



22 a 27 de abril de 1990

ANAIS - PROCEEDINGS

## DETECÇÃO DE NÊUTRONS TÊRMICOS E RÁPIDOS COM DETECTORES DE TRAÇOS

Eudice Correia Vilela  
 Cleber de Andrade  
 Marília Cesar Khouri

Divisão de Física Nuclear  
 Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares  
 Comissão Nacional de Energia Nuclear - SP

SUMÁRIO

A detecção de nêutrons térmicos e rápidos com SSNTD (Solid State Nuclear Track Detectors) está sendo estudada em nosso laboratório de modo a ser utilizada em dosimetria e medidas de fluência.

Os nêutrons térmicos são detectados por meio do registro de partículas alfa produzidas por reações nucleares em conversores de boro ou lítio. Os filmes detectores usados foram: LR-115, CN-85, Makrofol E e CR-39. Na detecção de nêutrons rápidos usamos o Makrofol E e o CR-39. Neste caso são registrados os traços de recuo de núcleos constituintes do detector ou de radiador externo. As condições de revelação foram determinadas. Os filmes utilizados na detecção de nêutrons térmicos foram revelados quimicamente e os detectores de nêutrons rápidos eletroquimicamente.

Foi verificada a linearidade da resposta dos detectores, suas sensibilidades, fluência máxima e mínima mensuráveis.

ABSTRACT

Thermal and fast neutron detection with SSNTDs have been studied in our laboratory in order to be used in neutron dosimetry and fluence measurements.

Thermal neutrons are detected using alpha sensitive plastics to register the products of nuclear reaction taking place in boron or lithium converters. The plastics used are: LR-115, CN-85, Makrofol E and CR-39. Fast neutrons can produce tracks by causing nuclei to recoil elastically either within the detector or from an external radiator foil. We have used CR-39 and Makrofol E as detector and radiator. The etching conditions have been determined. Chemical and electrochemical etching process were used for thermal and fast neutron detectors respectively.

The linearity, the sensibility, the maximum and minimum fluence measurable of each detector were verified.

## INTRODUÇÃO

### Detectores de Traços

A história dos detectores de traços começou em 1958 quando D.A. Young <sup>(1)</sup> descobriu que cristais de LiF mantidos em contacto com folhas de urânio e irradiados com nêutrons térmicos mostravam "buracos" após tratamento químico. O número destes "buracos" tinha correspondência com o número de fragmentos de fissão que teriam sido recolhidos no cristal a partir da folha de urânio.

Em 1959 Silk e Barnes <sup>(2)</sup> publicaram o resultado de observações semelhantes porém em mica e utilizando microscópio eletrônico.

A partir daí nas três décadas que se seguiram os detectores de traços (em inglês Solid State Nuclear Track Detectors - SSNTD) têm sido muito utilizados em vários <sup>(3)</sup> campos como: Física Nuclear, Raios Cósmicos, Geocronologia, etc <sup>(3)</sup>.

Partículas ionizantes pesadas passando através de meios isolantes deixam uma trilha (3-10 nm) de danos. Em cristais esta trilha consiste em deslocamentos atômicos manifestando-se como interstícios e vacâncias. Nos plásticos os danos produzem quebra de moléculas, radicais livres, etc <sup>(4)</sup>.

Certos reagentes químicos dissolvem ou degradam estas regiões danificadas numa razão muito maior do que o material não danificado. A trilha é então ampliada pela solução atacante formando um "buraco". Este "buraco" ou traço pode ser aumentado até ficar visível em um microscópio óptico. Em uma primeira aproximação a formação do traço pode ser vista como ocorrendo quando o número de íons formados excede um certo valor limiar. Este limiar varia de um tipo de material para outro. Alguns plásticos são sensíveis mesmo para registrar prótons de baixa energia enquanto que a mica só registra fragmentos de fissão.

Mesmo altas doses de elétrons e fótons tem relativamente pequeno efeito nos SSNTDs.

### Nêutrons

Nêutrons sendo partículas sem carga elétrica não podem produzir ionização diretamente e são usualmente detectados pelos produtos de reações nucleares. Os métodos usados para detectar nêutrons dependem da sua energia, sendo, portanto, conveniente considerar separadamente os nêutrons térmicos, com energia menor do que 0,4 eV, os nêutrons intermediários, com energia entre 0,4 eV e 100 keV, e os nêutrons rápidos.

Utilizando-se detectores de traços existem dois métodos para registrar nêutrons térmicos: (1º) pelo registro de traços de fissão (2º) pelo registro de partículas alfa.

Neste trabalho fizemos um estudo sobre a detecção de nêutrons térmicos e rápidos utilizando detectores sólidos de traços.

