LR-115 são constituídos de uma fina camada de nitrato de celulose depositada sobre uma base de poliéster de 100 microns de espessura. O nitrato de celulose é colorido o que facilita a contagem dos traços quando esta é realizada em microscópio. O LR-115 tipo I tem uma camada sensível de 6  $\mu\text{m}$  sobre a base de poliéster, não é peliculável, isto é, a camada sensível e a base de poliéster não podem ser separadas. O LR-115 tipo II

tem uma camada sensível de 12 microns e é encontrado peliculável, ou não. O peliculável permite a contagem dos traços em câmaras de descarga.

Como o CN-85 e o LR-115 não são utilizados para a detecção de nêutrons rápidos contudo é possível a detecção de nêutrons térmicos utilizando conversores alfa.

Todos os nitratos de celulose são sensíveis a partículas alfa. Os limiares de detecção dependem do material utilizado, do tipo de revelação utilizada e da forma de leitura. A possibilidade de utilização destes detectores para a detecção de prótons de baixa energia foi investigada por Hildbrard e Benton (70), Besant (71), Spurny(72) e mais recentemente por Mediani e Bordy(73), a resposta obtida por estes não foi, entretanto, satisfatória. As condições ótimas de revelação destes detectores não são bem estabelecidas na literatura; um dos trabalhos mais completos a este respeito de Andrade e Khouri (74). As condições de revelação destes detectores não são apenas afetadas pelo tipo de reagente químico utilizado, sua concentração na solução de revelação e a temperatura da mesma, mas dependem, também, da agitação mecânica da solução das interrupções durante o processo de revelação, da qualidade dos produtos formados durante a revelação e que estão dissolvidos na mesma. Os nitratos de celulose dependem de um rigoroso tratamento das condições de revelação (75).

O limiar de detecção para nêutrons destes detectores é relativamente elevado, cerca de 2 MeV (68) além de terem uma forte dependência de sua resposta com a energia das partículas incidentes sobre eles o que os tornam não muito apropriadas para a dosimetria neutrônica.

#### **III.5.2.2 Os acetatos, triacetatos e acetobutiratos de celulose**

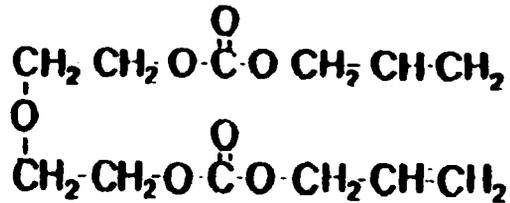
Estes materiais não apresentam boas características para a utilização como detectores de traços, pois suas respostas são bem inferiores que às dos nitratos de celulose além de não servirem para revelação eletroquímica (76,77). Estes detectores não apresentam nenhuma vantagem em relação aos nitratos de celulose para a detecção de nêutrons.

#### **III.5.3 O carbonato diglicol alílico**

O carbonato diglicol alílico, comercialmente conhecido como CR-39 (Columbia Resin) é o mais recente dos detectores sólidos de traços nucleares. Suas propriedades como detector de partículas ionizantes foram primeiro observadas por Cartwright e all. em 1978. Este material é transparente, mesmo após uma revelação química prolongada, completamente amorfo e altamente sensível aos danos causados por radiações ionizantes.

Ao contrário dos outros detectores termoplásticos, o CR-39 é um plástico termorrígido. Ele é obtido a partir do

éster do ácido carbônico, o carbonato diglicol alílico, tendo a seguinte estrutura molecular :



A presença de dois agrupamentos funcionais CH<sub>2</sub>-CH-CH<sub>2</sub> permite ao monômero ser polimerizado obtendo uma estrutura bastante reticular o que confere a este material a característica de ser termorrígido.

As moléculas deste detector são distribuídas de tal forma que este funciona como sendo uma única molécula grande, isto faz com que ao incidir sobre o mesmo algum tipo de radiação esta danifique permanentemente o material sem que haja recombinação das moléculas danificadas. Este fato justifica a alta sensibilidade destes detectores e o baixo limiar de detecção dos mesmos.

O CR-39 é comercializado por vários fabricantes sendo os mais conhecidos a American Acrylics Inc.-USA e a Pershore Mouldings Ltd.-UK. Este plástico é utilizado na indústria óptica e está disponível no mercado sob forma de folhas de diferentes espessuras (170 microns a 2 mm). Este detector pode ser utilizado para ataque eletroquímico e diversos trabalhos demonstram a sua alta sensibilidade a partículas ionizantes (68,78,79) e particularmente a prótons de uma larga faixa de energias (80,81).

Durante a década de 80 inúmeros trabalhos foram realizados tentando viabilizar a utilização destes detectores para a dosimetria (82-85).

Estes detectores já são bastante utilizados, em dosimetria neutrônica (86-88), em geral, utilizando-se métodos que diminuem a dependência energética da resposta dos mesmos, o que é obtido inclusive utilizando-se dosímetros com geometrias cilíndricas (89), semi-esféricas (90), além do uso de diversos radiadores (91) Embora uma solução definitiva para este problema ainda não tenha sido alcançada, avanços têm sido obtidos que indicam estes detectores como um dos mais promissores para a dosimetria, isto porque :

- comparados com os outros detectores mais utilizados ( a emulsão fotográfica, TLD, conversores físséis ) eles apresentam uma maior simplicidade de manipulação e de tratamento de dados , além de poderem ser guardados;

- são bons para a detecção de nêutrons rápidos, sendo praticamente insensíveis a fótons e elétrons, mesmo a doses relativamente altas (MGy), podendo, portanto, serem utilizados em lugares em que se tem espectros mistos;

-são precisos, sensíveis e reprodutíveis;

-são de custo, relativamente, baixo;

-podem ser utilizados em pequenas dimensões e são leves;

-podem ser utilizados para a detecção de nêutrons térmicos e lentos (com conversores), assim como , para nêutrons rápidos, cobrindo , portanto , uma grande faixa de energia dos nêutrons.

## CAPÍTULO IV

### PARTE EXPERIMENTAL E RESULTADOS

#### IV.1. Introdução

Neste trabalho optamos pelo ataque eletroquímico como método de revelação e objetivamos o estudo dos detectores de traços nucleares no estado sólido na detecção de nêutrons rápidos ( $E > 500$  keV). Para atingir este objetivo realizamos um estudo do ataque eletroquímico para os detectores CR-39 e Makrofol-E. Este tipo de ataque de acordo com a literatura existente sobre o assunto, tem se mostrado o mais adequado para a detecção de nêutrons rápidos, pois, permite que os traços sejam ampliados até dimensões que permitem a análise dos traços obtidos em sistemas automáticos. Utilizando este método de revelação pode-se trabalhar com baixas densidades de traços, além de o background com esta técnica ser baixo.

Neste tipo de ataque as variáveis que podem alterar a resposta dos detectores são:

- o campo elétrico alternado aplicado ao detector plástico;
- a frequência do campo elétrico;
- a solução reveladora utilizada;
- a temperatura em que a revelação é realizada;
- e, finalmente, a realização ou não de pré ataque químico ou eletroquímico.

Neste capítulo apresentaremos os processos utilizados para a determinação de cada um dos parâmetros mencionados acima, a verificação da linearidade da resposta, dos detectores estudados com a fluência de nêutrons incidentes, determinação dos limites inferior e superior de detectabilidade, e a determinação da sensibilidade dos detectores plásticos Makrofol-E e CR-39 de diferentes origens para nêutrons rápidos e a reprodutibilidade do método.

#### **IV.2. Os detectores**

Utilizamos neste estudo dois tipos de plásticos detectores de traços nucleares: um policarbonato denominado comercialmente de Makrofol-E e o carbonato diglicol alílico (CR-39) de três diferentes procedências.

Algumas propriedades destes dois tipos de detectores plásticos são mostradas na tabela IV.1. Verificamos nesta tabela que devido às diferenças estruturais destes dois detectores, é de se esperar que estes necessitem de condições de revelação e análise de dados bastante diferentes.

##### **V.2.1. Makrofol-E**

O policarbonato Makrofol-E fabricado pela Bayer tem uma espessura média de 200  $\mu$ m. É um plástico opaco e cuja face sensível é lisa enquanto que a não sensível é rugosa. Este plástico é utilizado comercialmente para a fabricação

CARACTERÍSTICA	CR-39	MAKROFOL-E
ÓPTICA	TRANSPARENTE	TRANLÚCIDO
ESTRUTURA	AMORFA	AMORFA
TÉRMICA	TERMOPLÁSTICO	TERMORÍGIDO
CADEIA	TRIDIMENSIONAL (cross-linked)	TRIDIMENSIONAL (não cross-linked)
DENSIDADE (g/cm <sup>3</sup> )	1,31	1,29
COMPOSIÇÃO QUÍMICA	C <sub>12</sub> H <sub>18</sub> O <sub>7</sub>	C <sub>16</sub> H <sub>14</sub> O <sub>3</sub>
POTENCIAL DE IONIZAÇÃO (eV)	70,2	69,5

TABELA IV.1: Algumas características dos detectores carbonato diglicol alílico (CR-39) e o Makrofol-E.

de isolantes elétricos.

Para a realização das irradiações, estes detectores foram cortados nas dimensões de 3,5 cm por 3,5 cm. A escolha destas dimensões foi devida à área disponível para ataque da câmara de ataque eletroquímico.

Após terem sido cortados os detectores, a espessura de cada um foi medida. Verificamos haver variações de espessura entre as amostras. uma serie de 152 detectores foram medidos e o histograma com as variações de espessuras é mostrado na figura IV.1. Escolhemos, então detectores que possuíssem espessuras aproximadas para serem utilizados. A variação máxima da espessura adotada por nós afim de minimizar as alterações causadas pela espessura no campo elétrico aplicado ao detector é ( $\pm 1 \mu\text{m}$ ). Este valor acarreta um erro no campo elétrico alternado aplicado ao detector menor que 0,5 %.

Em seguida os detectores escolhidos para utilização foram embrulhados em papel alumínio para evitar assim, danos de manuseio dos mesmos o que acarretaria aumento do background.

#### **IV.2.2. CR-39**

A tabela IV.2 identifica os cinco diferentes detectores do tipo CR-39 utilizados neste estudo. Nesta tabela identificamos os diferentes fabricantes, as diferentes espessuras utilizadas e a data de recebimento

<b>SIGLA DE IDENTIFICAÇÃO ADOTADA NESTE TRABALHO</b>	<b>FABRICANTE</b>	<b>ESPESSURA (<math>\mu</math>m)</b>	<b>DATA DE RECEBIMENTO DO LOTE</b>
<b>CR-39 P</b>	<b>PERSHORE MOULDINGS (UK)</b>	<b>500</b>	<b>1986</b>
<b>CR-39 AA</b>	<b>AMERICAN ACRYLICS (USA)</b>	<b>496</b>	<b>1982</b>
		<b>700</b>	<b>1983</b>
		<b>1090</b>	<b>1982</b>
<b>CR-39 M</b>	<b>MOM-ATOMKI (HUNGRIA)</b>	<b>1000</b>	<b>1988</b>
<b>MAKROFOL-E</b>	<b>BAYER</b>	<b>200</b>	<b>1984</b>

**TABELA IV.2:** Os diferentes tipos de detectores utilizados neste trabalho - Algumas especificações.

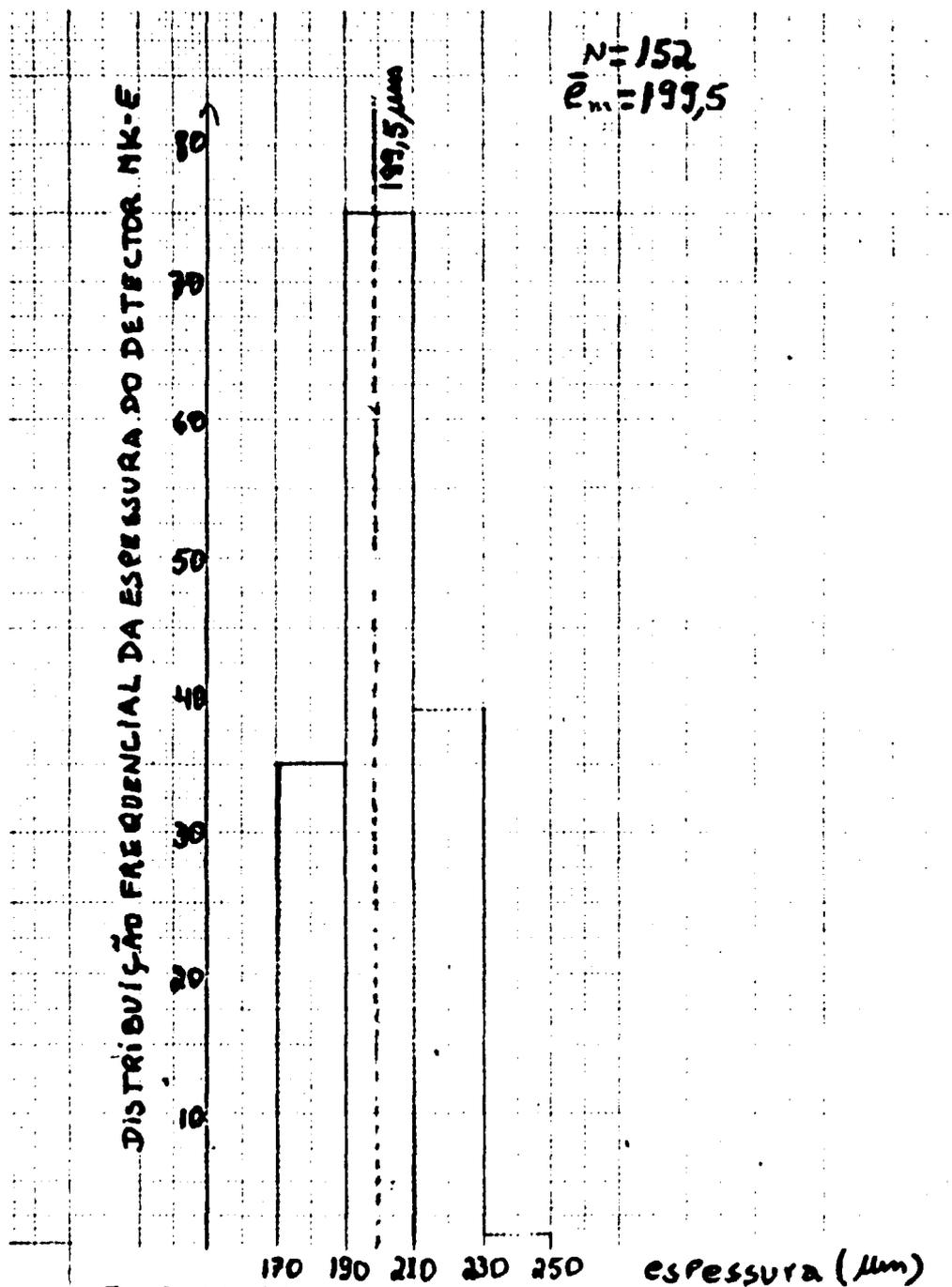


Figura IV.1: Distribuição frequencial da espessura média do detector Makrofol-E.

dos respectivos lotes.

Os detectores CR-39 exigem cuidados especiais durante o corte devido ao fato dos mesmos serem rígidos e, portanto, bastante quebradiços. Para evitar danos indesejáveis e perda de material detector durante o corte, estes são cortados a laser em alguns laboratórios (92,93), método que não foi possível empregarmos durante a realização deste estudo mas que deve ser utilizado em estudos futuros com este detector.

Estes detectores foram preparados para irradiação do mesmo modo que o Makrofol-E, sendo que no caso destes detectores não foi necessário o cuidado que tomamos com a espessura do Makrofol-E, visto que estes têm espessuras que não variam significativamente para um mesmo lote.

Os detectores CR-39 produzidos pela American Acrylics S/A vêm de fábrica revestidos com uma película protetora de polietileno de 50  $\mu\text{m}$  de espessura. Estes detectores foram irradiados com estas películas.

O detector fabricado pela MOM ATOMKI (Hungria) foi desenvolvido especificamente para ser utilizado na detecção de partículas alfa ou prótons de recuo, por isso são preparados com aditivos especiais durante sua fabricação. No caso dos detectores sensíveis a partículas de recuo, que utilizamos, os aditivos são: iniciador IPP e dopante dioctyl phthalate(DOP).

### IV.3. Irradiações

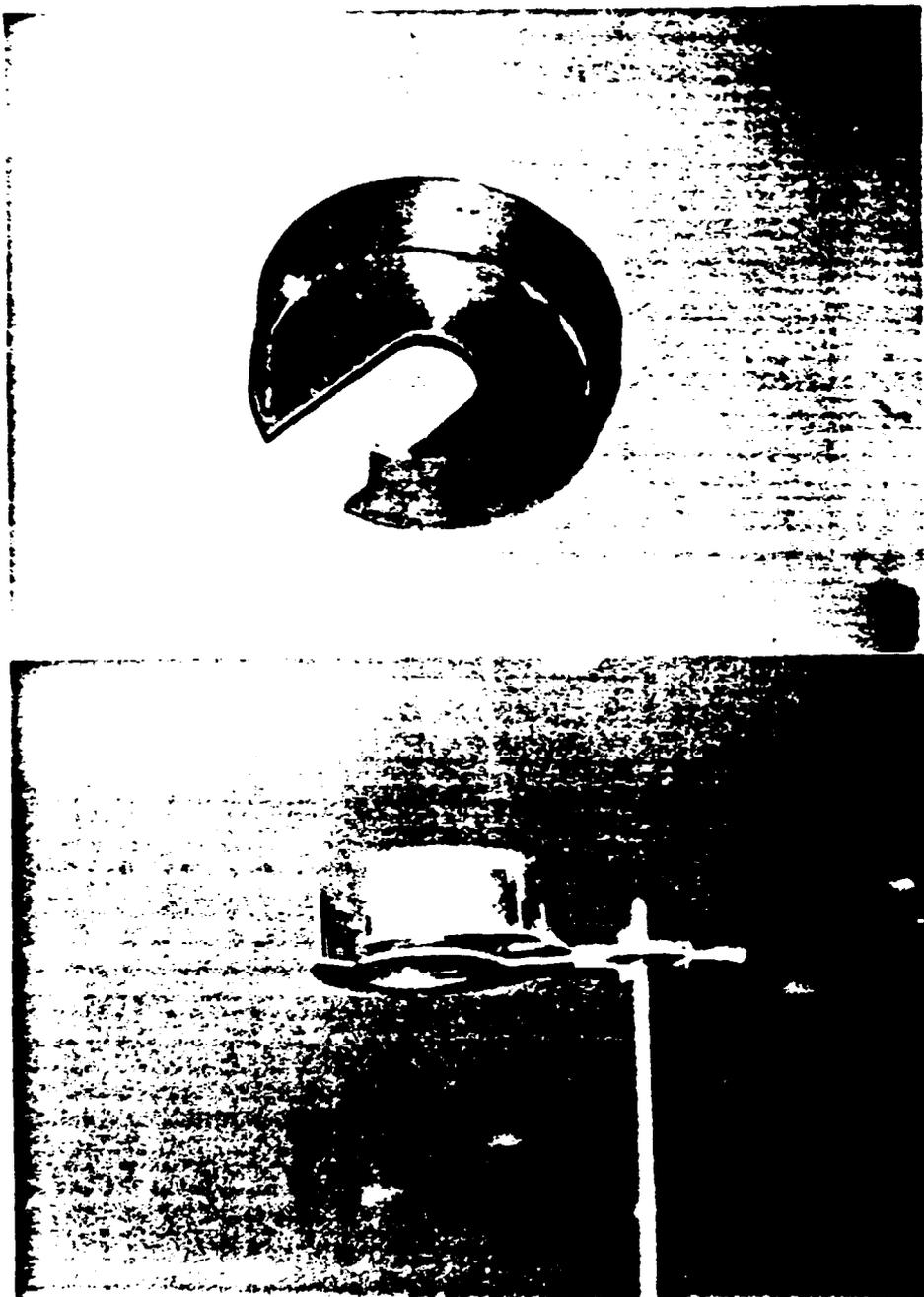
As irradiações dos detectores foram realizadas no ar, no salão próprio para irradiações com nêutrons do Instituto de Física da Universidade de São Paulo setor de Dosimetria. Esta sala foi desenvolvida para se obter o mínimo de espalhamento possível. As dimensões do salão, portanto, são bastante importantes, uma vez que podemos ter espalhamento devido às paredes, ao chão e a outros objetos que possam existir no interior da sala. As dimensões da sala de irradiações são 14 m x 20 m x 4 m.

