

Igor Alencar Vellame

**Estudo de Traços de Fissão em Vidro Utilizando-se
Microscopias de Força Atômica e Eletrônica de
Varredura: Inferência da Estrutura de Traços
Latentes a partir de Traços Atacados**

Este exemplar corresponde à redação final da dissertação de mestrado defendida pelo aluno Igor Alencar Vellame e aprovada pela comissão julgadora.

Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Física.



Orientador: Prof. Dr. Julio Cesar Hadler Neto

Co-orientador: Prof. Dr. Pedro José Iunes

Campinas - 2008

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP

V545e Vellame, Igor Alencar
Estudo de traços de fissão em vidro utilizando-se microscopias de força atômica e eletrônica de varredura : interferência da estrutura de traços latentes a partir de traços atacados / Igor Alencar Vellame. -- Campinas, SP : [s.n.], 2008.

Orientadores: Julio Cesar Hadler Neto e Pedro José lunes.
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1 1. Traços de fissão. 2. Microscopia eletrônica de varredura.
2 3. Microscopia de força atômica. 4. Vidro base de emulsão.
3 I. Hadler Neto, Julio Cesar. II. lunes, Pedro José.
4 III. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb
5 Wataghin". IV. Título.

6 (vsv/ifgw)

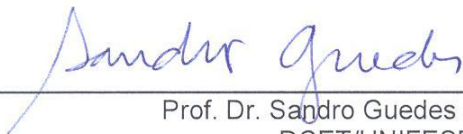
- **Título em inglês:** Glass fission track analysis by AFM and SEM : inferring latent track structure through etched tracks
- **Palavras-chave em inglês (Keywords):**
 1. Fission track
 2. Scanning electron microscopy
 3. Atomic force microscopy
 4. Soda-lime glass
- **Área de concentração:** Física Nuclear
- **Titulação:** Mestre em Física
- **Banca examinadora:**
Prof. Julio Cesar Hadler Neto
Prof. Sandro Guedes de Oliveira
Prof. Jun Takahashi
- **Data da Defesa:** 18/04/2008
- **Programa de Pós-Graduação em:** Física

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE MESTRADO DE **IGOR ALENCAR VELLAME – RA 016308** APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA “GLEB WATAGHIN”, DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 18 / 04 / 2008.

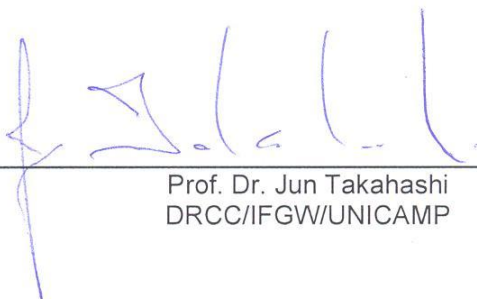
COMISSÃO JULGADORA:



Prof. Dr. Julio César Hadler Neto (Orientador do Candidato)
DRCC/IFGW/UNICAMP



Prof. Dr. Sandro Guedes de Oliveira
DCET/UNIFESP



Prof. Dr. Jun Takahashi
DRCC/IFGW/UNICAMP

À minha mãe Ana e ao meu pai Ivan.

Ao meu irmão Jeronimo.

Às minhas irmãs Luiza e Dorothea.

À minha linda Mariana.

Aos meus amigos.

Agradecimentos

Ao Grupo de Cronologia do Instituto de Física “Gleb Wataghin” (Universidade Estadual de Campinas) pela participação no desenvolvimento deste projeto. Em especial aos professores Dr. Pedro José Iunes e Dr. Julio Cesar Hadler Neto, que foram meus pais científicos, e também ao professor Dr. Sandro Guedes de Oliveira, ao Dr. Eduardo Augusto Campos Curvo, à Dra. Rosane Palissari, ao Dr. Pedro Augusto Franco Pinheiro Moreira e ao mestrando Osvaldo Luiz dos Santos Pereira pelas diversas discussões.

Ao Dr. Adolfo Marra Neto do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN) pela irradiação por nêutrons térmicos das amostras no reator nuclear.

À professora Dra. Mônica Alonso Cotta do Laboratório de Pesquisa de Dispositivos (LPD) do Instituto de Física “Gleb Wataghin” (Universidade Estadual de Campinas) pela disponibilidade de uso do Perfilômetro e do Microscópio de Força Atômica.

Ao funcionário Antônio Augusto de Godoy von Zuben do LPD pela ajuda nas medidas com o Perfilômetro para os degraus de ataque químico no vidro e a tentativa na mica.

À funcionária Dra. Rosane Palissari dos Laboratórios de Espectroscopia e Microscopia do Instituto de Geociências (Universidade Estadual de Campinas) pelas medidas com a Microscopia Eletrônica de Varredura.

Ao funcionário Eng. João Hermes Clerici e ao doutorando Alberto Luís Dario Moreau do LPD pelas medidas com a Microscopia de Força Atômica e pela discussão sobre a interpretação dos resultados obtidos pela técnica.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP, processo 06/02020-5) pelo suporte financeiro deste projeto.

Resumo

Este trabalho desenvolveu o estudo da evolução geométrica de traços da fissão induzida do isótopo ^{235}U em um vidro da categoria *soda-lime*. Para isto foi necessário conhecer o modelo geométrico para a evolução de traços de fissão em materiais isotrópicos. Este modelo tem como base a competição entre duas taxas de ataque químico: uma no material (V_B); e outra nas trajetórias dos fragmentos no material (V_T). Este ataque químico é utilizado para alargar os traços com a finalidade de observá-los em um microscópio óptico. As técnicas de Microscopia Eletrônica de Varredura e de Microscopia de Força Atômica foram utilizadas para realizar medidas com maior resolução e durante os primeiros estágios do ataque químico. Filmes de urânio foram produzidos para serem acoplados a uma montagem que também contém um colimador e um vidro. Esta montagem foi bombardeada por nêutrons térmicos em um reator nuclear. Cálculos da perda de energia dos fragmentos nas montagens foram simulados por um *software*. Medidas dos diâmetros e dos ângulos das paredes dos traços foram feitas. Recobrir parte da superfície do vidro com um material que não é corroído durante o ataque permitiu medir a taxa de ataque no material, $V_B = (0,113 \pm 0,003) \mu\text{m/s}$. Dois valores foram obtidos para a razão entre as taxas: $V_{\text{diâmetro}} = 1,66 \pm 0,07$; e $V_{\text{profundidade}} = 1,31 \pm 0,09$. O primeiro valor foi calculado pelo modelo utilizando as medidas dos diâmetros. Já o segundo valor foi calculado pelas profundidades obtidas indiretamente com o Microscópio de Força Atômica. Com estes valores constantes, chegou-se à conclusão de que o efeito causado pela passagem de um fragmento de fissão no vidro é a formação de um cilindro contínuo de danos. O resultado deste trabalho tem grande importância para modelos de *annealing* que supõem esta estrutura para os traços latentes.

Abstract

A study on the geometric evolution of ^{235}U induced fission tracks in a soda-lime glass was made. It was necessary to know about the geometric model for structure evolution of fission tracks in isotropic materials. This model is based on the competition of two chemical etching rates: one in the bulk material (V_B) and another in each fragment trajectory (V_T). This etching is generally used for track observation in an optical microscope. Scanning Electron Microscopy (SEM) and Atomic Force Microscopy (AFM) were used because of the better resolution and for measurements at short etching times. Uranium films were produced and coupled to each glass trough an acrylic piece (collimator). Irradiated by thermal neutrons the film emits fragments. Energy loss calculations were simulated by SRIM software. Track diameters and wall angles were measured. The rate $V_B = (0,113 \pm 0,003) \mu\text{m/s}$ were measured by recovering part of the glass surface with a non-etching material. Two values were obtained for the ratio between the etching rates: $V_{diam} = 1,66 \pm 0,07$ and $V_{depth} = 1,31 \pm 0,09$. The model was used to calculate the first value with the diameters measurements. The second one was obtained by indirect depth measurements with AFM. Thus, with all these constant values we can consider that the effect produced by fission fragments traversing a soda-lime glass is the production of a homogeneous cylinder of damage. This result is very important for annealing models.

Sumário

1	Introdução	1
1.1	Objetivos e Motivações	8
2	Modelo Geométrico para Evolução do Formato dos Traços de Fissão em Materiais Isotrópicos	9
3	Descrição Experimental	17
3.1	Montagem do Detector	17
3.2	Produção e Calibração de Filmes	22
3.3	Medida da Taxa de Ataque Químico V_B	29
3.4	Simulações da Perda de Energia dos Fragmentos	30
3.5	Microscopia Eletrônica de Varredura	33
3.6	Microscopia de Força Atômica	35
4	Resultados e Discussões	38
4.1	Ataque Padrão - Densidade de Traços	38
4.2	Análise	41
5	Conclusões	55
5.1	Extensão do Trabalho	58
A	Desaceleração de uma Partícula Carregada	59
A.1	Espalhamento Inelástico para Altas Energias	60
A.2	Perda de Energia de uma Partícula Incidente	63

B Regra de Bragg	67
C Materiais Utilizados	70
Referências Bibliográficas	72

Lista de Figuras

1.1	<i>A passagem de um íon em um material dielétrico causando a formação de um traço latente.</i>	2
1.2	<i>Parâmetros e processos relacionados com a formação e a observação de traços de fissão.</i>	5
1.3	<i>Diversas técnicas empregadas para realização de medidas em diferentes etapas do processo de ataque químico em traços de fissão.</i>	7
2.1	<i>Evolução do formato de traços quimicamente atacados em materiais isotrópicos com taxas de ataque constantes.</i>	10
2.2	<i>Evolução da abertura superficial dos traços durante as três fases do ataque químico. (Observe que $D_3 = d_2$).</i>	11
2.3	<i>Raios r' e r'' para determinação dos eixos maior e menor da abertura superficial na fase cônica.</i>	13
2.4	<i>Representações de formatos côncavos e convexos para traços com densidade de danos variável ao longo da trajetória.</i>	16
3.1	<i>Montagem experimental realizada para garantir a incidência de fragmentos de fissão no vidro com ângulos entre 75° e 90°.</i>	19
3.2	<i>Filme de espessura d. Os fragmentos emergem com um ângulo de emissão θ. . .</i>	19
3.3	<i>Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme A. Cada campo possui $(3,38 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (6 ± 3) traços/campo.</i>	27
3.4	<i>Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme C. Cada campo possui $(1,69 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (6 ± 3) traços/campo.</i>	28

3.5	<i>Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme E. Cada campo possui $(1,69 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (10 ± 4) traços/campo.</i>	28
3.6	<i>Perda de energia total por unidade de comprimento no vidro para o fragmento leve (nióbio) e para o fragmento pesado (lantânio).</i>	32
4.1	<i>Curva do ataque químico para o vidro de emulsão. O erro na duração do ataque foi estimado.</i>	40
4.2	<i>Taxa de ataque químico no vidro V_B. O coeficiente angular é $(0,113 \pm 0,003) \mu\text{m/s}$.</i>	42
4.3	<i>A evolução do diâmetro de traços de fissão no vidro, medida pelo Microscópio Eletrônico de Varredura em passos de 10 segundos. A escala é a barra branca no canto superior esquerdo de cada figura e equivale a $20 \mu\text{m}$.</i>	43
4.4	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 10 segundos de ataque químico.</i>	45
4.5	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 20 segundos de ataque químico.</i>	45
4.6	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 30 segundos de ataque químico.</i>	46
4.7	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 40 segundos de ataque químico.</i>	46
4.8	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 50 segundos de ataque químico.</i>	47
4.9	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 60 segundos de ataque químico.</i>	47
4.10	<i>Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 70 segundos de ataque químico.</i>	48
4.11	<i>Variação dos valores da função resposta calculados pelas medidas da Microscopia Eletrônica de Varredura com o tempo de ataque químico.</i>	49
4.12	<i>Medida da topografia de um traço com o Microscópio de Força Atômica. O lado esquerdo do traço sofreu o efeito da histerese. A parte branca aparece por causa do processamento da imagem.</i>	50

4.13	<i>Perfil de um traço com 10 segundos de ataque químico.</i>	51
4.14	<i>Perfil de um traço com 24 segundos de ataque químico.</i>	51
4.15	<i>Taxa de ataque químico no traço V_T em diferentes durações de ataque químico e montagens. O valor médio obtido é $(0,148 \pm 0,009) \mu\text{m/s}$.</i>	53
4.16	<i>Comparação da evolução dos diâmetros medidos com as Microscopias Eletrônica de Varredura (MEV) e de Força Atômica (AFM).</i>	53

Lista de Tabelas

3.1	<i>Valores das constantes de decaimento e proporção dos isótopos ^{235}U e ^{238}U. A porcentagem restante da concentração dos isótopos do urânio é referente ao isótopo menos abundante ^{234}U.</i>	25
3.2	<i>Volumes necessários das soluções de nitrato de uranila e de parlódio para realizar filmes com as espessuras desejadas.</i>	26
3.3	<i>Espessura dos filmes de urânio estimada a partir da densidade de traços de partículas alfa em detectores plásticos.</i>	27
3.4	<i>Perda de energia do fragmento leve (nióbio) nas condições experimentais utilizadas.</i>	31
3.5	<i>Perda de energia do fragmento pesado (lantânio) nas condições experimentais utilizadas.</i>	32
4.1	<i>Medidas da variação da altura do degrau em relação ao tempo de ataque químico para o vidro, realizadas com o Perfilômetro.</i>	41
4.2	<i>Cálculo dos valores para a função resposta com as medidas obtidas pela Microscopia Eletrônica de Varredura.</i>	48
4.3	<i>Dados obtidos pela Microscopia de Força Atômica para diferentes tempos de ataque químico.</i>	52

Capítulo 1

Introdução

Detectores de traços de partículas nucleares são materiais dielétricos isolantes capazes de gravar, permanentemente, os íons positivos incidentes como trilhas de danos [1,2]. Em cada um destes detectores, um traço latente é produzido pela passagem de uma partícula carregada [3,4]. Ou seja, o processo de formação de traços latentes é resultado do processo de desaceleração de partículas carregadas na matéria.

Um íon pesado (partícula) que se move rapidamente, quando penetra em um sólido, perde sua energia. A maior parte desta energia perdida é devido às colisões inelásticas, nas quais o íon transfere rapidamente sua energia para os elétrons em torno de um volume cilíndrico ao longo de sua trajetória. As energias e os momentos transferidos subsequentemente aos átomos alvo¹, freqüentemente, criam uma trilha de danos permanentes no material [5]. Uma maneira semelhante de compreender o processo de formação de traços latentes consiste em pensar que a rápida e intensa transferência de energia para os elétrons excita e ioniza os átomos alvo ao longo da trajetória do íon e, pelo acoplamento entre elétrons e fônons, a maior parte desta energia é transferida à rede [6].

Assim, a trilha de danos é resultado dos numerosos eventos de excitação e ionização que ocorrem quando uma partícula altamente ionizada (carregada) atravessa um meio condensado [7]. Após a recombinação eletrônica, o traço latente pode ser caracterizado por um volume de danos ao longo da trajetória do íon incidente [3]. Estes danos, que são

¹Os átomos alvo são os átomos que tiveram energia transferida aos seus elétrons.

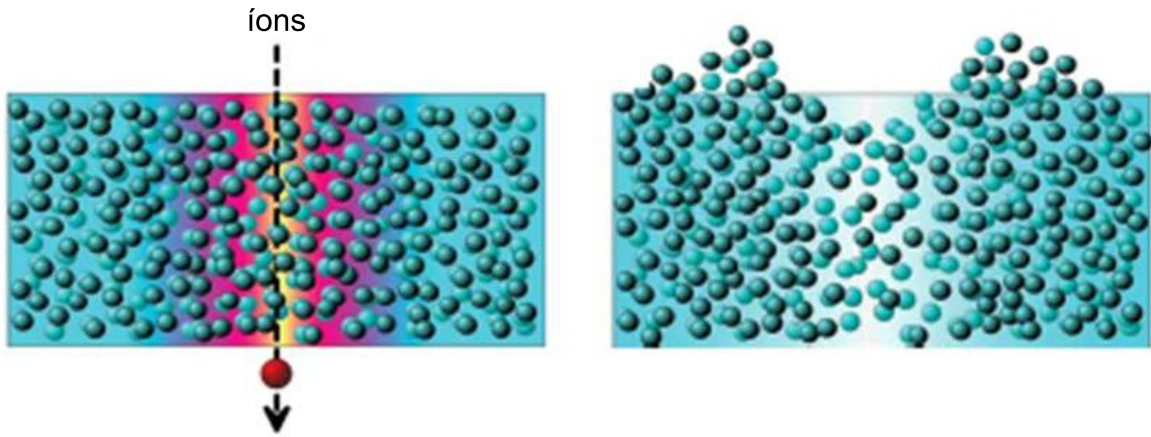


Figura 1.1: A passagem de um íon em um material dielétrico causando a formação de um traço latente.

produzidos pelas colisões do íon incidente, são constituídos por deslocamentos atômicos [8,9]. Um exemplo de formação de traços latentes é apresentado na figura 1.1.

Apesar de existir algum entendimento geral sobre a desaceleração de íons na matéria pelos conceitos térmicos macroscópicos, poderia-se basear no conceito de uma forte interação Coulombiana entre os átomos alvo ionizados para a formação dos traços latentes. Após esta interação, um relaxamento da rede ocorre antes destes átomos serem neutralizados ou blindados [10]. Este modelo de formação de traços latentes de partículas nucleares é denominado *Ion Explosion Spike* e, segundo ele, os traços latentes podem ser formados, virtualmente, em qualquer material isolante, mas não em metais ou outros bons condutores [8]. No entanto, traços em metais já foram observados [11], tornando um outro modelo, o *Thermal Spike*, mais aceito. Neste outro modelo, o traço é visto como uma região amorfa ou quase amorfa, resultante do resfriamento de um plasma [12,13]. De qualquer maneira, é possível pensar que a forte alteração estrutural do material, que ocorre na região em que um traço latente é formado, é devido a uma perturbação de alta intensidade nos campos de Coulomb [9].

No caso estudado nesta dissertação, os fragmentos de fissão, liberados no processo de fissão induzida do isótopo ^{235}U do urânio, espalham elétrons e até quebram ligações químicas para causar a trilha de danos na estrutura do vidro (material detector). Como

os vidros são materiais dielétricos, as regiões danificadas não são reparadas imediatamente e os traços latentes são relativamente estáveis [14, 15].

A fração da energia dissipada pelo íon incidente é armazenada no material e deixa as regiões danificadas em um estado de energia mais alta, muito mais susceptível ao ataque químico. Esta maior susceptibilidade está relacionada à criação de centros quimicamente reativos. Estes centros são compostos, principalmente, por átomos deslocados [8].

O método mais útil e geral de observação de traços de partículas em sólidos é a técnica de ataque químico preferencial para alargar e revelar traços latentes. A utilidade desta técnica deriva da sua simplicidade e da magnificação efetiva obtida pelo alargamento dos traços atacados [8].

