"Otimização de um sistema de detecção da atividade alfa do 222 Rn e filhos no ar ambiental e comparação entre este sistema, que utiliza o CR-39 como detector e outro, que utiliza o LR-115".

Aluno: Osvaldo Luiz dos Santos Pereira

Orientador: Dr. Pedro José Iunes

SUMÁRIO

	Р	ág.
Ι	RESUMO	. 1
Π	APROFUNDAMENTO BILIOGRÁFICO	. 1
1.	Radioatividade	1
	1.1. Introdução	1
	1.2. Energia de Ligação	2
	1.3. Reações Nucleares e Q-Valores	3
	1.4. Decaimento Alfa	4
2.	Radônio	6
	2.1. Características Principais	6
	2.2. Filhos do Radônio	7
3.	Dosimetria e Monitorização de atividade alfa	8
	3.1. Motivação	8
	3.2. Inferência e Resultados	9
	3.3. Técnica Utilizada	.10
	3.4. CR-39	.12
4.	Metodologia	14
	4.1. Montagem experimental	.14
	4.2. Detector Interno	.15
	4.3. Detector Externo	.16
	4.4. Plate Out	.18
	4.5. Contagem de Traços e Background	.19
5.	Formação de traços	21
	5.1. Interação com a matéria	.21
6.	Novo ataque químico	.22
	6.1. Irradiação (Exposição dos CR-39)	.22
	6.2. Solução SMW Otimizada	.23
Ш	CONCLUSÃO	30
IV	APÊNDICE	31
V	Bibliografia	36

I RESUMO

Neste Relatório, foi realizado um aprofundamento da bibliografia citada no projeto de iniciação científica. Um resumo das bibliografias estudadas será apresentado, ressaltando os tópicos mais relevantes à iniciação científica.

Dentro projeto, foi proposto um estudo de uma nova solução otimizada que diminuía o tempo de ataque aos CR-39. O ataque foi estudado e serão apresentados os resultados, juntamente com a crítica ao artigo do grupo paquistanês que o propôs.

II APROFUNDAMENTO BILIOGRÁFICO

1. Radioatividade

1.1. Introdução

Devido ao tamanho muito pequeno do núcleo em relação ao átomo, está submetida a ação das duas das interações mais fortes na natureza, Força Nuclear Forte e a Força Eletrostática, a superposição dessas duas forças aliadas a complexidades dos núcleos, faz com que alguns elementos, tenham a tendência de buscar estados de maior estabilidade.

A radioatividade é um fenômeno de transição de estados quânticos, sendo que em ciências nucleares, esse estado inicial é chamado de Núcleo Pai, e o estado quântico depois da transição, Núcleo Filho^{*}.

Para que ocorra tal transição de estados, é necessário se pagar um preço, e esse preço é a Energia de Transição, liberada para que o núcleo instável busque uma configuração mais estável. Essa energia é liberada ou em forma de energia cinética, carregada por partículas nucleares, como partículas alfa (α), beta (β), ou em forma de ondas eletromagnéticas, os raios gama.

^{*} Na literatura especializada no estudo de medida de atividade e concentração de radionuclídeos, referem-se aos núcleos filho, como Daughters ou Progeny.

1.2. Energia de Ligação

O núcleo de um átomo ${}^{A}_{Z}X$ é formado por Z prótons e (A-Z) nêutrons, prótons e neutros são comumente chamados de nucleons, para garantir a neutralidade de carga do tomo há Z elétrons com região bem definida de probabilidade para posição em torno do núcleo.

(eq. 1.2.1)
$$Zp + (A - Z)n \rightarrow nicleo({}^A_Z X) + BE$$

A equação acima mostra a formação do núcleo pelos seus constituintes, BE é a energia de ligação que mantêm o núcleo coeso. A energia de ligação é determinada pela diferença de massa entre produto e nucleons, pela seguinte equação:

(eq. 1.2.2)
$$\Delta M = \frac{BE}{c^2} = Zm_p + (A - Z)m_n - m\binom{A}{Z}X$$

- $\Delta M \rightarrow$ Defeito de massa $m_p \rightarrow$ Massa do próton
- $m_n \rightarrow Massa \text{ do nêutron}$ $m\binom{A}{Z} \rightarrow Massa \text{ nuclear}$

$c \rightarrow$ Velocidade da luz.

Como o átomo possui elétrons, existe um análogo da energia de ligação dos nucleons, chamado energia de ionização, ou seja, energia necessária para remover todos os elétrons do átomo. É possível relacionar a energia de ionização com a massa nuclear a massa do elétron (m_e) e a massa atômica ($M(_{z}^{A}X)$), pela seguinte equação:

(eq. 1.2.3)
$$M\binom{A}{Z} = Zm_e + m\binom{A}{Z} + \frac{BE_{Ze}}{c^2}$$

Geralmente essas energias de ionização são milhares de ordens de grandezas menores que as energias de ligação dos nucleons, de forma que podemos desprezá-la, nos cálculos de defeito de massa. Como apenas as massas atômicas são conhecidas com precisão podemos exprimir a equação do defeito de massa em função das massas atômicas de átomos de hidrogênio (próton + elétron) e do núcleo em questão.

(eq. 1.2.4)
$$\frac{BE}{c^{2}} = Z \left[M \binom{1}{1} H - m_{e} + \frac{BE_{1e}}{c^{2}} \right] + (A - Z)m_{n} - \left[M \binom{A}{Z} X - Zm_{e} + \frac{BE_{Ze}}{c^{2}} \right]$$

(eq. 1.2.5)
$$\frac{BE}{c^2} = ZM \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} + (A - Z)m_n - M \begin{pmatrix} A \\ Z \end{pmatrix} - \frac{1}{c^2} [ZBE_{1e} - BE_{Ze}]$$

O ultimo termo é equivalente à diferença de massa entre a energia de ligação de Z elétrons de átomos de hidrogênio e da energia de ligação dos Z elétrons do núcleo, apesar dessas energias não serem conhecidas geralmente, podemos desprezá-las no calculo, pois elas tendem a se cancelar, e por que essas energias possuem milhares de ordens de grandeza a menos que as massas de repouso dos átomos (em MeV/c^2). De tal forma que a equação acima é simplificada para:

(eq. 1.2.6)
$$\frac{BE}{c^2} = ZM \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} + (A - Z)m_n - M \begin{pmatrix} A \\ Z \end{pmatrix}$$

1.3. Reações Nucleares e Q-Valores

Em qualquer reação nuclear deve haver conservação de energia e momentum, onde temos que:

(eq. 1.3.1)
$$\sum_{i} \left[E_{i} + m_{i}c^{2} \right] = \sum_{i} \left[E_{i}^{'} + m_{i}^{'}c^{2} \right]$$

Onde E é a energia cinética e mc^2 é a energia de repouso, os índices i nos somatórios é a soma da energia total de cada partícula presente nas reações. Do lado esquerdo a energia inicial, e do lado direito, a energia final. A diferença entre as energias cinéticas recebe a definição de Q-valor, ou simplesmente Q, esta grandeza quantifica o ganho ou perda de energia cinética em uma reação. A partir da (eq. 1.3.1), podemos definir as seguintes relações:

(eq. 1.3.2)
$$Q = E_{final} - E_{inicial} = \Delta mc^2$$

Onde Δm é a variação de massa entre partículas finais e iniciais (não confundir com defeito de massa). Em algumas reações nucleares, o produto do decaimento nuclear não é um átomo no estado fundamental, e sim em um estado excitado com energia E^* a mais que o estado excitado (os estados excitados fazem a transição para o estado fundamental, emitindo um raio gama, de energia igual a E^*).

(eq. 1.3.3)
$$M\binom{A}{Z}X^{*} = M\binom{A}{Z}X + \frac{E^{*}}{c^{2}}$$

O asterisco no termo da esquerda representa o núcleo excitado, e E^* como já foi mencionado é a energia que o estado excitado possui a mais que o estado fundamental.

1.4. Decaimento Alfa

No decaimento alfa, o núcleo pai $\binom{A}{Z}P$ estado inicial) faz a transição de estados para o núcleo filho $\binom{A-4}{Z-2}F$, estado final), através da emissão de um átomo de Helio, perdendo dois prótons e dois nêutrons. O núcleo filho por um dado instante, possui dois elétrons a mais, tendo, portanto uma carga liquida de 2e⁻, mas esses dois elétrons em excesso se separam do núcleo, tornando o átomo novamente neutro. A partícula alfa emitida possui dois prótons e dois nêutrons, com uma carga liquida +2e⁻, mas ao se mover pelo ar, ioniza átomos ali presentes, perdendo energia cinética, e adquirindo dois elétrons orbitais, tornando-se um átomo neutro de $\frac{4}{2}He$. A equação do decaimento alfa, é mostrada abaixo:

(eq. 1.4.1)
$${}^{A}_{Z}P \rightarrow \left[\begin{smallmatrix} A-4\\ Z-2 \end{smallmatrix} F \right]^{-2} + \left[\begin{smallmatrix} 4\\ 2 \end{smallmatrix} \alpha \right]^{+2} \rightarrow \begin{smallmatrix} A-4\\ Z-2 \end{smallmatrix} F + {}^{4}_{2}He$$

Podemos calcular o Q valor desta reação, utilizando a (eq. 1.3.3) da seguinte forma:

(eq. 1.4.2)
$$\frac{Q_{\alpha}}{c^2} = M\binom{A}{Z}P - M\binom{A-4}{Z-2}F - M\binom{4}{2}He$$

De novo desprezamos os valores de energia de ionização dos elétrons extras dos átomos filho e Helio. Para que esta reação ocorra, o valor de Q_{α} (Q-valor alfa) deve ser positivo, o que nos diz que a massa do núcleo pai deve ser maior que a soma das massas do núcleo filho e da partícula alfa. Neste contexto nos referimos ao Q-valor alfa como sendo a energia de desintegração.