Os detectores foram colados em um aro de alumínio de 12 cm de diâmetro e 2 mm de espessura, o qual foi fixado a um suporte de 2 m de altura, posicionado no centro da sala de irradiação. As fontes de nêutrons foram marcadas para serem colocadas sempre na mesma posição e eram colocadas no centro do aro de alumínio utilizado para irradiação. O aro e o arranjo utilizado para irradiação são mostrados nas figuras IV.2.a e IV.2.b.

As fontes de nêutrons utilizadas foram de dois tipos:  $^{241}\text{AmBe}$  e Cf-252.

A fonte de  $^{241}\text{AmBe}$  tem meia-vida igual à meia vida do Am-241, de 345 anos, e atividade igual a 5 Ci. Esta fonte apresenta um espectro contínuo com energia média de 4,3 MeV.

A fonte de Cf-252 tem meia vida de 2,3 anos e



**Figura IV.2:** Equipamento utilizado para irradiação dos detectores. Na parte superior da figura é mostrado o aro no qual os detectores são colados e na parte inferior a montagem utilizada. A fonte radioativa é colocada na posição central do aro.

apresenta um espectro de nêutrons de fissão com energia média de 2,1 MeV.

A isotropia de emissão das fontes foi verificada e obtivemos uma variação no plano de irradiação de 16,6% para a fonte de  $^{241}\text{AmBe}$  e de 10% para a fonte de Cf-252. Este resultado nos levou a irradiarmos os detectores sempre em uma única posição em relação à fonte, para evitarmos erros devidos a este fator de anisotropia.

#### IV.4. Revelação dos detectores

O passo seguinte no nosso estudo foi a determinação das condições apropriadas de revelação dos detectores. Para que pudéssemos comparar os dados obtidos para os diferentes detectores CR-39, um único processo de revelação foi empregado para todos os diferentes tipos de CR-39. Condições diferentes, entretanto, foram determinadas para o policarbonato Makrofol-E.

Na determinação das condições ótimas de revelação de um detector os seguintes fatores devem ser levados em consideração:

- o tempo de revelação deve ser não muito longo de modo que obtenhamos a maior sensibilidade possível num menor intervalo de tempo possível.
- as condições de revelação devem, se possível, permitir que a leitura dos detectores seja rápida e menos cansativa;
- os parâmetros frequência e campo aplicado devem

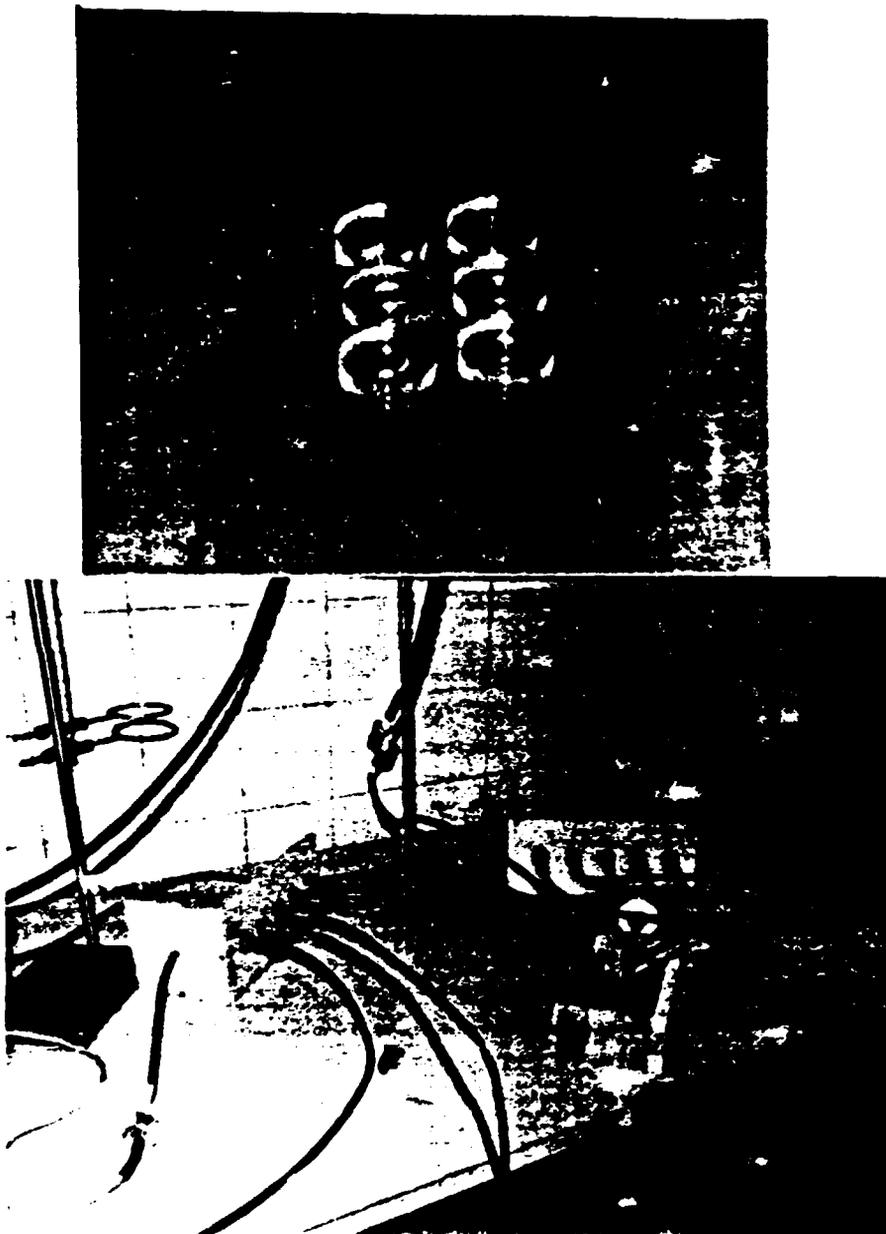
ser ajustados de modo que viabilizem a utilização do equipamento disponível.

#### **IV.4.1. A câmara de ataque eletroquímico**

A câmara de ataque eletroquímico desenvolvida para realização deste trabalho é mostrada na figura IV.3. A câmara é composta por três células básicas, as quais estão identificadas por A, B e C na figura. Para a revelação de dois detectores utilizamos as três células da seguinte maneira:

- o lado dos detectores que sofrerão ataque eletroquímico devem ser identificados;
- um dos detectores é colocado entre as células A e B e o outro entre as células B e C, sendo que ambos devem ter o lado que será revelado voltado para a célula B;
- o sistema é, então, fechado e preso em uma morsa;
- a solução reveladora é inserida na célula B por um dos orifícios existentes nas células utilizando-se uma seringa hospitalar;
- nas outras duas células inserimos solução condutora, por exemplo, solução de NaCl;
- o eletrodo positivo é inserido na célula que contém a solução reveladora (célula B), e os eletrodos negativos são inseridos nas células com solução condutora (A e C).

Esta câmara tem fornecido resultados bastante



**Figura IV.3:** Câmara de ataque eletroquímico utilizado neste trabalho. Na parte superior da figura temos as três células básicas que compõem o sistema e na parte inferior a câmara montada, em utilização.

reprodutivos, sendo que a sua utilização permite que muitos filmes sejam revelados simultaneamente, o que é desejável, principalmente, no caso de utilização desta técnica em dosimetria. Para a revelação simultânea de muitos detectores temos apenas que acrescentar ao sistema o número desejado de células do tipo B. Nos nossos testes chegamos a revelar simultaneamente até 21 detectores nas mesmas condições e não verificamos alteração significativa entre os detectores revelados que pudesse ser atribuída à câmara utilizada.

Outra vantagem da utilização desta câmara consiste no fato de que as células formam sistemas independentes de revelação, o que possibilita a inutilização de uma célula em caso de ruptura de um detector durante a revelação, sem que haja alteração no processo de revelação dos detectores restantes.

#### **IV.4.2. A fonte de tensão utilizada**

Para a realização do ataque eletroquímico é necessário a utilização de uma fonte de tensão alternada que permita a variação da frequência e da tensão aplicada ao detector.

A fonte de tensão utilizada é da marca 3E modelo PW0-510 de fabricação italiana. Esta fonte possui as seguintes especificações:

- tensão alternada ajustável na faixa de 0 a 5 kV ;
- frequência ajustável entre 1 e 10 kHz;

- miliamperímetro para acompanhamento da variação de corrente entre os elétrodos;
- alarme automático que dispara em caso de aumento brusco da corrente; e
- timer para controle do tempo de revelação.

Os pólos positivos e negativos da fonte de tensão são conectados a um dispositivo ramificador em paralelo, que permite o uso de diversos pólos positivos e negativos aos quais são conectados os eletrodos que serão inseridos nas células da câmara de ataque eletroquímico.

As figuras IV.4.a e IV.4.b mostram a fonte de tensão e o sistema ramificador de tensão utilizados, respectivamente, e na figura IV.4.c temos o sistema completo de revelação.

#### **IV.4.3. Condições de revelação dos detectores Makrofol-E**

##### **IV.4.3.1. Determinação do campo aplicado durante a revelação**

Para a determinação experimental das condições de revelação do detector vamos verificar a variação da densidade de traços, do background e das dimensões dos traços em função dos diferentes parâmetros do ataque eletroquímico.

Na primeira etapa deste estudo tentamos verificar o campo elétrico alternado aplicado ao detector que melhor resposta fornece levando em conta os fatores acima

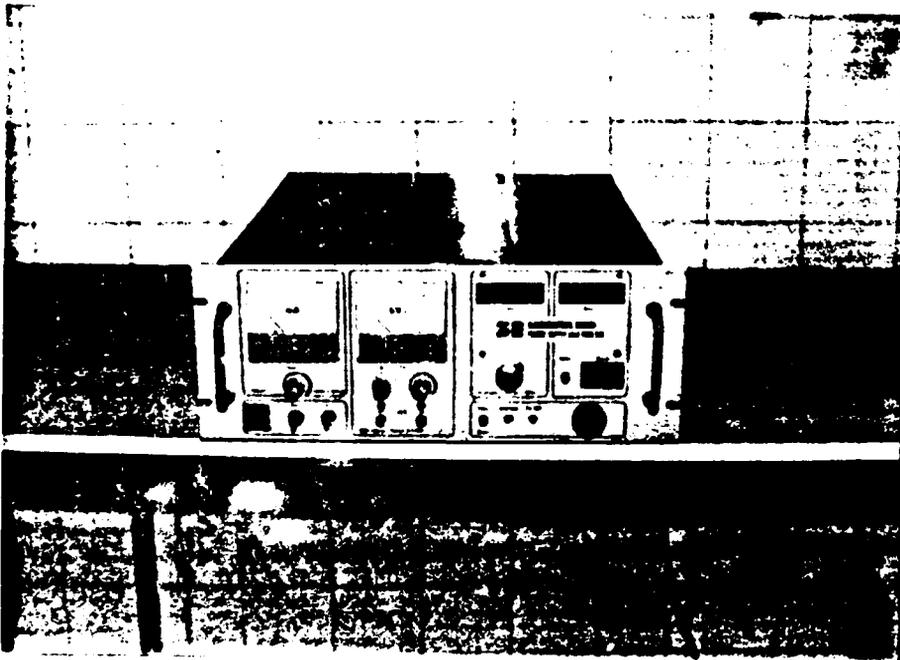


Figura IV.4.a: Fonte de tensão alternada utilizada neste estudo.

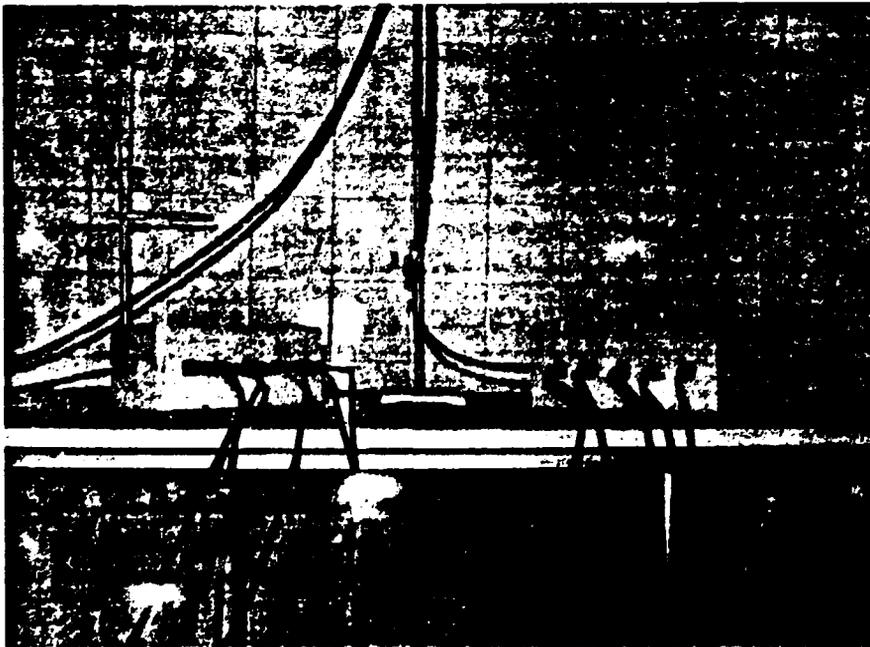
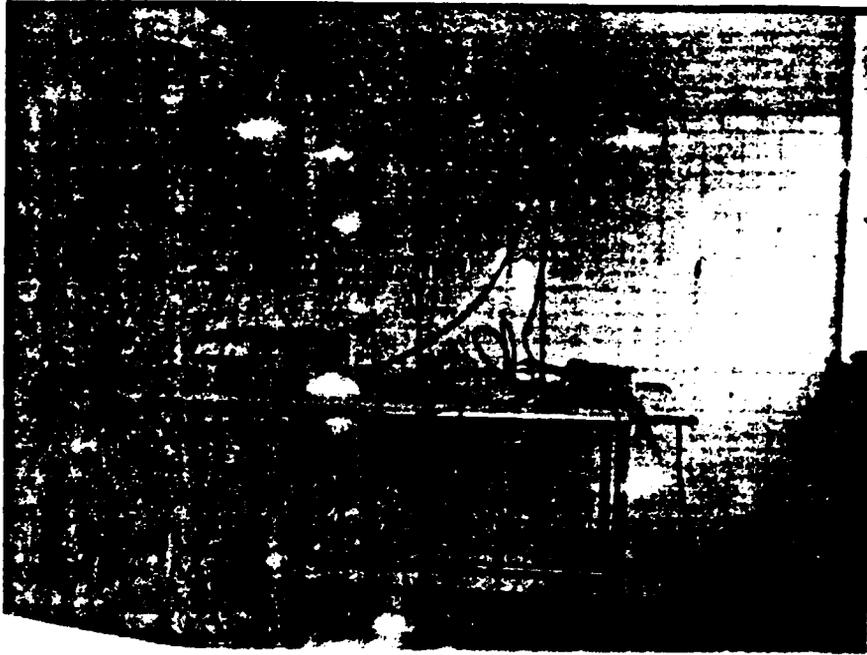


Figura IV.4.B: Sistema ramificador de tensão em paralelo, onde são acoplados os eletrodos positivo e negativo.



**Figura IV.4.c; Sistema completo de revelação, incluindo fonte de tensão, sistema ramificador e câmara de ataque eletroquímico.**

mencionados.

Para o estudo da resposta do detector em função da tensão aplicada aos eletrodos, tivemos que fixar todos os outros parâmetros. Estes parâmetros foram, inicialmente, fixados com base na literatura existente sobre este assunto e serão comentados a seguir, além de discutirmos os valores estabelecidos e o porquê da escolha destes valores.

**a) A solução atacante**

A solução escolhida para a realização das revelações do Makrofol-E foi a solução de KOH com adição de etanol, denominada, geralmente de PEW (93,94) (potassium, ethyl alcohol and water), com as seguintes concentrações: 15%, em massa, de KOH, 40%, em massa, de álcool etílico e 45%, em massa, de água.

Esta solução tem sido amplamente utilizada em nosso laboratório (95) para a revelação de traços devidos a partículas alfa e fragmento de fissão, e verificamos pela análise dos resultados de Sohrabi(93) que esta concentração é razoável de ser utilizada quando se deseja uma alta sensibilidade com um diâmetro de traço não muito ampliado.

**b) A frequência a ser utilizada**

O valor da frequência a ser fixada foi escolhida com base em estudos de Sohrabi (96), Somogyi (97) e outros (98). O valor da frequência mais utilizado é 2 kHz.