Para ilustrar a técnica de ataque químico, considere um detector contendo traços latentes. Este detector é mergulhado em um reagente conveniente. Primeiro, o reagente se difunde através da região de danos. Então, o reagente ataca esta região e a dissolve, removendo uma parte do material. Com o tempo, esta reação se desenvolve e um canal é atacado ao longo da trajetória da partícula. Ao mesmo tempo, o material também é atacado e dissolvido, mas a uma taxa mais lenta. Assim, o reagente ataca a parede do canal e a alarga. Uma vez que os traços foram corretamente atacados, o detector deve ser observado para extrair as informações que contém [7, 8].

Para a escolha do reagente apropriado, em geral, apesar da tentativa e erro ter um papel importante na seleção das condições adequadas, alguns princípios são recomendados [8], dentre eles: utilizar uma superfície na qual há certeza da existência de traços para serem atacados; usar um reagente químico que dissolva lentamente o material a ser atacado a uma taxa constante; monitorar a temperatura e a concentração dos reagentes químicos, pois estas são variáveis que permitem controle da taxa de ataque químico; e a superfície a ser atacada deve ser suave em escala óptica.

No entanto, a técnica de ataque químico contém um fator limitante, já que no seu uso, o traço de fissão latente é completamente alterado pela formação do canal na região aonde estava o traço latente [3].

Se os traços latentes não interceptarem a superfície, o ataque químico do traço se inicia apenas quando uma camada superficial suficiente do material já tenha sido removida para

o reagente alcançar uma posição ao longo do traço. Todos os processos físicos como o transporte do reagente no traço ou dos produtos da reação para fora do traço podem ser comprimidos em um único parâmetro: a taxa de ataque químico no traço $V_T(z)$, na qual a trajetória do íon está contida no eixo z [16].

O grau de danos por radiação é mais elevado na vizinhança imediata da trajetória do íon e a taxa de ataque químico possui seu maior valor, o da taxa de ataque químico no traço $V_T(z)$. No entanto, o grau de danos e a taxa de ataque químico diminuem conforme a distância radial da trajetória do íon aumenta. Até que, para certa distância, os danos se reduzem a um pequeno valor e a taxa de ataque químico torna-se a mesma que a do material não-danificado² V_B [17].

A camada de material atacada h é a quantidade de material removida de cada superfície de um detector durante o ataque químico e é um importante parâmetro para determinar a sensibilidade do detector [18]. Outros parâmetros importantes do ataque químico são a duração, a temperatura e a concentração do reagente.

A determinação da densidade de traços gravados ou os parâmetros da partícula incidente dependem do conhecimento da evolução de traços latentes pelo ataque químico preferencial e do formato subsequente do traço atacado. Para o caso de identificação de partículas, este conhecimento ajuda a correlacionar os parâmetros geométricos mensuráveis do traço com a taxa de ataque químico diferencial do traço. Esta taxa é uma importante quantidade macroscópica, pois é a medida do resultado integral da reação do reagente no grau espacial e particular da distribuição de danos por radiação local em escala nanométrica. Assim, esta quantidade tem grande relevância nas considerações sobre a estrutura do traço e a qualidade dos danos de radiação produzidos pelas partículas carregadas no sistema particular do detector [1]. O comprimento atacável total do traço, após um longo ataque químico, pode ser uma indicação útil do número atômico do núcleo que produziu o traço [8].

Uma visualização do processo de formação e de observação dos traços de fissão pode ser obtida pela figura 1.2 [19]. Pode-se observar que os parâmetros da partícula (sua carga,

²Em alguns textos, a taxa de ataque químico normal ao material também é referida como V_G .

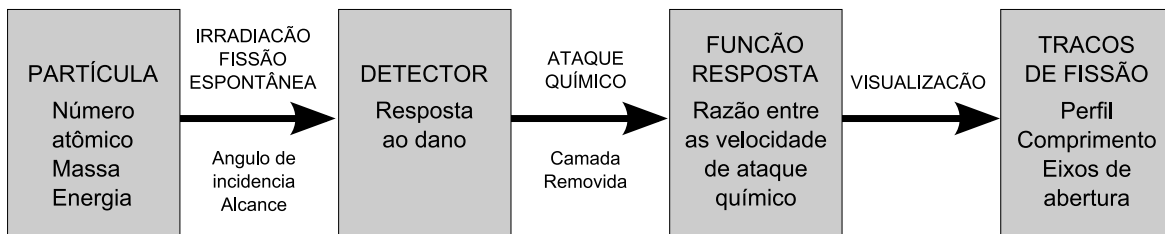


Figura 1.2: *Parâmetros e processos relacionados com a formação e a observação de traços de fissão.*

sua massa, sua energia e seu ângulo de incidência em relação à superfície do detector) são os dados de entrada do processo, enquanto os parâmetros do traço de fissão (seu comprimento, seu perfil, seu contorno e sua abertura superficial) são os dados de saída. Durante o processo, encontram-se a resposta do detector em níveis microscópico e macroscópico representados pelos danos de radiação e pelo ataque químico, respectivamente [19, 20].

A função resposta $V(z)$ é definida como a razão entre as taxas de ataque químico no traço $V_T(z)$ e normal ao material V_B [8, 14, 15, 19]:

$$V(z) = \frac{V_T(z)}{V_B} \quad (1.1)$$

Através de um bom conhecimento das taxas de ataque químico V_B e $V_T(z)$ (e conseqüentemente da função resposta também) é possível calcular precisamente os parâmetros do traço [21].

Duas distinções são possíveis na formação de traços atacados em detectores: a primeira é entre os detectores com taxa de ataque químico isotrópica³ ou anisotrópica⁴; e a segunda é feita de acordo com o grau de alteração da taxa de ataque químico ao longo do traço. O critério de taxa de ataque químico isotrópica é completamente satisfeito para vidros. O caso anisotrópico representa os cristais, nos quais a taxa de ataque químico no material é uma complicada função que depende da orientação dos planos cristalográficos. Relativo à taxa de ataque químico no traço, esta pode ser aproximada para uma constante quando pequenas remoções de camada do detector são realizadas ou quando são consi-

³A taxa de ataque químico isotrópica é idêntica em qualquer lugar do material.

⁴Neste caso, existe uma direção preferencial de ataque químico devido à cristalografia da rede.

derados traços de partículas altamente energéticas, nos quais a densidade de danos varia lentamente com o alcance da partícula [19].

Um ângulo crítico de incidência θ_c deve ser levado em conta para revelação dos traços de fissão pelo ataque químico [8, 14, 15, 19]. Este ângulo representa a projeção da taxa de ataque químico preferencial ao longo do traço na direção em que as camadas do material estão sendo removidas durante o ataque químico:

$$\theta_c = \arcsin \left[\frac{V_B}{V_T(z)} \right] = \arcsin \left[\frac{1}{V(z)} \right] \quad (1.2)$$

Para o caso de uma taxa de ataque químico variável no traço, é recomendado introduzir o conceito de remoção crítica de camada para revelação dos traços durante o processo de ataque químico [19].

Para calcular a resposta das taxas de ataque químico de um detector, quantidades como a perda de energia crítica e o ângulo de incidência, que constituem critérios básicos para a produção de traços visíveis, têm de ser conhecidas. Estas quantidades podem ser derivadas da função resposta $V(z)$ (equação 1.1) [22].

A taxa de ataque químico com que o traço é atacado também deve refletir a extensão de danos produzidos ao longo da trajetória do íon [22]. No entanto, fatores como a difusão do reagente e os produtos da reação são apontados como influenciadores das taxas de ataque químico, principalmente em baixas concentrações do reagente [23].

Uma visualização das técnicas que podem ser utilizadas para medir os parâmetros do processo durante diferentes etapas é apresentada na figura 1.3 [16]. As técnicas como Microscopia Eletrônica de Transmissão (*Transmission Electron Microscopy*- TEM), Difração de Raios X (Raios X) e Espalhamento de Nêutrons (Neutron) são utilizadas na tentativa de medir diretamente o dano latente produzido pela passagem de um íon no detector. No entanto, estas técnicas apenas conseguiram fornecer limites superiores para os parâmetros dos traços latentes [8]. Já para curtos períodos de ataque químico, técnicas como as Microscopias Eletrônicas de Varredura e de Transmissão (*Scanning Electron Microscopy*- SEM e, novamente, TEM), a Microscopia de Força Atômica (*Atomic Force Microscopy*- AFM) e o Método Eletrolítico⁵ (Eletrolítico) são utilizadas. Enquanto que, para longos

⁵No Método Eletrolítico, o detector empregado é uma folha e separa um cátodo de um ânodo. O

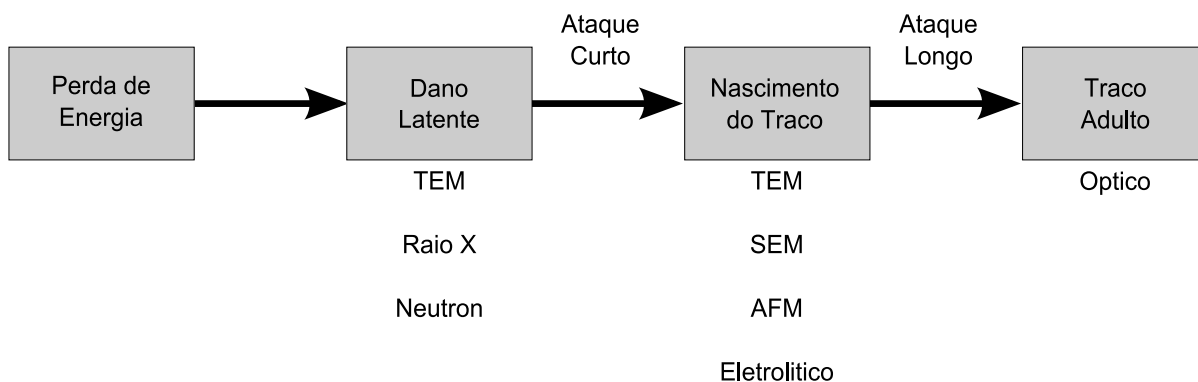


Figura 1.3: *Diversas técnicas empregadas para realização de medidas em diferentes etapas do processo de ataque químico em traços de fissão.*

períodos de ataque químico, a técnica mais empregada é a Microscopia Óptica (Optico).

Os danos estruturais que formam os traços latentes podem ser apagados, reconstituindo a rede, principalmente pela temperatura. Tal fenômeno é denominado *annealing* e acarreta o encurtamento do comprimento e a redução da densidade de traços.

Uma das principais aplicações da detecção de traços de partículas nucleares reside na termocronologia por traços de fissão, que permite a obtenção de histórias térmicas de amostras geológicas a partir do estudo do *annealing* de traços de fissão gerados nessas amostras desde sua formação [24]. Isso é importante, por exemplo, para o estudo da história térmica de áreas com chances de prospecção de petróleo. Essa aplicação surgiu do fato de hidrocarbonetos líquidos maturarem em temperaturas próximas daquelas em que traços de fissão em apatita sofrem *annealing* significativo em tempos geológicos, entre cerca de 80 e 120°C [25].

O *annealing* permite que se faça uma relação entre o comprimento dos traços revelados e a exposição deles à temperatura. Em geral, são feitas curvas de *annealing* em laboratório expondo-se traços à temperaturas e tempos controlados e medindo-se os efeitos no comprimento dos traços. Estes conjuntos de dados são utilizados para se determinar as características do processo de *annealing* e servem de base para modelos cinéticos que municiarão programas geradores de histórias térmicas para amostras geológicas. A maioria reagente é utilizado como solução condutora, ao mesmo tempo que dissolve o material.

dos modelos cinéticos é puramente empírica, porém, os modelos mais recentes procuram dar significado físico aos parâmetros envolvidos [24]. Neste caso, o conhecimento da estrutura dos traços de fissão tem papel fundamental na dedução das equações que descrevem o processo de *annealing*.

1.1 Objetivos e Motivações

O presente trabalho tem como objetivo principal estudar a estrutura (ou densidade de defeitos) de traços de fissão do isótopo ^{235}U , induzida por nêutrons térmicos, a partir da evolução da geometria de traços quimicamente atacados no vidro base de emulsão. Ou seja, a partir deste estudo, espera-se investigar a densidade de defeitos ao longo de um traço de fragmento de fissão, que é considerada como um cilindro contínuo de danos em diversos modelos [15,24,26–28], através de um modelo geométrico para evolução de traços em materiais isotrópicos.

Um outro objetivo deste trabalho é a familiarização com técnicas diferentes da microscopia óptica para medidas de traços de fissão: a Microscopia Eletrônica de Varredura; e a Microscopia de Força Atômica. Comparações entre estas técnicas de observação serão feitas.

O processo de *annealing* dos traços por tratamento térmico não é completamente compreendido. Isto acarreta uma grande quantidade de modelos empíricos com diversos parâmetros ajustáveis sem significado físico claro. Apesar de tais modelos apresentarem resultados compatíveis com dados geológicos, eles, em princípio, devem ser encarados com mais cautela no que se refere a extrapolações de dados em escala geológica quando comparados a modelos baseados em parâmetros com significado físico. O presente trabalho tem como principal motivação estudar a estrutura de traços latentes para possibilitar o suporte de hipóteses, como a caracterização de um traço latente pela densidade de defeitos, assumidas em modelos de *annealing* baseados em parâmetros com significado físico.

Capítulo 2

Modelo Geométrico para Evolução do Formato dos Traços de Fissão em Materiais Isotrópicos

O ataque químico é o processo de alargamento do traço no qual se utiliza um reagente químico, que corrói lentamente o material, para amplificação dos traços latentes.

Como dito anteriormente, duas distinções podem ser feitas a respeito da formação de traços em detectores após um ataque químico conveniente. A primeira distinção é entre os detectores com taxa de ataque químico isotrópica e anisotrópica no material (V_B). A segunda distinção é feita de acordo com o grau de alteração da taxa de ataque químico ao longo do traço (V_T). O formato do traço é influenciado pela densidade de danos ao longo da trajetória da partícula [19].

Considerando as hipóteses de que a fração da energia transferida ao material detector que gera o traço latente é constante (ou seja, a densidade de danos da trilha é a mesma durante toda trajetória da partícula), que o detector é homogêneo e isotrópico e que as taxas de ataque químico não são afetadas por qualquer gradiente de concentração durante o processo¹, é possível descrever um modelo geométrico simples para a revelação

¹Fatores como a difusão do reagente e os produtos de reação podem ter um papel importante nas taxas de ataque químico [29].

de traços [8, 14, 17, 19, 30].

Neste modelo com as taxas de ataque químico constantes, a dissolução química procede com taxa V_T ao longo de uma estreita região central do traço (núcleo do traço) e com taxa V_B , normal à superfície, nas outras regiões do meio detector, formando, assim, o que pode ser considerado um cone normal circular que tem a trilha de danos como seu eixo e um ângulo de semi-cone igual à θ_c . As figuras de intersecção dos traços com a superfície do material são elipses e suas excentricidades dependem do ângulo de incidência θ da partícula na superfície do material detector. Se a ponta do cone alcançar o ponto final da trajetória da partícula no material detector, o ataque químico preferencial acaba e sua continuação se dá com a mesma taxa V_B normal a todas as superfícies do material. Nesta fase “sobre-atacada”, a parede do traço move-se paralelamente e une-se a esfera em torno do ponto final da trajetória da partícula. Prosseguindo com o ataque químico, a parte circular da abertura torna-se cada vez maior. Finalmente, após um ataque químico suficiente, o traço torna-se inteiramente esférico e a sua abertura superficial um círculo. Esta evolução do formato do traço é apresentada na figura 2.1 [14]. A partícula incide no detector pelo ponto O com um ângulo θ em relação à superfície do mesmo. A figura 2.1 representa sucessivos ataques químicos no detector, sendo que a cada ataque químico, a superfície é corroída certa distância $h = V_B t$, na qual t é a duração do ataque químico. O

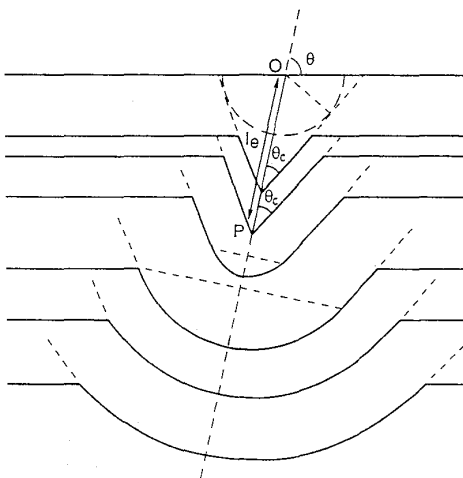


Figura 2.1: *Evolução do formato de traços quimicamente atacados em materiais isotrópicos com taxas de ataque constantes.*

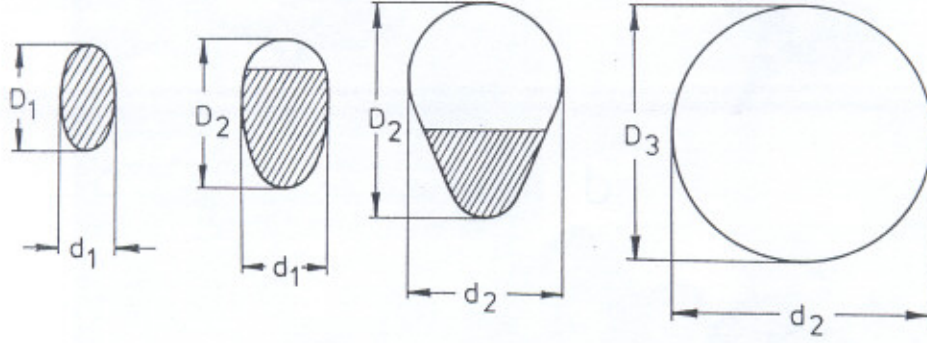


Figura 2.2: *Evolução da abertura superficial dos traços durante as três fases do ataque químico. (Observe que $D_3 = d_2$).*

ponto P representa a posição em que a partícula entrou em repouso. Assim, a distância \overline{OP} é o alcance da partícula no detector.

Assim, pode-se perceber que existem três fases distintas para a evolução do formato do traço: a inicial, em que o traço tem um formato cônico; a final, em que o traço tem um formato esférico; e uma fase intermediária em que o traço lentamente perde seu formato cônico e ganha seu formato esférico. Nomeiam-se estas fases de cônica, esférica e intermediária, respectivamente. Pode-se ter uma ilustração deste processo observando a figura 2.2 [19], que representa as aberturas superficiais dos traços. A primeira abertura representa a fase cônica, as duas aberturas seguintes representam a fase intermediária e, por fim, a última abertura representa a fase esférica.

Supondo que a superfície do detector coincide com o topo da trilha de danos, o ataque químico procede com taxa de ataque químico V_B no material e V_T ao longo da trilha de danos. Durante a fase cônica, o traço atacado tem um típico formato de cone com uma abertura superficial elíptica. A fase intermediária começa quando o reagente alcança o final da trajetória da partícula, no instante t_{circ} . Nesta fase, a evolução do traço é governada pela taxa de ataque químico no material V_B normal a todas as superfícies. É isto que acarreta a alteração progressiva no formato do traço de um cone para um segmento de esfera devido ao arredondamento do fundo do traço (figura 2.1). O arredondamento é dado por $r = V_B (t - t_{circ})$, enquanto a abertura superficial permanece elíptica. Conforme

o ataque químico progride, o fundo esférico une-se suavemente com a parte cônica e, em um determinado momento, que depende do ângulo de incidência da partícula, o fundo arredondado alcança a superfície. O contorno da abertura superficial do traço torna-se parcialmente elíptico e parcialmente esférico. Com o progresso do ataque químico, a parte circular cresce gradualmente e a parte elíptica diminui até desaparecer. Neste instante do ataque químico é atingida a fase esférica em que os traços são segmentos de esfera com abertura circular.