Utilizando a (eq. 1.3.2) podemos encontrar o balanço energético no decaimento alfa, como as partículas alfa possuem energias cinéticas baixas, são não relativísticas, de forma que, podemos utilizar a forma clássica para as energias cinéticas:

(eq. 1.4.3)
$$Q_{\alpha} = E_{\alpha} + E_{F} = \frac{1}{2}M_{\alpha}v_{\alpha}^{2} + \frac{1}{2}M_{F}v_{F}^{2}$$

Os índices α e F denotam as massas, energias e velocidades da partícula alfa e do nucleo filho, respectivamente. Inicialmente o núcleo pai está parado, e por conservação de momento, temos que o momento total deve ser zero, fisicamente isso quer dizer que o sentido do movimento de partícula alfa e núcleo filho são opostos:

(eq. 1.4.4)
$$M_{\alpha}v_{\alpha} = M_{F}v_{F}$$

Utilizando (eq. 1.4.3), (eq. 1.4.4) e uma simples álgebra, chegamos ao importante resultado:

(eq. 1.4.5)
$$E_{\alpha} = Q_{\alpha} \left[\frac{M_F}{M_F + M_{\alpha}} \right] \approx Q_{\alpha} \left[\frac{A_F}{A_F + 4} \right]$$

(eq. 1.4.6)
$$E_F = Q_{\alpha} \left[\frac{M_{\alpha}}{M_F + M_{\alpha}} \right] \approx Q_{\alpha} \left[\frac{4}{A_F + 4} \right]$$

Um exemplo pratico e útil para esse relatório, é o calcula da energia cinética das partículas alfa, e da energia de recuo, na seguinte reação de decaimento alfa:

(eq. 1.4.7)
$$^{226}_{88}Ra \rightarrow ^{222}_{86}Rn + ^{4}_{2}He$$

O valor da energia de desintegração é:

$$(eq. 1.4.8) \qquad Q_{\alpha} = \left[M \left({}^{226}_{88} Ra \right) - M \left({}^{222}_{86} Rn \right) - M \left({}^{4}_{2} He \right) \right] c^{2}$$

$$(eq. 1.4.9) \qquad Q_{\alpha} = \left[226,025402 - 222,017571 - 4,00260325 \right] \times 931,5 MeV$$

$$(eq. 1.4.10) \qquad Q_{\alpha} = 4,870 \, MeV$$

A energia cinética da partícula alfa, é então, segundo (eq. 1.4.5):

(eq. 1.4.11)
$$E_{\alpha} \approx Q_{\alpha} \left[\frac{A_F}{A_F + 4} \right] = 4,870 \times \left[\frac{222}{226} \right] = 4,784 \, MeV$$

E a energia de recuo do átomo de ²²²Rn, é simplesmente:

(eq. 1.4.12)
$$E_F = Q_{\alpha} - E_{\alpha} = 0,087 \, MeV$$

2. Radônio

2.1. Características Principais

O ²²²Rn é resultado direto por decaimento alfa do ²²⁶Ra, presente na série de decaimento da serie do ²³⁸U (isótopo mais abundante do Urânio 99,08%), que é um elemento abundante, presente em grande escala em sistemas rochosos, debaixo da superfície terrestre e de longa vida media, é o isótopo mais abundante do Radônio. Existem diversos modelos sobre a difusão do radônio, para o meio ambiente.

Apesar das partículas alfa, carregarem maior parte da energia de ligação, em forma de energia cinética, o núcleo pai, o Radônio, possui uma pequena energia de recuo (da ordem de 0,08 MeV). Imaginando o Radônio como um gás (sistema) de partículas livres, e fracamente interagentes, com a continua produção de Radônio, e por ser um gás, haveria expansão de volume, e alguns dos átomos teriam energia suficiente para escapar da rede cristalina desses sistemas rochosos, ou mesmo de moléculas, as quais o radônio estivesse adsorvido.

O Radônio (²²²Rn)* é um gás nobre (Z = 86), ou seja, possui seu octeto completo, isso significa que dificilmente ele irá reagir quimicamente (ou atomicamente) com outros elementos[†] o que influencia na sua facilidade de difusão, sendo transportado por correntes de ar, podendo inclusive estar presente em ambientes fechados, como residências, e outros locais de convívio humano, ou até mesmo presente em largas concentrações na água de rios.

Fatos como estes são o suficiente para motivar a pesquisa em dosimetria, pois largas concentrações de material radioativo (natural), são fatores de risco, e possíveis causas de diversos tipos de câncer. Como é um elemento de numero atômico maior que 60, ou seja, está na curva de instabilidade, é um elemento radioativo, sendo o decaimento por partículas alfa, o modo mais predominante.

^{*} O Radônio o qual nos referimos é o isótopo mais abundante ²²²Rn, estudado pelo nosso grupo.

[†] Existe uma exceção, assim como o xenônio, o radônio pose se unir a moléculas de flúor presentes no ar formando Fluoreto de Radônio, RnF.

2.2. Filhos do Radônio

Da série de decaimento do ²³⁸U, podemos ver que os filhos do Radônio, ²¹⁸Po e ²¹⁴Po, diferentemente do núcleo pai, o ²²²Rn, são átomos metálicos, facilmente ionizáveis, e de fácil aderência a superfície de materiais sólidos, como detectores, paredes de residências, materiais de construção, aerossóis ou moléculas, presentes no ar, e mesmo em células hemácias e nas paredes do pulmão de seres humanos.

Como os átomos filhos, possuem ramos de decaimento do tipo beta e gama, mesmo sendo átomos de curta vida media, podem se tornar um risco se em altas concentrações em ambientes, pois ao se aderirem a células hemáceas e a parede do pulmão, através da radiação emitida seriam responsáveis pela destruição de outras células e tecidos.

Estudos nesse sentido vêm sendo realizados para tentar correlacionar a radiação proveniente dos filhos do Radônio (e não apenas o núcleo pai), como uma das possíveis causas, ou senão, um fator agravante, do câncer de pulmão.

O primeiro trabalho de monitorização de atividade alfa provinda dos filhos do radônio, separadamente, e não apenas do núcleo pai, pertence ao Grupo Cronologia. Foi inclusive criada uma nova metodologia, para separação das medidas de concentração, destes radionuclídeos, metodologia esta que será explicada em capítulos posteriores.

3. Dosimetria e Monitorização de atividade alfa

3.1. Motivação

Como vimos no capitulo anterior, diversos fatores e características do radônio como, difusão facilitada para ambientes de convívio humano, motivam os estudos de dosimetria e monitorização da atividade e alfa e concentração de radônio e filhos ambientais. Diversos estudos já foram realizados correlacionando altas concentrações de Radônio, com diversos tipos de Câncer, e outras maleficências.

Principalmente na Europa e nos Eua, diversos trabalhos em larga escala, conseguiram correlacionar a concentração de Radônio e o Câncer de pulmão^{[4] [7] [17]}, como sendo a segunda maior causa inclusive, perdendo a primeira colocação apenas par ao cigarro.

Apesar de alguns trabalhos e pesquisas com resultados significantes, ainda não há um consenso mundial quando se trata de radiação natural proveniente de Radônio (e filhos). Há diferentes ramificações dessa linha de pesquisa, com diferentes motivações. Devido a imparcialidade ou mesmo modelos estatísticos e métodos de inferência utilizados erroneamente, há dicotomia para mesmos estudos.

Exemplo claro de resultados inconclusivos, são os trabalhos de correlação/anti-correlação de baixas doses de radiação natural com riscos para saúde humana^{[5] [6] [20]}. Alguns trabalhos conseguiram correlação entre baixas doses e o risco de câncer, entretanto fortes argumentos vão de frente a essa temática, como estudos realizados nas proximidades de indústrias nucleares, monitorando a saúde dos trabalhadores e de famílias residentes próximos a indústria, a taxa de mortalidade por câncer, dos trabalhadores da fabrica foi menor do que a taxa de mortalidade nacional.

Um estudo ainda mais interessante, foi realizado em Hiroshima, mesmo depois de mais de cinqüenta anos da explosão das bombas explodidas ali, os resquícios da radiação ainda são fortes, esse estudo verificou que a vida media das pessoas que moravam nas proximidades da origem onde a bomba foi detonada, era maior em pelo menos cinco anos que a media nacional, e ao afastar-se dessa origem, a media de vida diminuiria, até alcançar a media nacional, o que correlaciona que as doses ali presentes poderiam ser um fator de longevidade. Resultados como esse, levaram a criação de novos modelos não lineares, em se tratando de radiação, como a hormesis.

Apesar de tais resultados serem interessantes, é difícil chegar a um consenso, pois existem diversos fatores ambientais ou intrínsecos, que podem ser significantes em tais estudos, e não terem sido levados em conta. Exemplos como, casos anteriores de câncer na família, em residências de alta ou baixa concentração de radônio, nível sócio econômico, das famílias, Nível econômico relativo mundialmente, do país local do estudo, fatores ambientais dos locais e residências, como localização, ventilação, altitude, sexo, idade, ocupação dos indivíduos estudados.