### **c) A temperatura de revelação**

Neste estudo não pretendemos trabalhar com altas temperaturas. Todas as revelações foram feitas à temperatura ambiente que variou entre 20 e 28 °C. Tentamos realizar todas as revelações em dias em que as temperaturas fossem parecidas para minimizar o efeito deste parâmetro sobre a sensibilidade dos detectores.

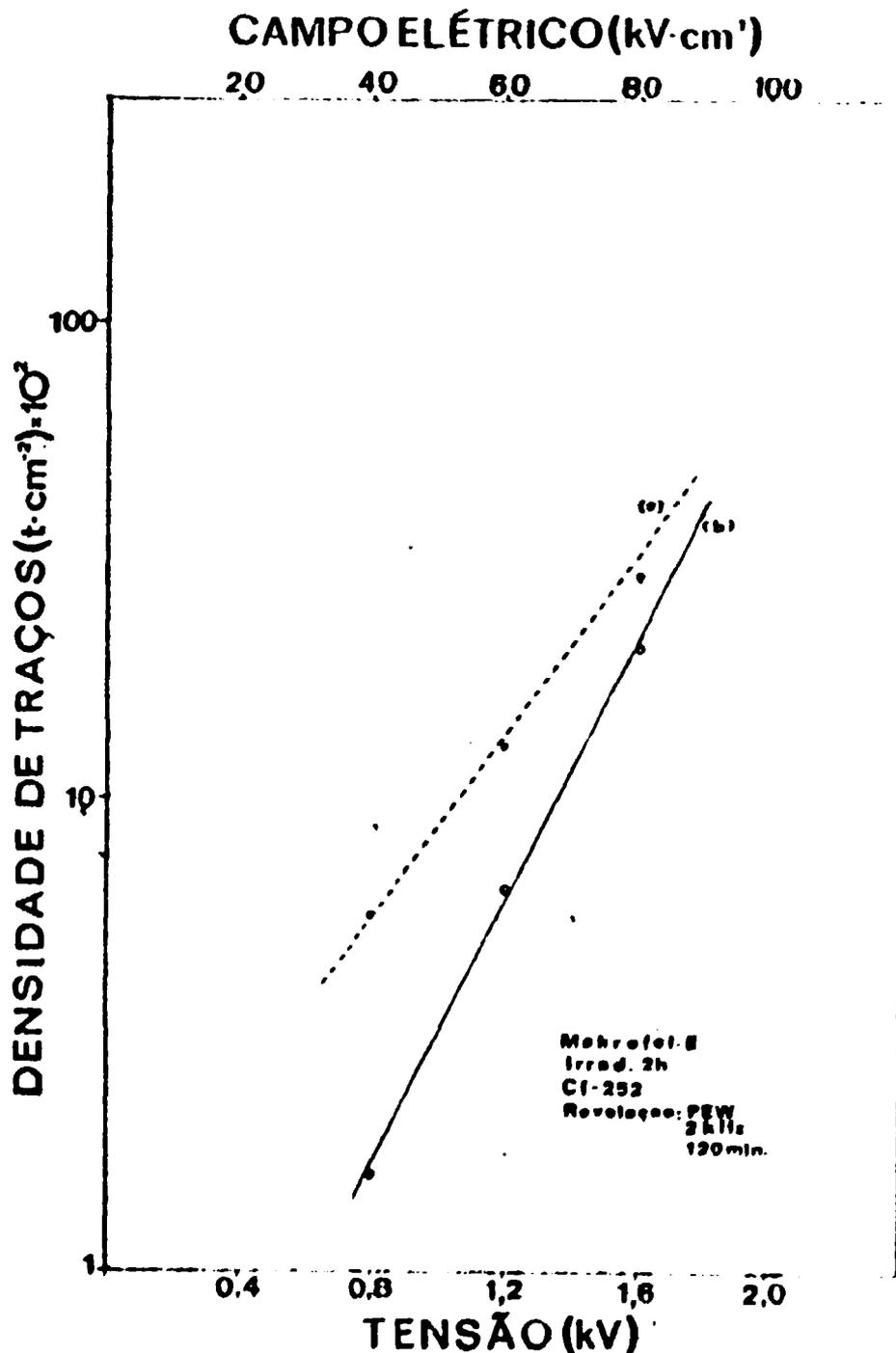
### **d) O tempo de ataque eletroquímico**

A duração do ataque eletroquímico foi determinado com base em um trabalho anteriormente realizado neste laboratório (95), como 120 min.

Para o estudo da resposta do Makrofol-E com a tensão aplicada entre os eletrodos da câmara um conjunto de detectores foi irradiado com nêutrons provenientes da fonte de Cf-252, durante 2 h na posição de irradiação mencionada no item IV.3.

Estes detectores foram revelados cada um com um filme não irradiado, para verificação do background. Os filmes foram, então, analisados e a densidade de traços em função da tensão e mostrada na figura IV.5.a. Na mesma figura a curva b mostra o crescimento da densidade de traços do background em função da tensão.

Verificamos que só há revelação dos detectores acima de um determinado valor de tensão aplicada entre os eletrodos e que com o aumento da tensão há um aumento



**Figura IV.5:** Curva a: Variação da densidade de traços com a variação da tensão aplicada entre os eletrodos da câmara de ataque eletroquímico e campo aplicado ao detector Makrofol-B. Curva b: variação do background com a variação da tensão e campo aplicado aos detectores.

bastante brusco dos traços devidos ao background. Este fato pode ser verificado na figura IV.6 que mostra a razão sinal ruído.

Da análise destas curvas escolhemos o valor da tensão a ser utilizada de 800 V que representa um campo alternado aplicado ao detector de 40 kV/cm (r.m.s.).

#### **IV.4.3.2. Determinação do tempo de revelação**

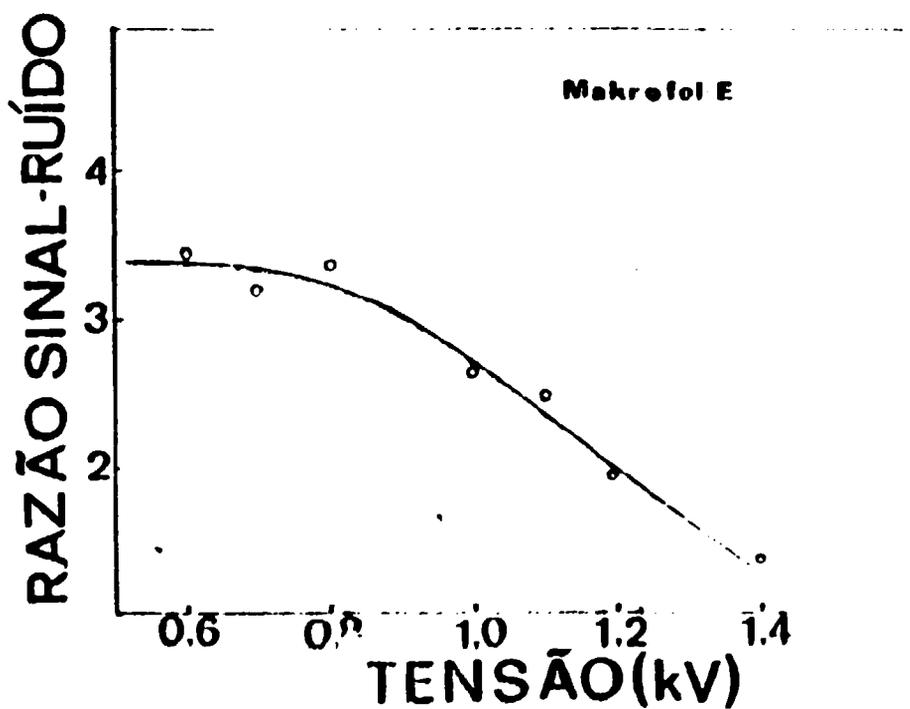
Um novo lote de detectores foi irradiado por 2h nas mesmas condições mencionadas acima. Este conjunto de detectores foram revelados utilizando-se agora o valor do campo alternado anteriormente determinado e fixando as demais condições do mesmo modo que foi feito para estudo da tensão.

A resposta dos detectores em termos de densidade líquida de traços em função do tempo de revelação é mostrada na figura IV.7.a. Verificamos nesta curva uma saturação na densidade de traços para tempos de revelação maiores que 120 min.

Na figura IV.7.b temos a variação do background com o tempo de revelação, e a curva da figura IV.8 mostra a razão sinal ruído para este parâmetro de revelação.

A variação do diâmetro do traço revelado é mostrada na figura IV.9.

Optamos pelo valor de tempo de revelação igual àquele



**Figura IV.6:** Razão sinal ruído para variação da tensão aplicada entre eletrodos da câmara de ataque eletroquímico para revelação dos detectores Makrofol-E.

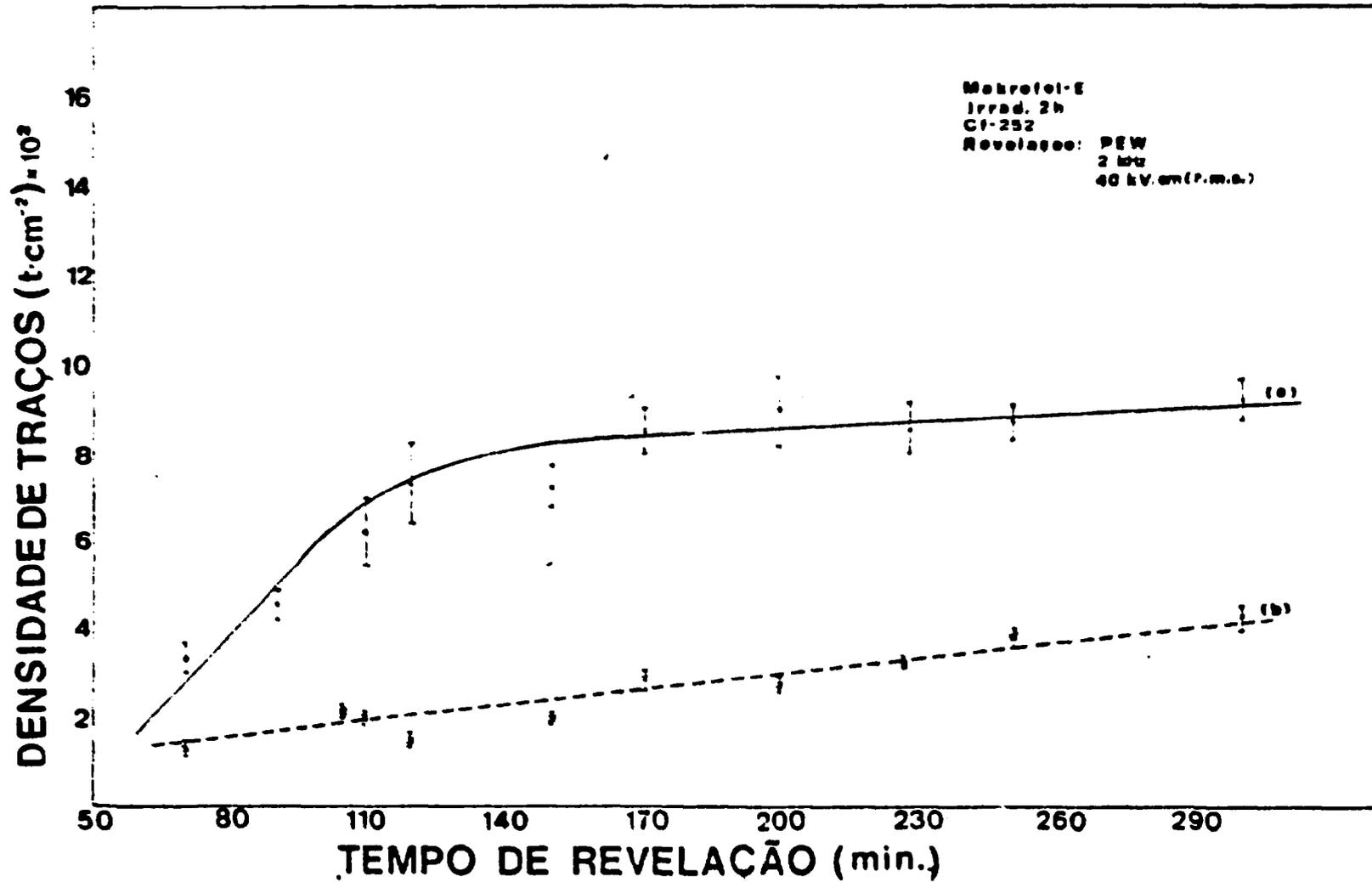


Figura IV.7: Curva a: Variação da densidade de traços líquida com o tempo de ataque eletroquímico dos detectores Makrofol-E. Curva b: Aumento do background com o tempo de revelação dos detectores.

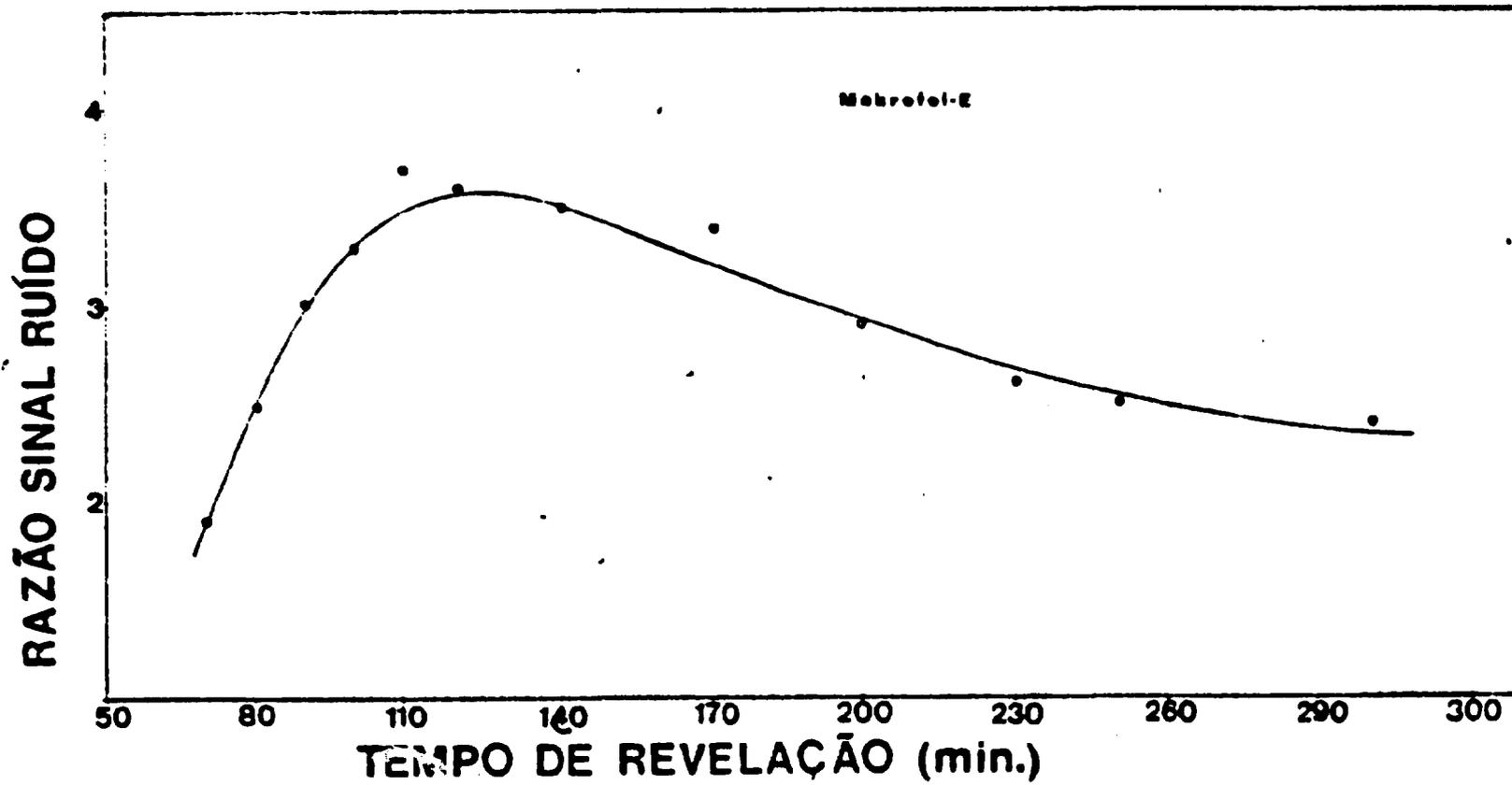


Figura IV.8: Razão sinal-ruído para variação do tempo de revelação dos detectores Makrofol-E.

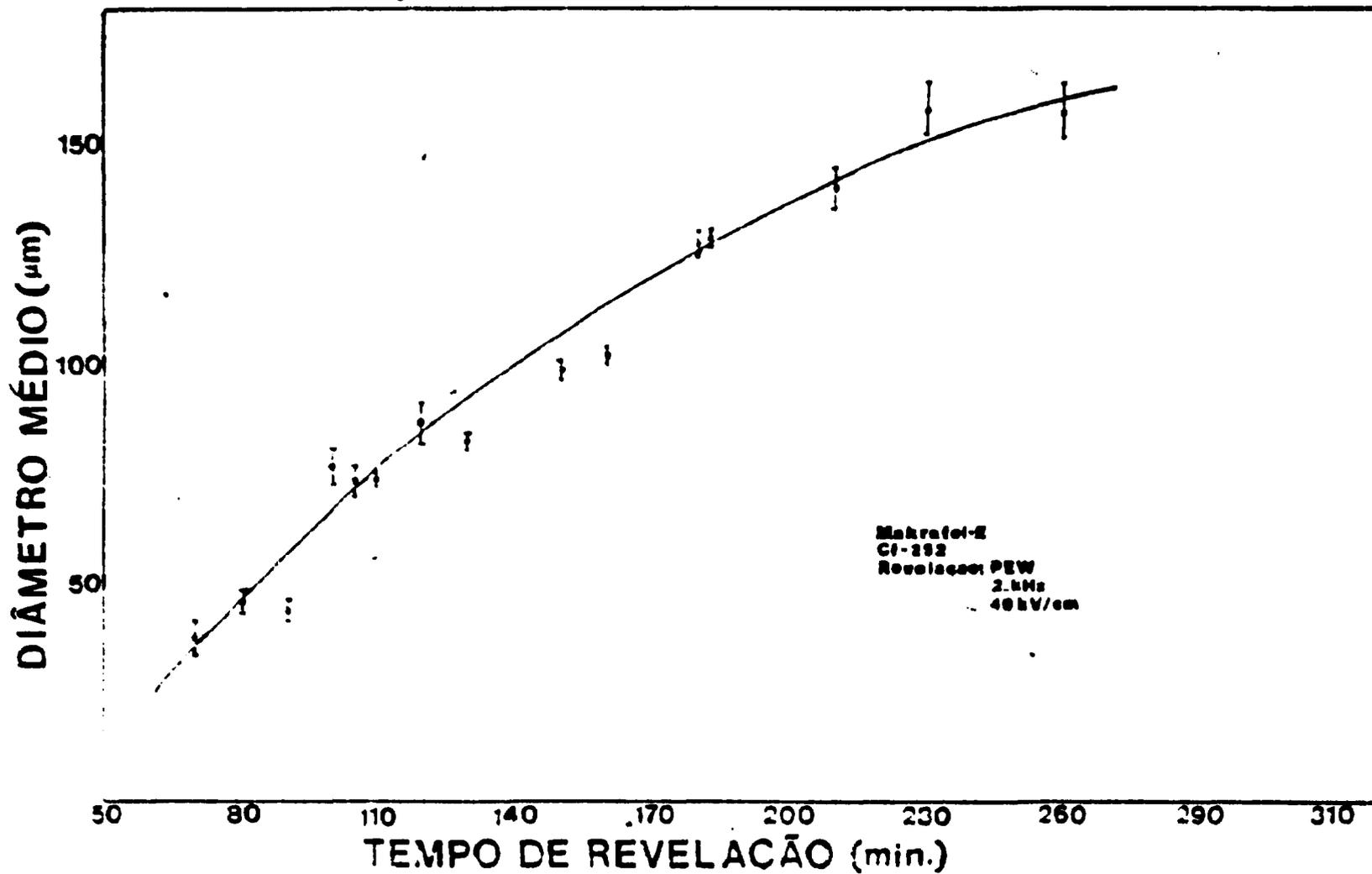


Figura IV.9: Variação do diâmetro médio do traço revelado com o tempo de revelação eletroquímica dos detectores Makrofol-E.

que utilizamos até o momento, 120 min., visto que temos aqui uma densidade de traços máxima, um background razoavelmente baixo e um diâmetro médio de traços não tão grande que possa alterar significativamente o valor do limite superior de detectabilidade deste detector.