Assim, a fase cônica é a única fase do ataque químico em que há atuação do ataque preferencial causado pela passagem da partícula. Portanto, ela é a única fase em que se podem relacionar medidas dos parâmetros, como profundidade e abertura superficial, diretamente com a taxa de ataque químico no traço V_T e, conseqüentemente, com os danos produzidos pela passagem da partícula e com o processo de difusão do reagente e dos produtos de reação. As outras fases podem apenas relacionar indiretamente estes parâmetros.

Durante a fase cônica, é possível observar (figura 2.1) que o comprimento l do traço (distância do ponto O até o ponto mais profundo do traço) é dado por:

$$l = h \left(\frac{1}{\text{sen}\theta_c} - \frac{1}{\text{sen}\theta} \right) \quad (2.1)$$

na qual h é a camada removida da superfície, θ é o ângulo de incidência e θ_c é o ângulo do cone que tem a trajetória da partícula como seu eixo central. Já o comprimento l' (distância da superfície atual do detector até o ponto mais profundo do traço) é dado por:

$$l' = h \left(\frac{\text{sen}\theta}{\text{sen}\theta_c} - 1 \right) \quad (2.2)$$

Na fase cônica, a abertura superficial do traço pode ser descrita por uma elipse e, conseqüentemente, pelos seus eixos maior D_1 e menor d_1 (primeira abertura superficial da figura 2.2). Considere o cone formado por uma partícula com ângulo de incidência θ na superfície. Existirão dois raios do cone, um que une um ponto A , superior à abertura superficial, a uma extremidade da abertura (r') e outro que une um ponto B , inferior à abertura superficial, a outra extremidade do traço (r''), como demonstrado na figura 2.3. Definindo que estes raios são a projeção da distância entre a extremidade do traço e o

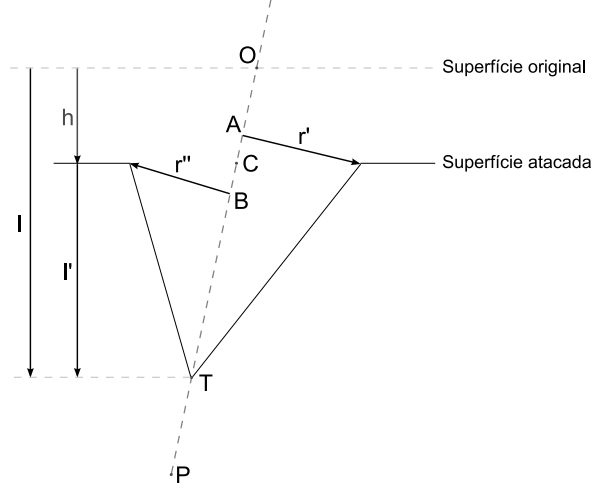


Figura 2.3: Raios r' e r'' para determinação dos eixos maior e menor da abertura superficial na fase cônica.

ponto C , que estão no plano da superfície do detector, a abertura do traço pode ser escrita como soma destas distâncias D'_1 e D''_1 , obtém-se:

$$D_1 = D'_1 + D''_1 = \frac{r' + r''}{\text{sen } \theta} \quad (2.3)$$

Considere agora o ponto C . A distância \overline{OC} é dada por:

$$\overline{OC} = \frac{h}{\text{sen } \theta} \quad (2.4)$$

No eixo do cone, a distância entre o ponto A que forma o raio r' e o ponto C é, pelo teorema de Pitágoras, dada por:

$$\begin{aligned} (\overline{AC})^2 &= D'^2_1 - r'^2 = \frac{r'^2}{\text{sen}^2 \theta} - r'^2 = r'^2 \left(\frac{1 - \text{sen}^2 \theta}{\text{sen}^2 \theta} \right) \\ \overline{AC} &= \sqrt{r'^2 \frac{\text{cos}^2 \theta}{\text{sen}^2 \theta}} = \frac{r'}{\text{tg } \theta} \end{aligned} \quad (2.5)$$

A distância entre o ponto A e o ponto T é o comprimento l' do traço e, pela substituição das equações 2.4 e 2.5, é dado por:

$$l' = \overline{AT} = l - \overline{OC} + \overline{AC} = l - \frac{h}{\text{sen } \theta} + \frac{r'}{\text{tg } \theta} \quad (2.6)$$

A tangente do ângulo de cone θ_c é dada por:

$$\text{tg } \theta_c = \frac{r'}{l'} = \frac{r'}{l - \frac{h}{\text{sen } \theta} + \frac{r'}{\text{tg } \theta}} = \frac{h}{\sqrt{l^2 - h^2}} \quad (2.7)$$

sendo que a última igualdade aparece da semelhança entre triângulos. Lembrando que:

$$V \equiv \frac{V_T}{V_B} = \frac{l}{h}$$

pode-se manipular a equação 2.7:

$$\frac{h}{\sqrt{l^2 - h^2}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{l^2}{h^2} - 1}} = \frac{1}{\sqrt{V^2 - 1}}$$

$$\frac{r'}{l'} = \frac{r'}{l - \frac{h}{\text{sen } \theta} + \frac{r'}{\text{tg } \theta}} = \frac{1}{\sqrt{V^2 - 1}}$$

para colocar r' em evidência:

$$r' \sqrt{V^2 - 1} = hV - \frac{h}{\text{sen } \theta} + \frac{r'}{\text{tg } \theta} = h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)}{\text{sen } \theta} + \frac{r'}{\text{tg } \theta}$$

$$r' \left(\sqrt{V^2 - 1} - \frac{1}{\text{tg } \theta} \right) = h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)}{\text{sen } \theta}$$

e, assim, obter:

$$r' = h \frac{V \text{sen } \theta - 1}{\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1} - \cos \theta} \quad (2.8)$$

Da mesma maneira, pode-se obter para o raio r'' :

$$r'' = h \frac{V \text{sen } \theta - 1}{\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1} + \cos \theta} \quad (2.9)$$

Somando as equações 2.8 e 2.9, obtém-se:

$$\begin{aligned} r' + r'' &= h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)(2 \text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1} + \cos \theta - \cos \theta)}{(\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1} - \cos \theta)(\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1} + \cos \theta)} \\ &= 2h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)(\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1})}{\text{sen}^2 \theta (V^2 - 1) - \cos^2 \theta} \\ &= 2h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)(\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1})}{V^2 \text{sen}^2 \theta - (\text{sen}^2 \theta + \cos^2 \theta)} \\ &= 2h \frac{(V \text{sen } \theta - 1)(\text{sen } \theta \sqrt{V^2 - 1})}{V^2 \text{sen}^2 \theta - 1} \\ &= 2h \text{sen } \theta \frac{\sqrt{V^2 - 1}}{V \text{sen } \theta + 1} \end{aligned} \quad (2.10)$$

Da equação 2.3, obtém-se para o eixo maior D_1 da abertura superficial elíptica:

$$D_1 = 2h \frac{\sqrt{V^2 - 1}}{V \operatorname{sen} \theta + 1} \quad (2.11)$$

Para obter o eixo menor da abertura superficial elíptica, é necessário avaliar o raio médio \bar{r} , dado por:

$$\bar{r} = \frac{1}{2}(r' + r'') \quad (2.12)$$

e a sua diferença ϵ , dada por:

$$\epsilon = \frac{1}{2}(r' - r'') \quad (2.13)$$

Assim, o eixo menor d_1 é dado por:

$$d_1 = 2 \sqrt{\bar{r}^2 - \epsilon^2} = 2 \sqrt{r'r''} \quad (2.14)$$

Substituindo as equações 2.8 e 2.9, obtém-se:

$$\begin{aligned} d_1 &= 2 \sqrt{\frac{[h (V \operatorname{sen} \theta - 1)]^2}{(V^2 - 1) \operatorname{sen}^2 \theta - \cos^2 \theta}} \\ &= 2h \sqrt{\frac{(V \operatorname{sen} \theta - 1)^2}{V^2 \operatorname{sen}^2 \theta - 1}} \\ &= 2h \sqrt{\frac{V \operatorname{sen} \theta - 1}{V \operatorname{sen} \theta + 1}} \end{aligned} \quad (2.15)$$

As situações em que a taxa de ataque químico no traço V_T pode ser aproximada para um constante estão restritas a pequenas remoções de camada h do material e a traços de partículas altamente energéticas, nas quais a densidade de dano é somente uma função suave que varia lentamente com o alcance da partícula. No entanto, mesmo quando os desvios da estrutura cônica dos traços são observados, a aproximação pode ser utilizada para fornecer valores médios dos parâmetros.

Uma taxa de ataque químico variável no traço transforma o formato do mesmo em uma figura complexa. Neste caso, a abertura superficial do traço não é mais uma elipse, mas pode ter a forma oval ou outras formas mais complicadas que dependem da razão entre as taxas de ataque químico no traço e no material [31]. Se a taxa de ataque químico

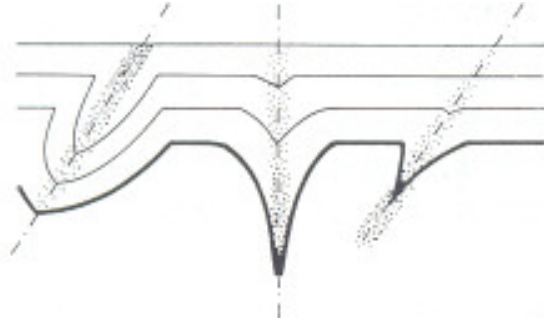


Figura 2.4: *Representações de formatos côncavos e convexos para traços com densidade de danos variável ao longo da trajetória.*

no traço $V_T(z)$ aumentar durante o ataque químico, o formato do traço é convexo. Caso diminua, o formato do traço é côncavo. Estas características do formato dos traços podem ser observadas na figura 2.4 [14], na qual a concentração de pontos indica a densidade de danos ao longo da trajetória da partícula.

Durante o ataque químico, conforme a ponta do cone passa por cada ponto da trajetória da partícula, as paredes do traço carregam um ângulo de cone $\theta_c(z)$ característico da taxa de ataque químico no traço $V_T(z)$ para cada ponto z particular da trajetória da partícula, pois a taxa de ataque químico no traço depende da densidade de danos.

Neste caso, pode-se perceber uma analogia da revelação do traço, que tem uma taxa de ataque químico ao longo do traço $V_T(z)$ variável, com uma frente de ondas acelerando ou freando. Do ponto de vista matemático, a descrição da evolução da parede do traço é equivalente a descrição da evolução da frente de onda produzida por um objeto movendo-se com velocidade variável $V_T(z)$ em um meio que tem velocidade de grupo V_B . Este problema pode ser resolvido pelo princípio de Fermat para o tempo mínimo [1]. No entanto, o problema necessita o conhecimento da função resposta V .

Capítulo 3

Descrição Experimental

Nas próximas seções serão apresentadas as montagens experimentais realizadas (incluindo a produção e a calibração de filmes finos) e a descrição das técnicas (Microscopias Eletrônica de Varredura e de Força Atômica) que serão utilizadas para obtenção dos dados (diâmetro e complementar do ângulo de cone) de traços da fissão do isótopo ^{235}U , bombardeado por nêutrons térmicos. Também serão apresentados o procedimento para medida da taxa de ataque químico no material V_B e as simulações de perda de energia nas montagens.

3.1 Montagem do Detector

Este trabalho é realizado com um vidro detector de traços de partículas nucleares. Os vidros são sólidos amorfos feitos pela fusão da sílica com um óxido básico. Em geral, são feitos com sílica, cal e carbonato de sódio. Acrescentam-se materiais secundários, como metais de transição ou de terras raras, para dar novas propriedades e facilitar o processo de fabricação.

Um sólido amorfo é aquele que não apresenta uma estrutura cristalina. Já um sólido cristalino é caracterizado pela periodicidade e simetria de sua rede cristalina. Neste sólido, cada átomo tem uma posição específica com relação aos outros átomos ao seu redor. Esta regularidade das distâncias parece existir no vidro para distâncias comparáveis aquelas

dos primeiros vizinhos. No entanto, estes átomos não formam uma rede periódica [32]. Além disso, o vidro não apresenta, no seu processo de solidificação, a descontinuidade nas propriedades termodinâmicas (como volume, energia e viscosidade), que é característica das transições do estado líquido para o estado sólido. Mesmo assim, propriedades como a densidade, a entalpia e a resistência mecânica dos vidros têm valores próximos aos observados em cristais.

Os vidros podem ser divididos em três categorias (todas contêm silício, oxigênio e sódio): o vidro *soda-lime* é o mais comum (usado no dia a dia) e pode conter mercúrio e alumínio, sendo constituído por 60-75% de sílica, 12-18% de soda e 5-12% de cal; o vidro *lead* contém chumbo e potássio, sendo constituído por, pelo menos, 20% de óxido de chumbo; e o vidro *borosilicate* contém boro e alumínio, sendo constituído por, pelo menos, 5% de óxido de boro. O vidro *soda-lime* não é resistente a altas temperaturas, a mudanças térmicas e à corrosão química, enquanto o vidro *borosilicate* possui certa resistência a mudanças térmicas e à corrosão química. Já o vidro *lead* tem quase o dobro da densidade dos demais. O vidro trabalhado neste projeto é o vidro base de emulsão, produzido para não conter urânio ou tório como impureza¹. Este vidro é classificado como sendo da categoria *soda-lime*.

Na montagem experimental, o vidro detector é acoplado a um filme fino de urânio, que contém tri-óxido de urânio e serve como uma fonte de fragmentos de fissão quando bombardeado por nêutrons térmicos em um reator. Para garantir que os traços incidam na superfície do vidro com ângulos entre 75° e 90°, foram utilizados colimadores [4]. Cada colimador consiste em uma peça de acrílico furada. Os fragmentos de fissão irão emergir do filme bombardeado, passar pelo colimador e incidir na superfície do vidro detector. Esta montagem é apresentada na figura 3.1. Assim, para um colimador com nove furos de 1 mm, a altura calculada, necessária para esta condição, foi de 4 mm. É importante notar que os nêutrons térmicos, utilizados no bombardeamento do filme, não são capazes de produzir danos observáveis no vidro detector.

O filme não irá emitir fragmentos de fissão isotropicamente. Considere que o alcance

¹Ambos elementos produziram traços de fundo no vidro durante a irradiação no reator.

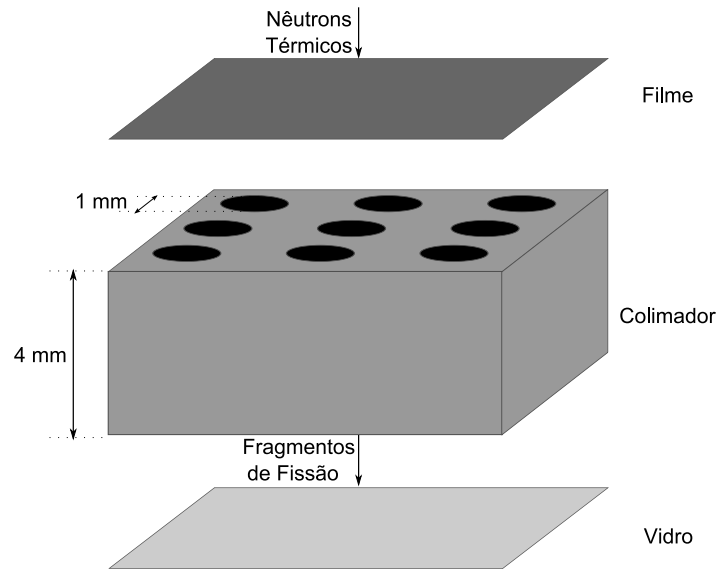


Figura 3.1: *Montagem experimental realizada para garantir a incidência de fragmentos de fissão no vidro com ângulos entre 75° e 90° .*

de um fragmento de fissão no filme é conhecido e dado por R_f , a espessura do filme é dada por d e um ângulo θ (ângulo de emissão) é formado no ponto de emissão do fragmento e dado em relação à normal da superfície do filme. A figura 3.2 ilustra esta situação. A quantidade de fragmentos de fissão que deixarão o filme com um ângulo até o valor θ será dada por:

$$\begin{aligned}
 N_\theta &= A \int_0^{2\pi} \int_0^\theta \int_0^{\frac{d}{\cos\theta'}} \frac{\cos\theta'}{4\pi r^2} r^2 \text{sen}\theta' dr d\theta' d\phi \\
 &= \frac{A d}{2} \int_0^\theta \text{sen}\theta' d\theta' = -\frac{A d}{2} \cos\theta' \Big|_0^\theta
 \end{aligned} \tag{3.1}$$

na qual A é a área do filme que emite fragmentos. Para calcular a emissão total do filme deve-se considerar também os fragmentos que são emitidos com ângulos superiores à θ ,

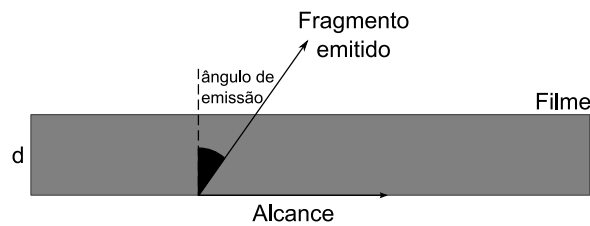


Figura 3.2: *Filme de espessura d . Os fragmentos emergem com um ângulo de emissão θ .*

assim:

$$\begin{aligned}
N_{total} &= A \int_0^{2\pi} \int_0^{\arccos \frac{d}{R_f}} \int_0^{\frac{d}{\cos \theta'}} \frac{\cos \theta'}{4\pi r^2} r^2 \operatorname{sen} \theta' dr d\theta' d\phi \\
&+ A \int_0^{2\pi} \int_{\arccos \frac{d}{R_f}}^{\frac{\pi}{2}} \int_0^{R_f} \frac{\cos \theta'}{4\pi r^2} r^2 \operatorname{sen} \theta' dr d\theta' d\phi \\
&= -\frac{A d}{2} \cos \theta' \Big|_0^{\arccos \frac{d}{R_f}} - \frac{A R_f}{4} \cos^2 \theta' \Big|_{\arccos \frac{d}{R_f}}^{\frac{\pi}{2}} \\
&= \frac{A d}{2} \left(1 - \frac{d}{R_f}\right) + \frac{A d^2}{4 R_f} = \frac{A d}{2} \left(1 - \frac{d}{2 R_f}\right)
\end{aligned} \tag{3.2}$$

Considerando que $\frac{R_f}{d} > 100$, pode-se aproximar a equação 3.2 para²:

$$N_{total} \approx \frac{A d}{2} \tag{3.3}$$

Para obter a porcentagem de fragmentos que conseguem deixar o filme com um ângulo θ em relação à normal (levando em conta apenas a geometria do filme) divide-se a equação 3.1 pela equação 3.3:

$$\frac{N_\theta}{N_{total}} = -\cos \theta' \Big|_0^\theta = 1 - \cos \theta \tag{3.4}$$

No entanto, os colimadores, além de garantir uma incidência próxima à normal, também irão diminuir a quantidade de fragmentos que emergem do filme e alcançam a superfície do detector. O processo de emissão de fragmentos no filme é dado pela equação 3.4. Agora, imagine um plano que corte o colimador e passe pelo diâmetro de um dos furos, ou seja, um cilindro com altura R e diâmetro d . Seja x a distância que pode variar entre 0 e d em cada furo e defina dois ângulos α e β . A integral será feita nesta distância x e sobre uma rotação de 180° deste plano para cobrir a área de emissão do colimador. A altura R é, razoavelmente, maior que o diâmetro d (quatro vezes maior):

$$\operatorname{tg} \theta_{max} = \frac{d}{R} = \frac{d}{4d} = \frac{1}{4} = 0,25 \tag{3.5}$$

²Observe que este critério é satisfeito para filmes de até $0,1 \mu\text{m}$ de espessura, pois o alcance médio de um fragmento no filme de urânio é $10 \mu\text{m}$. No caso de filmes com $1,0 \mu\text{m}$, esta aproximação introduz um erro de 5% no N_{total} .

tem-se $\text{tg } 15^\circ \approx 0.268$ e $15^\circ \approx 0.262$ rad, na qual quinze graus foi a variação máxima do ângulo de incidência para o qual o colimador foi projetado.