Apesar do profissionalismo de todos os cientistas dessa área, é comum sermos parciais, que leva a técnicas de inferência não muito boas, inclusive omitindo de forma inconsciente ou propositadamente resultados não satisfatórios. Isso faz com que seja imprescindível que diversos estudos sejam realizados, pois seria muito difícil realizar estudos unificando todos esses fatores, dando relevância imparcial a todos, daí a importância pontual de cada grupo, estudo e temática envolvidos nessa área de pesquisa.

3.2. Inferência e Resultados

Como foi citado na seção anterior sobre a motivação de monitorar atividade radioativa natural, um dos fatores que conduzem a resultados e analises de dados inconclusivos ou obscuros são as imparcialidades ou preparação de estudos estatísticos feitos de forma errada.

Na preparação de um estudo é preciso fazer uma analise qualitativa antes de fazer as medidas, é comum tentarmos correlacionar grandezas ou fatores, e inferirmos correlação onde não há. Por exemplo, em paises desenvolvidos, como os da Europa e os EUA, é comum o tratamento medico ser muito melhor que em paises subdesenvolvidos, ou seja, existem todos os tipos de técnicas de diagnostico medico, baseados em emissão de radiação seja nuclear ou eletromagnética. O uso constante desses métodos de diagnostico poderiam diminuir a vida media de uma população. Há ainda os tipos de radiação que não são naturais, como radiações provenientes de produtos eletrônicos, raios cósmicos, e mesmo radiação proveniente de seres humanos.

É imprescindível também em estudos de correlação, faze hipóteses corretas, lembrando que metodologicamente (lógica epistemológica), não podemos provar uma hipótese, simplesmente verifica-la, e tentar utilizar o resultado obtido para possíveis correlações futuras, é por isso que a diversidade de linhas temáticas seja necessária, já que em ciência, construímos as bases das teorias, sempre as testando até encontrar falha nelas, daí outras hipóteses seriam formuladas.

Se realizarmos um estudo de atividade nuclear natural em uma região previamente delimitada, em residências onde ocorreram casos de câncer. A escolha de estimadores teria de ser cuidadosa, pois a tentativa de correlacionar media da concentração de radionuclídeos medida nas residências com a ocorrência do câncer, seria uma estimativa enviesada (parcial), para um estudo significativo seria necessária a presença de uma população controle, ou seja, residências na mesma zona quente, onde não ocorreram casos de câncer.

3.3. Técnica Utilizada

Existem diversas técnicas de monitorização de radiação natural, utilizadas de acordo com o tipo de dosimetria e aquisição de dados necessários. A cadeia de decaimento do Radônio (Urânio) é predominantemente alfa, mas alguns dos filhos do Urânio (e Radônio) possuem decaimento beta e gama, logo para fazer medidas de atividade desses átomos em qualquer ambiente, primeiramente é preciso entender os tipos de interação de radiação com a matéria.

Existem diversas técnicas de detecção, como emulsão nuclear, adsorção (em carvão), câmeras de cintilação, espectrômetros, câmeras de ionização, etc. Mas o método utilizado (estudado) nesta iniciação científica, e futuramente em pesquisas no mestrado e doutorado, é a utilização de Detectores do tipo Estado Sólido.

As partículas alfa, por serem partículas carregadas, interagem eletrostaticamente com a estrutura atômica dos detectores utilizados, desarrumando os átomos vizinhos, durante a interação, fazendo com que a estrutura do detector seja deformada, deixando ali uma evidencia de que uma partícula carregada foi "detectada". Essa evidencia é chamada de traço latente, e possui dimensões (diâmetro, alcance máximo) muito pequenas (algumas dezenas de ângstrons).

Com o intuito de facilitar os métodos de observação e analise de traços, foram desenvolvidas técnicas onde os detectores são atacados quimicamente, tendo os traços latentes revelados (perfeita analogia com filmes fotográficos, inclusive, um tipo de celulose é utilizado como detector, o LR-115), e suas dimensões aumentadas para ordens de algumas dezenas de micrometros, propiciando a observação ao microscópio óptico.

Atualmente é utilizado um ataque químico, (chamado ataque padrão, por ser utilizado pela grande maioria dos pesquisadores neste ramo de pesquisa) utilizando solução de hidróxido de sódio 6,5 molar (mol por

litro), a setenta graus Celsius, e o tempo de ataque é de quatrocentos minutos (Padrão NaOH 6,5 M 70°C, 400 minutos).

Nesta iniciação científica, foram (serão) estudados três tipos de técnica utilizando detectores do tipo estado sólido (SSNTD). Técnica do carvão ativado (técnicas de adsorção e dosimetria, não é necessariamente um SSNTD, já que os átomos de radônio ficam presos nos interstícios de átomos de carbono), LR-115 (celulose, filme fotográfico), e o CR-39 (polímero manufaturado em forma de quadrados 2x2 cm, antes utilizado como lente para óculos comuns e visores de capacetes de pilotos e astronautas).

Como dito anteriormente, depois do ataque químico, os detectores são observados ao microscópio óptico, e seus traços são analisados de acordo com diâmetro, grau de cinza (cor), e são contados e relacionados com a atividade alfa presente no momento da exposição dos detectores.

Mesmo utilizando a técnica dos SSNTD, as montagens experimentais e abordagens metodológicas são variadas, e dependem do tipo de estudo a ser realizado, exemplo claro disso é a técnica de separação das medidas de concentração no ar de Radônio e filhos, desenvolvido em nosso grupo. Até então os estudos de dosimetria procuravam medir apenas a atividade alfa total, nos ambientes.

A técnica utilizada pelo grupo Cronologia, foi testada em estudos e surveys em Poços de Caldas-MG e Campinas, mostrou ser bastante efetiva, com o uso de certos tipos de detectores, calibração previa, e hipóteses condizentes, foram obtidos sucesso na separação das medidas de atividade alfa proveniente de Radônio, e a atividade alfa total, presente no ambiente.

A medida da atividade alfa devido aos átomos filhos, apresentou erros muito grandes, devido a fatores característicos desses radionuclídeos, como o fato de aderirem facilmente a superfícies e aerossóis presentes no ar (aumentando seu livre caminho médio). Pelos dados obtidos foi possível observar que o numero de traços contados foram alterados por um efeito chamado Plate-Out, ou seja, a aderência de filhos de radônio a superfície do detector, enviesando a estatística utilizada.

Um dos objetivos dessa iniciação científica, é reformular a metodologia estatística utilizada para obter e inferir resultados significativos.

3.4. CR-39

O allyl diglycol carbonate (CR-39), é um polímero de grande massa molecular $C_{12}H_{18}O_7$, na forma liquida, podendo através de técnicas industriais, ser confeccionado em forma sólida, e utilizado em forma de lentes para óculos, visores, e outros tipos de dispositivos ópticos.

Curiosamente o fato de ser utilizado como proteção foi responsável pela descoberta de sua aplicabilidade como detector: Para tentar proteger a visão dos astronautas, de radiações cósmicas, esse polímero foi utilizado como produto para a construção dos visores dos capacetes dos astronautas. Pois em forma sólida, o CR-39, apresenta características dielétricas tendo uma grande impenetrabilidade para partículas carregadas, o suficiente para deter radiações cósmicas.

Nos laboratórios da General Electrics, foram realizadas as primeiras observações de traços de partículas em matéria condensada, Fleischer e Price, por motivo de curiosidade, observaram ao microscópio a lente dos visores de astronautas que retornaram de suas viagens, e deram inicio a linha de pesquisa amplamente estudada hoje em dia, a observação de traços de partículas carregadas em detectores dielétricos.

Quando partículas carregadas interagem com um dielétrico, através de interações eletrostáticas, desestruturam as redes cristalinas desses detectores, deixando falhas, comumente chamadas de traços latentes, com dimensões na faixa de 10 ângstrons, servindo como registro de que por ali houve a presença de partículas carregadas.

Para observar esses traços, primeiro tentou-se a utilização de microscópios eletrônicos, mas a observação afetava as estruturas dos traços. A solução para esse problema foi utilizar microscópios ópticos, mas como as medidas dos traços eram muito pequenas, foram desenvolvidas técnicas de revelação, que através de ataques químicos, faziam com que as dimensões do traço aumentassem de forma que fosse possível observa-las ao microscópio óptico.

O CR-39 apresenta uma grande sensibilidade a partículas alfa, possui eficiência de detecção muito alta para esse tipo de partícula, e nenhuma ou insignificante sensibilidade a radiações beta e gama. É fabricado em forma de pequenos quadrados de dois centímetros de aresta, e espessura muito fina da ordem de milímetros, é muito pratico e fácil de ser instalado em estudos de campo.

As medidas em campo utilizando SSNTD's são chamadas de detecção passiva, onde os detectores são instalados nos locais de monitoração e deixados ali, expostos sob radiação natural, por isso a robustez do CR-39, é outro fator importante.

Quando condensado (a forma natural do polietileno alil glicol é liquida em temperaturas próximas de zero graus Celsius, entretanto em temperaturas ambiente, ele é enrijecido, sendo um polímero muito tóxico), esse polímero torna-se muito duro, além disso, suporta abrasivas condições climáticas, como mudanças bruscas de temperatura, chuva, e pequenos campos eletromagnéticos.