#### **IV.4.3.3. Determinação da frequência a ser utilizada**

Dentro da faixa utilizada neste estudo (1 a 10 kHz) a frequência do ataque eletroquímico influencia pouco a sensibilidade dos detectores, sendo que a maior alteração observada é no diâmetro dos traços revelados.

No estudo da resposta dos detectores em função da frequência uma série de detectores foi revelada nas condições anteriormente determinadas. Os dados obtidos com este estudo são apresentados na figura IV.10 a, b e c. Observamos nesta figura que o background não se altera significativamente, na faixa de 2 a 4 kHz. O máximo, em torno de 5 kHz, obtido na curva da densidade líquida de traços em função da frequência, está de acordo com o obtido por Khourí e Franco (95) que utilizaram para este estudo detectores com a mesma espessura do estudado aqui. Este valor está um pouco deslocado em relação à curva obtida por Durrani e al. (94) que encontraram este máximo para uma frequência de 8 kHz. Sendo que este último estudo citado foi realizado com detectores de 300  $\mu\text{m}$ . Supomos, então, que a diferença deve estar relacionada com a diferença na espessura do detector. Neste máximo, entretanto, observa-se

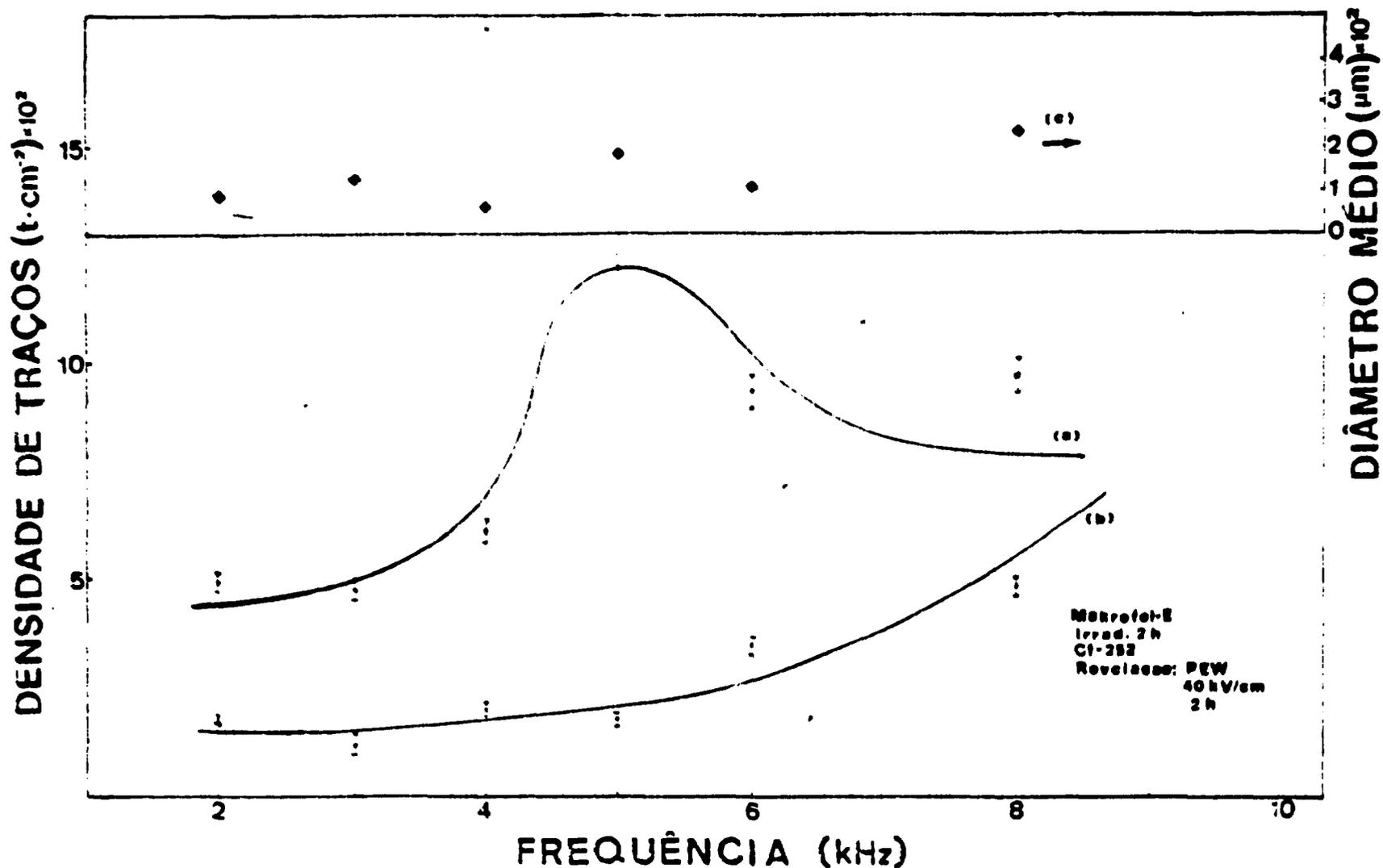


Figura IV.10: Curva a: Variação da densidade líquida de traços revelados com a variação da frequência do campo elétrico aplicado aos detectores. Curva b: Comportamento do background com o respectivo aumento da frequência. Curva c: Variação do diâmetro médio dos traços revelados com a frequência do campo elétrico.

um aumento significativo do diâmetro dos traços revelados. Este fato nos levou a optarmos pela frequência de 2 kHz para revelação dos detectores. Nesta frequência temos uma densidade de traços razoável para ser utilizada neste trabalho, o background é aceitável e as dimensões dos traços são adequadas para não saturarmos rapidamente os detectores, o que levaria a um baixo limite máximo de detecção deste detector.

O fato de escolhermos esta frequência mais baixa para revelação dos detectores reforça a tendência atual dos estudos a este respeito que mostram que mais e mais utiliza-se frequências mais baixas na revelação de detectores em estudos de detecção de nêutrons (99), pois para este estudo menores dimensões dos traços revelados implicam em intervalos de fluências maiores em que se pode utilizar estes detectores.

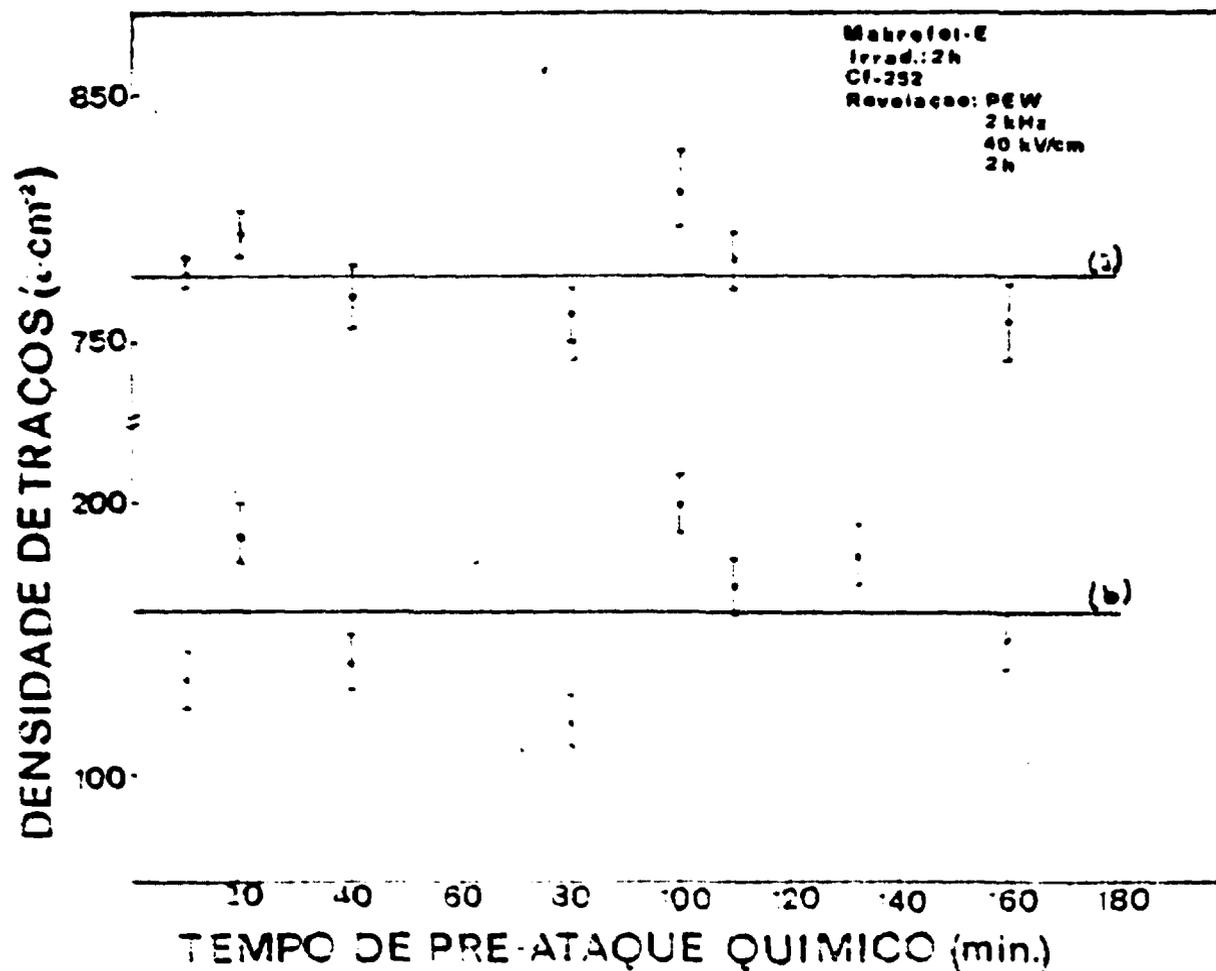
#### **IV.4.3.4. Verificação da influência de um pré ataque químico na revelação dos detectores Makrofol-B**

Como mencionado na seção II.3.2.3.a uma técnica muito em uso atualmente consiste em se submeter o detector irradiado a um pré ataque químico ou eletroquímico. O objetivo deste processo é a diminuição do tempo de revelação, do background e a possibilidade de utilização destes detectores em espectrometria. Esta técnica quando utilizada em estudos de dosimetria tem a desvantagem de selecionar os nêutrons em energia.

Verificamos a possibilidade de utilização desta técnica visando a diminuição do background dos detectores Makrofol-E. Um lote com 8 detectores Makrofol-E foi irradiado por 120 min. na fonte de Cf-252 nas condições de irradiação anteriormente mencionadas. Os detectores foram então submetidos a um pré ataque químico na mesma solução, PEW, à temperatura de 70°C. O tempo de revelação foi variado para cada conjunto, filme irradiado e filme não irradiado, entre 10 min. e 150 min. Acima deste limite os detectores começaram a se dissolver. Os detectores foram então submetidos à revelação eletroquímica nas condições anteriormente determinadas.

Os valores das densidades líquidas de traços por unidade de área em função do tempo de pré-ataque químico são mostrados na figura IV.11. Também nesta figura a curva b representa a densidade de traços do filme não irradiado em função do tempo de pré ataque químico.

Da análise das curvas obtidas verificamos que este tipo de tratamento para os detectores policarbonatos Makrofol-E não se mostrou eficaz. Os valores obtidos são bastante semelhantes aqueles obtidos na revelação sem pré ataque químico. Todos os detectores, portanto, foram, apenas revelados eletroquimicamente.



**Figura IV.11:** Comportamento da densidade de traços líquidos (curva a) e do background de detectores Makrofol-E revelados eletroquimicamente quando submetidos a um pre-ataque químico em solução PEW a 70 C.

#### **IV.4.4. Determinação das condições de revelação dos detectores CR-39**

Os detectores de traços CR-39 têm sido amplamente investigados nos últimos anos devido às suas propriedades para detecção de nêutrons rápidos.

Um estudo para determinação das condições de revelação semelhante ao desenvolvido para os detectores Makrofol-E não tem necessidade de ser desenvolvido na íntegra para os detectores CR-39 visto a quantidade de informações a este respeito que encontramos na literatura, com as mais diversas variações possíveis de condições de revelação deste tipo de detector.

A utilização direta de condições de revelação determinadas em outros laboratórios, entretanto, sem uma prévia adaptação às condições do nosso laboratório, poderia, porém, acarretar em erros provenientes de diferenças existentes entre os equipamentos utilizados.

O principal motivo das variações entre os modos de revelação destes detectores está na busca de condições que permitam uma alta sensibilidade de detecção que seja independente da energia do nêutron incidente nos detectores.

Neste estudo optamos por adaptar condições, já determinadas em outros laboratórios, às condições do nosso laboratório. Na tabela IV.3 mostramos algumas condições

LABORATÓRIO	TIPO DE REVELAÇÃO UTILIZADA PARA DETECTOR TIPO CR-39
Karlsruhe Nuclear Research Center Federal Republic of German	5 h de pré ataque eletroquímico em solução 6 N de KOH a 60 °C com um campo aplicado de 30 kV.cm <sup>-1</sup> (r.m.s.) e frequência de 100 Hz; em seguida um ataque eletroquímico na mesma solução e campo aplicado, à frequência de 2 kHz a 60 °C com duração de 1h.
Laboratorio di Misuri, ENEA, Roma, Italia	1h de pré ataque químico em solução 60% etanol e 40% solução de NaOH 6,25N a 70 °C; em seguida outro ataque químico em solução 6,25 N de NaOH a 60 °C.
Harwell Laboratory, OXON, UK	3h de pré ataque químico em solução 6,25N de KOH a 35 °C seguida um ataque eletroquímico na mesma solução e temperatura com um campo alternado de intensidade 21 kV.cm <sup>-1</sup> e, ainda, um pós ataque químico de 10 horas e meia na mesma solução e temperatura.
Lawrence Livermore National Laboratory Livermore, California USA	5h de pré ataque em solução 6,5N de KOH A 60 °C e uma tensão aplicada de 3000 V com frequência de 60 Hz, seguido por um ataque eletroquímico de 23 min. na mesma solução a temperatura de 60 °C com uma tensão aplicada de 3000 V e frequência de 2 kHz e um pós ataque químico na mesma solução a 60 °C por 15 min.
Riso National Lab. Denmark	ataque químico de 16 h em solução 6,25N a 70 °C
Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington USA	5h de pré ataque eletroquímico a 60 °C e campo aplicado de 39 kV.cm <sup>-1</sup> e frequência de 60 Hz, seguido de um ataque eletroquímico a a mesma temperatura e campo aplicado com uma frequência de 2kHz por 23 min.

**Tabela IV.3:** Algumas variações de condições de revelação utilizadas em diferentes laboratorios que estudam este método de detecção de partículas induzidas por neutrons (105).

utilizadas em diversos laboratórios ao redor do mundo.

As condições utilizadas neste trabalho foram adaptadas a partir do trabalho realizado por Bartlett (100), que utiliza as seguintes condições de revelação:

- um pré-ataque químico em solução NaOH 20%, em massa, por uma hora à temperatura de 70°C;
- em seguida é realizado o ataque eletroquímico nas seguintes condições:
  - # solução reveladora NaOH 20%, em massa
  - # temperatura de 30°C
  - # campo alternado aplicado ao detector:
    - 22 kV.cm (rms)
  - # frequência do campo alternado: 2 kHz
  - # tempo de revelação: 16 horas
- pós ataque químico de 4 h em solução reveladora, NaOH 20% em massa, à temperatura ambiente.

Este trabalho foi escolhido para ser adaptado às nossas condições por ser realizado à uma temperatura baixa em relação às que são utilizadas em outros laboratórios, e que está próxima à temperatura ambiente em nosso laboratório.

A temperatura, entretanto, influi muito na sensibilidade dos detectores, portanto, tivemos que tentar compensar a perda de sensibilidade devida à temperatura com a alteração de outro parâmetro do ataque eletroquímico. Verificamos inicialmente a influência do pós ataque químico

e não observamos influência na sensibilidade dos detectores. Optamos então, por suprimi-lo.

A etapa seguinte foi a verificação de outros parâmetros na sensibilidade dos detectores. A frequência na faixa entre 1 e 10 kHz não altera significativamente a resposta dos detectores, sendo mais significativa a sua influência na ampliação dos traços revelados. A solução também seria uma possibilidade de alteração mas resolvemos não alterá-la visto que a concentração utilizada (20% em massa) é bem estudada e tem mostrado uma boa resposta na revelação dos detectores CR-39.