Assim, pode-se aproximar a distância d pelos arcos que podem ser feitos com os dois ângulos e levando-se em conta a emissão dos fragmentos no filme por estes ângulos (equação 3.4):

$$\begin{aligned} d &\approx \arcsin\left(\frac{N_\theta}{N_{total}}\right) \approx \arcsin(\alpha) \frac{N_\alpha}{N_{total}} + \arcsin(\beta) \frac{N_\beta}{N_{total}} \\ &= \alpha \text{ hip}(\alpha) (1 - \cos \alpha) + \beta \text{ hip}(\beta) (1 - \cos \beta) \end{aligned} \quad (3.6)$$

na qual hip representa a hipotenusa. Como $\text{tg } \theta \approx \theta$ tem-se:

$$\begin{aligned} \alpha &\approx \text{tg } \alpha = \frac{x}{R} \quad \text{e} \quad 1 - \cos \alpha \approx 1 - 1 + \alpha^2 = \alpha^2 = \left(\frac{x}{R}\right)^2 \\ \beta &\approx \text{tg } \beta = \frac{d-x}{R} \quad \text{e} \quad 1 - \cos \beta \approx 1 - 1 + \beta^2 = \beta^2 = \left(\frac{d-x}{R}\right)^2 \end{aligned}$$

e, assim, pode-se escrever para a distância d :

$$d \approx \sqrt{x^2 + R^2} \left(\frac{x}{R}\right)^3 + \sqrt{(d-x)^2 + R^2} \left(\frac{d-x}{R}\right)^3 \quad (3.7)$$

Integra-se a equação 3.7 em x de 0 até d e em $\sin \theta$ $d\theta$ na rotação de 180° (π) para obter a área restrita do colimador A_c :

$$\begin{aligned} A_c &\approx \int_0^d \int_0^\pi \left[\sqrt{x^2 + R^2} \left(\frac{x}{R}\right)^3 + \sqrt{(d-x)^2 + R^2} \left(\frac{d-x}{R}\right)^3 \right] \sin \theta \, d\theta \, dx \\ &= 2 \left[\int_0^d \sqrt{x^2 + R^2} \left(\frac{x}{R}\right)^3 \, dx + \int_0^d \sqrt{(d-x)^2 + R^2} \left(\frac{d-x}{R}\right)^3 \, dx \right] \\ &= 2 \left[\int_0^d \sqrt{x^2 + R^2} \left(\frac{x}{R}\right)^3 \, dx - \int_d^0 \sqrt{u^2 + R^2} \left(\frac{u}{R}\right)^3 \, du \right] \\ &= 4 \int_0^d \sqrt{x^2 + R^2} \left(\frac{x}{R}\right)^3 \, dx \end{aligned} \quad (3.8)$$

na qual a mudança de variáveis $u = d - x$ foi feita. Novamente, utilizando a mudança de variáveis, denomina-se $x^2 = y$ e integra-se por partes para obter:

$$\begin{aligned} A_c &\approx \frac{2}{R^3} \int_0^{d^2} \sqrt{y + R^2} \, y \, dy = \frac{4}{3 R^3} (y + R^2)^{3/2} y \Big|_0^{d^2} - \frac{4}{3 R^3} \int_0^{d^2} \sqrt{y + R^2} \, dy \\ &= \frac{4}{3 R^3} d^2 (d^2 + R^2)^{3/2} - \frac{8}{15 R^3} (y + R^2)^{5/2} \Big|_0^{d^2} \\ &= \frac{4}{3 R^3} \left[d^2 (d^2 + R^2)^{3/2} - \frac{2}{5} (d^2 + R^2)^{5/2} + \frac{2}{5} R^5 \right] \end{aligned} \quad (3.9)$$

Para calcular a área de emissão total do filme, faz-se a integração sobre uma casca esférica. Estudou-se dois casos limites. Um deles é o caso em que o fragmento atravessará o colimador entrando com um ângulo reto (é a menor distância possível entre o filme e o detector) e o outro é o caso em que o fragmento atravessa de um extremo do colimador ao outro, formando uma diagonal (a hipotenusa será a maior distância entre o filme e o detector). Uma média da função da distância ρ da fonte foi feita e foi encontrado um valor aproximado para a área de emissão total, levando em conta a emissão de fragmentos do filme (equação 3.4). Ou seja, como $\rho_{min} = R$ e $\rho_{max} = \sqrt{d^2 + R^2}$, obtém-se:

$$\begin{aligned}
A_T \approx \bar{f}(\rho) &= \frac{\int_a^b f(\rho) d\rho}{\int_a^b d\rho} = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^\pi \int_R^{\sqrt{d^2+R^2}} \rho^2 d\rho (1 - \cos \theta) \sin \theta d\theta d\phi}{\int_R^{\sqrt{d^2+R^2}} d\rho} \\
&= \frac{2\pi \left(-\cos \theta + \frac{\cos^2 \theta}{2} \right) \Big|_0^\pi \frac{\rho^3}{3} \Big|_R^{\sqrt{d^2+R^2}}}{\rho \Big|_R^{\sqrt{d^2+R^2}}} = \frac{\pi}{3} \left[\frac{(d^2 + R^2)^{3/2} - R^3}{\sqrt{d^2 + R^2} - R} \right] \quad (3.10)
\end{aligned}$$

Pode-se agora, calcular a razão da área restrita do colimador (equação 3.9) pela área total de emissão de fragmentos (equação 3.10) para saber qual a fração destes fragmentos são emitidos pelo filme, passam pelo colimador e atingem a superfície do detector. Esta fração é dada por:

$$\text{fração} \approx \frac{A_c}{A_T} = \frac{8}{\pi R^3} \frac{\left[d^2 (d^2 + R^2)^{3/2} - \frac{2}{5} (d^2 + R^2)^{5/2} + \frac{2}{5} R^5 \right]}{\left[\frac{(d^2 + R^2)^{3/2} - R^3}{\sqrt{d^2 + R^2} - R} \right]} \quad (3.11)$$

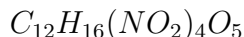
na qual um fator 2 foi acrescentado, pois o processo de fissão é, geralmente, um evento binário (emissão de dois fragmentos). Com esta função para o valor da fração, pode-se calcular a fração de fragmentos emitidos que alcança o detector na montagem da figura 3.1. Este resultado é próximo a 0,25%.

3.2 Produção e Calibração de Filmes

Como dito anteriormente, os filmes de urânio servirão como fonte de fragmentos de fissão nas montagens experimentais (figura 3.1). Estes filmes foram produzidos utilizando

o procedimento de Yagoda [33]. Neste procedimento, mistura-se uma solução de nitrato de uranila com uma solução de parlódio em gel para obter, após um estágio seco³, uma película depositada na superfície de uma mica muscovita. Esta película contém uma quantidade apropriada de urânio⁴. A mica é, então, aquecida à aproximadamente 400°C e o resultado é um filme de óxido de urânio alocado sobre sua superfície [34].

O parlódio⁵ é um colóide responsável pela homogeneização do filme. A solução possui a seguinte fórmula química:



e entra em ignição à 165°C. Neste aquecimento são liberados óxidos de nitrogênio, monóxido de carbono e cianetos. Como os reagentes na solução do parlódio são extremamente voláteis, foi necessário medir a concentração do parlódio na solução. Para tal, utilizou-se uma balança digital para medir a massa de parlódio em 4 ml de solução. A amostra permaneceu por três dias na balança para garantir que os seus elementos voláteis tivessem evaporado. A variação da massa da amostra foi acompanhada para observar o ponto de saturação. A massa final medida de parlódio foi $(9 \pm 1) \times 10^{-2}$ g em 4 ml da solução.

Para conhecer a espessura dos filmes, cujos fragmentos perderão uma fração de sua energia ao serem liberados, calibra-se os filmes pela detecção de traços de partículas alfa (emitidas pelos átomos de urânio) em um detector plástico, como o CR-39. Este detector é acoplado ao filme por um tempo t . A densidade de traços na superfície do detector (após um ataque químico conveniente) é dada por [34]:

$$\rho_{\alpha U}^{det} = \frac{1}{2} \epsilon_{\alpha}^{det} t N_U (2C_{238} \lambda_{238} + C_{235} \lambda_{235}) \quad (3.12)$$

na qual ϵ_{α}^{det} denota a eficiência de detecção de traços no detector, N_U o número de átomos de urânio por unidade de área, as constantes C_{238} e C_{235} são as concentrações dos isótopos do urânio, enquanto λ_{238} e λ_{235} são as constantes de decaimento alfa dos mesmos isótopos. O fator $\frac{1}{2}$ representa a geometria 2π do detector, enquanto o fator 2 nos parênteses considera que, no urânio natural, o isótopo ^{234}U está em equilíbrio secular com o isótopo ^{238}U .

³Este estágio seco representa a evaporação dos elementos voláteis presentes nas soluções.

⁴Esta quantidade apropriada será representada pela espessura do filme quando este estiver pronto.

⁵Outros nomes comuns para esta solução são nitrato de celulose, pirocilina e colodion.

A eficiência de detecção do plástico CR-39 para partículas alfa de filmes de urânio pode ser determinada pela razão entre as densidades de traços gravadas no CR-39 e em emulsões nucleares [34]:

$$\epsilon_{\alpha}^{CR39} = 0,728 \pm 0,016 \quad (3.13)$$

Este mesmo procedimento pode ser utilizado para determinar a quantidade de urânio numa solução de nitrato de uranila. Assim, uma solução do nitrato de uranila foi separada com uma seringa para um novo recipiente com o intuito de garantir a ausência de óxidos de urânio, que possuem uma coloração mais escura do que a do nitrato. Desta solução, uma gota de $5 \mu\text{l}$ foi pipetada numa lâmina de vidro. Novamente, devido à presença de elementos voláteis, esperou-se um dia para acoplar um CR-39 na gota. O CR-39 ficou exposto durante trinta minutos e, após isto, foi realizado um ataque químico padrão de 400 minutos numa solução de 50 g de soda cáustica (NaOH) em 200 ml de água de-ionizada. Esta solução foi preparada em um béquer de vidro e colocada dentro de um banho térmico a uma temperatura de 70°C . O ácido acético foi utilizado como freador da reação. Para preparar a solução freadora, diluiu-se 5 ml deste ácido em 95 ml de água de-ionizada. Assim, obteve-se a seguinte densidade de traços no CR-39:

$$\rho_{\alpha U}^{CR39} = (1,06 \pm 0,03) \times 10^4 \text{ traços/cm}^2 \quad (3.14)$$

Utilizando as equações 3.12 e 3.13, pode-se estimar o número de átomos de urânio n_U na gota:

$$n_U = \frac{2 \rho_{\alpha U}^{CR39} A_{gota}}{\epsilon_{\alpha}^{CR39} t (2C_{238}\lambda_{238} + C_{235}\lambda_{235})} \quad (3.15)$$

na qual A_{gota} denota a área da gota. Esta área foi calculada representando a gota em um papel milimetrado através da observação no microscópio óptico. Este papel milimetrado foi digitalizado e analisado pelo *software* UTHSCSA Image Tool, que forneceu uma estimativa do valor para a área ($A_{gota} \approx 29,8 \text{ mm}^2$). Os valores das constantes estão apresentados na tabela 3.1 [35]. Considerando que para cada traço registrado tem-se um átomo de urânio, obteve-se em $5 \mu\text{l}$ de nitrato de uranila:

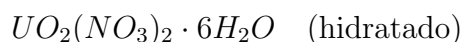
$$n_U = (4,82 \pm 0,17) \times 10^{17} \text{ átomos de urânio} \quad (3.16)$$

Tabela 3.1: Valores das constantes de decaimento e proporção dos isótopos ^{235}U e ^{238}U . A porcentagem restante da concentração dos isótopos do urânio é referente ao isótopo menos abundante ^{234}U .

Constante	Valor
C_{235}	0,7204%
C_{238}	99,2741%
λ_{235}	$9,84864 \times 10^{-10} \text{ anos}^{-1}$
λ_{238}	$1,55136 \times 10^{-10} \text{ anos}^{-1}$

A solução de nitrato de uranila com parlódio foi feita em um cadinho e colocada em uma piscina⁶ quadrada de $(4,0 \pm 0,1)$ cm de lado feita com fita isolante em cima de uma mica clivada. Antes das soluções serem despejadas nas micas, estas foram lavadas em água corrente para retirada de qualquer resquício de planos clivados e com álcool para limpeza de gordura e outras sujeiras. Álcool etílico e éter foram acrescentados ao cadinho para complementar o volume necessário desta solução (igual ao da piscina). Para despejar a solução, a mica foi presa a uma mesa com três pés ajustáveis que garantem o nivelamento do filme.

A fórmula química para a solução de nitrato de uranila hidratado é dada por:



Com esta fórmula, calcula-se a quantidade de parlódio a ser adicionada a um certo volume de nitrato de uranila. Este cálculo foi feito considerando que a mesma massa de nitrato de uranila e parlódio é necessária para a produção do filme [33]. A espessura do filme pode ser calculada considerando que cada átomo de urânio forma um tri-óxido de urânio. O cálculo da quantidade necessária de cada solução para produção de filmes com diferentes espessuras está apresentado na tabela 3.2.

Assim, após as soluções serem despejadas nas micas, esperou-se um tempo para a evaporação dos elementos voláteis. As micas, junto com cada película depositada, foram cortadas para retirada da fita isolante que formava a piscina e colocadas no forno a uma

⁶Esta piscina tem aproximadamente 0,7 ml de volume.

Tabela 3.2: *Volumes necessários das soluções de nitrato de uranila e de parlódio para realizar filmes com as espessuras desejadas.*

	Espessura (μm)	Nitrato de Uranila (μl)	Parlódio (μl)
cálculo base	0,04	10	36
filme A	0,1	25	87
filme C	0,5	122	436
filme E	1,0	244	871

temperatura de 400°C, no qual ficaram por aproximadamente vinte e duas horas.

Depois do aquecimento, foram acoplados detectores CR-39 em cada filme para realizar a contagem da densidade de traços de partículas alfa para verificar se os filmes estão na espessura em que foram planejados.

Com o número de átomos de urânio por unidade de área N_U em cada filme e considerando que cada átomo de urânio forme o tri-óxido de urânio na reação feita para a deposição do filme (cada traço medido seria referente a um destes átomos), tem-se, pela densidade e massa molar do tri-óxido de urânio, uma estimativa da espessura do filme. A densidade do tri-óxido de urânio pode variar entre 5,5 g/cm³ e 8,7 g/cm³ devido as suas quatro estruturas possíveis. Desta maneira, considera-se a densidade do tri-óxido de urânio como (7,0±0,8) g/cm³. Já sua massa molar é dada pela soma das massas dos seus constituintes, ou seja, $M_{molar}^{UO_3} = 286,03$ g/mol.

A tabela 3.3 apresenta os tempos de exposição dos detectores plásticos nos filmes, a densidade de traços observados (com um aumento de 500x em um microscópio óptico), o número de átomos de urânio por unidade de área, estimada pela equação 3.12, e a espessura do filme dada por:

$$\text{espessura} = \frac{\text{átomos de U}}{\text{área}} \frac{M_{molar}^{UO_3}}{\text{densidade}} \frac{1}{6,02 \times 10^{23}} \quad (3.17)$$

Como dito anteriormente, cada filme era formado por um quadrado com (4,0±0,1) cm de lado. A varredura para obter a densidade de traços foi feita com passos de 1 mm e, assim, por volta de 1250 campos foram medidos para cada filme. Os histogramas de distribuição da densidade de traços por campo para cada filme estão apresentados nas

Tabela 3.3: *Espessura dos filmes de urânio estimada a partir da densidade de traços de partículas alfa em detectores plásticos.*

	Tempo (horas)	Densidade (10^4 traços/cm 2)	N_U (átomos/cm 2)	Espessura (μm)
filme A	18,0	$1,85 \pm 0,03$	$(7,85 \pm 0,21) \times 10^{16}$	$0,053 \pm 0,006$
filme C	3,5	$3,34 \pm 0,05$	$(7,29 \pm 0,19) \times 10^{17}$	$0,49 \pm 0,06$
filme E	3,5	$6,29 \pm 0,08$	$(1,37 \pm 0,03) \times 10^{18}$	$0,93 \pm 0,10$

figuras 3.3, 3.4 e 3.5, assim como suas médias e os respectivos desvios padrão. O valor do erro indicado para a densidade de traços (na tabela 3.3) é considerado como o erro padrão da média. A propagação de erros foi utilizada para calcular os erros das demais grandezas. No caso do número de átomos de urânio por unidade de área N_U , foram utilizados os erros da eficiência de contagem $\Delta\epsilon_\alpha^{CR39}$ e da densidade de traços no detector $\Delta\rho_{\alpha U}^{CR39}$, e no caso da espessura, os erros da densidade do tri-óxido de urânio e do número de átomos de urânio por unidade de área ΔN_U .