As características físicas do CR-39 alem de serem úteis para monitoração em campo, são também propicias para o manuseio em laboratório, para revelação de traços, pois são manufaturados em pequenos quadrados (de até 1x1 cm), sendo o manuseio facilitado por causa disso.

Devido a sua estrutura química, é sensível a ataques químicos utilizando álcoois, e hidróxidos. Por se tratar de um polímero, possui grande massa molecular, o que permite ataques químicos de longa duração, onde parte do detector é consumida (perda de massa), mas não altera suas características macroscópicas (pelo menos não em grande escala), ao contrario do LR-115 (celulose), no qual dependendo da densidade de traços, o detector pode ser quase totalmente consumido, dificultando a observação ao microscópio óptico.

4. Metodologia

4.1. Montagem experimental

A técnica foi desenvolvida pelo grupo com o intuito de calcular separadamente a concentração de Radônio (A_0) no ar, filhos de Radônio no ar, e a concentração superficial(G) de deposição (Plate-Out) dos filhos na superfície dos detectores CR-39.

A montagem utilizada para a exposição dos detectores é composta de duas placas circulares de alumínio (superior e inferior), e paralelas unidas por rosqueamento. A separação entre as placas é de quatro milímetros, e possuem oito centímetros de diâmetro. O raio interno da placa inferior é de 3.9 mm e na parte superior existe um pequeno furo circular (cinco milímetros de diâmetro).



FIGURA 1 - Esquema da montagem de alumínio. Desenho fora de escala.

Dois detectores CR-39 são fixados no centro das placas, um deles é colocado entre as placas (detector interno), e o outro posicionado do lado de fora da montagem das placas (detector externo), a montagem está sob uma geometria 2π .

4.2. Detector Interno

A montagem de placas paralelas foi configurada de tal forma que fosse possível obter medidas separadas da concentração ambiental de radônio e filhos. O pequeno furo na parte superior foi feito para que apenas o ²²²Rn fosse capaz de alcançar a região central da montagem, onde está localizado o detector interno.

Quando é feita a medição nestes detectores, todos os traços são contados indistintamente, já que o 222 Rn, e seus filhos (218 Po e 214 Po) devem estar em equilíbrio de atividades. Desta forma, a atividade alfa de radônio, pode ser relacionada com a densidade de traços (ρ) por $^{[27]}$:

(eq. 4.2.1)
$$A_0 = \frac{2\rho}{t_e \varepsilon d} \left[\sum_{j=0,1,3} \left(1 - \frac{d}{2R_j} \right) \right]^{-1}$$

 $\rho \rightarrow$ Densidade de traços medida no detector interno da montagem.

- $t_e \rightarrow$ Tempo de exposição.
- $\varepsilon \rightarrow$ Fator de eficiência de detecção do CR-39.

 $d \rightarrow$ Distância entre a superfície do detector e a placa oposta.

 R_0 , $R_1 e R_3 \rightarrow$ Alcances no ar das partículas alfa do ²²²Rn, ²¹⁴Po e ²¹⁰Po, respectivamente.

O fator de eficiência (ε) do CR-39, utilizado para os cálculos neste relatório foi de^[14]:

(eq. 4.2.2)
$$\varepsilon \pm \sigma(\varepsilon) = 0.55 \pm 0.02$$

Para calcular os valores de alcance no ar de partículas alfa (R_i) provenientes de ²²²Rn, ²¹⁴Po e ²¹⁰Po, foi utilizada a seguinte equação^[1]:

(eq. 4.2.3)
$$R(T^{\circ}C) = R(15^{\circ}C)\frac{273+T}{273+15}$$

A equação acima foi obtida através de uma curva de Alcance x Energia, obtida a partir de resultados experimentais e modelos teóricos, para partículas alfa no ar à temperatura de 15°C. Os valores encontrados para R₀, R₁ e R₃, assumindo 25°C como temperatura ambiental média durante a exposição dos CR-39:

(eq. 4.2.4)
$$R_0 \pm \sigma(R_0) = (0.0424 \pm 0.0042) m \ (\alpha \ \text{de}^{222} \text{Rn}, \text{com } E_\alpha = 5.49 MeV \).$$

(eq. 4.2.5)
$$R_1 \pm \sigma(R_1) = (0.0481 \pm 0.0048) m \ (\alpha \ \text{de}^{218} \text{Po}, \text{com} E_\alpha = 6.00 MeV).$$

(eq. 4.2.6)
$$R_3 \pm \sigma(R_3) = (0,0714 \pm 0,0071) m \ (\alpha \ de^{214} Po, com E_{\alpha} = 7,69 MeV).$$

O valor da distância (d) entre a superfície do detector e placa oposta da montagem foi obtido subtraindo a espessura do CR-39 (1,0 mm) da altura interna do cilindro utilizado na montagem de alumínio (5,0 mm):

(eq. 4.2.7)
$$d \pm \sigma(d) = (4,0\pm0,4) \times 10^{-3} m$$

4.3. Detector Externo

O detector externo registra a atividade alfa proveniente de²²²Rn, ²¹⁴Po e ²¹⁰Po, próximas a montagem, e pode ser utilizado como um espectrômetro alfa^{[14] [15]}, caso sejam considerados apenas os traços cujo valor da excentricidade^{*} seja menor que 1,10 por serem mais fáceis de ser distinguidos:

A restrição de valores de excentricidade é necessária devido ao tipo de geometria 2π , sob a qual esta inserida a montagem, limitando o alcance efetivo de partículas alfa no ar (R_{α}), e o ângulo critico de incidência (θ_c). Os três tipos de traços analisados (atacados por solução NaOH, 6.25N à 70°C por 400min), no detector externo, sob tais restrições são:

 $\rho_i \rightarrow$ Densidade de traços claros formados devido a emissões alfa no ar, a grandes distâncias do detector:

 $\rho_{ii} \rightarrow$ Densidade de traços formados devido a emissões alfa no ar, a uma média distancia do detector:

 $\rho_{iii} \rightarrow$ Densidade de traços escuros com baixo nível de cinza⁺ formados devido a emissões alfa no ar, a distâncias muito próximas do detector, e a emissão alfa proveniente de radionuclídeos depositados na superfície do detector.

Os traços do tipo ρ_i e ρ_{ii} possuem opacidades semelhantes, e são distinguidos apenas pelo tamanho. As partículas alfa de maior energia produzem traços de menor tamanho, enquanto que partículas alfa de menor energia produzem traços maiores. Os traços são distinguidos pelo estimador S^{**}:

^{*} Quociente entre diâmetro principal (maior) e secundário (menor).

(eq. 4.3.1) $S = D_{maior} \times D_{menor}$

Observa-se, ao microscópio óptico, que o histograma de S (ver gráfico logo abaixo), possui dois picos.



medidos no detector externo.

O pico de baixos valores de S é constituído de traços do tipo ρ_{iii} , formados por decaimento de filhos de radônio, que se ligaram à superfície do detector (traços de plate-out) durante a exposição. E de traços do tipo ρ_i , deixados por partículas alfa, provindas de radônio e filhos, que alcançaram o detector com energias muito baixas (traços claros com alto nível de cinza).

O pico referente aos valores altos de S compreende traços do tipo ρ_{ii} formados por partículas alfa provindas de radônio e filhos, que decaíram desde perto do detector até uma distância razoável deste, apresentando um valor intermediário de nível de cinza.

^{*} Razão entre a opacidade do fundo e a opacidade média do traço em questão

^{**} O parâmetro S tem dimensão de área em μm^2 , pois é o produto entre os diâmetros maior e menor do traço observado, vale notar também que S é igual a área dos traços (elipses) dividido por π .

Área de Elipse = $\pi D_{\text{menor}} D_{\text{maior}}$.

A atividade (de ²²²Rn e filhos no ar) total se relaciona com a densidade de traços correspondentes aos de altos valores de S e aqueles de baixo valor de S que apresentam alto nível de cinza, ρ ':

(eq. 4.3.2)
$$\rho' = t \chi \sum_{i=0,1,3} A_i$$

Onde χ é a eficiência relacionada ao volume efetivo de cada emissor alfa, i.e., o volume na vizinhança do detector nos quais os decaimentos ocorridos produzam traços redondos.

(eq. 4.3.3)
$$\chi \pm \sigma(\chi) = 0.16 \pm 0.016 \ cm$$

A_i são as atividades de radônio e filhos, sendo i = 0, 1, 3 para ²²²Rn, ²¹⁸Po e ²¹⁴Po respectivamente.

Com o auxílio de (eq. 4.3.2) pode-se obter a soma das atividades de 222 Rn e filhos no ar a partir da medida de ρ '. O valor de A₀ é calculado a partir de (eq. 4.2.1) e então é possível obter a atividade alfa dos filhos de 222 Rn no ar.

4.4. Plate Out

O plate out é o fenômeno onde os filhos de radônio, por serem metálicos, se aderem às paredes dos detectores, e ali decaindo totalmente, e aumentando a densidade de traços superficiais, fato este que dificulta a estatística da contagem dos traços nos detectores.

A concentração superficial dos filhos do 222Rn, depositados na superfície do detector externo é dado por:

(eq. 4.4.1)
$$G = \frac{2 \rho_{iii}}{\chi t_e}$$

(eq. 4.4.2)
$$\chi \pm \sigma(\chi) = 0.16 \pm 0.016 \, cm$$

 $\chi \rightarrow$ Eficiência relacionada ao volume efetivo de cada emissor alfa, ou seja, é o volume na vizinhança do detector, no qual os decaimentos produzam traços redondos.