Optamos, então, pela verificação da influência da tensão a ser utilizada e da duração do ataque eletroquímico. Fizemos as revelações utilizando os campos de 10, 30, 50 e 70 kV/cm e verificamos que o comportamento da resposta do detector era semelhante ao encontrado por Durrani (94). Para o valor de 30 kV/cm temos uma resposta do detector que se mostra a melhor a ser utilizada, pois, temos uma saturação dos detectores a partir deste valor e um aumento brusco do background do detector.

O tempo de revelação dos detectores ainda era muito longo, cerca de 17 h, verificamos, então, a possibilidade de diminuição do mesmo. A figura IV.12.b mostra que a partir de 13 horas de revelação não ocorre aumento significativo na densidade líquida de traços, sendo a contribuição maior que ocorria a partir deste tempo de

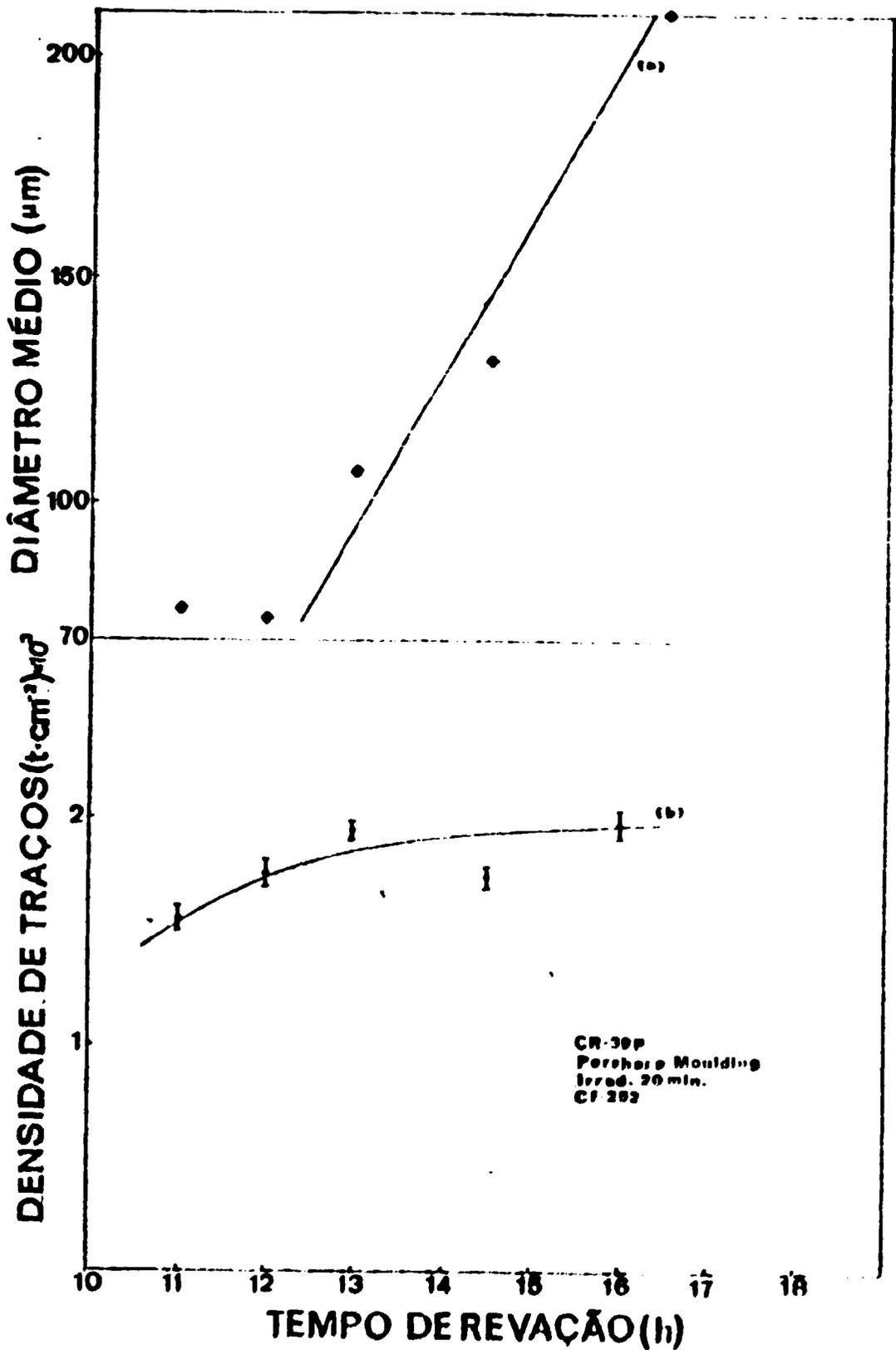


Figura IV.12: Influência do tempo de revelação eletroquímico na densidade de traços líquida (curva b) e no diâmetro médio dos traços revelados (curva a). Os detectores foram revelados eletroquimicamente com um campo elétrico aplicado aos detectores CR-39 de 30 kV/cm (r.m.s.) e frequência de 2 kHz à temperatura ambiente e submetidos a um pré ataque químico de 1 h a 70 °C em solução 20%, em massa, NaOH.

revelação era ao aumento do diâmetro dos traços revelados (figura IV.12.a) (94). Como para o nosso método de contagem o diâmetro obtido com 13 h de revelação já era suficiente para a análise dos detectores optamos por este tempo de revelação.

As condições de revelação dos detectores CR-39 foram então determinadas como sendo as seguintes:

- pré-ataque químico em solução atacante NaOH, 20% em massa, à temperatura de 70°C por 1 h.
- ataque eletroquímico com os seguintes parâmetros:
  - # solução atacante: NaOH, 20% em massa;
  - # temperatura: ambiente
  - # campo alternado aplicado ao detector: 30 kV/cm
  - # frequência do campo: 2 kHz
  - # tempo de revelação: 13 h.

#### IV.5. Leitura dos detectores

Os detectores Makrofol-E são translúcidos e portanto, a sua leitura foi realizada diretamente em um microscópio óptico de projeção com um aumento de 140 vezes. A realização do ataque eletroquímico, entretanto, facilita a contagem dos detectores, tornando-a mais rápida e menos cansativa.

Os detectores CR-39, por serem transparentes, permitiram que a sua leitura fosse feita utilizando-se um projetor de slides. Os filmes revelados são inseridos no projetor e em seguida são projetados em uma parede de

fundo branco. A leitura é feita diretamente sobre este fundo branco, onde as projeções dos traços revelados são marcadas com uma caneta hidrocor e em seguida são contadas.

O aumento utilizado foi da ordem de 70 vezes. Esta técnica de contagem faz com que haja uma menor eficiência de contagem. Um lote de detectores foi, então, contado utilizando-se o projetor de slides e em seguida foram recontados em microscópio óptico com um aumento de 140 vezes. A perda de traços na variação dos processo de contagem foi estimado em 10 %.

A técnica utilizando o projetor de slides foi escolhida por permitir a análise de um grande número de detectores em um intervalo de tempo bem menor do que o gasto em microscópio óptico. Esta técnica poderia ser utilizada, por exemplo, na aplicação destes detectores em dosimetria.

Este método, entretanto, não é o ideal, como seria a utilização de um sistema automático de análise dos detectores utilizando um analisador de imagem de vídeo acoplado a um computador que realizaria a análise dos dados, mas permite que os detectores sejam analisados mais rapidamente do que em um microscópio óptico.

Uma vantagem desta técnica sobre as outras é o fato de podermos visualizar a área revelada total podendo-se assim, verificarmos a distribuição dos traços revelados, e assim verificarmos a homogeneidade da distribuição e a

identificação de possíveis áreas danificadas no detector.

#### **IV.6. Verificação da linearidade da resposta dos detectores com a variação da fluência de nêutrons incidentes sobre os mesmos.**

Tendo sido determinadas as condições de revelação dos detectores e definido o processo de análise dos mesmos a etapa seguinte do nosso trabalho foi a verificação da linearidade da resposta dos detectores com a variação do tempo de irradiação, ou seja, com a variação da fluência de nêutrons incidentes sobre estes detectores.

Para este estudo um lote de detectores foi preparado e irradiado na fonte de Cf-252 em diferentes intervalos de tempo. Estes detectores foram revelados e, em seguida contados, sempre uma área suficiente para que tivéssemos um erro estatístico não maior que 4%.

As curvas encontradas são mostradas, para os detectores estudados nas figuras IV.13 e IV.18.

#### **IV.7. Limite mínimo de detectabilidade**

A determinação do limite mínimo de detectabilidade de um detector está vinculado ao estudo da radiação de fundo, ou background, de cada detector.

O background corresponde ao número de traços registrados pelo detector sem que este seja submetido a irradiação. O background é proveniente dos seguintes

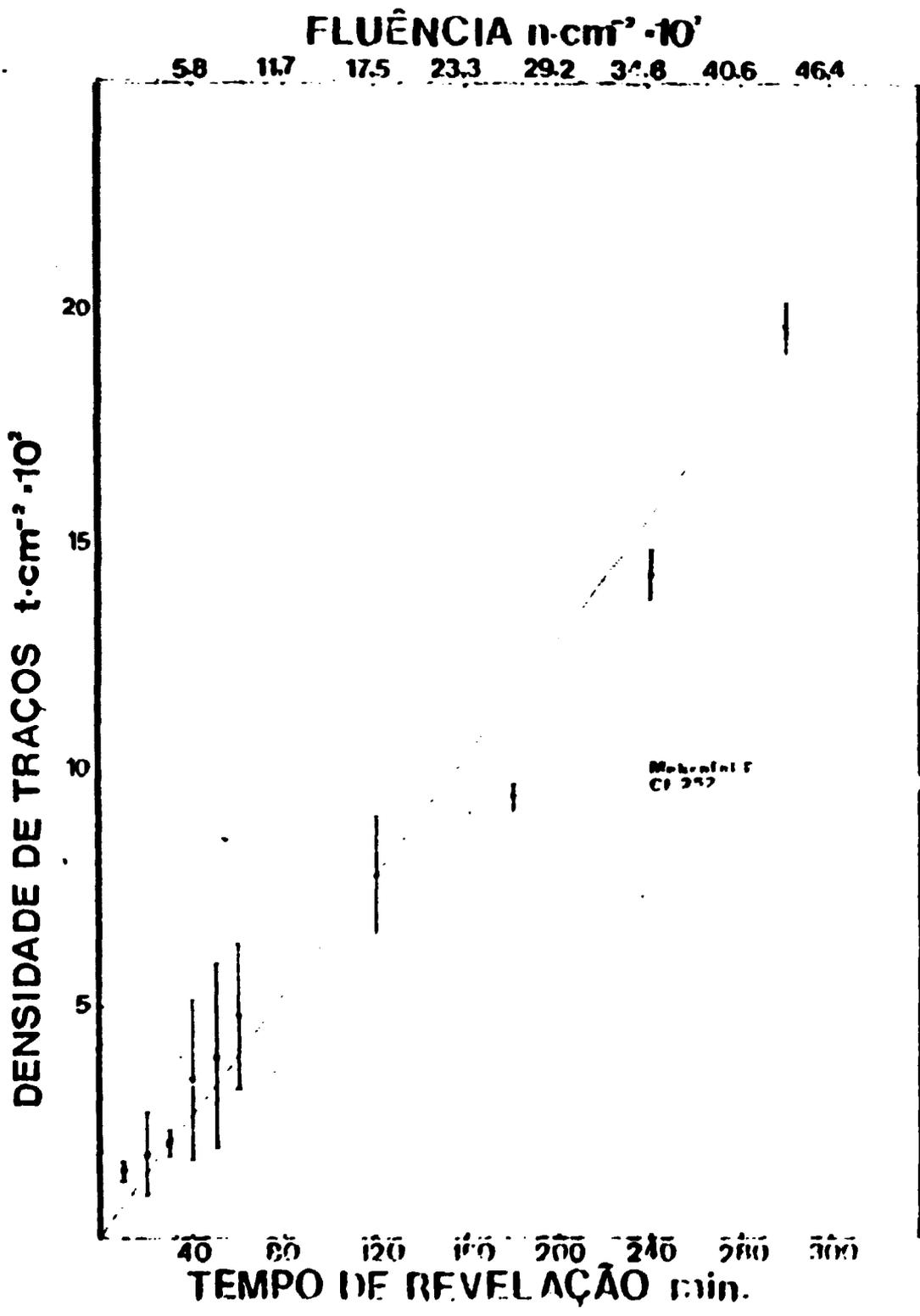


Figura IV.13: Linearidade de resposta dos detectores Makrofol-E a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.

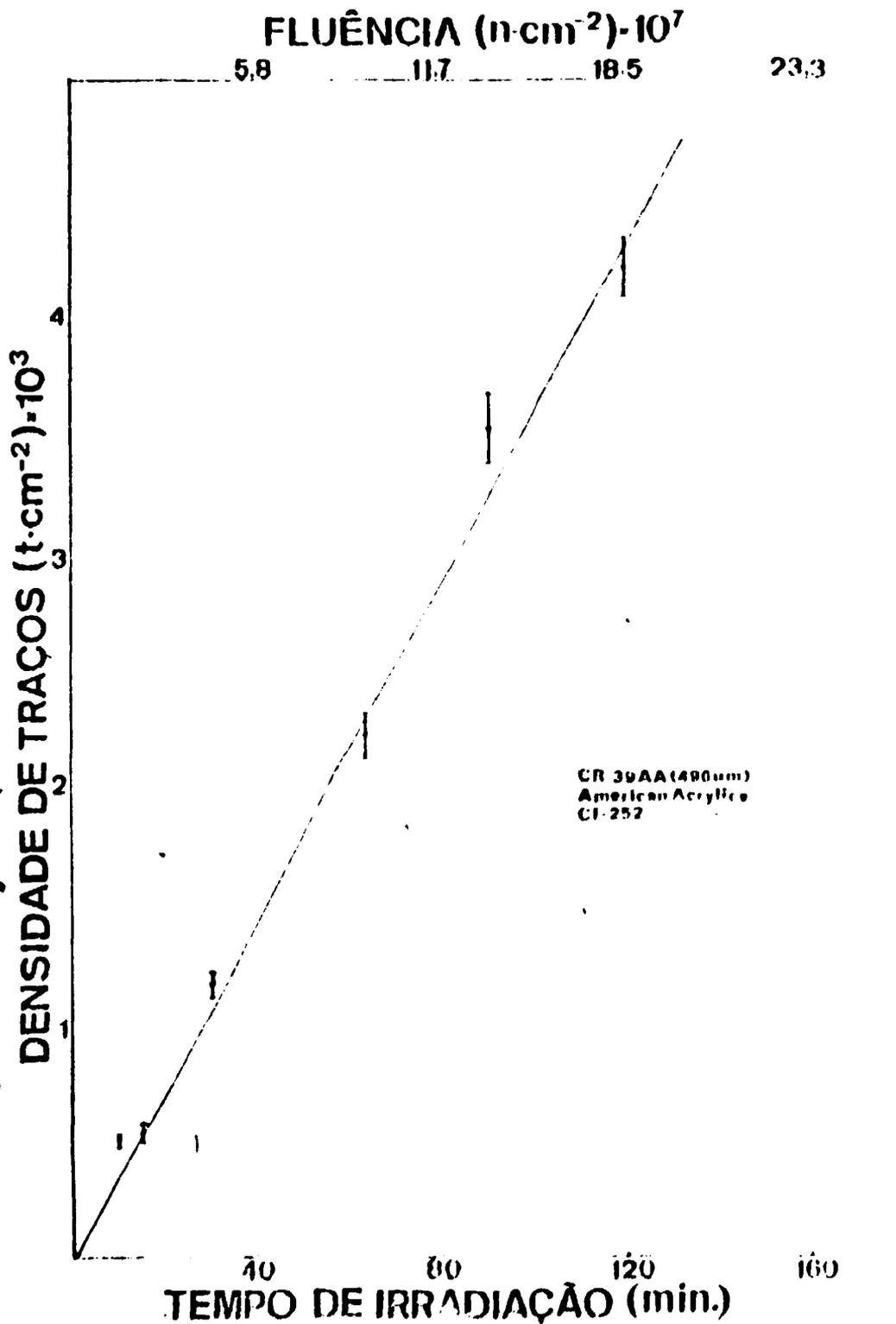
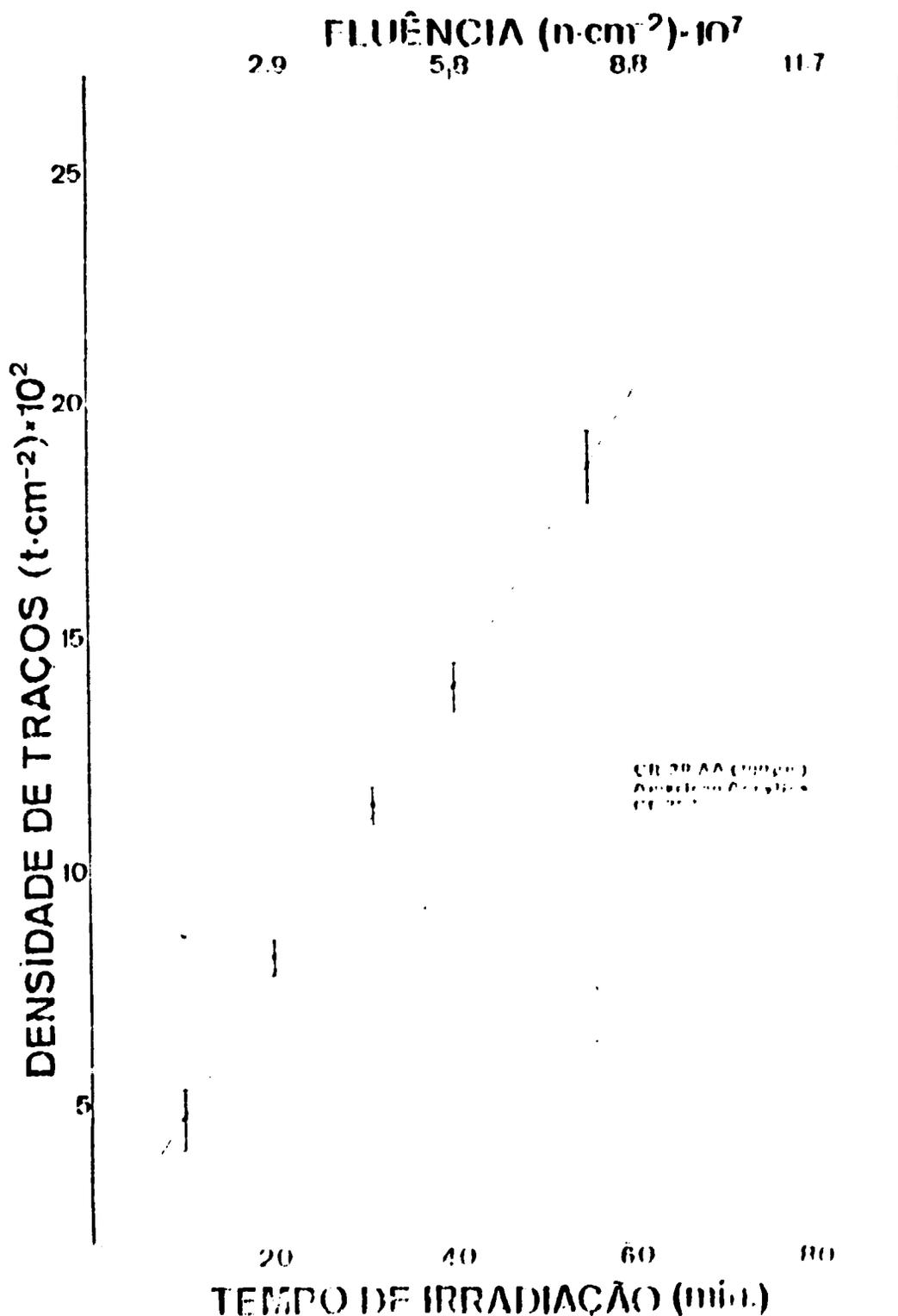
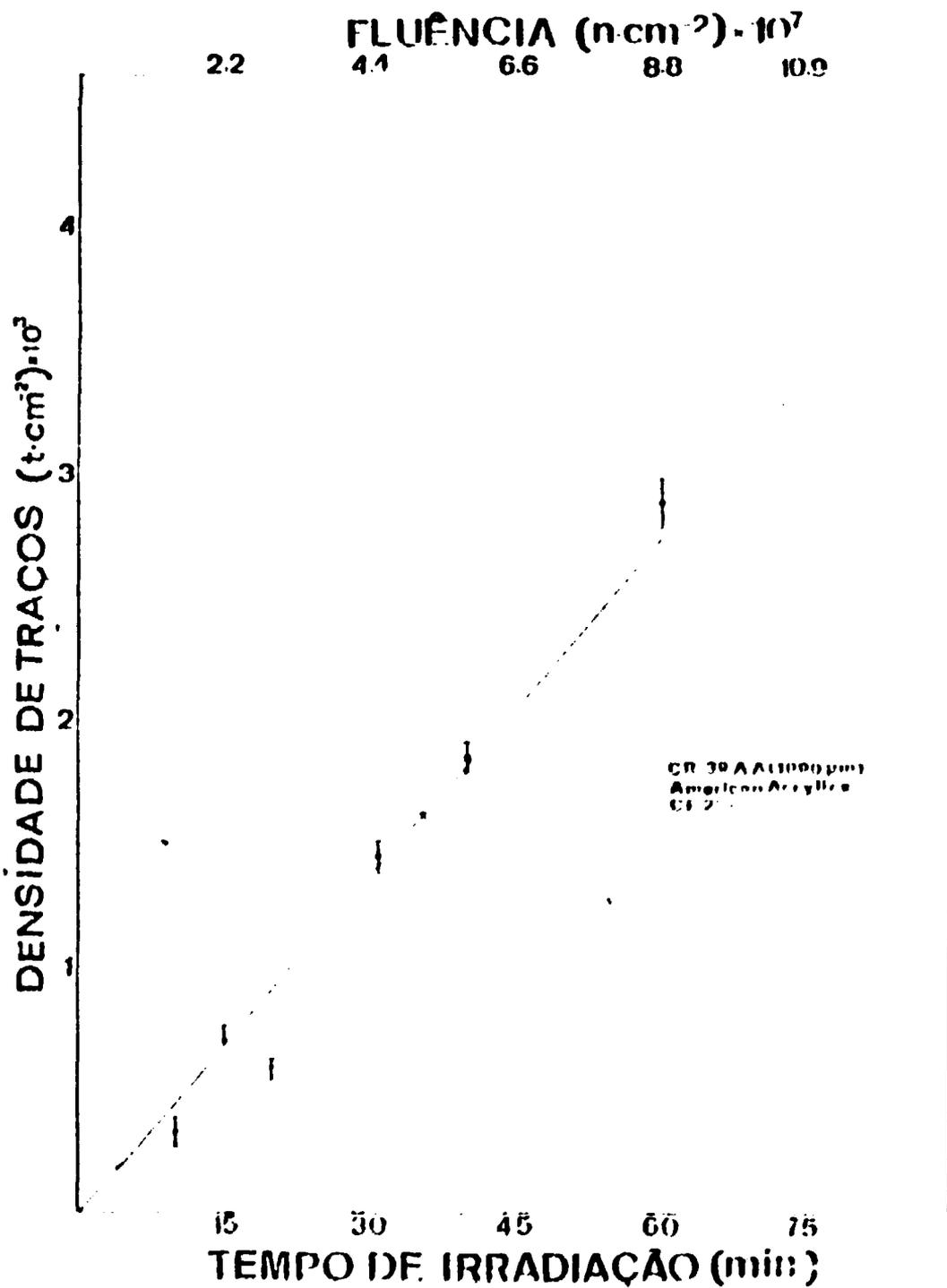