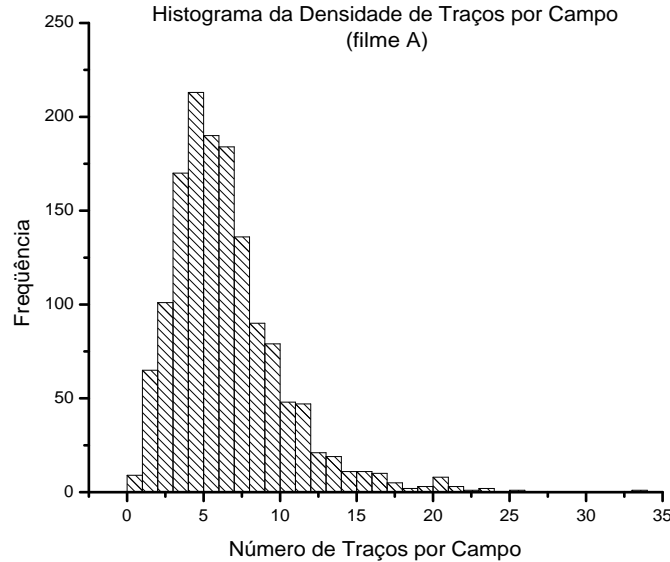


Figura 3.3: *Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme A. Cada campo possui $(3,38 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (6 ± 3) traços/campo.*

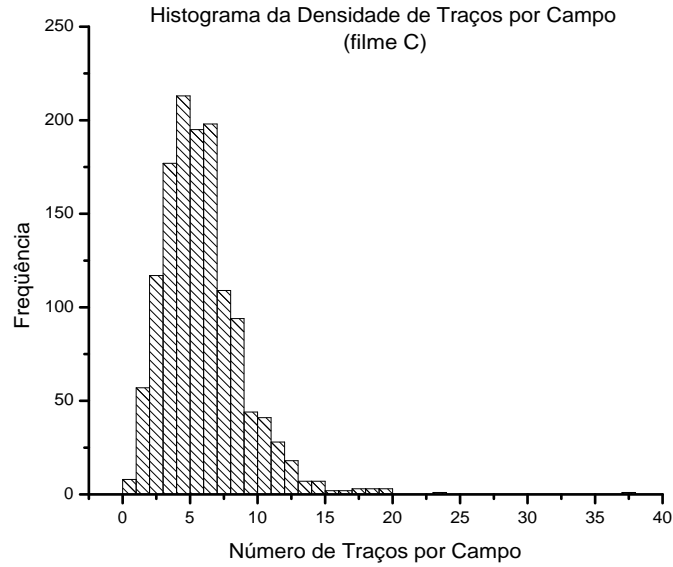


Figura 3.4: *Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme C. Cada campo possui $(1,69 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (6 ± 3) traços/campo.*

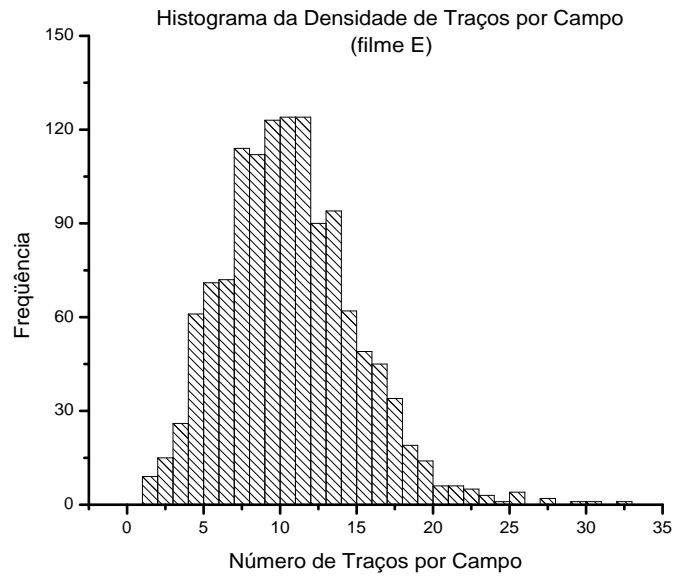


Figura 3.5: *Histograma da distribuição da densidade de traços por campo no filme E. Cada campo possui $(1,69 \pm 0,07) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$. A média com desvio é (10 ± 4) traços/campo.*

Pode-se observar que, exceto pelo filme mais fino, as espessuras calculadas para os filmes estão de acordo com aquelas que eles foram projetados. Dois fatores são apontados como possíveis causadores da diferença no filme mais fino. Um deles é o fato de que, quando a quantidade de urânio no filme é muito baixa, o processo de aquecimento que leva à eliminação do parlódio pode alterar significativamente a quantidade de urânio no filme. O outro fator é que a solução preparada com parlódio e nitrato de uranila estava com muito éter e isto acarretou em um vazamento do líquido pelas bordas da piscina durante a produção deste filme.

3.3 Medida da Taxa de Ataque Químico V_B

Para cálculos precisos dos parâmetros do traço, é necessário um bom conhecimento das taxas de ataque químico no traço V_T e no material V_B [21].

A camada removida h é a quantidade de material dissolvida de cada superfície de um detector durante o ataque químico. Ela é um importante parâmetro para determinar a sensibilidade do detector. Alguns métodos para medida desta camada h envolvem medidas da variação da espessura ou da massa do detector. Outro método recobre um pedaço da superfície do material com objetivo de proteger este pedaço da superfície original durante o ataque químico. Este material utilizado para recobrir a superfície não é corroído durante o ataque químico. Assim, com a retirada deste material, a camada h pode ser determinada como sendo a diferença de altura (degrau) entre a superfície original e a superfície atacada [18]. Este procedimento de recobrir uma parte da superfície do material foi utilizado para medir a camada h para ataques químicos de diferentes durações. Com estas medidas, é possível calcular a taxa de ataque químico no material V_B .

Em geral, a variância na superfície atacada é maior do que na superfície original. Isto indica que a superfície do detector perde suavidade por causa do ataque químico [18].

3.4 Simulações da Perda de Energia dos Fragmentos

A investigação dos produtos de fissão do isótopo ^{235}U mostra uma variação nas massas atômicas dos fragmentos entre 72 e 158. A maioria dos núcleos de ^{235}U que se fissionam emite produtos em dois grupos: um leve (com massa atômica entre 85 e 104) e outro pesado (com massa atômica entre 130 e 149). O modo mais provável de fissão gera dois produtos com massas atômicas iguais a 95 e 139 [36]. Assim, pode-se considerar como produtos, liberados na fissão do isótopo ^{235}U , o nióbio (fragmento leve) e o lantânio (fragmento pesado). As energias iniciais, com que estes fragmentos são liberados na fissão induzida por nêutrons térmicos são, em média, 70 MeV para o fragmento pesado e 102 MeV para o fragmento leve⁷ [39, 40].

Ambos os fragmentos serão desacelerados por colisões com os núcleos e, principalmente, por elétrons dos átomos e das moléculas que estão nos meios pelos quais os fragmentos atravessam. A perda de energia pela interação com os elétrons é dada pela equação de Bethe (equação A.32)⁸:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{el} = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v_0^2} N Z \ln\left(\frac{2 m_e v_0^2}{I}\right) \quad (3.18)$$

na qual $\frac{dE}{dx}$ representa a perda de energia por unidade de comprimento, o índice el se refere a perda eletrônica, z é o número de carga do núcleo que atravessou a matéria, e é a carga elementar, m_e é a massa do elétron, v_0 é a velocidade da partícula e I é um parâmetro semi-empírico relacionado com a energia de excitação média.

No caso estudado, os fragmentos irão interagir com as moléculas de tri-óxido de urânio (UO_3) na travessia do filme e com os átomos presentes na composição do ar dentro de cada furo do colimador, antes de alcançarem a superfície do vidro. Para simular as perdas de energia que ocorrerão quando os fragmentos interagem com a matéria, é necessário conhecer a composição atômica e a densidade de cada meio interagente. A composição atômica do filme de urânio foi considerada como 75% de oxigênio e 25% de urânio. Sua

⁷Isto totaliza uma energia liberada de 172 MeV para os fragmentos de fissão. Existem alguns autores que acreditam que a fissão libera 165 MeV de energia para os fragmentos [37, 38]. Esta diferença não irá alterar significativamente os cálculos.

⁸O Apêndice A trás a demonstração desta equação.

densidade, como descrita anteriormente, é de $(7,0 \pm 0,8)$ g/cm³. Já a composição atômica do ar foi considerada como 75,53% de nitrogênio, 23,18% de oxigênio, 1,28% de argônio e 0,01% de carbono, enquanto a sua densidade é de 1,58 g/cm³. As simulações das desacelerações e das perdas de energia podem ser feitas utilizando o *software* SRIM (*Stopping and Range of Ions in Matter*)⁹. Com os dados obtidos por estas simulações foram feitas regressões lineares para pontos próximos do intervalo de energia com que cada fragmento interage com a montagem. Obtidos os valores dos coeficientes destas regressões, foram calculadas as perdas de energia na montagem e, conseqüentemente, as energias com que os fragmentos incidem no vidro, levando em conta a espessura do filme (tabela 3.3) e do colimador (4 mm). Estes dados de perda de energia estão apresentados nas tabelas 3.4 e 3.5 para os fragmentos leve (nióbio) e pesado (lantânio), respectivamente.

A perda de energia total por unidade de comprimento no vidro também pode ser simulada para estes dois fragmentos. Novamente, é necessário conhecer a composição atômica e a densidade do vidro. Na biblioteca do *software* a composição atômica encontrada para um vidro da categoria *soda-lime* é de 60% de oxigênio, 25% de silício, 10% de sódio, 3% de cálcio, 1% de magnésio e 1% de alumínio. Sua densidade é de $(2,33 \pm 0,10)$ g/cm³. As curvas da perda de energia de cada fragmento neste vidro estão apresentadas na figura 3.6. O intervalo de energia utilizado para fazer a curva do fragmento leve foi de 1 MeV até 70 MeV e para o fragmento pesado foi de 1 MeV até 40 MeV, conforme as energias de incidência descritas nas tabelas 3.4 e 3.5. Observe que, devido a sua maior energia de entrada, o fragmento leve (nióbio) tem um alcance maior no vidro. Isto acarreta uma

⁹Os cálculos da perda de energia deste *software* são baseados na equação de Bethe corrigida e em dados atualizados. O Apêndice B trás uma breve revisão do conceito da regra de aditividade de Bragg, utilizada no algoritmo do *software* para os cálculos do alcance.

Tabela 3.4: *Perda de energia do fragmento leve (nióbio) nas condições experimentais utilizadas.*

	Perda Filme	Perda Colimador	Energia de Incidência
filme A	0,75 MeV	32,18 MeV	69,07 MeV
filme C	6,92 MeV	31,69 MeV	63,39 MeV
filme E	13,14 MeV	31,20 MeV	56,66 MeV

Tabela 3.5: *Perda de energia do fragmento pesado (lantânio) nas condições experimentais utilizadas.*

	Perda Filme	Perda Colimador	Energia de Incidência
filme A	0,68 MeV	31,79 MeV	37,53 MeV
filme C	6,24 MeV	30,15 MeV	33,61 MeV
filme E	11,85 MeV	28,49 MeV	29,66 MeV

profundidade maior para o traço de fissão. Note também que a perda de energia por unidade de comprimento para o nióbio é sistematicamente maior do que a perda do lantânio. Apenas considerando isto, o nióbio deveria ter o diâmetro dos seus traços maior. No entanto, a massa do lantânio é bem maior, assim como sua carga quando ionizado. Então, seu potencial de ionização é maior do que o do nióbio. Assim, mesmo depositando menos energia por unidade de comprimento no material, os traços de fissão revelados para o fragmento pesado devem ter diâmetros maiores.

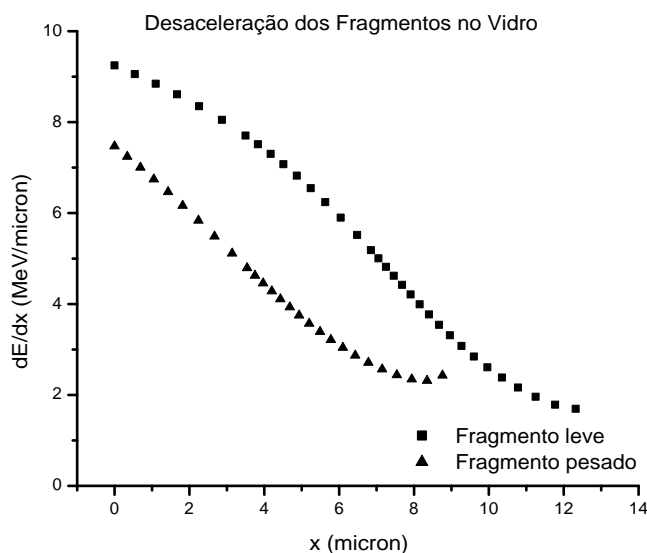


Figura 3.6: *Perda de energia total por unidade de comprimento no vidro para o fragmento leve (nióbio) e para o fragmento pesado (lantânio).*

3.5 Microscopia Eletrônica de Varredura

O princípio da Microscopia Eletrônica é o mesmo da microscopia óptica. Substitui-se a fonte de luz e as lentes de vidro por uma fonte de elétrons e lentes magnéticas. A principal diferença está no comprimento de onda e, assim, na resolução que pode ser alcançada com cada microscopia. O critério de Rayleigh diz que a menor distância resolvida é dada por:

$$\Delta = 1,22 \frac{\lambda}{\alpha} \quad (3.19)$$

na qual λ é o comprimento de onda da fonte e α é a distância angular. Considerando apenas este critério, um elétron com energia de 100 keV utilizado na Microscopia Eletrônica de Transmissão teria um comprimento de onda da ordem de sub-angstroms e muito mais resolução do que a luz visível, que tem seu comprimento de onda no intervalo entre 200 e 300 nanômetros. No entanto, não é apenas este critério responsável pela resolução da imagem. A dificuldade na fabricação e a qualidade das lentes magnéticas são os principais fatores que dificultam a obtenção desta ótima resolução da Microscopia Eletrônica. No caso da Microscopia Eletrônica de Varredura, o feixe de elétrons é demagnificado por um sistema de lentes para formar uma pequena sonda, com resolução da ordem de poucas centenas de nanômetros. Uma descrição bastante completa do funcionamento e dos componentes de um Microscópio Eletrônico de Varredura pode ser encontrada na referência [41].

Os elétrons são acelerados em um cátodo termiônico ou emissor de campo por uma diferença de voltagem entre o cátodo e o ânodo. A pequena seção de choque do feixe tem a magnitude reduzida por um sistema de lentes eletrônicas. Assim, uma sonda de elétrons, que carrega uma corrente específica, é formada na superfície da amostra. A lente que forma a sonda final tem de operar relativamente longe da amostra para que as diversas partículas e *quanta* emitidos possam ser coletados com a eficiência desejada. A abertura da sonda de elétrons é pequena, o que resulta em uma profundidade de foco muito maior do que a microscopia com luz.

Um sistema de bobinas de deflexão em frente a última lente varre a sonda de elétrons em torno da amostra e em sincronismo com um feixe de elétrons de um tubo de raios catódicos separado. A intensidade do tubo de raios catódicos é modulada por um dos

sinais gravados para formar uma imagem. A vantagem da Microscopia Eletrônica de Varredura é a quantidade de interações entre os elétrons e a amostra que podem ser utilizadas para formar uma imagem e fornecer informações qualitativas e quantitativas.

Os espalhamentos elástico e inelástico são os processos de interação atômica elementares. O sinal final utilizado para formação de imagens não é o resultado de processos de espalhamentos simples, mas a completa difusão dos elétrons causada pela perda gradual de energia destes elétrons e seu esparramamento devido aos múltiplos eventos de espalhamento elástico com grandes ângulos. A consequência da perda gradual da energia do elétron é que os elétrons têm um alcance finito que depende da sua energia e da densidade do alvo, mas a informação da profundidade e extensão lateral da informação do volume que contribuem para cada sinal possível depende de onde ocorreu a interação correspondente.

O espectro de energia dos elétrons emitidos consiste em elétrons secundários, elétrons retro-espalhados e elétrons Auger. Os elétrons secundários são gerados por excitações inelásticas a níveis tão elevados de energia, que os elétrons excitados podem ultrapassar a função trabalho antes de serem desacelerados para o nível de Fermi. O amplo espectro de elétrons retro-espalhados é causado pela desaceleração de elétrons que sofreram perdas de energia múltiplas e sofrem espalhamentos múltiplos com grandes ângulos. A produção de elétrons Auger é uma alternativa à emissão de raios X após a ionização de uma camada interna. Os elétrons secundários e Auger são altamente susceptíveis aos espalhamentos elástico e inelástico e podem deixar a amostra apenas de uma fina espessura¹⁰ da superfície. No entanto, estes dois tipos de emissões não são apenas causados pelos elétrons primários, mas também pelos elétrons retro-espalhados. Raios X característicos somente podem ser excitados em um volume no qual os elétrons excederam a energia de ionização da camada interna envolvida. A maior parte da fração de perda de energia dos elétrons primários, durante a seqüência de processos de espalhamento inelástico, é convertida em fônons ou calor. Na maioria dos casos, a condutividade térmica é tão alta que o aquecimento da amostra não é um problema sério.

¹⁰Esta fina espessura tem da ordem de alguns nanômetros.

O modo de elétrons secundários é o mais importante, pois estes podem ser facilmente coletados. A dependência dos elétrons secundários em relação ao ângulo de inclinação do elemento de superfície, ao aumento da emissão nas extremidades e nas partículas pequenas e ao contraste de sombras que resulta da detecção incompleta, permite que eles possam ser usados para fazer uma imagem da topografia da superfície.

3.6 Microscopia de Força Atômica

Os Microscópios de Varreduras por Sondas são uma família de instrumentos utilizada para estudar as propriedades da superfície de materiais da micra até o nível atômico. Uma revisão destes pode ser obtida na referência [42].

O Microscópio de Varredura por Tunelamento é o antecessor à todos Microscópios de Varredura por Sondas. Estes Microscópios de Varredura por Tunelamento utilizam uma ponta afiada e condutora com uma voltagem aplicada entre a ponta e a amostra. Quando a ponta é aproximada da amostra, elétrons da amostra podem tunelar para a ponta ou vice-versa, dependendo do sinal da voltagem. A corrente de tunelamento resultante varia com o espaçamento entre a ponta e a amostra e o seu sinal é utilizado para criar uma imagem. Para o tunelamento ocorrer, tanto a amostra quanto a ponta devem ser condutoras ou semi-condutoras.

Um Microscópio de Força Atômica mede as curvas de força por distância, que fornecem informações sobre as propriedades elásticas locais da superfície. Este microscópio varre a superfície da amostra com uma ponta afiada de alguns micra de comprimento e menos de 100 angstroms de diâmetro. A ponta está localizada em uma das extremidades de uma viga (*cantilever*). As forças entre a ponta e a superfície da amostra causam a curvatura ou deflexão da viga. Um detector mede estas deflexões conforme a ponta varre a amostra ou a amostra é varrida embaixo da ponta. As deflexões medidas permitem um computador gerar o mapa de topografia da superfície.

Diversas forças tipicamente contribuem para a deflexão medida pela viga do microscópio. A força mais associada ao Microscópio de Força Atômica é a força inter-atômica de van der Waals. No regime de não-contato, a viga é sustentada a algumas centenas de

nanômetros da superfície da amostra e a força inter-atômica entre a viga e a amostra é atrativa. A viga mantém-se vibrando próximo à superfície da amostra.