 $t_e \rightarrow$ Tempo de Exposição da montagem.

 $\rho_{iii} \rightarrow$ Densidade de traços contados no detector externo para valores de S \geq 110 μ m² e que obedeçam a restrição de valores de excentricidade menor ou igual a 1,1.

4.5. Contagem de Traços e Background

Os SSNTD's por serem utilizados em detecção passiva, não podem ser analisados até que a exposição termine (em tempo real). Depois de atacados quimicamente para revelar os traços os detectores são observados em microscópio, e os traços contados ou manualmente ou através de técnicas automatizadas, ambos os métodos são demorados, e sujeitos a erros grosseiros, como contagem mal feita, e erros sistemáticos, a devido a má utilização dos métodos computacionais e/ou automatizados.

O método de contagem de traços utilizado no nosso grupo é parcialmente manual, e parcialmente computadorizado. Os detectores são levados ao microscópio óptico, e diversas fotos são tiradas, divididas em campos (que podem variar de tamanho), perfazendo certa área do detector, essas fotos são então analisadas, por um software desenvolvido pelo grupo, chamado CR-Tran.

Um outro tipo de erro é devido ao background contido nos SSNTD's, pois a partir do momento em que são manufaturados, estão sujeitos a todo tipo de radiação, e mesmo defeitos provocados pelo manuseio e transporte.

Para evitar possíveis enganos, é utilizado um detector não exposto em medidas de campo, pertencente ao lote do qual foram retirados os detectores utilizados para as medidas, que serve como controle. O detector não exposto é atacado quimicamente sob as mesmas condições que os outros detectores, servindo como background, de traços, onde a densidade de traços contada no detector não exposto é "descontada" na contagem de traços nos detectores utilizados para exposição.

A densidade (numero) de traços contados no detector é tomada como variável aleatória discreta, descrita pela distribuição de Poisson, na qual o desvio padrão é igual à raiz quadrada do numero de traços contados.

(eq. 4.5.1) $N \pm \sqrt{N}$

Onde N é o numero de traços contados ao microscópio, e \sqrt{N} é o erro estatístico, calculado para o numero de traços contados.

É possível estimar a densidade de traços presente no detector, já que conhecemos o tipo de distribuição estatística dos traços. Para isso o detector é dividido em pequenas áreas, chamadas de campos (o tamanho

dos campos pode variar, dependendo do microscópio utilizado), e encontrar uma densidade de traços, dividindo o numero de traços contados, pela área utilizada.

(eq. 4.5.2)
$$\rho = \frac{1}{A} \left(N \pm \frac{1}{\sqrt{N}} \right)$$

Onde ρ é a densidade de traços e A é a área estudada do detector. Repare que nesse caso o desvio padrão é dado em porcentagem do numero de traços, onde simplesmente dividimos o desvio padrão pelo numero total de traços, para obter um valor percentual do erro cometido: $\sigma(\rho)$.

(eq. 4.5.3)
$$\sigma(\rho) = \frac{1}{A} \frac{\sqrt{N}}{N} = \frac{1}{A} \frac{1}{\sqrt{N}}$$

5. Formação de traços

5.1. Interação com a matéria

A perda de energia de uma partícula nuclear carregada, durante o percurso (Alcance Residual Maximo), é transformada de tal forma que uma densidade de defeito quimicamente reativa com valor crítico, tenha uma direção privilegiada ao ataque químico devido à ionização ao longo do caminho deixado pela partícula.

Ao penetrar no detector a partícula alfa desorganiza a estrutura atômica do detector devido principalmente às interações elétricas, que causam ionização deixando um traço latente no material. Esse traço possui uma característica interessante para esta linha de pesquisa, uma direção privilegiada ao ser atacada quimicamente.

O ataque químico possui duas velocidades de "revelação", ou seja, de consumo do detector. Uma ao longo do traço (V_T) deixado pela partícula e outra que consome perpendicularmente a superfície irradiada do detector (V_B). Assim que a solução atacante atinge o fim da trajetória da partícula (traço deixado no detector sólido) a dissolução do material se torna isotrópica, em todas as direções, com taxas idênticas V_B .

Nesta primeira parte do projeto de Iniciação científica, foi realizado um aprofundamento bibliográfico visando um melhor entendimento sobre a pesquisa da melhoria da metodologia criada pelo Grupo de Cronologia da UNICAMP, para a determinação da contaminação do ar ambiental por radônio-222 e filhos, utilizando o CR-39 como detector de traços de partículas alfa. Foram analisadas profundamente duas teses de doutorado, e dois artigos. Um dos artigos apresenta um novo tipo de ataque químico, visando a diminuição do tempo de ataque químico aos CR-39.

Realizou-se, em conjunto, um estudo comparativo entre o novo ataque proposto e o ataque padrão (400 min. Com 6M de NaOH em água a 70°C) atualmente utilizado pelo nosso grupo de pesquisa. Diversos pontos do artigo que propõe o novo ataque foram expostos e comentados criticamente neste primeiro relatório, devido a sua relevância ao estudo de detecção do radônio.

6. Novo ataque químico

6.1. Irradiação (Exposição dos CR-39)

Foi exposto por dez dias, dois detectores CR-39 (2x2 cm) em uma campânula^{*} contendo uma fonte de ²⁵²Cf. Os detectores foram colados, com fita adesiva, nas paredes da campânula pelas arestas, de forma que ambos ficassem a mesma altura (z) e ângulo azimutal (geometria cilíndrica), com as faces (lado com os números marcados) voltadas para a campânula.

Para o estudo do background, foi utilizado um CR-39, do mesmo lote daqueles irradiados. Abaixo uma ilustração da campânula (corte transversal) utilizada, contendo suas dimensões.



FIGURA 3 - Recipiente confeccionado para a realização das medidas de eficiência dos detectores plásticos. h = 25 cm; ϕ = 17,2 cm; A = Campânula de vidro; B = Abrigo para a fonte de Ra-224; C = Tampa de alumínio; D = Anel de fixação da campânula; E = Suporte de isopor. Figura retirada de [27].

^{*} As fotos do material experimental são mostradas no apêndice A.

6.2. Solução SMW Otimizada

Foi proposta uma nova solução de ataque químico (Matiulah et. Al, 2005), utilizando metanol como solvente, que diminuiria drasticamente o tempo de ataque químico, e consequentemente o tempo em laboratório. Essa nova solução química, chamada SMW pelo grupo que a propôs^[21], apresenta como principal característica a utilização de um álcool, no caso o metanol, como solvente, e alem da diminuição do tempo de ataque químico, a solução é preparada em menores temperaturas que a solução padrão atual (a solução padrão é de NaOH 6,5 M a 70°C, durante 400 minutos).



FIGURA 4 – Gráficos retirados do artigo discutido, no qual foi proposta uma nova solução de ataque químico, que alcançaria os mesmos resultados de diâmetro de traços em CR-39 que a solução padrão, em um tempo muito menor, e em temperaturas menores. Os gráficos acima mostram as relações entre diâmetro, tempo de ataque, concentração de solução, e eficiência, como pode ser percebido a solução SMW otimizada proposta pelo grupo é solução Água, Metanol e NaOH 1,5 M a 55°, e os resultados preferenciais para observação em microscópio óptico, são alcançados em cerca de 16 minutos de ataque químico.

Segundo os gráficos do artigo^[21] no qual foi proposta a solução, para temperaturas de solução a 55°C a solução SMW é otimizada, alcançando diâmetros de traços em CR-39, na ordem de 10 micrometros em apenas alguns minutos, como pode ser visto acima, enquanto que a solução padrão utilizada demora 400 minutos para revelar traços com esses tamanhos de diâmetros. As equações utilizadas para plotar os gráficos acima, utilizadas no artigo são as seguintes:

$$(eq. 6.2.1)$$
 $V_B = \frac{D_{ff}}{2t}$

(eq. 6.2.2)
$$V_T = V_B \frac{1+x^2}{1-x^2}$$

(eq. 6.2.3) $x = \frac{D_{\alpha}}{D_{ff}}$
(eq. 6.2.4) $\eta = 1 - \frac{V_B}{V_T}$

- $V_B \rightarrow$ Velocidade na direção perpendicular ao detector (Bulking).
- V_T→Velocidade na direção do traço.
- $\eta \rightarrow Eficiência.$
- $D_{\rm ff} \rightarrow$ Diâmetro médio de um traço de fissão.
- $D_{\alpha} \rightarrow$ Diâmetro médio de um traço de partícula alfa.

Foram encontradas algumas inconsistências no artigo em questão, que poderiam contradizer os resultados obtidos no ataque químico proposto. Abaixo uma tabela com os valores calculados no artigo:

Tabela 1 — Valores de: D , D , V , V , $\eta.$ Para os detectores CR-39, para as concentrações de NaOH listadas a 70°C. Tabela retirada de (MATIULAH, 2005). Os

Concentração da Solução (M)	D _α (μm)	D _{ff} (µm)	V_{B} (µm.h ⁻¹)	V_{T} (µm.h ⁻¹)	η (%)
4	8	15	1	2,34	35,6
6	9,67	19,66	1,25	5	64
8	10,66	24	1,75	6,96	56,8
10	15	29,33	2,26	6,23	41,3
12	23	47,66	3,38	7,61	37,4

valores de D $_{\alpha}$ e D $_{\text{ff}}$ não podem ser contestatos pois são dados experimentais observados.