Figura IV.14: Linearidade de resposta dos detectores CR-39 produzidos pela American Acrylics (496  $\mu m$ ) a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.



**Figura IV.15:** Linearidade de resposta dos detectores CR-39 American Acrylics (700 µm) a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.



**Figura IV.16:** Linearidade de resposta dos detectores CR-39 American Acrylics (1090  $\mu m$ ) a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.

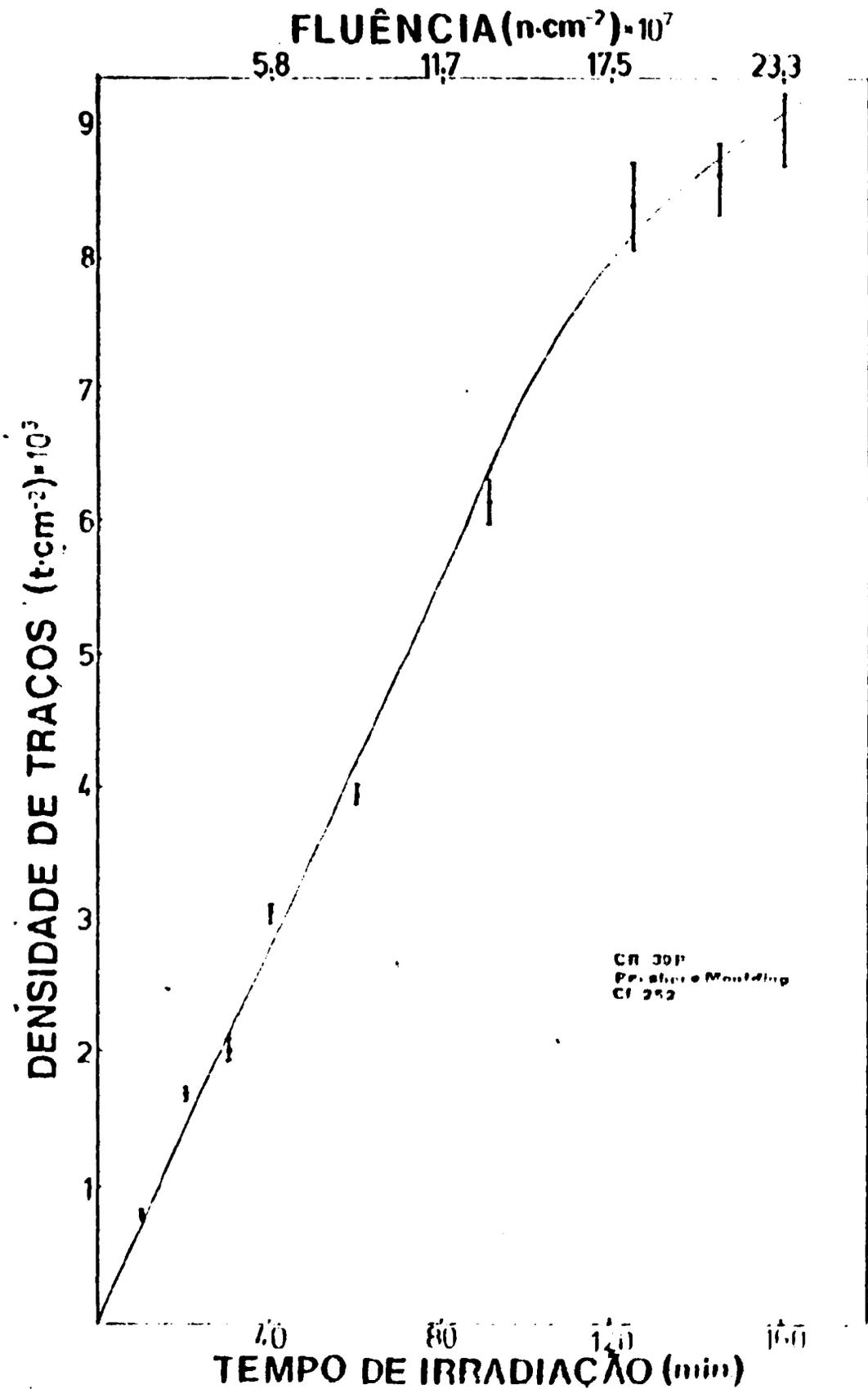
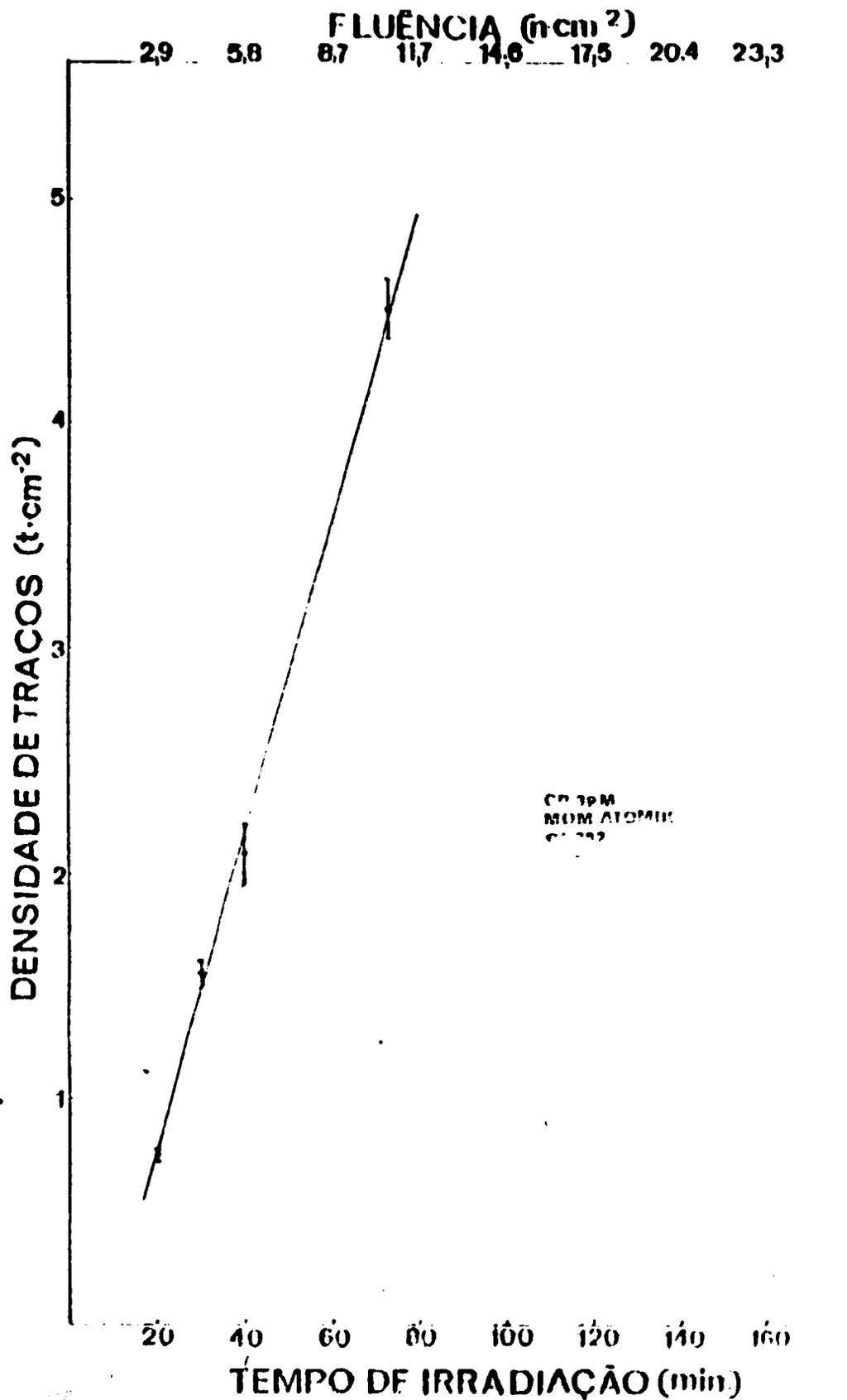


Figura IV.17: Linearidade de resposta dos detectores CR-39 Pershore Mouldings a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.



**Figura IV.18:** Linearidade de resposta dos detectores CR-39 produzidos pela MOM-ATOMKI a nêutrons emitidos pela fonte de Cf-252.

fatores:

- emissores alfa que entrem em contato com o detector, principalmente radônio 222;
- raios cósmicos (considerados quando há transporte aéreo dos detectores); e
- defeitos causados durante a manipulação dos detectores.

No decorrer de toda a experiência para cada detector foi revelado juntamente um detector não irradiado, nas mesmas condições de revelação. Este detector não irradiado serve para que estimemos o background dos materiais. O valor da densidade de traços obtido para estes detectores foram em seguida subtraídos das medidas correspondentes.

Uma análise para avaliação do background para os diferentes detectores estudados, nos permite obter um valor médio. Este valor médio do background juntamente com o respectivo desvio padrão calculado é mostrado na tabela IV.4.

O valor do limite mínimo de detectabilidade é definido como sendo o número mínimo de traços por unidade de área acima do qual podemos considerar uma medida como confiável. Este valor é estimado na literatura (101) como sendo um valor que seja maior ou igual a duas vezes a densidade de traços correspondente ao desvio padrão dos valores encontrados para o background.

Os valores de limites mínimos de detectabilidade em

DETECTOR	BACKGROUND ( BG $\pm$ $\sigma$ bg) (t/cm <sup>2</sup> )
CR-39 P	( 18 $\pm$ 2)
CR-39 AA (496 $\mu$ m)	(118 $\pm$ 14)
(700 $\mu$ m)	(241 $\pm$ 7)
(1090 $\mu$ m)	(141 $\pm$ 12)
CR-39 M	( 75 $\pm$ 8)
MAKROFOL-E	(130 $\pm$ 10)

**TABELA IV.4** : Valores do background encontrado para os diferentes detectores.

termos de densidade de traços e de fluência mínima detectável, e de dose equivalente considerando como referência os nêutrons provenientes de uma fonte de Cf-252, são mostrados na tabela IV.5 e IV.6., respectivamente.

Das tabelas IV.4 e IV.5 verificamos que os detectores CR-39 fabricados pela Fersshore Mouldings são os que possuem um menor valor de limite mínimo de detectabilidade. Este detector também se mostra como o de menor valor médio de background. Ambas afirmativas são explicadas pela idade do lote destes detectores. Este foi um dos lotes de detectores mais novos que estudamos.

O detector Makrofol-E mostra um limite de detectabilidade não muito baixo. Este fato é devido a características das cadeias deste material (não cross-linked) que permite que o background seja grande em relação ao detector CR-39 (cross-linked) além deste material não ser embalado visando a diminuição de danos em sua superfície, este material é comercializado em rolo e não é protegido como o CR-39.

O alto limite mínimo de detectabilidade dos detectores produzidos pela American Acrylics é explicado pelo fato destes detectores serem de lotes bem mais antigos que o anteriormente mencionado, além do fato destes detectores terem sido guardados à temperatura ambiente, um fator que foi descoberto recentemente como responsável pelo aumento do background.

DETECTOR	LIMITE MÍNIMO DE DETECTABILIDADE ( $2\sigma$ bg)	
	(t/cm <sup>2</sup> )	(n/cm <sup>2</sup> )
CR-39 P	4	$7,8 \times 10^4$
CR-39 AA (496 $\mu$ m)	28	$1,0 \times 10^6$
(700 $\mu$ m)	14	$4,5 \times 10^5$
(1090 $\mu$ m)	24	$7,3 \times 10^5$
CR-39 M	16	$4,1 \times 10^5$
MAKROFOL-E	20	$4,9 \times 10^6$

TABELA 5 : Limite mínimo de detectabilidade dos detectores em termos de densidade de traços e fluência (valor correspondente a  $2\sigma$  bg).

-----

DETECTOR	LIMITE MÍNIMO DE DETECTABILIDADE EM TERMOS DE DOSE EQUIVALENTE ( $\mu$ Sv)
----------	--

-----

CR-39 P	30
CR-39 AA (496 $\mu$ m)	384
(700 $\mu$ m)	173
(1090 $\mu$ m)	281
CR-39 M	158
MAKROFOL-E	189

-----

**TABELA 6** : Valores do limite mínimo de detectabilidade em termos de dose equivalente (Cf-252).

Deve-se ainda ressaltar que estudos e calibrações do background devem ser feitas a cada novo lote de detectores a serem utilizados. Um dos problemas destes detectores é justamente a falta de reprodutibilidade do background. Este problema precisa ser analisado quando se pretende trabalhar com este material.

#### **IV.8. Limite máximo de detectabilidade**

O limite máximo de detectabilidade dos detectores é definido como sendo a densidade máxima de traços que pode ser analisada com um determinado detector.

Esta densidade máxima de traços é vinculada às dimensões dos traços revelados. Sendo assim, está ligada à frequência utilizada para a revelação.