O regime de não-contato fornece uma maneira de medir a topografia da amostra com pouco ou nenhum contato entre a ponta e a amostra. Assim, a força total entre a ponta e a amostra é muito baixa. Neste regime, o sistema vibra a viga rígida próximo de sua frequência de ressonância. Então, detectam-se as mudanças nesta frequência ou na amplitude de vibração conforme a ponta se aproxima da superfície da amostra. Este regime não sofre efeitos de degradação da ponta ou amostra que, às vezes, são observados após numerosas varreduras com o regime de contato.

A frequência de ressonância de uma viga varia com a raiz quadrada da sua constante de mola. Além disso, a constante de mola de uma viga varia com o gradiente da força experimentada pela viga. Como o gradiente da força varia com a distância entre a ponta e a amostra, pode-se relacionar a frequência de ressonância da viga com as variações da topografia da amostra. Um sistema monitora a frequência de ressonância ou amplitude vibracional da viga e mantém-a constante com ajuda de um sistema auxiliar que move o *scanner* para cima e para baixo. Assim, o movimento do *scanner* é utilizado para gerar o conjunto de dados.

Em virtualmente todos os Microscópios de Varredura por Sonda, um *scanner* de piezo-elétrico é utilizado como um posicionador extremamente preciso para mover a sonda sobre a amostra (ou a amostra sobre a sonda). O *scanner* se move pela primeira linha de varredura e volta. Daí, ele se move perpendicularmente para a segunda linha de varredura. Ele faz a varredura nesta linha e volta. Então, vai perpendicularmente para a terceira linha e assim por diante. Os dados são coletados em apenas uma direção, chamada de direção de varredura rápida, para minimizar os erros de registro das linhas que resultam da histerese do *scanner*. A direção perpendicular, em que o *scanner* varre linha por linha em passos, é chamada direção de varredura lenta.

É a cerâmica do piezo-elétrico que apresenta este comportamento de histerese. Suponha que não exista nenhuma voltagem aplicada. Se a voltagem for aumentada gradualmente para algum valor finito e depois diminuída novamente para zero, as curvas da extensão do piezo-elétrico como função da voltagem aplicada para o caso crescente

e decrescente não coincidem. Isto deve ser levado em conta e muito cuidado deve ser tomado na avaliação de perfis e, principalmente, nas medidas de ângulos de inclinação na topografia da amostra.

Capítulo 4

Resultados e Discussões

Nas duas próximas seções serão apresentados os resultados obtidos neste trabalho. Os dados obtidos com as técnicas de Microscopias Eletrônica de Varredura e de Força Atômica são comparados.

4.1 Ataque Padrão - Densidade de Traços

Para a realização dos ataques químicos no vidro, o ácido fluorídrico (HF) é utilizado como reagente a uma temperatura de $15^{\circ}C$ num banho térmico dentro de uma capela com sistema de exaustão. No entanto, a concentração em que o HF é adquirido é muito alta para o ataque químico no vidro (o processo seria muito rápido). Assim, o HF é diluído pelo acréscimo de 50 gramas de água de-ionizada em 50 gramas do HF para reduzir sua concentração de 40% para 20%.

A reação química no material após o ataque químico deve ser parada. Para tal, utiliza-se uma solução freadora que, no caso do HF , é constituída por uma solução super-saturada de bicarbonato de sódio ($NaHCO_3$) em água de-ionizada. Para obter esta solução, o bicarbonato de sódio é lentamente despejado em um béquer com aproximadamente 400 ml de água de-ionizada e misturado com um bastão. Como o bicarbonato de sódio é acrescentado lentamente, é possível notar o momento em que não é mais possível dissolvê-lo e, então, a solução está pronta. Assim, após o material ser colocado no reagente, ele

é mergulhado na solução freadora, aonde permanece por dois minutos. Passados estes dois minutos, o material é lavado em água corrente durante cinco minutos e, finalmente, permanece mais dez minutos no ultra-som. Estes procedimentos são para a retirada dos resquícios da reação entre o ácido e a base. De agora em diante, quando o ataque químico no vidro for mencionado, apenas sua duração será informada, sendo que este procedimento é sempre empregado.

O ataque químico no vidro de emulsão utilizado precisa ser otimizado, ou seja, o tempo de duração do ataque químico necessário para saturação da densidade de traços precisa ser descoberto (tempo do ataque padrão¹). A densidade de traços observada no microscópio óptico varia com o ataque químico por causa do critério óptico. Este critério diz que uma certa razão entre o diâmetro e profundidade de um objeto deve ser alcançada para que haja contraste suficiente para observação deste objeto no microscópio. Assim, a duração do ataque químico padrão pode ser descoberta através de sucessivos ataques químicos em uma amostra que contenha traços superficiais. A cada ataque químico, a densidade de traços deve ser medida pelo microscópio óptico. Neste trabalho, a amostra utilizada para medir a variação da densidade de traços com o ataque químico foi a montagem com o filme E. Cinco densidades foram medidas e o resultado está apresentado na figura 4.1. Para cada medida de densidade, foram contados aproximadamente 1150 traços. O intervalo de duração do ataque químico entre cada medida da densidade foi de 10 segundos e o erro na duração deste ataque foi estimado em um segundo², devido ao tempo de reflexo. É possível notar que a saturação da densidade é obtida para ataques químicos superiores a 30 segundos. O decréscimo da densidade, obtido no último ponto do gráfico (50 segundos), pode ser explicado pelo fato dos traços estarem encavalados nesta medida.

O valor para a saturação da densidade de traços no ataque químico de trinta segundos é dado por $(1,27 \pm 0,03) \times 10^6$ traços/cm². Considerando que a densidade de traços induzidos

¹Este tempo é descoberto para uma amostra que contenha traços. Com ele, quando uma amostra que contenha possíveis traços fósseis for encontrada, já sabe-se qual o ataque químico a ser realizado.

²Observe que, pelo fato dos ataques químicos serem sequenciais, um erro na duração de um ataque químico é propagado para os próximos ataques químicos.

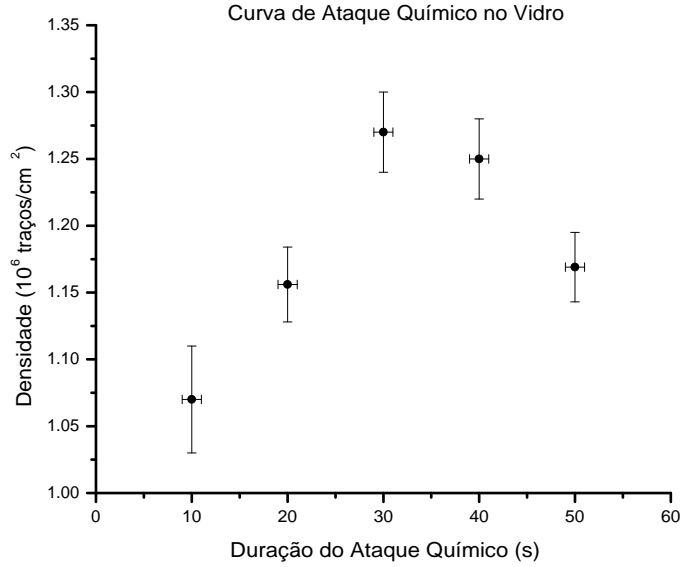


Figura 4.1: Curva do ataque químico para o vidro de emulsão. O erro na duração do ataque foi estimado.

num material é dada por:

$$\rho_i = \phi \sigma_f N_U^{235} \epsilon \quad (4.1)$$

na qual $\phi = 1,0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ é a fluência nominal de nêutrons térmicos do reator, $\sigma_f = (582 \pm 4) \text{ barn}$ [36] é a secção de choque da fissão induzida do isótopo ^{235}U e ϵ é a eficiência de detecção do material. Supõe-se $\epsilon \approx 1$ para a montagem experimental utilizada. A quantidade N_U^{235} de átomos do isótopo ^{235}U é descoberta via atividade alfa e considerando a porcentagem deste isótopo no urânio natural (0,7204% [35]). Com estes valores e a fração dos fragmentos emitidos, dada pela equação 3.11, pode-se obter como valor esperado da densidade de traços nesta montagem $(1,44 \pm 0,13) \times 10^6 \text{ traços/cm}^2$. Este valor é da mesma ordem do valor observado. A diferença entre os valores pode ser explicada pela aproximação no cálculo da fração de fragmentos emitidos que alcançam a superfície do vidro e pela falta de verificação na fluência de nêutrons térmicos do reator.

4.2 Análise

Seguindo o procedimento descrito para a medida da taxa de ataque químico no material V_B , o vidro foi recoberto com o *AZ 30 12 Photo Resist*. Para fazer esta cobertura, primeiro, limpou-se o material com um jato de ar e depois, com auxílio de uma pinça e um palito de dente, foi possível recobrir um pedaço do material (uma camada de aproximadamente $4 \mu\text{m}$ fica depositada). O material permaneceu dez minutos numa chapa aquecida a 110°C para fixar a máscara. Diferentes durações de ataque químico foram realizadas e os dados de cada altura do degrau (medida com um Perfilômetro no *soft touch* e com força 100 mg) estão apresentados na tabela 4.1. As medidas são apresentadas com seus desvios padrão, referentes a seis medidas em cada degrau. O *Photo Resist* foi removido com acetona.

Com estes dados, é possível realizar um gráfico da variação da altura do degrau em relação à duração do ataque químico. É esperado que este gráfico seja uma reta com coeficiente angular igual em módulo à taxa de ataque químico no material e coeficiente linear nulo, já que não existe degrau quando o material ainda não foi quimicamente atacado, pois a superfície do vidro é regular no Perfilômetro sem o ataque químico. O gráfico está apresentado na figura 4.2. É possível notar o comportamento linear do gráfico. Seu coeficiente angular fornece o valor da taxa de ataque químico no vidro base de emulsão igual à $(0,113 \pm 0,003) \mu\text{m/s}$. A função foi forçada a ter coeficiente linear nulo e passou no teste do χ^2 , pois $P(\chi^2) \approx 0,3$ com $\nu = 4$ e $\chi^2 = 4,8$.

Com esta medida para taxa de ataque químico no vidro V_B , é possível estudar a

Tabela 4.1: *Medidas da variação da altura do degrau em relação ao tempo de ataque químico para o vidro, realizadas com o Perfilômetro.*

Duração do Ataque Químico (s)	Altura do Degrau (μm)
6	$0,80 \pm 0,06$
12	$1,43 \pm 0,16$
24	$2,67 \pm 0,27$
34	$3,74 \pm 0,16$
48	$5,39 \pm 0,16$

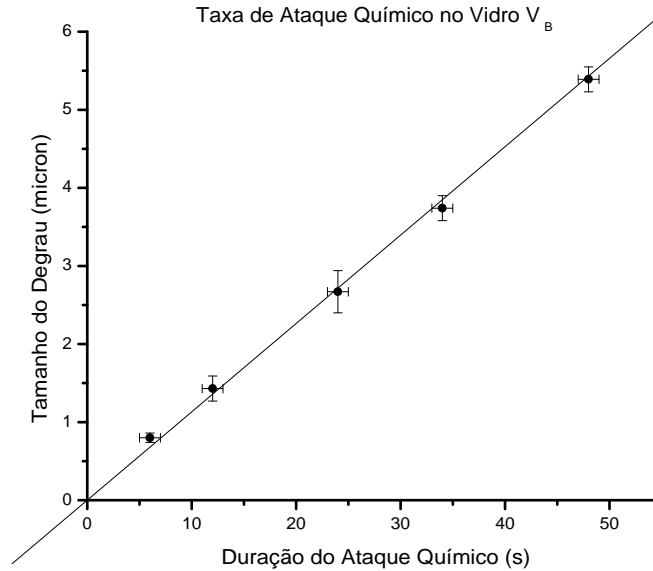


Figura 4.2: Taxa de ataque químico no vidro V_B . O coeficiente angular é $(0,113 \pm 0,003) \mu\text{m}/\text{s}$.

função resposta no vidro através do modelo geométrico para evolução de traços de fissão quimicamente atacados. Para tal análise, primeiramente, o fato da Microscopia Eletrônica de Varredura ser capaz de fazer uma sonda superficial da amostra será aproveitado.

Como a amostra em que se deseja realizar as medidas com a Microscopia Eletrônica de Varredura não é condutora, é necessário depositar uma fina camada condutora sobre a superfície para evitar o acúmulo de carga na amostra. Para o vidro base de emulsão, uma fina camada de carbono foi depositada num vácuo de aproximadamente 7×10^{-2} mbar. Utilizou-se uma amostra que foi irradiada com o filme g, que tem espessura³ de $(0,039 \pm 0,005) \mu\text{m}$. Foram feitos sucessivos ataques químicos de dez segundos. A cada ataque químico, oito das nove regiões com traços eram cobertas por uma fita crepe antes da deposição. Isto foi feito para evitar que qualquer contaminação, durante as medidas, possa atrapalhar a evolução do ataque químico ou levar a dados incorretos. Para remover a camada de carbono e qualquer resquício da cola da fita crepe, utilizou-se álcool (que já conseguiu retirar a camada de carbono), xilol, sabão (aplicado com a parte

³Sua calibração foi feita via atividade alfa, discutida na Seção 3.2.

amarela de uma esponja⁴) e água corrente. Uma visualização da evolução da abertura superficial dos traços pode ser observada na figura 4.3. O feixe de elétrons possuía 20 keV

⁴A parte verde da esponja pode causar danos à superfície do material.

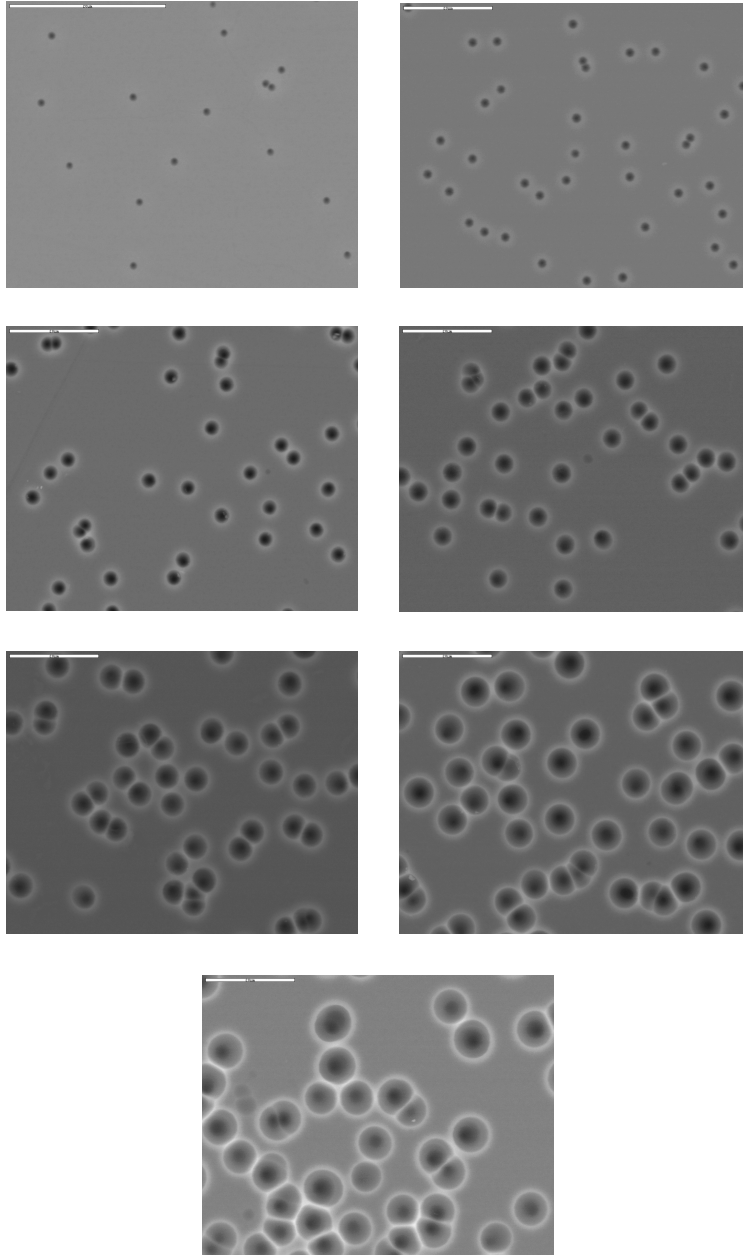


Figura 4.3: A evolução do diâmetro de traços de fissão no vidro, medida pelo Microscópio Eletrônico de Varredura em passos de 10 segundos. A escala é a barra branca no canto superior esquerdo de cada figura e equivale a 20 μm .

de energia e as imagens têm magnitude da ordem de 7000x.

Considerando que o ângulo de incidência dos traços é perpendicular à superfície⁵ ($\theta = 90^\circ$), os eixos maior (equação 2.11) e menor (equação 2.15) da abertura superficial tornam-se iguais e o diâmetro d da abertura superficial do traço é dado pela relação geométrica:

$$d = 2h \sqrt{\frac{V-1}{V+1}} \quad (4.2)$$

Os parâmetros mensuráveis do traço e do material são os diâmetros superficiais (obtidos com auxílio do *software* UTHSCSA Image Tool e das imagens do Microscópio Eletrônico de Varredura), a taxa de ataque químico no vidro V_B (figura 4.2) e a duração do ataque químico. Assim, reescrevendo a equação 4.2 em termos destes parâmetros, obtém-se para a função resposta V :

$$V = 1 + \frac{2d^2}{4(V_B t)^2 - d^2} \quad (4.3)$$

As distribuições dos diâmetros dos traços medidos para cada ataque químico estão apresentadas em histogramas nas figuras 4.4 até 4.10. Para cada histograma, mais de 130 medidas de diâmetro foram feitas. Como a fissão é um processo binário com emissão de um fragmento leve e um pesado, poderia se esperar que estes histogramas se comportassem como a soma de duas gaussianas de mesma área, cada uma centrada em um dos valores principais para o diâmetro do traço relacionado com a massa de cada fragmento emitido. Apesar de ser possível observar tal distinção em algumas distribuições (como a figura 4.10, por exemplo) a maioria não apresenta uma grande distinção. Isto ocorre pois o modo de decaimento mais provável do isótopo ^{235}U (emissão do nióbio e do lantânio) tem probabilidade de apenas 7% [36]. Assim, existe uma competição entre os diversos modos de decaimento. Outro fator é que a variação das massas e das energias é muito mais importante para o alcance da partícula (figura 3.6) do que para variações no diâmetro do dano produzido pela passagem do fragmento. Além disso, as condições experimentais utilizadas não garantem que exista sensibilidade suficiente no detector para obter tal distribuição.

⁵A variação máxima do ângulo de incidência em até 15° não altera significativamente o diâmetro de traços simulados em plásticos (material isotrópico) [43].