Utilizando os dados de D_{α} e D_{ff} (os valores para essas duas grandezas físicas não podem ser contestados, pois são medidas experimentais, observadas ao microscópio, logo aceitamos os valores como corretos) no artigo, foram corrigidos os valores de velocidade de consumo na direção do traço e do detector, perpendicularmente a sua superfície, e eficiência. A mudança dos valores calculados no artigo implicaria em mudanças nos gráficos da figura 4, fato que compromete a veracidade dos resultados obtidos.

Tabela 2 — Tabela com os valores corrigidos, retirados da tabela 1. Tomando como base os valores de D e D medidos foram corrigidos os valores de eficiência e velocidades de consumo do detector, na direção do traço e perpendicular a superfície do detector.

Concentração da Solução (M)	D _α (μm)	D _{ff} (µm)	V _B (µm.h ⁻¹)	V _T (μm.h ⁻¹)	η (%)
4	8.00	15.00	1.00	2.34	57
6	9.67	19.66	1.25	5.00	75
8	10.66	24.00	1.75	6.96	74
10	15.00	29.33	2.26	6.23	63
12	23.00	47.66	3.38	7.61	55

A solução SMW otimizada foi amplamente testada em laboratório, durante a iniciação científica, sob a hipótese de que a solução apresentaria bons resultados, e a diminuição de tempo em laboratório. A solução otimizada é constituída de NaOH, metanol e água, e segundo o artigo foi alcançado uma eficiência maior, com 60% metanol, 10% NaOH e 30% água a 55°C, foram esses os dados utilizados para testar a eficiência deste novo ataque químico.

Abaixo uma tabela retirada do artigo, a qual mostra os resultados obtidos pelo grupo paquistanês. A grandeza X refere-se à porcentagem de metanol utilizada na solução de ataque, segundo o estudo realizado e mostrado no artigo, a maior eficiência acontece para a solução a 55°C, com a quantidade X igual a 60%.

Metanol (X%)	V _B (µm.min ⁻¹)	V _T (µm.min ⁻¹)	Sensibilidade (V)	η (%)
40	0,1875	0,487	2,6	61,5
50	0,594	1,639	2,76	63,76
60	0,71	3,7	5,212	80,81
70	1,292	6,092	4,715	75,79
80	1,166	3,596	3,082	67,54

Tabela 3 — V , V e eficiência do ataque ao CR-39, de acordo com as B T concentrações de Metanol (X%) listadas na Solução SMW a 55°C. Tabela retirada de (MATIULAH, 2005).

Abaixo, gráfico que relaciona diâmetro de traços de partícula alfa, com tempo de ataque químico, a curva estudada nessa iniciação científica foi a de 55°C, na qual o grupo paquistanês afirma que a SMW seria otimizada, apresentando traços observáveis em apenas 16 minutos.



FIGURA 5 – Gráfico retirado do artigo do grupo paquistanês que propôs o novo ataque químico. O gráfico mostra a relação entre diâmetro de traços de partículas alfa em CR-39 e tempo de ataque químico, quando atacados com a solução SMW, 1M. São mostradas diversas curvas de ataque para diferentes temperaturas de solução, como mencionado anteriormente, a temperatura na qual baseamos o estudo foi a de 55°C, na qual a SMW seria otimizada.



FIGURA 6 - Gráfico retirado do artigo do grupo paquistanês que propôs o novo ataque químico. O gráfico mostra a relação entre diâmetro de traços de partículas alfa em CR-39 e tempo de ataque químico, para diferentes curvas, de acordo com a concentração de solução utilizada. Note que para soluções com concentração superior a 1.0 M, seriam observados traços com diâmetro superiores a 4 micrometros, em tempos menores que 20 minutos. O gráfico indica que quanto maior a concentração de solução, mais rápido seria a revelação dos traços presentes no CR-39.

Foram testadas diversas soluções SMW com diferentes concentrações de Metanol, a hipótese era de que o metanol otimizasse o consumo do detector na direção do traço.

No inicio foi utilizada a solução proposta como um primeiro teste, mas os resultados obtidos não foram bons, poucos traços foram revelados, e mesmo os traços revelados não apresentavam o diâmetro proposto pelo artigo. A aparência dos traços não era boa para observação em microscópio óptico, apresentando superfície espelhada e rasa^{*}, indicando que o metanol consome muito rápido na direção do traço, fazendo com que muitos sejam apagados durante o ataque químico.

O ataque com o SMW "otimizado" possui a desvantagem da temperatura de ebulição do metanol (65°C) ser próxima à temperatura do ataque químico (55 °C), afetando a sua reprodutibilidade, ou seja, o metanol

^{*} O fato de serem rasos e espelhados dificulta a observação, pois é difícil distinguir os traços da própria superfície do detector CR-39.

na solução evaporaria muito rápido, mas mesmo assim consumiria muito rápido o detector, fazendo com que os traços revelados, apresentassem a característica espelhada, devido a sua rasa profundidade.



FIGURA 7 - Gráficos retirados do artigo do grupo paquistanês que propôs o novo ataque químico. O gráfico mostra a relação entre eficiência, temperatura e concentração da solução SMW utilizada. No gráfico da esquerda a eficiência tem um máximo para concentrações muito próximas de 1.0M, enquanto que no gráfico da direita é possível ver que a eficiência máxima encontrada é para temperaturas muito próximas de 55°C.

A conclusão a qual chegamos é de que apesar de acelerar o consumo do detector, e a revelação de traços, é difícil controlar a cinética química da solução SMW, devido à baixa temperatura de evaporação do metanol, muito próxima à temperatura da solução de ataque.

Uma hipótese conservadora é de que os traços sejam revelados em demasia, com o metanol servindo como um tipo de catalisador para a reação da solução com o material do detector CR-39, de forma que as profundidades dos traços estariam muito próximas do alcance máximo das partículas alfa, detectadas.

Uma hipótese mais ousada, é de que os radicais livres $[OH]^-$ devido ao metanol, ao hidróxido de sódio, e mesmo devido à água, estariam em excesso na solução, esse excesso reagiria com a estrutura do detector, que é um polímero, apagando os traços no CR-39 deixados pelas partículas alfa.



FIGURA 8 - Gráficos retirados do artigo do grupo paquistanês que propôs o novo ataque químico. O gráfico mostra a relação entre eficiência, e concentração da solução SMW utilizada para temperatura de solução 55°C. Pelo gráfico é possível notar que a eficiência máxima para esta temperatura se encontra para concentração de solução 1,5 Mol/L.

No apêndice A, deste relatório são mostradas fotos de traços de partícula alfa em CR-39, atacados com a solução SMW, para diversas concentrações e proporções de Metanol, mantendo a temperatura constante a 55°C, pois de acordo com o artigo estudado, seria esta a temperatura preferencial de ataque para soluções com concentrações próximas de 1,5 Mol/L.

É ainda possível fazer uma analise, comparativa, e qualitativa dos resultados obtidos com a solução padrão e a solução SMW, os traços revelados com a solução padrão são bem nítidos, e com diâmetros apropriados para observação em microscópio óptico, enquanto que os traços revelados com a solução SMW, são rasos e espelhados e com diâmetros muito pequenos, sendo difícil ate mesmo de distingui-los dos defeitos na superfície do detector.

De tal forma que apesar de promissora, a solução SMW, precisa de estudos mais aprofundados, que controlem a cinética química da solução de maneira otimizada, a dificuldade de obter o metanol, seu alto custo, e o uso de grandes quantidades desse solvente, são motivos suficientes para continuarmos utilizando a solução padrão, NaOH 6,5 Mol/L 70°C, 400 minutos de ataque químico.

III CONCLUSÃO

Esta primeira parte da iniciação científica serviu como aprofundamento bibliográfico, e primeiro contato com a metodologia utilizada pelo grupo, na pesquisa de detecção de radiação alfa proveniente de Radônio e filhos.

Além do aprofundamento bibliográfico, foi focado o estudo de uma nova solução de ataque químico, proposta em um artigo do grupo paquistanês (Matiulah et. Al, 2005), que utiliza metanol como solvente e possível catalisador da reação entre solução e detector, o que acelera o consumo deste e a revelação de traços.

A solução foi testada exaustivamente, inclusive foram propostas novas soluções utilizando o metanol, porem variando a concentração deste, pois acreditamos que a presença do álcool na solução de ataque químico consome rapidamente o detector na direção perpendicular a superfície, apagando os traços contidos no detector.

Essa hipótese foi levantada baseada nas observações dos traços revelados pela nova solução (SMW), os traços tinham aparência espelhada, de uma cor cinza muito clara, o que dificultava a observação, pois era difícil distinguir os traços da superfície do detector. O diâmetro dos traços observados eram pequenos, longe dos diâmetros prometidos no artigo do grupo paquistanês.

Apesar dos resultados negativos utilizando a solução SMW, pode-se perceber que a solução tem possibilidade de realmente acelerar o processo de revelação, mas é difícil controlar a cinética química, devido a grande quantidade de íons hidroxila $[OH]^-$ presentes no hidróxido, na água e no próprio solvente, o metanol, responsável pelo consumo do detector. Para encontrar de fato a solução SMW, é necessário gastar muito tempo em laboratório, em busca das condições perfeitas para o ataque otimizado. Como o intuito da solução proposta era justamente diminuir o tempo em laboratório, é incongruente perseguir tal solução, pelo menos por enquanto. Já que o objetivo da iniciação científica é desenvolver uma metodologia estatística pela qual seja possível separar as concentrações de radônio e filhos, com um erro estatístico pequeno e o domínio da metodologia de detecção, para a preparação para o mestrado.