A densidade máxima de traços pode ser determinada por dois processos:

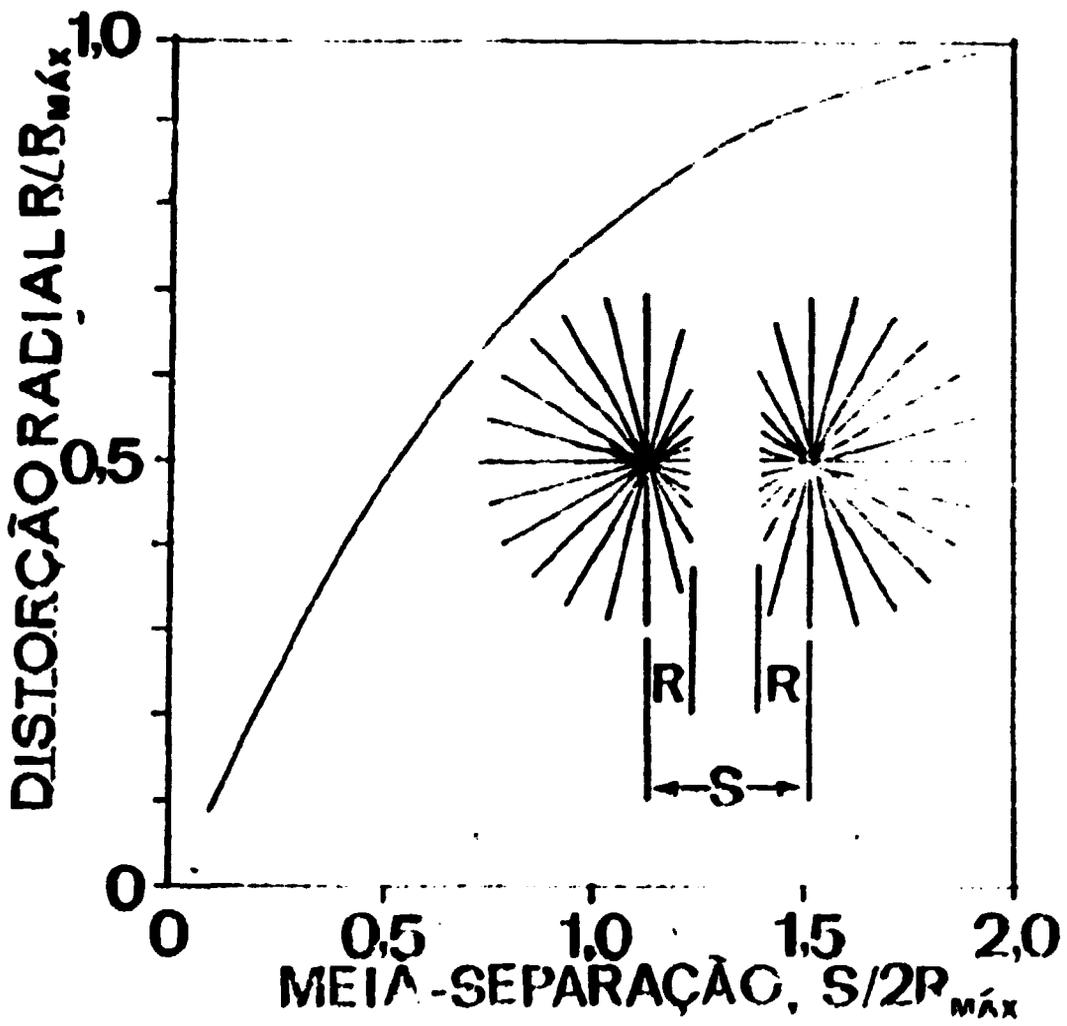
1. irradiamos uma série de detectores por tempos cada vez maiores até que a densidade de traços não se altere significativamente, ou que os traços estejam muito deformados. No ataque eletroquímico não se tem sobreposição de traços mas para densidades de traços muito grandes ocorre uma ligação entre eles. Este fenômeno é indesejável, principalmente quando se quer que a análise dos traços seja feita utilizando-se um sistema de contagem automática, pois, um microcomputador não consegue separar os traços de modo que os traços ligados serão lidos como sendo um único traço. Há, portanto, uma perda grande de traços devido a

este fenômeno.

2. Outro modo de se estimar a densidade máxima de traços é através da análise do diâmetro dos traços revelados. Ramli e Durrani (94) estudaram a deformação dos traços em função da meia-separação dos mesmos e construíram a curva que é mostrada na figura IV.19. Da análise desta curva observamos que a separação dos traços deve ser da ordem de duas vezes o diâmetro máximo dos mesmos para que estes sejam observados nitidamente sem nenhuma deformação. A densidade máxima de traços é determinada levando-se em consideração os diâmetros e a área ocupada por cada traço.

Neste estudo a densidade máxima de traços foi determinada experimentalmente, isto é, determinando-se o instante em que ocorre a saturação dos detectores. Os valores obtidos são mostrados na tabela IV.7, para uma densidade máxima de traços encontrada de  $1,0 \times 10^4$  t/cm<sup>2</sup> para o CR-39 e  $1,2 \times 10^4$  t/cm<sup>2</sup> no Makrofol-E. Os valores de fluência máxima detectável obtido pelo método sugerido por Ramli e Durrani são apresentados nesta tabela. Os valores obtidos em termos de dose equivalente do califórnio-252 são mostrados na tabela IV.8.

Verificamos que os valores encontrados para a densidade máxima de traços são bem próximos para os dois métodos. Os valores encontrados experimentalmente são um pouco maiores que os determinados pelo método de Ramli e Durrani visto que este não admite deformação do traço e na



**Figura IV.19:** Distorção no raio medio do traco revelado em funcao da meia separacao entre os tracos.

DETECTOR	FLUÊNCIA MÁXIMA DETECTAVEL	
	(método de Ramli)	
	n/cm <sup>2</sup>	n/cm <sup>2</sup>
CR-39 P	$(2.0 \pm 0.2) \cdot 10^8$	$8.1 \cdot 10^7$
CR-39 AA (500 $\mu$ m)	$(3.7 \pm 0.5) \cdot 10^8$	$1.5 \cdot 10^8$
(700 $\mu$ m)	$(3.2 \pm 0.4) \cdot 10^8$	$1.3 \cdot 10^8$
(1090 $\mu$ m)	$(3.0 \pm 0.4) \cdot 10^8$	$1.3 \cdot 10^8$
CR-39 M	$(2.6 \pm 0.3) \cdot 10^8$	$1.1 \cdot 10^8$
Makrofol-E	$(2.4 \pm 0.4) \cdot 10^8$	$1.3 \cdot 10^9$

TABELA IV.7 : Limite máximo de detectabilidade dos detectores estudados em unidades de n/cm<sup>2</sup>, e valores obtidos pelo método de Ramli e Durrani (94).

-----  
DETECTOR

FLUÊNCIA MÁXIMA DETECTAVEL  
EM TERMOS DE DOSE (Cf-252)

-----  
mSv

-----  
CR-39 P

77

CR-39 AA (496 $\mu$ m)

143

(700 $\mu$ m)

123

(1090 $\mu$ m)

116

CR-39 M

100

Makrofol-E

925  
-----

TABELA IV.8 : Limite máximo de detectabilidade em termos de dose do Cf-252.

determinação experimental algumas pequenas deformações são aceitas.

#### **IV.9. Sensibilidade dos detectores a nêutrons rápidos**

Para a determinação da sensibilidade dos detectores irradiamos por um mesmo intervalo de tempo diferentes detectores. Os detectores foram analisados e as sensibilidades dos mesmos para nêutrons rápidos provenientes das fontes de Cf-252 e  $^{241}\text{AmBe}$  foram determinadas.

Os valores obtidos para a sensibilidade são apresentados na tabela IV.9. Da análise desta tabela observamos que dentre os detectores de traços estudados o mais sensível a nêutrons na faixa de energia das fontes utilizadas é o CR-39 de fabricação da Pershore Mouldings Ltd. e o menos sensível é o Makrofol-E.

Utilizando os fatores de conversão de fluência em dose equivalente calculados a partir da fórmula desenvolvida por Harvey (102) estimamos a sensibilidade dos detectores em termos de  $\text{t.cm}^2\text{mSv}^{-1}$ . Os valores obtidos são mostrados na tabela IV.10.

#### **IV.10. A reprodutibilidade do método**

A reprodutibilidade do método foi estudada para quatro séries de detectores.

Serie 1: 15 detectores Makrofol-E irradiados na fonte de Cf-252 por um mesmo intervalo de tempo (4 h);

DETECTOR	SENSIBILIDADE (t/n)	
	Cf-252	AmBe
CR-39 P	$(5.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-5}$	$(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$
CR-39 AA (496 $\mu$ m)	$(2.7 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$	$(1.6 \pm 0.3) \cdot 10^{-5}$
(700 $\mu$ m)	$(3.1 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$	$(2.1 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$
(1090 $\mu$ m)	$(3.3 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$	$(2.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-5}$
CR-39 M	$(3.9 \pm 0.5) \cdot 10^{-5}$	$(2.6 \pm 0.4) \cdot 10^{-5}$
MAKROFOL-E	$(4.1 \pm 0.6) \cdot 10^{-6}$	$(4.5 \pm 0.6) \cdot 10^{-6}$

TABELA IV.9: Sensibilidade em unidades de traços por neutron (t/n) dos detectores estudados.

DETECTOR	SENSIBILIDADE EM t.mSv.cm <sup>-1</sup>	
	Cf-252	AmBe
CR-39 P	$(132 \pm 11)$	$(85 \pm 11)$
CR-39 AA (496 $\mu$ m)	$(71 \pm 11)$	$(39 \pm 7)$
(700 $\mu$ m)	$(80 \pm 11)$	$(51 \pm 10)$
(1090 $\mu$ m)	$(86 \pm 11)$	$(48 \pm 4)$
CR-39 M	$(102 \pm 13)$	$(63 \pm 12)$
MAKROFOL-E	$(10 \pm 1)$	$(11 \pm 1)$

TABELA IV.10: Sensibilidade dos detector em termos de dose equivalente.

- Serie 2:** 12 detectores CR-39 produzidos pela Fershore Moulding, irradiados com nêutrons provenientes da fonte de Cf-252 (30 min.);
- Serie 3:** 6 detectores CR-39 produzidos pela American Acrylics, com  $1090 \mu\text{m}$  de espessura e irradiados na fonte de  $^{241}\text{AmBe}$  (15 min.); e
- Serie 4:** 6 detectores CR-39 produzidos pela American Acrylics, com  $1090 \mu\text{m}$  de espessura e irradiados na fonte de Cf-252 (15min.).

Todos os detectores foram irradiados na mesma posição e revelados simultaneamente.

A reprodutibilidade do método foi determinada para cada série. Os valores obtidos são mostrados abaixo:

Serie 1: 2%

Serie 2: 3%

Serie 3: 3%

Serie 4: 3%

## CAPÍTULO V

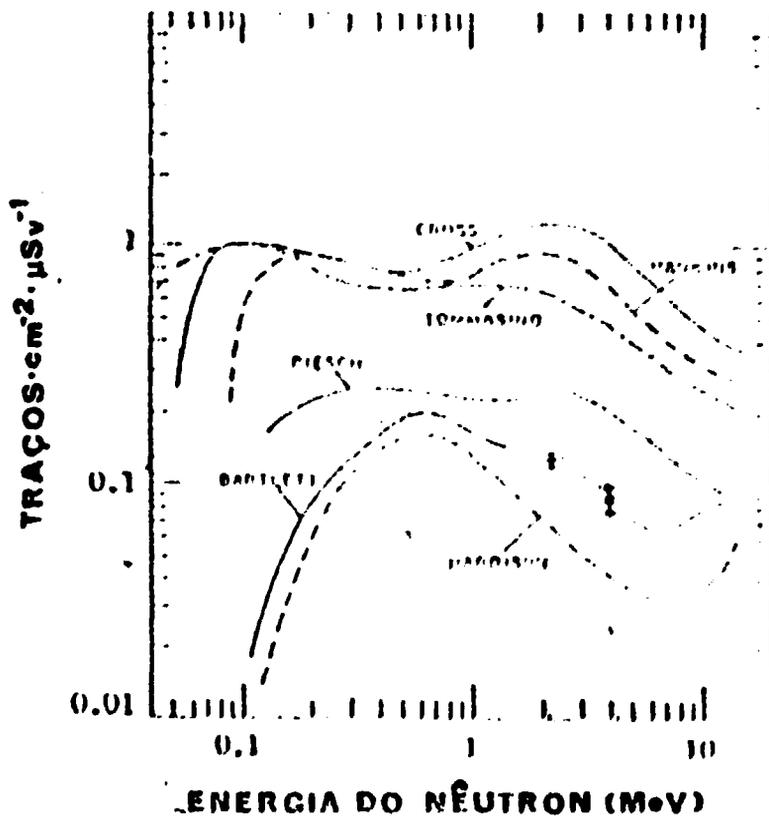
### CONCLUSÃO

Os objetivos propostos inicialmente para este trabalho, que eram o estudo dos detectores CR-39 e Makrofol-E visando a detecção de nêutrons rápidos, foram satisfatoriamente atingidos.

Na figura V.1 temos uma comparação entre as sensibilidades, em termos de dose equivalente, para diversos autores (103). Incluímos nesta figura os valores obtidos neste trabalho para o detector mais sensível estudado, o CR-39 da Pershore Mouldings. Da análise desta curva verificamos que os valores da sensibilidade para as energias estudadas estão muito próximas das obtidas por Bartlett. Os valores encontrados em nosso estudo apresentaram-se menos dependentes da energia, do que os da curva montada por Bartlett, o que é bastante interessante para aplicações deste detector em dosimetria de nêutrons.

O detector Makrofol-E, embora tenha mostrado uma sensibilidade menor que a dos detectores CR-39 apresentou características que o tornam, também, atraente para a dosimetria neutrônica. Uma destas características é a dependência com a energia dos nêutrons incidentes que se mostrou bem menos pronunciada para este detector. Este fato reforça a idéia de que o ataque eletroquímico sem pré-tratamento químico pode influenciar a resposta em energia

**RESPOSTA EM ENERGIA DO  
CR-39 REVELADO ELETROQUIMICAMENTE**



**Figura V.1:** Comparação da sensibilidade em termos de dose em função da energia do neutron incidente obtida por diferentes autores com CR-39 com revelação eletroquímica (103).

do detector e ressalta a necessidade de um estudo detalhado deste tipo de ataque para o detector do tipo CR-39, para que se possa comparar os resultados com os obtidos neste trabalho e verificar este fato.

Outra característica interessante do estudo do Makrofol-E que podemos verificar é a possibilidade de sua utilização em dosimetria de acidentes devido a ampla faixa de fluência e dose mensuráveis com este detector.

Os detectores CR-39 da American Acrylics Inc. S/A se mostraram não tão sensíveis quanto o da Pershore Mouldings. Uma observação bastante interessante que podemos tirar do estudo destes detectores é o aumento da sensibilidade com o respectivo aumento da espessura do material. Este fato nos sugere a utilização de detectores mais espessos para incrementar a sensibilidade destes detectores a nêutrons rápidos.

## BIBLIOGRAFIA

1. TOMMASINO, L. **Electrochemical etching of damaged track detectors by H.V. pulse and sinusoidal waveforms.** Rome, CNEN Casaccia, Lab. Dosimetria e Standardizzazione, 1970. (Internal reporter).
2. CARTWRIGHT, B.G.; SHIRK, E.K.; PRICE, P.B. A nuclear-track recording polymer of unique sensitivity and resolution. **Nucl. Instr. Meth.**, 153:457-60, 1978.  
===
3. GRIFFITH, R.V.; HANKINS, D.E.; GRAMMAGE, R.B., TOMMASINO, L. WHEELER, R.V. Recent development in personnel neutron dosimetry. A review. **Health Phys.**, 36:235-56, 1979.  
==
4. YOUNG, D.A. Etching of radiation damage in lithium fluoride. **Nature**, 182:375-7, 1958.  
===
5. SILK, E.C.; BARNES, R.S. Examination of fission tracks with electron microscope. **Phil.Mag.**, 4:970-2, 1959.  
=
6. PRICE, P.B.; WALKER, R.M. Electron microscope observation of etched tracks from espallation recoils in mica. **Phys. Rev. Lett.**, 8:217-9, 1962.  
=
7. FLEISCHER, R.L.; PRICE, P.B.; WALKER, R.M.; HUBBARD, E.L. Criterion for registration in dielectric track detection. **Phys. Rev.**, 156:353-5, 1967.  
===
8. WATT, S.; GREEN, P.F.; DURRANI, S.A. Studies of annealing anisotropy of fission tracks in mineral apatite using track-in-track (TINT) length measurements. **Nucl. tracks.**, 8:371-5, 1984.  
=
9. ARIAS, C.; BIGAZZI, G.; BONADONNA, F.P. Size corrections and plateau age in glass shards. **Nucl. tracks.** 5:129-36, 1981.  
=
10. AL-NAIMI, T.; EDMONDS, M.I.; FREMLIN, J.H. The distribution of lead in human teeth, using charged particle activation analysis. **Phys. Med. Biol.**, 25:719-26, 1980.  
==

11. BALCAZAR-GARCIA, M.; DURRANI, S.A. He-3 and He-4 spectroscopy using plastic solid-state nuclear track detector. **Nucl. Instrum. Methods**, 147:31-4, 1977.  
===
12. SZABO, J.; CSIKAI, J.; VARNAGY, M. Low energy cross sections for B-10(p,n)Be-7. **Nucl. Phys., A**, 195:527-33, 1972.  
==
13. TOMMASINO, L.; ARNELLINI, C. A new etching technique for damage track detectors. **Radiat. Eff.**, 20:253-5, 1973.  
==
14. FLEISCHER, R.L.; PRICE, P.B.; WALKER, R.M. **Nuclear tracks in solids: principles and applications**. California, Berkeley, 1975.
15. RUDDY, F.H.; KNOWLES, H.B.; LUCKSTEAD, S.C.; TRIPARD, G.E. Etch induction time in cellulose nitrate: a new particle identification parameter. **Nucl. Instrum. Methods**, 147:25-40, 1977.  
===
16. MARTIN, G.S.; MAZZEI, R.; BERNAOLA, O.A.; BOURDIN, J.C. Solvent effect in nuclear track development. **Nucl. Tracks Radiat. Meas.**, 13(1):71-5, 1987.  
==
17. SOMOGYI, G.; GULYAS, J. Methods for improving radiograms in plastics detectors. **Radioisotopy**, 13:549-68, 1972.  
==
18. KHOURI, M.C.; VILELA, E.C. **Ataque eletroquímico do CR-39 usando solução PEW para a detecção de nêutrons rápidos**. (Trabalho submetido a publicação).
19. BLANFORD, G.E.; WALKER, R.M.; WEFEL, I.P. Track etching parameters for plastics. **Rad. eff.**, 3:267, 1970.  
=
20. ENGE, W.; GRABISH, K.; BEAUJEAN, R.; BARTHOLOMEA, K.P. Etching behaviour of a cellulose nitrate plastic detector under various etching conditions. **Nucl. Instrum. Methods**, 115:263-70, 1974.  
===
21. GRUHN, J.A.; LI, W.K.; BENTON, E.V.; CASSOU, R.M.; JOHNSON, C.S. Etching mechanisms and behaviour of polycarbonate in hydroxide solution, lexan and CR-39. In: **Solid state nuclear track detector: proceedings of the 10th international conference on...held in Lyon, 2-6 July, 1979**. Oxford, Pergamon, 1980. p.291-302.