No primeiro caso os sistemas de detecção usualmente utilizam o fato de que o  $^{235}\text{U}$  sofre fissão induzida por nêutrons térmicos com uma secção de choque de 580b. No caso de ser utilizado o urânio natural o limite inferior será estabelecido pelo registro dos traços de fissão espontânea do  $^{238}\text{U}$ . Este limite porém pode ser melhorado utilizando urânio enriquecido em  $^{235}\text{U}$ . Entretanto quando a finalidade é dosimetria pessoal não é recomendável um dosímetro contendo material radioativo.

Este problema e o dos traços de "background", devido à fissão espontânea,

podem ser totalmente superados pelo uso do 2º método, trocando-se o material fissil por um isótopo como o  $^{10}\text{B}$  que tem uma secção de choque de 3840 barns, para a reação  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ , com nêutrons térmicos. Mesmo o boro natural que contém cerca de 20% de  $^{10}\text{B}$  é suficiente.

Outra reação comumente utilizada é  $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$  sendo o  $^6\text{Li}$  7,5% do lítio natural. Na tabela 1 estão os parâmetros para as reações (n, $\alpha$ ), para estes isótopos.

Tabela 1 - Parâmetros para a reação (n, $\alpha$ ) com  $^6\text{Li}$  e  $^{10}\text{B}$ .

Reação	$E_\alpha$ (MeV)	$E$ (2ª part) (MeV)
$^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$	2,05	2,73
$^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}^m$	1,47	0,84
$^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$	1,78	1,01

Em energias mais altas os nêutrons podem transferir quantidades significativas de energias para partículas carregadas via reações (n,p), (n, $\alpha$ ) e espalhamento elástico de núcleos do material detector. Nos plásticos usualmente utilizados como detectores há uma grande densidade de átomos de hidrogênio predominando, então, os traços de recuo destes átomos.

## PARTE EXPERIMENTAL

### Detectores e Conversores

Os filmes utilizados neste estudo foram: LR-115, CN-85, Makrofol E e CR-39.

Os detectores LR-115 e CN-85, de nitrato de celulose são fabricados pela Kodak Pathé, França. O LR-115 tem espessura de 12  $\mu\text{m}$  sobre um suporte de poliéster de 100  $\mu\text{m}$ . O CN-85 tem 100  $\mu\text{m}$  de espessura e é utilizável em ambas as faces. Ambos, LR-115 e CN-85, são fornecidos também já com um conversor de trabalho de lítio depositado sobre o filme e neste caso são indicados pela letra B.

O Makrofol E é um policarbonato fabricado pela Bayer, tem só uma face sensível que é brilhante, a outra face é rugosa. O Makrofol E utilizado neste trabalho tem 200  $\mu\text{m}$  de espessura.

O CR-39 é um polímero muito utilizado para aplicações ópticas (lentes). Nós usamos o material fabricado pela Pershore Mouldings, Inglaterra, com 500  $\mu\text{m}$  de espessura.

Além dos filmes tipo B foram verificados os resultados com os conversores: BN fabricado pela Kodak e LiF em forma de pastilha fabricada no IPEN com 1 mm de espessura.

### Irradiações

Para o estudo com nêutrons térmicos as irradiações foram feitas utilizando uma fonte de  $^{252}\text{Cf}$  colocada na posição central de um tambor preenchido com parafina. O arranjo pode ser visto na figura 1. O fluxo térmico foi medido

nas posições de irradiação e os resultados fornecidos pelo Laboratório de Metrologia Nuclear do IPEN estão na tabela 2.

Tabela 2 - Valor dos fluxos e razão de cádmio medidos pela ativação de folhas de ouro em cada posição de irradiação do arranjo experimental da figura 1.

Posição	Fluxo Térmico ( $n/cm^2/s$ )	Rcd	Erro (%)
1	$6,46 \times 10^4$	12,4	2,5
2	$6,48 \times 10^4$	14,0	2,5
3	$6,35 \times 10^4$	12,6	2,5

Foram feitas irradiações dos filmes cobertos por cádmio de 1 mm de espesura para verificar a fração de nêutrons, com energia acima de 0,4 eV, detectada e o resultado foi de 3% para o LR-115 B.

As irradiações com nêutrons rápidos foram feitas no ar na posição central de uma sala especial para irradiações com nêutrons, no Instituto de Física da USP, utilizando fontes de  $^{252}Cf$  ( $\bar{E}_n = 2,1$  MeV) e AmBe ( $\bar{E}_n = 4,3$  MeV).