Além disso, o alto custo do metanol, e a larga utilização do mesmo nas soluções preparadas, é um fator preponderante para não insistirmos em tal solução. Pois apesar do grande período de tempo (400 minutos) utilizando a solução padrão, são obtidos ótimos resultados, e traços perfeitos para observação ao microscópio, utilizando apenas pequenas quantidades de hidróxido de sódio e água destilada.

IV APÊNDICE

A. Fotos de traços e material experimental



Figura A. 1 – Da esquerda para a direita, de cima para baixo: Campânula de vidro utilizada para exposição dos CR-39, produtos químicas, béquer e suporte do CR-39. Aparato (suporte) para o CR-39, enquanto dentro da solução química. Banho térmico. Fonte radioativa utilizada (Radio-226) Detector CR-39 em sua forma manufaturada, e foto da campânula em ângulo diferente, já propriamente vedada e com a fonte dentro.



Figura A. 2 - Traços de partículas alfa de Radônio e filhos, atacados com solução NaOH 6,5 M em água, a 70°C por 400 minutos. Aumento 50(objetiva) x 20(câmera CCD).



Figura A. 3 - Traços de partículas alfa de Radônio e filhos, este detector CR-39 foi atacado quimicamente pela solução SMW otimizada a 55°C, por um tempo de 40 minutos. Aumento: 50(objetiva) x 20(CCD).



Figura A. 4 - Traços de partículas alfa de Radônio e filhos, este CR-39 foi atacado quimicamente por uma solução NaOH 2,23M em água, e 87% Metanol em volume, a 55°C, durante um tempo de 10 minutos. Aumento: 50(objetiva) x 20 (CCD).



Figura A. 5 - Traços de partículas alfa de Radônio e filhos, este CR-39 foi atacado por uma solução NaOH 2,23M em Metanol 87% em volume e água a temperatura de 55°C. Aumento: 50(objetiva) x 20(CCD).

B. Tabelas de energia (α)

Source	Half-life	E _α (ke∨)	$I_{\alpha}(\% Branch)$	Source	Half-life	$E_{\alpha}(keV)$	I _α (% Branch)
¹⁴⁶ Sm	1.03×10 ⁸ v	2455 4	100	²³⁰ Th	7.538×10 ⁴ v	4687.0 15	76.3
¹⁴⁷ Sm	1.06×10 ¹¹ v	2235 3	100		,	4620.5 15	23.4
¹⁴⁷ Eu	24.1 d	2906 4	100	²³² Th	1.405×10 ¹⁰ v	4013 3	77 з
¹⁴⁸ Gd	74.6 y	3182.680 24	100		,	3950 s	23 2
¹⁴⁹ Gd	9.4 d	3016 4	100	²²⁹ Pa	1.50 d	5735 10	
¹⁵⁴ Dy	3×10 ⁶ y	2870 <i>s</i>	100			5670 3	
²¹⁰ Bi	5.013 d	4687 4				5630 <i>3</i>	
		4650 4				5615 <i>3</i>	
^{210m} Bi	3.04×10 ⁶ y	4946 <i>9</i>	56.7 13			5580 <i>3</i>	
		4908 9	37.7 17			5536 <i>3</i>	
		4574 7	5.8 4	²³⁰ Pa	17.4 d	5344.7 7	
206Po	8.8 d	5223.7 15	100			5339.7 10	
208Po	2.898 y	5114.9 14	100			5326.2 7	
²⁰⁹ Po	102 y	4880.8 20	99.43 1			5312.0 7	
210 Po	138.376 d	5304.33 7	100	224	4	5300.5 7	
222 [°] Rn	3.8235 d	5489.48 30	99.92 1	²³¹ Pa	3.2760×10 ⁺ y	5058.6 15	11.0
223Ra	11.435 d	5871.3 10	1.0 2			5028.4 10	20.0
		5747.0 4	9.2 2			5013.8 14	25.4
		5716.23 29	52.6 11			4951.3 14	22.8
		5606.73 30	25.7 5	230		4736.0 <i>s</i>	8.4
224_		5539.80 <i>s</i>	9.2 2	2000	20.8 d	5888.4 7	67.4 4
***Ra	3.66 d	5685.37 15	94.91 7	232		5817.5 7	32.0 2
226	1000	5448.6 9	5.07 7	0	68.9 y	5320.12 14	68.6 4
Ra	1600 y	4784.34 25	94.45 5	233	4 500 405	5262.36 9	31.4 4
225	10.0 d	4601 1	5.55 5		1.592×10° y	4824.0 12	83.3 3
AC	10.0 d	5829.6 14	50.7 2	234	0.455-405	4782.3 15	14.1 4
		5793.1 21	18.3 9	0	2.455×10 y	4774.6 14	12.5 30
227	21 772 v	5/31.9 17	8.2 7	235	7 020 10 ⁸ V	4722.4 14	27.5 15
AC	21.775 y	4953.26 14	47.7 10	0	7.036×10 y	4596.4 13	5.6
		4940.7 8	59.0 12 6.2 c			4397.0 13	17
227 _{Th}	18 72 d	4072.72	0.3 5			4300.120	64
	10.72 0	5977 72 10	24.29	²³⁶ U	2.342×10^7 v	4214.7 19	74
		5756 87 15	20.4 0	Ũ	2.042ATO y	4435.3 27	74 26
		5708.8 16	833	²³⁸ U	4 468×10 ⁹ v	4198 3	77 4
²²⁸ Th	1 9131 v	5423 15 22	73.4 10	Ŭ	4.400/10 }	4151 5	23.4
		5340.36 15	26.6.3	²³⁵ Np	396.1 d	5108.3	204
²²⁹ Th	7340 v	5077 4 23	0.05 1			5025 2	
	,	5051.2 23	6.6 4			5007 4	
		4967.6 23	7.0 3			4997 4	
		4900.9 23	10.6 2			4925 2	
		4845.1 23	58.2 10			_	

Tabela 4 - Tabela de energias de partículas alfa, e intensidades padrão para diversas fontes.

Source	Half-life	E _α (ke∨)	I _α (% Branch)	Source	Half-life	E _α (keV)	I _α (% Branch)
²³⁷ Np	2.14×10 ⁶ y	4877.1 17	0.7 2	²⁴⁷ Bk	1380 y	5794 <i>s</i>	5.5 5
	-	4789.8 12	47.6 19			5710 <i>s</i>	17 1
		4774.2 14	18.1 <i>13</i>			5688 <i>s</i>	13 1
		4769.2 14	14.3 13			5654 <i>s</i>	5.5 <i>e</i>
226		4644 з	5.9 8			5531 <i>s</i>	45 2
²³⁰ Pu	2.858 y	5767.53 <i>a</i>	69.14 33	240		5501 <i>s</i>	71
220		5730.87 10	30.76 33	249Bk	320 d	5436.0 21	
²³⁰ Pu	87.7 y	5499.03 <i>20</i>	71.4 5			5419 <i>3</i>	
239	4	5456.3 <i>3</i>	28.6 4	246		5391 <i>з</i>	
23°Pu	2.4110×10 ⁺ y	5156.59 14	73.3 8	Cf	35.7 h	6754 4	78.9 9
		5144.3 8	15.1 8	248	222 E d	6715 5	20.9 9
240	0500	5105.8 8	11.5 8	Cr	333.0 U	6258 5	80.0 10
Pu	6063 y	5168.13 15	73.51 36	249	251 v	6217 5	19.6 10
241	14.25 v	5123.45 23	26.39 21		551 y	6193.6 11 5912.9 4c	2.60 9
Fu	14.55 y	3033 5		250 Cf	13.08 v	6030 22 22	84.7 ¢
		4853.0 11			10.00 y	5988.9 6	15.0 2
²⁴² Pu	3 733×10 ⁵ v	4902.3 14	79 2	²⁵¹ Cf	898 v	6072.3	2.7.2
	0.700,710 y	4858.1 15	21.2		,	6012 3	12.0 4
²⁴⁴ Pu	8.08×10 ⁷ v	4589 1	80.6 s			5849 <i>3</i>	27.4 7
	,	4546 1	19.4 <i>s</i>			5679.3 16	34.9 7
²⁴⁰ Am	50.8 h	5377.6 10		²⁵² Cf	2.645 y	6118.10 4	84.3 з
		5337.1 20				6075.64 11	15.5 з
²⁴¹ Am	432.2 y	5544.5 16	0.36 <i>3</i>	²⁵³ Cf	17.81 d	5980 4	94.7 9
		5485.56 12	85.1 <i>3</i>	254		5920 <i>s</i>	5.3 19
242m		5442.80 13	13.3 7	204Cf	60.5 d	5833 <i>s</i>	
²⁴² ^m Am	141 y	5409.0 <i>s</i>		251		5791 <i>5</i>	
		5206.5 <i>s</i>		ES	33 h	6492 <i>3</i>	
243		5141.3 <i>s</i>		252-		6462 2	
2 ¹⁰ Am	7370 y	5349.4 23	0.16	ES	4/1./ O	6631 <i>3</i>	80.7 8
		5275.3 10	87.4 3	253 E e	20.47 d	65623	13.3 4
241 cm	22.9 d	5233.3 10	11.0	L.3	20.47 u	6500.5 //	65.5 %
	52.0 u	5939 D c		²⁵⁴ Es	275 7 d	6512 5	0.005
		5927 2 15			21011 0	6429.3 23	93.1 /
		5884.7 6		^{254m} Es	39.3 h	6593 4	
²⁴² Cm	162.8 d	6112.72 8	74.1 17			6559 2	
		6069.43 12	25.9 17			6384 2	
²⁴³ Cm	29.1 y	6066.2 17	1.5 2			6359 2	
		5991.8 15	5.7 2	255Es	39.8 d	6301.0 17	
		5785.2 9	73.2 23	252		6266.5 30	
244		5742.1 9	11.5 <i>s</i>	²⁵² Fm	25.39 h	7039 2	84.0 <i>s</i>
244Cm	18.10 y	5804.77 5	76.4 12	253_		6998 <i>2</i>	15.0 2
245 -		5762.16 з	23.6 12	²⁰⁰ Fm	3.00 d	7083 4	
- Cm	8500 y	5529.0 <i>s</i>	0.7 2			7023 4	
		5361.1 11	92.7 9			6943 3	
247 cm	1.56×10 ⁷ v	5304.3 12	5.1 4			69014	
Cim	1.56×10 y	5267 4	13.87			6672 3	
		32124 49704	5.7 5 71 0 42	²⁵⁷ Em	100 5 d	6752 3	0.58 c
²⁴⁸ Cm	3 40×10 ⁵ v	5078 38 25	81.97		100.0 0	6519.5 14	93.8 7
	5.46A10 J	5034.89 25	18.1 2				
²⁴⁵ Bk	4.94 d	6354 5					
		6314 5					
		6150 4					
		6122 4					
		6085 з					
		5888 з					