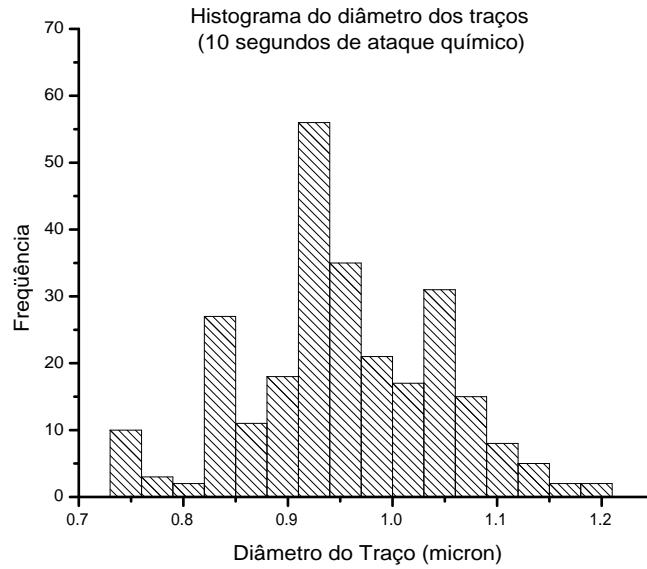


Figura 4.4: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 10 segundos de ataque químico.*

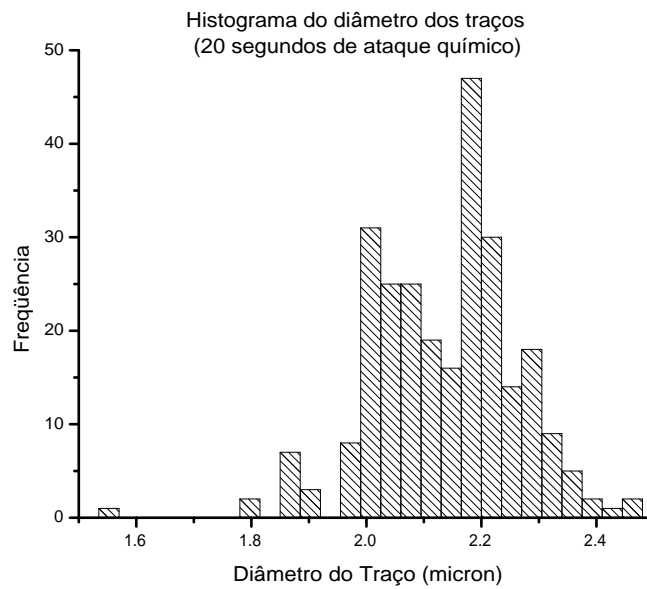


Figura 4.5: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 20 segundos de ataque químico.*

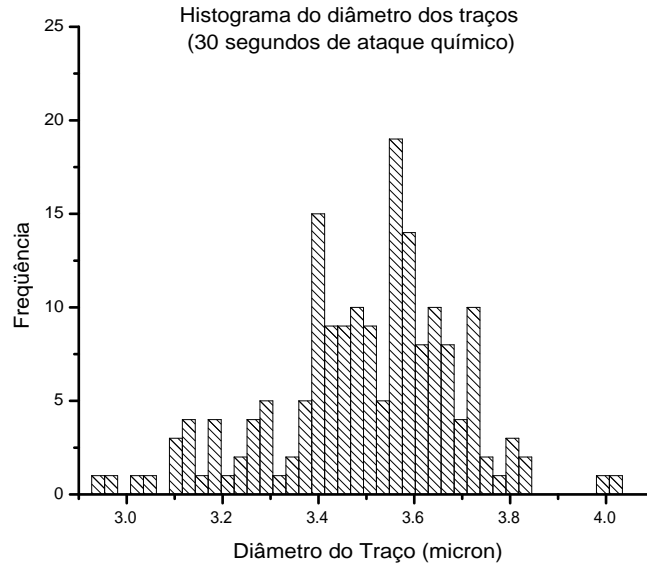


Figura 4.6: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 30 segundos de ataque químico.*

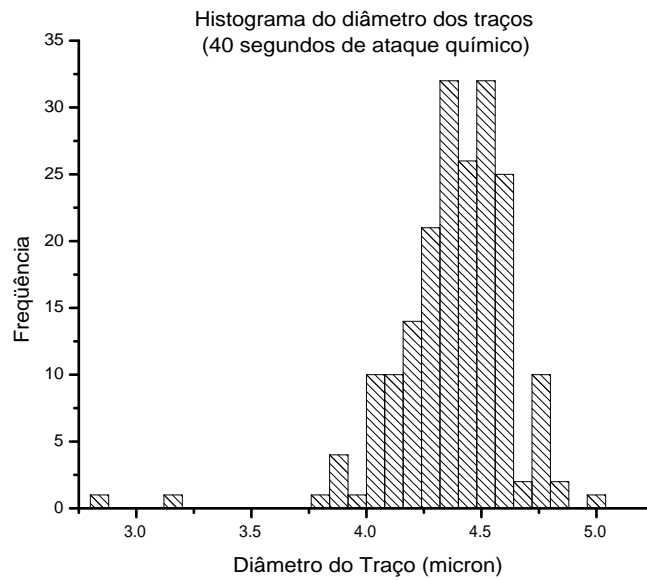


Figura 4.7: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 40 segundos de ataque químico.*

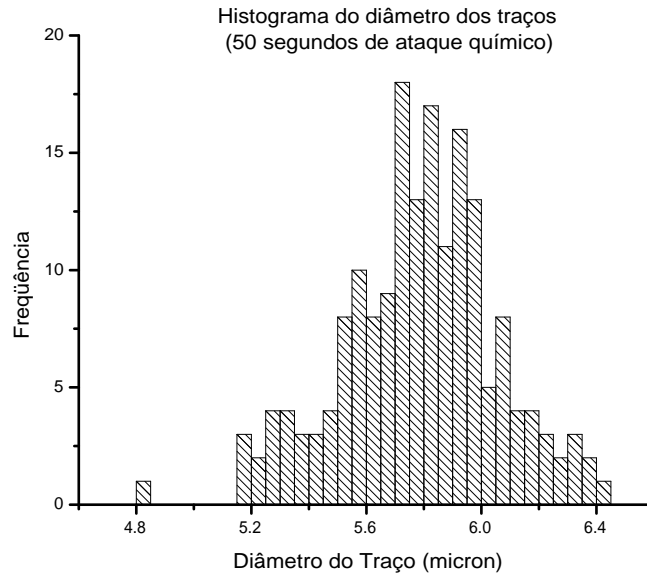


Figura 4.8: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 50 segundos de ataque químico.*

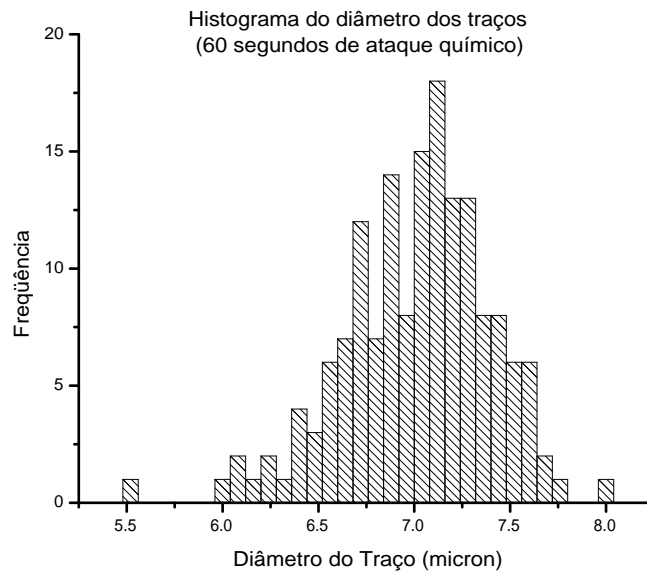


Figura 4.9: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 60 segundos de ataque químico.*

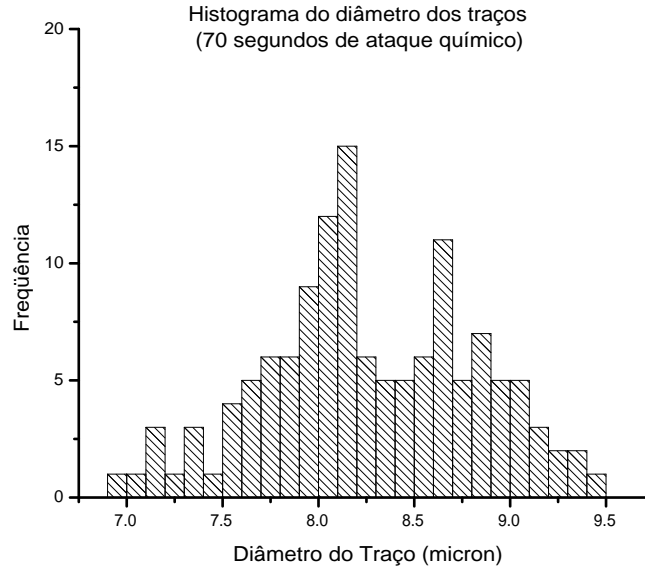


Figura 4.10: *Histograma da distribuição de diâmetro dos traços para 70 segundos de ataque químico.*

Com estes dados obtidos para a distribuição dos diâmetros do traço, foram calculadas suas médias e seus respectivos desvios padrão para obter valores da função resposta (equação 4.3) relativa a cada ataque químico. Os valores estão apresentados na tabela 4.2. Os erros para a função resposta V foram obtidos pela propagação de erros do desvio

Tabela 4.2: *Cálculo dos valores para a função resposta com as medidas obtidas pela Microscopia Eletrônica de Varredura.*

Duração do Ataque (s)	Diâmetro Médio (μm)	Função Resposta
10	$1,05 \pm 0,10$	$1,55 \pm 0,14$
20	$2,14 \pm 0,12$	$1,58 \pm 0,09$
30	$3,50 \pm 0,19$	$1,73 \pm 0,12$
40	$4,38 \pm 0,25$	$1,61 \pm 0,10$
50	$5,78 \pm 0,27$	$1,71 \pm 0,10$
60	$7,0 \pm 0,4$	$1,73 \pm 0,12$
70	$8,0 \pm 0,5$	$1,69 \pm 0,14$

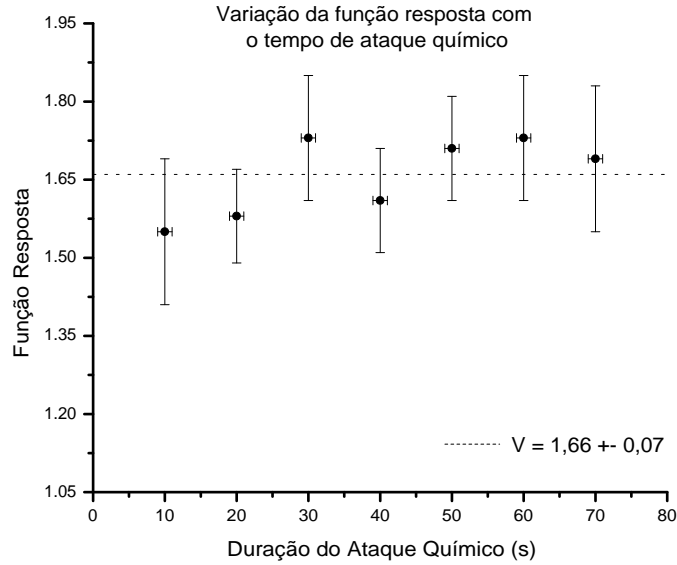


Figura 4.11: *Varição dos valores da função resposta calculados pelas medidas da Microscopia Eletrônica de Varredura com o tempo de ataque químico.*

padrão do diâmetro dos traços e do erro na taxa de ataque químico no vidro V_B .

Com os dados da tabela 4.2 é possível fazer um gráfico da variação da função resposta com o ataque químico. Este gráfico é apresentado na figura 4.11. Considerando os desvios de cada um dos pontos, é possível observar que a função resposta não demonstra variações com o tempo ($V_{diâmetro} = 1,66 \pm 0,07$). Com este valor da função resposta, é possível calcular o ângulo crítico para formação de traços no vidro de emulsão (equação 1.2) como sendo $\theta_c = 37^\circ$.

No entanto, as imagens do Microscópio Eletrônico de Varredura não possibilitam observar o perfil dos traços, apenas sua superfície. Assim, não é possível determinar quando o ataque químico preferencial acaba, ou seja, o traço deixa de possuir o formato cônico, hipótese assumida para o cálculo dos valores da função resposta V (equação 4.3). Assim, como a Microscopia de Força Atômica possibilita a análise topográfica de alta qualidade em escala nanométrica [4,44], é possível analisar o perfil de traços quimicamente atacados para verificar a validade da aproximação cônica e da taxa de ataque químico no traço V_T constante. Esta técnica abre a possibilidade da observação do perfil de um traço atacado

nos primeiros estágios de sua formação [18]. No entanto, com a montagem experimental realizada, os traços se concentram em pequenas regiões da amostra e é difícil localizá-los nos primeiros estágios do ataque químico⁶, pois o vidro, que é um material amorfo, ganha muita rugosidade superficial com o ataque. Além disso, a duração do ataque químico seria muito curta, o que resultaria em uma grande imprecisão no tempo associado ao ataque.

Para a medida do perfil dos traços, grandes variações na altura entre a ponta do Microscópio de Força Atômica e a amostra são esperadas (pela profundidade dos traços de fissão), por isso o microscópio foi utilizado no regime de não-contato. Neste regime, os parâmetros importantes durante a medida de um traço de fissão são o *rate* (frequência de vibração da ponta), o *gain* (indica a resposta da ponta às variações na altura) e o *Set P* (indica a distância em que a ponta está da superfície). O *gain* é importante para conseguir resultados corretos durante a medida, isto porque a ponta varre uma das paredes do traço e, se o *gain* não for adequado para uma dada frequência, ela sente a presença da segunda parede e sobe rapidamente sem varrê-la corretamente (consequência do efeito da histerese do *scanner*), como pode ser observado na figura 4.12. Neste caso, o *scanner* não

⁶Para localizar os traços, um microscópio óptico com aumento de 1000x foi utilizado. Por isso, os ataques químicos são superiores à dez segundos.

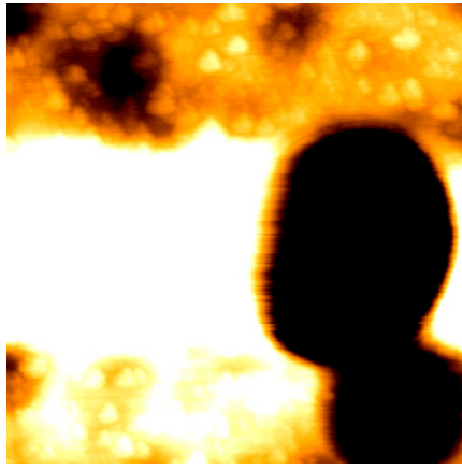


Figura 4.12: Medida da topografia de um traço com o Microscópio de Força Atômica. O lado esquerdo do traço sofreu o efeito da histerese. A parte branca aparece por causa do processamento da imagem.

varreu corretamente o lado esquerdo do traço (a direção de varredura era horizontal). Este efeito pode ser minimizado reduzindo a frequência de vibração da ponta e aumentando o *gain*. No entanto, quanto menor esta frequência, maior será o tempo para a aquisição da imagem⁷. Diminuir o valor do *Set P* também ajuda a reduzir este efeito, mas deve-se ter cuidado para que a ponta não bata na superfície devido a uma rápida variação na altura. A análise na direção de varredura lenta (perpendicular à direção em que os dados são obtidos) também pode minimizar este efeito. No caso da figura 4.12, a direção de varredura lenta é vertical.

Três vidros foram analisados pelo Microscópio de Força Atômica. Estes vidros estavam nas montagens que utilizaram o filme A, o filme E e o filme h. O filme h tem espessura⁸ de $(0,069 \pm 0,008) \mu\text{m}$. Note que estes filmes mais finos (A e h) têm espessuras próximas a do filme g, utilizado na Microscopia Eletrônica de Varredura.

Dois exemplos do tipo de dado coletado com a Microscopia de Força Atômica estão apresentados nas figuras 4.13 e 4.14. Estas figuras foram obtidas pela análise com o *software* IP 2.0. Observe que com estes perfis é possível medir o diâmetro e o ângulo de inclinação das paredes do traço (este ângulo é complementar ao ângulo de cone do traço). Nem sempre é possível medir a profundidade do traço, devido às limitações impostas pelas dimensões da ponta.

Utilizando o *software* e com diferentes condições de ataque químico foi possível coletar

⁷Uma varredura como a da figura 4.12 (com efeitos de histerese) dura de cinco à dez minutos.

⁸Sua calibração também foi feita via atividade alfa.

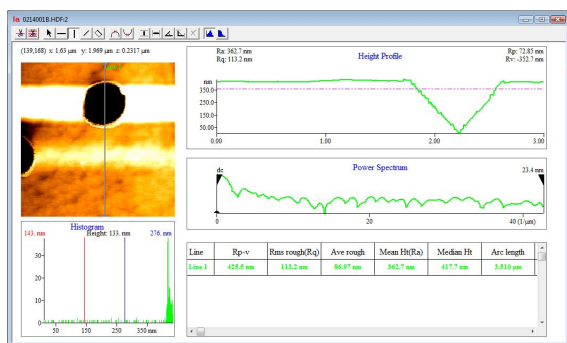


Figura 4.13: Perfil de um traço com 10 segundos de ataque químico.

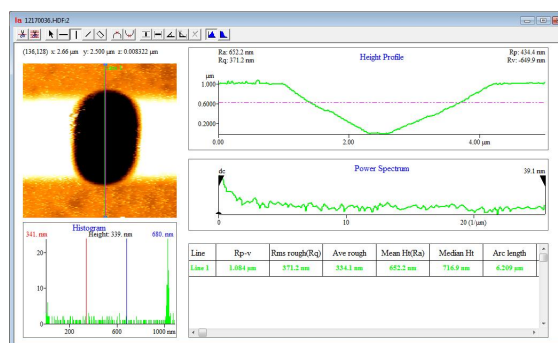


Figura 4.14: Perfil de um traço com 24 segundos de ataque químico.

Tabela 4.3: *Dados obtidos pela Microscopia de Força Atômica para diferentes tempos de ataque químico.*

	Tempo de Ataque Químico (s)	Diâmetro Médio (μm)	Ângulo da Parede ($^\circ$)
filme A	12	$1,26 \pm 0,13$	
	18	$1,9 \pm 0,3$	34 ± 8
	24	$2,18 \pm 0,17$	29 ± 5
	30	$2,44 \pm 0,18$	29 ± 8
filme E	10	$0,93 \pm 0,08$	42 ± 5
	20	$2,61 \pm 0,24$	32 ± 7
filme g	24	$3,18 \pm 0,05$	33 ± 3

dados para análise da variação do diâmetro da abertura superficial e do ângulo da parede do traço. Estes dados são apresentados na tabela 4.3. Para cada tempo de ataque químico foram medidos mais de 25 traços. Tanto o diâmetro, quanto o ângulo da parede são representados pela sua média e desvio padrão.