#### Revelação

Os filmes irradiados com nêutrons térmicos foram revelados quimicamente tendo inicialmente sido determinados os melhores tempos de revelação de modo a se ter traços nítidos em microscópio óptico e ao mesmo tempo ter um "background" inerente ao filme não muito grande. Os filmes são revelados submersos na solução reveladora, em tubos de ensaio mantidos a temperatura constante em banho-maria. As condições de revelação estão na tabela 3.

Tabela 3 - Condições escolhidas para revelação química dos filmes utilizados na detecção de nêutrons térmicos.

Detector	Solução - Concentração - Temperatura	Tempo (min)
LR-115	NaOH 10% 60 °C	125
CN-85	NaOH 10% 60 °C	130
CR-39	NaOH 6,25 N 70 °C	360
Makrofol E	KOH 15% H <sub>2</sub> O 45% C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH 40% 70 °C	50

Nas medidas com nêutrons rápidos o CR-39 foi pré revelado quimicamente em NaOH 20% a 70 °C por uma hora e então revelado eletroquimicamente na mesma solução a temperatura ambiente tendo um campo pulsado aplicado de  $30 \text{ kVcm}^{-1}$ , 2 kHz, durante 13 horas.

O Makrofol E no caso de nêutrons rápidos foi revelado só por ataque eletroquímico em solução PEW (KOH 15%, H<sub>2</sub>O 45% e C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH 40%)  $40 \text{ kVcm}^{-1}$ , 2kHz por 2 horas a temperatura ambiente.

Após a revelação os filmes são lavados em água corrente e deixados para secar.

#### Avaliação dos Detectores

A densidade de traços em cada detector é determinada contando o número de traços em uma área conhecida.

Para os filmes detectores de nêutrons térmicos as contagens foram feitas em microscópio. No caso dos detectores revelados eletroquimicamente as contagens foram feitas em um anteparo utilizando-se um projetor de slides.

O aspecto dos traços no microscópio pode ser visto nas figuras 2 e 3.

#### RESULTADOS E CONCLUSÕES

Inicialmente foram determinados os tempos de revelação adequados para todos os detectores, para isto foram revelados por vários tempos filmes irradiados e não irradiados. As condições escolhidas são as que constam da tabela 2.

Em seguida foi verificada a linearidade da resposta com o tempo de irradiação. Com o aumento da densidade de traços a partir de um certo valor a resposta deixa de ser linear por dois motivos: (1º) acima de um certo valor da densidade de traços começa haver sobreposição de traços de modo apreciável e (2º) a contagem torna-se mais difícil e o erro na leitura aumenta.

Define-se uma fluência máxima registrável pelo detector como a correspondente ao limite superior da densidade de traços, ou seja aproximadamente  $1,5 \times 10^5$  traços/cm<sup>2</sup>, para o ataque químico, e  $10^4$  traços/cm<sup>2</sup>, para o ataque eletroquímico. A fluência mínima corresponde à densidade de traços igual a duas vezes o desvio padrão das medidas de background. Este valor depende da idade do detector e deve ser determinado para cada remessa de material recebida. As fluências máxima e mínima são funções das condições de revelação. Na tabela 4 estão os valores obtidos para as fluências mínima e máxima. Quando são usados conversores o material é indicado entre parenteses.

Tabela 4 - Valores das fluências mínima e máxima detectáveis.

Detector	Fluência Mínima (n/cm <sup>2</sup> )	Fluência Máxima (n/cm <sup>2</sup> )	
Nêutrons Térmicos	LR-115 B	$9,2 \times 10^4$	$1,8 \times 10^8$
	LR-115 (BN)	$2,2 \times 10^5$	$6,0 \times 10^7$
	LR-115 (LiF)	$1,7 \times 10^5$	$4,4 \times 10^8$
	CN-85 B	$2,2 \times 10^5$	$3,8 \times 10^8$
	CN-85 (BN)	$2,1 \times 10^4$	$5,2 \times 10^7$
	CN-85 (LiF)	$1,7 \times 10^5$	$4,2 \times 10^8$
	Makrofol E (BN)	$3,4 \times 10^4$	$7,9 \times 10^7$
	Makrofol E (LiF)	$6,4 \times 10^5$	$1,5 \times 10^9$
	CR-39 (BN)	$2,9 \times 10^4$	$9,4 \times 10^7$
	CR-39 (LiF)	$6,9 \times 10^4$	$2,2 \times 10^8$
Nêutrons Rápidos	Cr-39	$5,0 \times 10^4$	$1,2 \times 10^8$
	Makrofol E	$3,3 \times 10^6$	$1,7 \times 10^9$

A partir dos resultados obtidos e dos fluxos medidos nas posições de irradiação foram calculadas as sensibilidades de cada detector.