22. HILDERBRAND, D.; BENTON, E.V. The chemical etching behaviour of cellulose nitrate. **Nucl. tracks**, 4:77-90, 1980.  
=
23. HASHEMID-NEZHAD, S.R.; GREEN, P.F.; DURRANI, S.A.; BULL, R.K. Effect of etching conditions on the bulk-etch rate and track-etching response of CA-80-15 cellulose nitrate. **Nucl. Instrum. Methods**, 200:525-31, 1982.  
===
24. MARCHETTI, M.; TOMMASINO, L.; CASNATI, E. Damage track registration related to the thermal stability of the polimer. **Radiat. Eff.**, 21:19-24, 1973.  
==
25. BEAUJEAU, R.; ENGE, W. Isotope measurements of lights and medium cosmic ray particles in cellulose nitrate plastic detectors. In: **Nuclear photog. and solid state photogr. track detectors: proceedings of the 8th international conference on...held in Bucharest, 10-15 July, 1972.** Oxford, Pergamon, 1973. v.1, p.448-57.
26. WONG, C.F.; TOMMASINO, L. The frequency response of electrochemical etching. **Nucl. tracks**, 6(1):25-34, 1982.  
=
27. TOMMASINO, L. Etched track techniques in radiation dosimetry. **Rad. Prot. Dos.**, 17:135-8, 1986.  
==
28. TOMMASINO, L.; ZAPPAROLI, G.; GRIFFITH, R.V. Electrochemical etching I. mechanisms. **Nucl. Tracks**, 4:191-6, 1981.  
=
29. VAN BEEK, L.K.H. Dielectric behaviour of heterogeneous system. In: Birks, J.B.; Schulman, J.H. **Progress in Dielectrics**, London, Heywood & Co., 1959. p.69-85.
30. MASON, J.H. Dielectric breakdown in solid insulation. In: Birks, J.B.; Schulman, J.H., eds. **Progress in Dielectrics**. London, Heywood & Co., 1985. p.1-58.
31. SPURNY, F.; PINAK, M.; TUREK, K. On the use of CR-39 SSNTD as a fast neutron personal dosimeter. **Radiat. Prot. Dos.**, 20(1/2):81-4, 1987.  
==
32. CROSS, W.G.; TOMMASINO, L. Electrical detection of fission fragments tracks for fast neutron dosimetry. **Health Phys.**, 15:196, 1968.  
==

33. CROSS, W.G.; TOMMASINO, L. Rapid reading technique for nuclear particle damage tracks in thin foils. *Radiat. Eff.*, 5:84-9, 1970.  
=
34. CROSS, W.G.; TOMMASINO, L. Factors affecting the accuracy of spark counting of fission fragments damage track detectors. In: *Nuclear photography and solid state nuclear track detectors: proceedings of the 8th international conference on...held in Bucharest, 10-15 July, 1972.* Oxford, Pergamon. v.II, 440-49.
35. GRIFFITH, R.V. *Results of 1972 survey on track registration.* Lawrence Berkeley Lab., Berkeley, 1973. (UCRL-51-362).
36. FLEISCHER, R.L.; PRICE, P.B.; WALKER, R.M. Simple detectors for neutron or heavy cosmic ray nuclei. *Rev. Sci. Instrum.*, 37:525-7, 1966.  
==
37. CROSS, W.G.; TOMMASINO, L. Detection of low doses of fast neutrons with fission track detectors. *Health Phys.*, 13:932-3, 1966.  
==
38. BLOCK, J.; HUMPHREY, J.S.; NICHOLAS, J.E. Hole detection in polymer films and in plastic track detectors. *Rev. Sci. Instrum.*, 40:509, 1969.  
==
39. PRICE, W.J. Properties of nuclear radiation. In: ZINN, W.H.; LUNTZ, J.D., eds. *Radiation Detection.* New York, McGraw-Hill Co., 1958. cap.1, p.1-41.
40. FITZGERALD, J.J.; BROWNELL, G.L.; MAHONEY, F.J. *Mathematical theory of radiation dosimetry.* New York, N.Y., Gordon and Breach, 1967.
41. AUXIER, J.A.; SNYDER, W.S.; JONES, T.D. Neutron interactions and penetration in tissue. In: ATTIX, F.H.; ROESCH, W.C., eds. *Radiation dosimetry.* New York, N.Y., Academic, 1968. v.1 p. 275-316.
42. AHZENBERG-SEKIVEM, F.; LAURITSEN, T. Energy levels of light nuclei. VI. *Nucl. Tracks*, 11:1-7, 1959.  
==
43. LORCH, E.A. Neutron spectra of Am/B, Am/Be, Am/F, Cm/Be, Pu/C and Cf-252 isotropic neutron sources. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 24:585-91, 1973.  
==
44. BECHURTS, K.H.; WIRTZ, K.; *Neutron Physics,* Berlin, Springer, 1964.

45. GEIGER, K.W.; HARGROVE, C.K. Neutron spectrum of an AmBe (alpha, n) source, **Nucl.Phys.**, 53:204-8, 1964.  
==
46. DE PANGHER, J.; TOCHILIN, E. Neutrons from accelerators and radioactive sources. In: ATTIX, F.H.; TOCHILIN, E., eds. **Radiation Dosimetry**. 2 ed. New York, N.Y., Academic, 1969. v.3, p.309-59.
47. EVANS, R.D. Models of Nuclei. In: **The atomic Nucleus**. New York, McGraw-Hill Co., 1955. cap.11, p.357-407.
48. HENKEL, R.L., BROLLEY, J.E. Angular distribution of fragments from neutron-induced fission of U-238 and Th-232. **Phys. Rev.**, 103(9):1292-5, 1956.  
===
49. SIMONS, J.E.; HENKEL, R.L. Angular distribution of fragments in fission induced by MeV neutrons. **Phys. Rev.**, 120(1):198-210, 1960.  
===
50. WAKI, M. **Determinacao da multiplicidade de neutrons prontos emitidos na fotofissao do U-238 com fotons monocromatizados de alta resolucao** 1979. (Dissertacao de mestrado, Instituto de Fisica, Univ. Sao Paulo).
51. BAK, H.I.; LORENZ, A. Review of the current status of the U-238, Np-237 and Th-231 fission cross sections. **J. Korean Nucl. Society**, 3:77-83, 1971.  
=
52. HARRISON, K.G. **A neutron dosimeter based on Np-237 for fast neutrons**. Harwell, U.K., AERE, 1979. (AERE-R 8679).
53. CROSS, W.G.; ING, H. The use of Np-237 in personal dosimeters for fast neutrons. **Health Phys.**, 28:511-20, 1975.  
==
54. HARVEY, J.R.; WEEKS, A.R. A neutron dosimetry system based on the chemical etch of CR-39. **Nucl. Tracks**, 12(1/6):629-32, 1986.  
==
55. SOHRABI, M.; MORGAN, K.Z. A new polycarbonate fast neutron personnel dosimeter. **Am. Ind. Hyg. Assoc. J.**, 39:438-47, 1978.  
==
56. TOMMASINO, L.; ZAPPAROLI, G.; GRIFFITH, R.V.; DJEFFAL, S.; SPIEZIA, P. Personal neutron dosimetry by CR-39 plastics with chemical etching, electrochemical etching and their combination, **IN: Radiation Protection Association: proceedings of the 6th international congress on...held in Berlin, 7-12 May, 1984**. Koeln, Compacts ISBN. v.3, p.1201-4.

57. CARPENTER, B.S. Determination of lithium and lithium-6 in solutions by nuclear tracks technique. *Anal. Chem.*, 52:2452-4, 1980.  
==
58. QAIM, S.M.; WOLFLE, R. Triton emission in the interaction of fast neutrons with nuclei. *Nucl. Phys. A*, 295:150-62, 1978.   
===
59. CARPENTER, B.S.; LA FLEUR, P.D. Observing proton tracks in cellulose nitrate. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 23:157-9, 1972.   
==
60. GARBER, D.I.; KINSEY, R.R. *Neutron cross sections v.II. Curves* Springfield, NTIS, 1976. (BNL-325)
61. HOOTON, B.W.; HAQUE, A.V.; BESANT, C.B. Response of solid state track recorders to neutrons. II. Theory and assessment. *Nucl. Instrum. Methods*, 197:443-8, 1982.   
===
62. MUGHABGHAB, S.F.; GARBER, D.I. *Neutron cross sections, v.I: resonance parameters*. Springfield, NTIS, 1973. (BNL - 325).
63. FLEISCHER, R.L.; PRICE, P.B.; WALKER, R.M. *Nuclear tracks in solids: principles and applications*. Berkeley, University of California, 1975.
64. SOMOGYI, G. Development of etched nuclear tracks. *Nucl. Instrum. Methods*, 173:21-42, 1980.   
===
65. HAQUE, A.V.; BESANT, C.B.; HOOTON, B.W. Solid state nuclear track detectors in reactor physics problems. In: *Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 10th on, July international conference on...held in Lyon, 2-6 July, 1979*. Oxford, Pergamon, 1980. p.549-51.
66. HARRISON, K.G.; HANCOCK, I.B. *A neptunium dosimeter and spark-counting system for routine personnel monitoring* Harwell, U.K., AERE, 1978. (report N. AERE-R8951).
67. SOMOGYI, G.; MEDVECZKY, L.; HUNYADI, I.; NYAKO, B. Automatic spark counting of alpha-tracks in plastics foils. *Nucl. Track Detect.*, 1:131-8, 1977.   
=
68. GRIFFITH, R.V.; THORNGATE, J.H.; DAVIDSON, K.J.; RUEPPEL, D.W.; FISHER, J.C.; TOMMASINO, L.; ZAPPAROLI, G. Monoenergetic neutron response of selected etch plastics for personnel neutron dosimetry. *Rad. Prot. Dos.*, 1:61- , 1981.   
=
69. ANDRADE, C. Comunicação pessoal.

70. HILDERBRAND, D.; BENTON, E.V. The chemical etching behaviour of cellulose nitrate. *Nucl. Tracks*, 4:77-90, 1980.  
=
71. BESANT, C.B.; OAOISH, A.H.; VARGA, B.B. Detection efficiency and range measurements of alpha and protons in cellulose nitrate. *Rad. eff.*, 34:67- , 1977.  
==
72. SPURNY, F.; TUREK, K.; LUCK, H.B. Neutron dosimetry with a proton sensitive cellulose nitrate. In: *solid state nuclear track detectors: proceedings of the 10th international conference on...held in Lyon, 2-6 July, 1979*. Oxford, Pergamon, 1980. p.585-90.
73. MEDIONI, R.; BORDY, J.M. Cendos neutron irradiations of Kodak CN-85. In: *PIESCH, E. Neutron irradiations of proton-sensitive track etch detectors: results of the joint european/USA/canadian irradiations*. Karlsruhe, Kernforschungszentrum, Sep. 1987. p.17-22. (KFK-4305).
74. VILELA, E.C.; ANDRADE, C.; KHOURI, M.C. Deteccao de neutrons termicos e rapidos com detectores de tracos. In: *ASSOCIACAO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR. Energia Nuclear: anais do terceiro congresso geral de ...realizado no Rio de Janeiro, 22 a 27 de abril, 1990*. Rio de Janeiro, 1990.
75. HASHEMI-NEZHAD, S.R.; GREEN, P.E.; DURRANI, S.A.; BULL, R.K. Effect of etching conditions on the bulk-etch rate and track-etching response of CA-80-15 cellulose nitrate. *Nucl. Instrum. Methods*, 200:521-31, 1982.  
===
76. COTTER, S.J.; GAMMAGE, R.B.; THORNGATE, J.U. Comparison of fast neutron induced tracks in plastics using the electrochemical etching method. *Health Phys.*, 37:365-77, 1979.  
==
77. GAMMAGE, R.B.; CHOWDHURY, A. Electrochemical etching of fast neutron induced recoil tracks in cellulose triacetate. *Nucl. Tracks*, 4:41-7, 1980.  
=
78. SOMOGYI, G.; HUNYADI, I. Etching properties of the CR-39 polymer nuclear track detector. In: *Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 10th international conference on...held in Lyon, 2-6 July, 1979*. Oxford, Pergamon, 1980. p.443-52.
79. BENTON, E.V.; FRANCK, A.L.; OSVALD, R.A.; WHEELER, R.V. Photon recording neutron dosimeter for personnel monitoring. In: *Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 10th international conference on... held in Lyon, 2-6 July, 1979*. Oxford, Pergamon, 1980. p.469-75.

80. BENTON, E.V.; FRANK, A.D.; OSVALD, R.A.; WHEELER, R.V.  
Proton recoil neutron dosimeter for personnel monitoring.  
**Health Phys.**, 40:801-9, 1981.  
==
81. FONSECA, E.S. **Algumas características do detector solido de tracos CR-39 para registro de protons e particulas alfa de baixa energia.** Rio de Janeiro, 1983. (Dissertacao de mestrado, Centro Brasileiro de Pesquisas Fisicas).
82. TOMMASINO, L.; ZAPPAROLI, G.; DJEFFAL, S.; GRIFFITH, R.V.  
A simple and sensitive fast neutron dosimeter using CR-39.  
In: **Personnel Neutron Dosimetry: proceedings of the 10th DOE workshop on...held in Acapulco, August 30 - September 1th 1983.** Richland, Wa, Batelle Memorial Institute, 1984. p. 141-55.
83. TURNER, T.W.; HENSHAW, D.L.; FEWS, P.A. A CR-39 neutron spectrometer of sensitivity 1 rem in the energy range 100 keV to 20MeV with personnel dosimetry application. In: **Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 12th international conference on...held in Acapulco, 4-10 September, 1983.** Oxford, Pergamon, 1984. p.341-4.
84. HARVEY, J.R.; WEEKS, A.R. A study of proton-induced chemically-etched pits in CR-39 and the implications for neutron dosimetry. In: **Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 12th international conference on...held in Acapulco, 4-10 September, 1983.** Oxford, Pergamon, 1984. p.307-11.
85. RAMLI, A.G.; DURRANI, S.A. A flat dose equivalent response dosimeter for fast neutron using CR-39 - I.experimental, II.mathematical model. In: **Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 12th international conference on...held in Acapulco, 4-10 September, 1983.** Oxford, Pergamon, 1984. p.327-9.
86. SOHRABI, M.; MORGAN, K.Z. A new polycarbonate fast neutron personnel dosimeter. **Am. Ind. Hyg. Assoc. J.**, 39:438-47, 1978.  
==
87. HARVEY, J.R.; WEEKS, A.R. A neutron dosimetry system based on the chemical etch of CR-39. **Nucl. Tracks**, 12(1/6):629-32, 1986.  
==
88. SPURNY, F.; TUREK, K. Polymer solid state nuclear track detectors in neutron dosimetry. **Radiat. Prot. Dosim.**, 1:51-9, 1981.  
=
89. AL-NAJJAR, S.A.R.; PIESCH, E. Angular response characteristic of a CR-39 detector of cylindrical geometry. **Radiat. Prot. Dos.**, 20(1/2):67-70, 1987.  
==

90. MATIULLAH; DURRANI, S.A. A cubical fast neutron dosimeter based on electrochemically etched CR-39 detectors with polymeric front radiator. **Radiat. Prot. Dos.**, 20(1/2):77-80, 1987.  
==
91. DECOSSAS, J.L.; SADAQA, S.; VAREILLE, J.C.; MAKOVICKA, L.; TEYSSIER, J.L. Theoretical study of the contribution of a radiator to the sensitivity of a rapid neutron dosimeter. **Nucl. Tracks**, 12(1-6):543-6, 1986.  
==
92. KUKREJA, L.M. Studies on laser cutting of plastic track detector sheets and its effects on track revelation properties. **Nucl. Tracks.**, 9(3/4):199-208, 1984.  
=
93. SOHRABI, M.; SHIRAZI, K.M. Optimization of etchant for electrochemical etching of tracks in polycarbonate neutron personnel dosimeters. **Nucl. Tracks Radiat. Meas.**, 8:(1/4):117-20, 1984.  
=
94. RAMLI, A.G.; DURRANI, S.A. Electrochemical etching of CR-39: optimization of parameters for the processing of neutron-irradiated samples. In: **Solid state nuclear track detectors: proceedings of the 11th international conference on...held in Bristol, 7-12 September, 1981.** Oxford, Pergamon, 1982. p.237-40.
95. CESAR, M.F.; FRANCO, M.A.R. Some studies on the registration of particles on Makrofol-E. **Nucl. Tracks**, 12(1/6):193-6, 1986.  
==
96. SOHRABI, M. Electrochemical etching of fast neutron recoil tracks: the effects of field strength and frequency. **Nucl. Tracks**, 4:131-40, 1980.  
=
97. SOMOGYI, G.; DAJKO, G.; TUREK, K.; SPURNY, F. Measurement of low neutron-fluences using electrochemically etched PC and PET track detectors. **Nucl. Tracks**, 3:125-32, 1979.  
=
98. WONG, C.F.; TOMMASINO, L. The frequency response of electrochemical etching. **Nucl. Tracks**, 6(1):25-34, 1982.  
=
99. HASSIB, G.M.; PIESCH, E. Electrochemical etching of neutron-induced tracks in plastic detectors using a 50 Hz electric supply. **Nucl. Instrum. Methods**, 154:377-81, 1978.  
===

100. BARTLETT, D.T.; STEELE, J.D.; STUBBERFIELD, D.R. Development of a single element neutron personal dosimeter for thermal, epithermal and fast neutrons. Nucl. Tracks, 12:645-51, 1986.  
--
101. PIESCH, E.; ALL-NAJJAR; NINOMIYA, K. Neutron dosimetry with CR-39 track detectors using electrochemical etching: recent improvements, dosimetric characteristics and aspects of routine application Radiat. Prot. Dos., 27(4):215-30, 1989.
102. HARVEY, J.R. The individual monitoring quantity for neutrons and its relationship with fluence. Radiat. Prot. Dosim., 20:19-24, 1987.  
--
103. CROSS, W.G.; ARNELA, A.; KIM, J.L. The neutron energy and angular response of electrochemically etched CR-39 dosimeters Radiat. Prot. Dosim., 20(1/2):49-55, 1987.  
--
105. PIESCH, E. Neutron irradiations of proton-sensitive track etch detectors: results of the joint european/USA/CANADIAN, irradiations Karlsruhe, Keinforschungszentrum, September 1987. (KFK-4305)