Tabela 5 - Continuação da tabela 4

V **Bibliografia**

- [1] BETHE, H. A; ASHKIN, J. Passage of radiations through matter. In Experimental Nuclear Physics, v. 1, edited by E. Segrè. John Wiley & Sons, New York, Chapman & Hall, London, p. 166-248, 1995.
- [2] BOCHICCHIO, F.; FORASTIERE, F.; FARCHI, S.; QUARTO, M.; AXELSON, O. Residential radon exposure diet and lung cancer: a case control study in a Mediterranean region. *International Journal of Cancer*, n. 114, p. 983-991, 2005.
- BLOT, W. J.; XU, Z. Y.; BOICE Jr., J. D.; ZHAO, D. Z.; STONE, B. J.; SUN, J.; JING, L. B.;
 FRAUMENI Jr., J. F. Indoor radon and lung cancer in China. *Journal of National Cancer Institute*, n. 82, p. 1025-1030, 1990.
- [4] COHEN, B.L. Compilation and integration of studies of radon levels in U.S. homes by states and counties. *Critical Rev. Environ. Control*, n. 23, p. 243-364, 1992.
- [5] COHEN, B.L. Test of the linear-no threshold theory of radiation carcinogenesis for inhaled radon decay products. *Health Physics*, n. 68, p. 157-174, 1995.
- [6] COHEN, B.L. Cancer risk from low-level radiation. *American Journal of Roentgenology*, n. 179, p. 1137-1143, 2002.
- [7] DARBY et. Al. Radon in homes and risk of lung cancer: collaborative analysis of individual data from 13 European cases-control studies. *BMJ*, n. 330, p. 223-226, 2005.
- [8] DA SILVA, A. A. R. Determinação da concentração de ²²²Rn e filhos em ambientes fechados com detectores plásticos. Tese (Doutorado em Física) - Instituto de Física, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2000.
- [9] DURRANI, S. A; ILIC, R. Radon Measurements by Etched Track Detectors London: World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 1997.

- [10] FLEISCHER, R. L.; TURNER, L. G.; GEORGE, A. C. Passive measurements of working levels and effective diffusion constants of radon daughters by the nuclear track technique, *Health Phys*, n. 47, p. 9-19, 1984.
- [11] FOREMAN, N.K.; THORNE R.; BERRY, P. J.; OAKHILL, A.; MOTT, M.G. Childhood malignancies in the South-West region of England, 1976-1985, *Medical and Pediatric Oncology*, n. 23, p. 14-19, 1994.
- [12] GUEDES, S.; HADLER NETO, J. C.; IUNES, P. J.; NAVIA, L. M. S.; NEMAN, R.; PAULO, S. R.; RODRIGUES, V. C.; SOUZA, W. F.; TELLO, C. A. S.; ZÚÑIGA, A. Indoor Radon and Radon Daughter surveys at Campinas-Brazil using CR-39: First Results, *Radiation Measurements*, n. 39, p. 657 660, 2005.
- [13] HADLER, J. C. N; IUNES, P. J.; OSORIO, A. M.; PAULO, S. R. The influence of the size of material surfaces on radon daughters plate-out, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, n. 313, p. 290-294, 1992.
- [14] HADLER, J. C.; PAULO, S. R. Indoor radon daughters contamination monitoring: the absolute efficiency of CR-39 taking into account the plate-out effect and environmental conditions. *Radiation Protection Dosimetry*, n. 51, p. 283-296, 1994.
- [15] HADLER, J. C.; IUNES, P. J.; PAULO, S. R. A possibility of monitoring indoor radon daughters by using CR-39 as an alpha spectrometer. *Radiation Protection Dosimetry*, n. 25, p. 609-610, 1995.
- [16] HADLER, J. C.; IUNES, P. J.; OSÓRIO, A. M.; PAULO, S. R. Relationship between Track Size and Energy for Alpha Particles in CR-39. *Nuclear Tracks and Radiation Meas.*, n. 19, p. 313-317.
- [17] KENNETH, T. B.; JENNIFER, C. Residential Radon in U.S Counties v Lung Cancer in women who predominantly never smoked. *Environmental Geochemistry and Health*, n. 24, p. 229–247, 2002.
- [18] KRANE, K. S. Introductory Nuclear Physics

- [19] LÉTOURNEAU, E.G.; KREWSKI, D.; CHOI, N.W.; GODDARD, M.J.; MCGREGOR, R.G; ZIELINSKI, J. M.; DU, J. Case-control study of residential radon and lung cancer in Winnipeg, Manitoba, Canada. *American Journal of Epidemiology*, n. 140, p. 311-322, 1994.
- [20] MARX, G. Risks of radioactivity, *Physics Education*, n. 28, p. 121-125, 1993.
- [21] MATIULLAH, REHMAN, S.; REHMAN, S.; MATI, N.; AHMAD, S. Some more new etchants for CR-39 detector, *Radiation Measurements*, n. 39, p. 551-555, 2005.
- [22] MCLAUGHLIN, J. P.; FITZGERALD, B. Models for determining the response of passive alpha particle detectors to radon and its progeny in cylindrical detecting volumes, *Radiation Protection Dosimetry*, 56, 241-246, 1994.
- [23] NAZAROFF, W. W.; NERO JR., A. V. Radon and its Decay Products in Indoor Air, John Wiley & Sons, 518 pp, 1988.
- [24] NEMAN, R. S. Medida separada de radônio-222 e de seus filhos no ar: Monitoração na cidade de Poços de Caldas-MG e comparação de atividades envolvendo 2 outras técnicas de medida de radônio-222 no ar. Tese (Doutorado em Física) - Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2004.
- [25] NEUBERGER, J. S.; FROST, F. J.; GERALD, K. B. Residential radon exposure and lung cancer: Evidence of an inverse association in Washington State, *Journal of Environmental Health*, n. 55, p. 23-25, 1992.
- [26] NIKEZIC, D.; YU, K. N. Formation and growth of tracks in nuclear track materials, *Materials Science and Engineering*, n. R46, p. 51-123, 2004.
- [27] PAULO, S. R. Dosimetria ambiental de Rn-222 e filhos: Medida da eficiência absoluta do CR-39 levando-se em conta os efeitos do plate-out e fatores ambientais. Tese (Doutorado em Física), Instituto de Física Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 1991.

- [28] PAULO, S. R.; NEMAN, R.; HADLER NETO, J. C.; IUNES, P. J.; GUEDES, S.; BALANC, A. M. O. A. Radon surveys in Brazil using CR-39, *Radiation Measurements*, n. 39, p. 657 660, 2005.
- [29] ROUSTEENOJA, E.; MÄKELÄINEN, I.; RYTÖMAA, T.; HAKULINEN, T; HAKAMA, M. Radon and lung cancer in Finland. *Health Physics*, n. 71, p. 185-189, 1996.
- [30] SCHOEMBERG, J. B.; KLOTZ, J. B.; WILCOX, H. B.; NICHOLLS, G. P.; GIL-DEL-REAL, M. T.; STEMHAGEN, A.; MASON, T. J. Case-control study of residential radon and lung cancer among New Jersey women. *Cancer Research*, n. 50, p. 6520-6524, 1990.
- [31] SOMOGYI, G.; SZALAY, S. A. Track-Diameter Kinetics in Dielectrics Track Detectors, *Nuclear Instruments and Methods* n. 109, p. 211-222, 1973.
- [32] TOMMASINO, L.; CHEROUATI, D. E.; SEIDEL, J. L.; MONIN, M. A plastic-bag sampler for passive radon monitoring. *Nucl. Tracks Rad. Meas.*, n. 12, p. 681-684, 1986.