Os resultados estão na tabela 5.

Tabela 5 - Sensibilidades

Detector		Sensibilidade (traços/nêutron)	
Nêutrons Térmicos	LR-115 B	$(8,5 \pm 0,9) \times 10^{-4}$	
	LR-115 (BN)	$(2,5 \pm 0,3) \times 10^{-3}$	
	LR-115 (LiF)	$(3,4 \pm 0,3) \times 10^{-4}$	
	CN-85 B	$(4,0 \pm 0,4) \times 10^{-4}$	
	CN-85 (BN)	$(2,9 \pm 0,3) \times 10^{-3}$	
	CN-85 (LiF)	$(3,6 \pm 0,2) \times 10^{-4}$	
	Makrofol E (BN)	$(1,9 \pm 0,2) \times 10^{-3}$	
	Makrofol E (LiF)	$(1,0 \pm 0,1) \times 10^{-4}$	
	CR-39 (BN)	$(1,6 \pm 0,1) \times 10^{-3}$	
	CR-39 (LiF)	$(6,7 \pm 0,2) \times 10^{-4}$	
		Cf-252	Am-Be
Nêutrons Rápidos	Makrofol E	$(6,0 \pm 0,8) \times 10^{-6}$	$(6,6 \pm 0,9) \times 10^{-6}$
	CR-39	$(8 \pm 1) \times 10^{-5}$	$(5,5 \pm 0,7) \times 10^{-6}$

Analisando os resultados podemos verificar que na detecção de nêutrons térmicos os detectores CN-85, Makrofol E e CR-39 são os mais sensíveis quando usados com conversor BN. Dentre esses materiais o Makrofol E e o CR-39 são os que apresentam traços mais nítidos e mais fáceis de serem contados em microscópio. O intervalo de doses em que o CR-39 (BN) pode ser utilizado está entre  $0,2 \mu\text{Sv}$  e  $800 \mu\text{Sv}$ . Para a detecção de nêutrons rápidos o CR-39 é o mais indicado podendo ser usado entre  $19 \mu\text{Sv}$  e  $46 \mu\text{Sv}$ . Os fatores utilizados para converter fluência em dose são os valores publicados por Harvey<sup>(5)</sup>.

#### REFERÊNCIAS

1. Young, D.A. Etching of radiation damage in lithium fluoride. Nature 182, 375-7 (1958).
2. Silk, E.C.H. and Barnes, R.S. Examination of fission fragments tracks with an electron microscope. Phil. Mag 4, 970-2 (1959).
3. Fleischer, R.L.; Price, P.B. and Walker, R.M. Nuclear Tracks in Solids, University of California Press, Berkeley, 1975.

4. Durrani, S.A. and Bull, R.K. Solid State Nuclear Track Detection Pergamon Press, 1987.
5. Harvey, J.R. The individual monitoring quantity for neutrons and its relationship with fluence.  
In: Radiat. Prot. Dosim 20, 19-24 (1987).

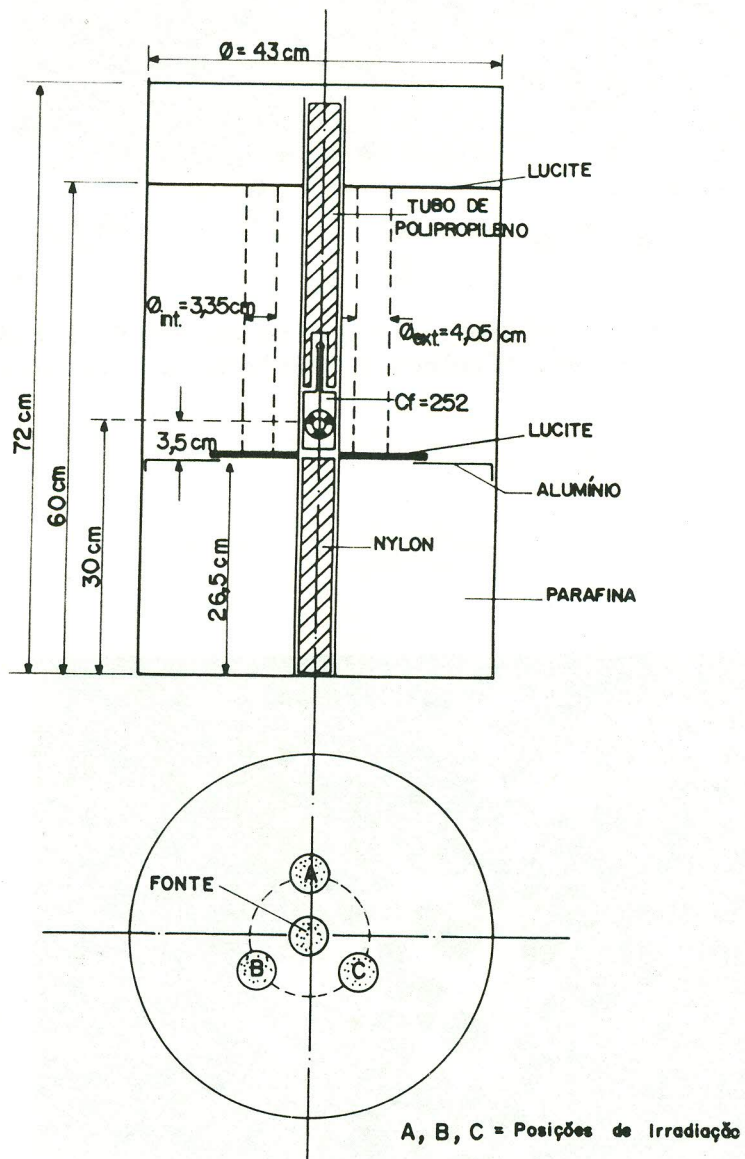


Fig. 1. Arranjo experimental para irradiação com nêutrons termalizados de uma fonte de  $^{252}\text{Cf}$ .

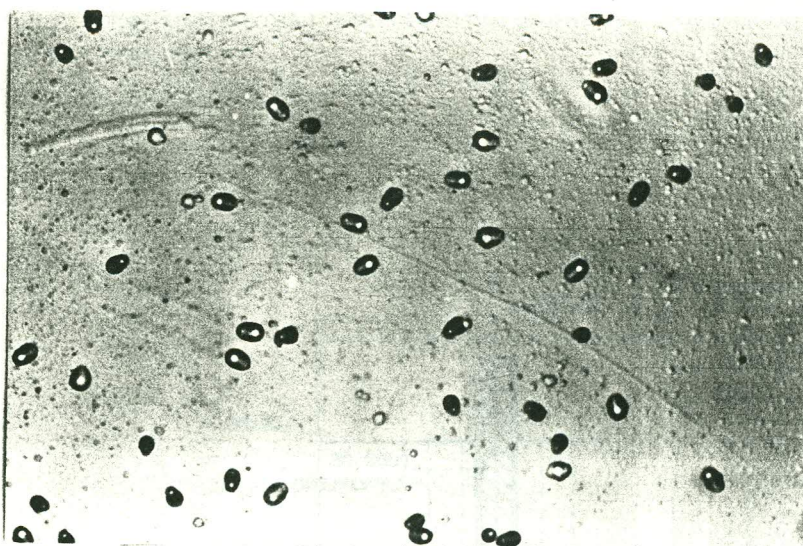


Fig. 2. Aspecto em microscópio óptico do CN-85B irradiado com nêutrons térmicos e revelado quimicamente.

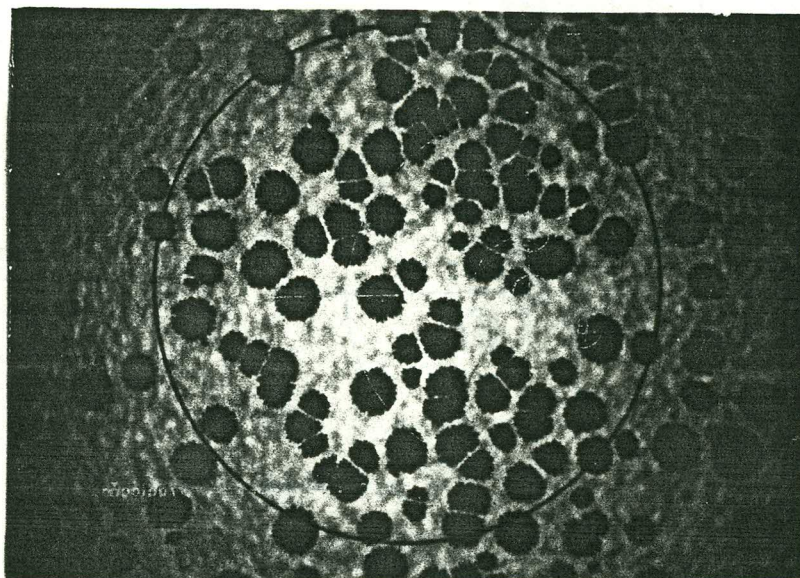


Fig. 3. Aspecto em microscópio óptico do Makrofol E irradiado com nêutrons rápidos e revelado eletroquimicamente.