Com os dados do diâmetro d e do ângulo complementar θ_{comp} (ângulo da parede) dos traços, apresentados na tabela 4.3, é possível calcular a profundidade l' dos traços com:

$$l' = \frac{d}{2} \text{tg } \theta_{comp} \quad (4.4)$$

Desta maneira, a taxa de ataque químico no traço V_T pode ser calculada por:

$$V_T = \frac{h + l'}{t} = V_B + \frac{d}{2} \frac{\text{tg } \theta_{comp}}{t} \quad (4.5)$$

Com os valores obtidos para a taxa V_T é possível fazer um gráfico da sua variação com a duração do ataque químico para montagens com filmes de diferentes espessuras. Este gráfico é apresentado na figura 4.15. Observe que não há grande variação da taxa. Assim, a média destes valores é $V_T = (0,148 \pm 0,009) \mu\text{m/s}$ e passa no teste do χ^2 , pois $P(\chi^2) \approx 0,45$ com $\nu = 5$ e $\chi^2 = 4,9$. Este valor constante observado confirma a hipótese do modelo geométrico para evolução do formato dos traços.

Com os valores obtidos para a taxa de ataque químico no vidro V_B (figura 4.2) e no traço V_T (figura 4.15) é possível calcular a função resposta. Este valor é dado por

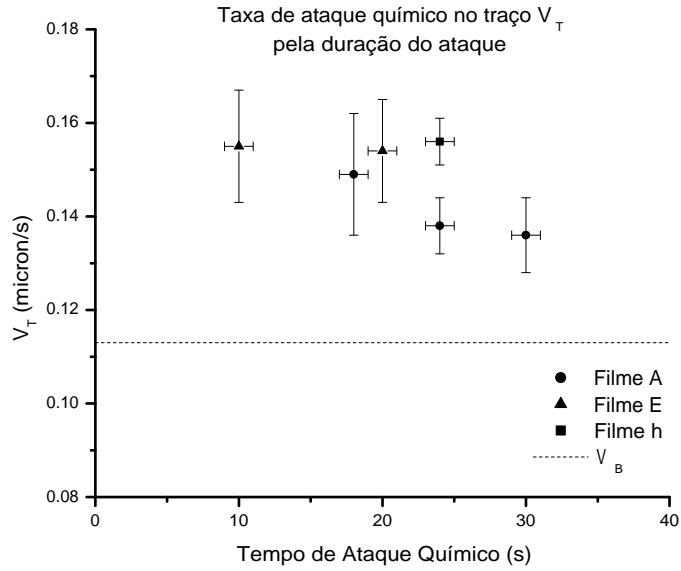


Figura 4.15: Taxa de ataque químico no traço V_T em diferentes durações de ataque químico e montagens. O valor médio obtido é $(0,148 \pm 0,009) \mu\text{m/s}$.

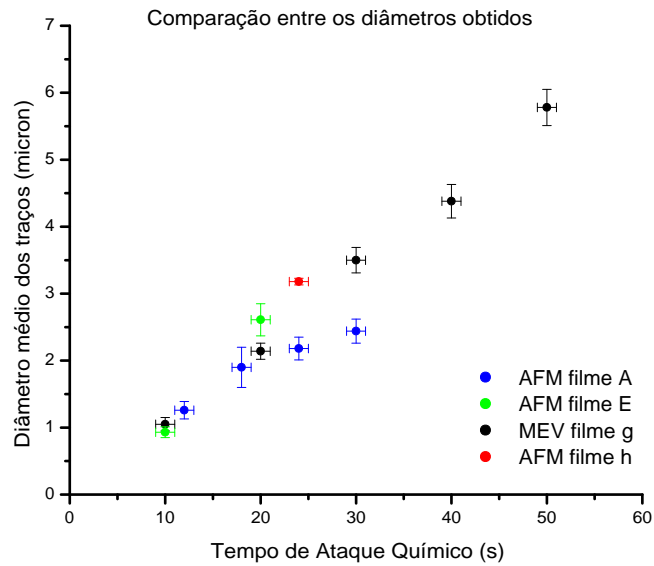


Figura 4.16: Comparação da evolução dos diâmetros medidos com as Microscopias Eletrônica de Varredura (MEV) e de Força Atômica (AFM).

$V_{profundidade} = 1,31 \pm 0,09$. Acredita-se que a diferença em relação ao valor obtido para $V_{diametro}$ é causada pela influência das dimensões da ponta do microscópio [45].

Por fim, é possível comparar as Microscopias Eletrônica de Varredura e de Força Atômica por um gráfico que avalia a evolução do diâmetro dos traços com o ataque químico. Este gráfico está apresentado na figura 4.16 e foi feito com auxílio das tabelas 4.2 e 4.3. É possível notar um excelente acordo entre as duas técnicas para tempos inferiores a 20 segundos. Para tempos superiores, a Microscopia de Força Atômica fornece valores desviados para o diâmetro dos traços. Como esta foi feita com uma estatística mais reduzida, é possível que apenas uma parte da distribuição de diâmetros dos traços tenha sido medida e contabilizada na média. Outro fator que pode influenciar neste desvio é o fato do ataque químico ser feito por ataques sucessivos em uma mesma amostra.

Capítulo 5

Conclusões

Para o estudo da estrutura dos traços, a função resposta V , dada pela razão entre as taxas de ataque químico no traço V_T e no material V_B , foi o foco do estudo. Assim, conhecendo a taxa no material e as relações geométricas para evolução da estrutura dos traços com o ataque químico em materiais isotrópicos, foi possível relacionar parâmetros mensuráveis do traço (como o diâmetro da abertura superficial e o ângulo de inclinação de suas paredes) com a taxa de ataque químico no traço, para que esta pudesse refletir a estrutura latente dos danos provocados pela passagem de uma partícula na matéria (neste caso o vidro).

Desta maneira, a medida da taxa de ataque químico no material V_B tornou-se um parâmetro essencial. Esta pôde ser calculada através da medida de degraus de ataque químico, formados na superfície do material pela deposição de uma substância que não é corroída durante o ataque químico. A substância encontrada foi o *Photo Resist*. Com diferentes durações de ataque químico e utilizando um Perfilômetro, foi possível obter uma função linear, significando que o aumento na altura do degrau é diretamente proporcional à duração do ataque. A taxa de ataque químico no material V_B encontrada é dada por:

$$V_B = (0,113 \pm 0,003) \mu m/s \quad (5.1)$$

A distribuição dos diâmetros superficiais dos traços de fissão foi medida por duas diferentes técnicas de microscopia em diferentes durações de ataque químico. As duas técnicas utilizadas foram a Microscopia Eletrônica de Varredura e a Microscopia de Força

Atômica. A primeira possibilitou o aumento da resolução em comparação à microscopia óptica comum, já a segunda permitiu o estudo de perfis dos traços de fissão. O valor médio do diâmetro obtido pelas duas técnicas coincide até certo instante do ataque químico. Este fato sugere duas observações: a primeira é que a Microscopia de Força Atômica é uma técnica de alta precisão, mas por ter um processo de varredura mais lento dificulta a aquisição de um número elevado de medidas em curtos tempos de análise, enquanto a Microscopia Eletrônica de Varredura mostra uma aquisição mais veloz; e a segunda é que, mesmo com a precisão limitada pela dificuldade de contraste na borda dos traços nas imagens obtidas pela Microscopia Eletrônica de Varredura nos primeiros ataques químicos, os valores observados concordam com os obtidos pela Microscopia de Força Atômica. O desvio nas médias obtidas pelas duas técnicas a partir de um dado instante do ataque químico pode ter sido causado por uma limitação no número de medidas em relação ao espectro de diâmetros ou pelo fato do ataque ser sequencial na mesma amostra (um erro no ataque químico se propaga para os próximos ataques).

Não foi possível, através da distribuição de diâmetros obtidos pela Microscopia Eletrônica de Varredura, obter picos acentuados ligados às características dos fragmentos de fissão¹ emitidos pelo isótopo ^{235}U . Isto se deve principalmente à falta de sensibilidade do detector para registrar claramente estas diferenças de diâmetro.

Por fim, a função resposta V foi obtida por duas maneiras diferentes. Em uma delas, a função foi obtida indiretamente por estas distribuições de diâmetros. Neste caso, a função demonstrou-se constante, tendo um valor médio dado por:

$$V_{diâmetro} = 1,66 \pm 0,07 \quad (5.2)$$

O outro valor da função resposta V foi obtido diretamente por um cálculo da taxa de ataque químico no traço V_T . Esta taxa foi calculada pela profundidade obtida com os diâmetros e os ângulos das paredes (ângulos complementares do cone) dos traços, medidos com a Microscopia de Força Atômica. O seu valor é dado por:

$$V_T = (0,148 \pm 0,009) \mu\text{m}/\text{s} \quad (5.3)$$

¹Na fissão induzida, os fragmentos são emitidos com uma diferença no número de massa em torno de 40 amu e na energia em torno de 30 MeV.

Este valor constante observado confirma a hipótese do modelo geométrico para a evolução dos traços de fissão em materiais isotrópicos. O valor para a função resposta obtido através desta taxa é:

$$V_{profundidade} = 1,31 \pm 0,09 \quad (5.4)$$

Acredita-se que a diferença entre os valores obtidos para a função resposta V é causada pelas limitações de varredura impostas pelas dimensões da ponta do Microscópio de Força Atômica [45].

Na literatura, Fleischer e Hart trabalharam com um vidro da categoria *soda-lime* irradiado por fragmentos de fissão do isótopo ^{252}Cf , chegando a um ângulo crítico $\theta_c = 35^\circ$ e uma função resposta $V \approx 1,7$ para distâncias absorvedoras menores que um quarto do alcance dos fragmentos no ar². Este resultado está descrito na referência [8]. Já Singh *et al.* [46] trabalharam com o efeito da irradiação por nêutrons em lâminas microscópicas de um vidro da categoria *soda-lime*. Para uma fluência de 10^{14} nêutrons/cm², o valor $V = 1,37$ foi obtido para a função resposta. No entanto, a taxa de ataque químico no vidro observada neste trabalho ($V_B = 0,026 \mu\text{m/s}$) é muito menor que a da equação 5.1. Esta grande variação no valor da taxa de ataque químico no vidro V_B deve ser causada pela diferença na composição química dos vidros. Sandhu *et al.* [47] estudaram o ataque químico em vidros de diferentes composições e obtiveram valores para a taxa de ataque químico no vidro V_B que variam entre $0,006 \mu\text{m/s}$ e $0,283 \mu\text{m/s}$.

Assim como a taxa de ataque químico no traço V_T , a distribuição dos ângulos das paredes dos traços também demonstrou estar em torno de um valor constante, o que leva à conclusão de que o efeito produzido pela passagem de uma partícula no vidro é a formação de um cilindro contínuo de danos. Estes danos (extensos e pontuais) produzidos estariam completamente sobrepostos em uma alta densidade ao longo da trajetória da partícula. A variação da energia depositada no material poderia causar flutuações na densidade destes danos ao longo da trajetória da partícula, mas pelo alto valor da taxa de ataque químico no vidro V_B encontrada, poderia se esperar que a função resposta fosse muito suave e, conseqüentemente, estas variações muito sutis. Esta conclusão para

²Esta é aproximadamente a distância trabalhada com a montagem experimental realizada.

a passagem de uma partícula no vidro reforça a hipótese de uma estrutura cilíndrica para traços latentes, assumida em alguns modelos [15, 24, 26–28].

5.1 Extensão do Trabalho

Uma tentativa de medida da taxa de ataque químico no material V_B também foi feita para o mineral mica muscovita. No entanto, não foi possível obter nenhum degrau mensurável para associá-lo à taxa de ataque químico. Este fato de que $V_B \approx 0$ para a mica já foi descrito na literatura [8]. Assim, modelos geométricos que levam em conta a competição entre duas taxas de ataque químico, uma na região danificada e outra perpendicular à superfície do material, não são válidos para minerais. A estrutura cristalográfica do material deve ser levada em conta pelo fato do ataque químico ser anisotrópico.

Para minerais, o estudo da abertura superficial estará diretamente ligado a sua cristalografia e não à deposição de energia feita pela partícula incidente. Assim, modelos de crescimento e dissolução de cristais devem ser considerados e as aproximações atomísticas e cinemáticas podem ser levadas em conta [13, 23].

Como defeitos em cristais possuem pequenas dimensões (e também devido ao fácil acesso aos planos cristalográficos bem definidos em alguns minerais) técnicas de polimento e de corte podem ser trabalhadas e a Microscopia Eletrônica de Transmissão pode ser utilizada.

Apêndice A

Desaceleração de uma Partícula Carregada

Neste apêndice, será deduzida a equação para a perda de energia através da matéria para uma partícula carregada com alta energia cinética. Esta energia, que é depositada na matéria pela partícula incidente, é responsável pela formação de traços latentes em materiais dielétricos. A dedução e as discussões sobre a perda de energia da partícula carregada incidente e o espalhamento inelástico desta com os elétrons dos átomos da matéria podem ser encontradas em livros de quântica [48, 49].

A primeira seção deste apêndice discutirá o espalhamento inelástico da partícula pela matéria. Diferentemente do espalhamento elástico, que é caracterizado pelo fato de que a energia da partícula espalhada não varia entre os estados inicial e final, o espalhamento inelástico é aquele em que a energia da partícula incidente, carregando carga ze ($z > 0$), varia entre os estados inicial e final. A diferença entre as energias dos estados inicial e final é absorvida pelo Z -ésimo elétron do átomo constituinte da matéria, levando este à excitação ou à ionização.

A dedução é feita considerando que a partícula incidente possui uma energia cinética alta, pois pode-se utilizar a aproximação de que os elétrons do átomo estão parados em relação à partícula incidente. Assim, para não levar em conta os efeitos relativísticos, a

velocidade da partícula v deve estar entre os limites:

$$\frac{Z}{137} c < v < \frac{1}{2} c \quad (\text{A.1})$$

A segunda seção deste apêndice discutirá a perda de energia da partícula na matéria, chegando a uma equação para a perda de energia¹.

A.1 Espalhamento Inelástico para Altas Energias

O sistema considerado é formado pela partícula carregada incidente e o átomo alvo, com o qual a partícula sofrerá o espalhamento inelástico. Assim, pode-se escrever a Hamiltoniana deste sistema como:

$$H = H_{atomo} + H_{part} + H_{int} = H_0 + H_{int} \quad (\text{A.2})$$

na qual H_{atomo} é a Hamiltoniana do átomo, H_{part} é a Hamiltoniana da partícula livre e H_{int} é a Hamiltoniana de interação que representa a interação da partícula incidente com os elétrons e o núcleo do átomo.

A aproximação de Born para a amplitude de transição do estado α para o estado β é dada por:

$$T_{\alpha\beta} = \langle \psi_\beta | H_{int} | \psi_\alpha \rangle \quad (\text{A.3})$$

na qual ψ é uma auto-função da Hamiltoniana H_0 (descrita na equação A.2):

$$\psi = \varphi(A) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \quad (\text{A.4})$$

sendo $\varphi(A)$ um auto-estado atômico com A representando a coordenada espacial dos elétrons atômicos². A exponencial representa o auto-estado da partícula incidente que possui momento $\hbar\vec{k}$. Assim:

$$\psi_\alpha = \varphi_0 e^{i\vec{k}_0\cdot\vec{r}} \quad \text{e} \quad \psi_\beta = \varphi_n e^{i\vec{k}_n\cdot\vec{r}}$$

¹Em inglês *stopping power*.

²O spin do elétron está sendo ignorado.

sendo que o estado inicial do átomo é o estado fundamental φ_0 e, após o espalhamento, o átomo está no n-ésimo estado excitado φ_n . As energias inicial e final do átomo são E_0 e E_n , respectivamente. Os momentos inicial e final da partícula espalhada são $\vec{p}_0 = \hbar \vec{k}_0$ e $\vec{p}_n = \hbar \vec{k}_n$, respectivamente. Pela conservação de energia:

$$\hbar^2(k_0^2 - k_n^2) = 2m(E_n - E_0) = -2m(W_n - W_0) \quad (\text{A.5})$$

na qual W_n representa a energia total da partícula incidente³. A mudança no momento da partícula espalhada é dada por:

$$\hbar\vec{q} = \hbar(\vec{k}_0 - \vec{k}_n) \quad (\text{A.6})$$

Escrevendo a amplitude de transição, equação A.3, para o caso estudado:

$$T_{0n} = \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \varphi_n^*(A) H_{int} \varphi_0(A) dV dA$$

e escrevendo o potencial $V_n(\vec{r})$ como:

$$V_n(\vec{r}) = \int \varphi_n^*(A) H_{int} \varphi_0(A) dA \quad (\text{A.7})$$

pode-se, então, reescrever a amplitude de transição:

$$T_{0n} = \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} V_n(\vec{r}) dV = -\frac{1}{q^2} \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \nabla^2 V_n(\vec{r}) dV \quad (\text{A.8})$$

A Hamiltoniana de interação pode ser escrita como:

$$H_{int}(\vec{r}, A) = ze \left(\frac{Ze}{r} - \sum_{i=1}^Z \frac{e}{|\vec{r} - \vec{r}_i|} \right) \quad (\text{A.9})$$

pois a partícula incidente pode interagir com o núcleo do átomo (situado na origem) e com cada um de seus elétrons. A equação A.9 pode ser inserida dentro da equação A.7 e aplicando o laplaciano, obtém-se:

$$\nabla^2 V_n(\vec{r}) = -4\pi e^2 z \left[Z\delta_{n0}(\vec{r}) - \sum_{i=1}^Z \int \varphi_n^*(A) \varphi_0(A) \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) dA \right] \quad (\text{A.10})$$

³Esta energia inclui a massa de repouso da partícula.

na qual δ_{n0} aparece da ortonormalidade entre os estados φ_n e φ_0 . Pode-se definir a somatória com integral como:

$$\rho_n(\vec{r}) \equiv \sum_{i=1}^Z \int \varphi_n^*(A) \varphi_0(A) \delta(\vec{r} - \vec{r}_i) dA \quad (\text{A.11})$$

e o potencial é reescrito como:

$$V_n(\vec{r}) = e^2 z \left[\frac{Z\delta_{n0}}{r} - \int \frac{\rho_n(\vec{r}')}{|\vec{r} - \vec{r}'|} dV' \right] \quad (\text{A.12})$$

Em particular, se $n = 0$, obtém-se o caso do espalhamento elástico. Para o espalhamento inelástico ($n \neq 0$), o primeiro termo dos colchetes da equação A.10 é nulo e pode-se obter para a amplitude de transição:

$$T_{0n} = -\frac{4\pi e^2 z}{q^2} \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \rho_n(\vec{r}) dV = -\frac{4\pi e^2 z}{q^2} F_n(\vec{q}) \quad (\text{A.13})$$

na qual $F_n(\vec{q})$ é o fator de forma da transição, definido por:

$$F_n(\vec{q}) = \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} \rho_n(\vec{r}) dV = \int \varphi_n^*(A) \sum_{j=1}^Z e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} \varphi_0(A) dA \quad (\text{A.14})$$

A seção de choque diferencial para o espalhamento inelástico que resulta no estado final n é obtida da amplitude de transição pela regra de ouro de Fermi:

$$\frac{d\sigma_n}{d\Omega} = \frac{2\pi}{\hbar v_0} |T_{0n}| \rho(W_n) \quad (\text{A.15})$$

na qual $\rho(W_n)$ é a densidade de estados finais por unidade de energia por ângulo sólido, ou seja:

$$\rho(W_n) = \frac{p_n^2 dp_n}{(2\pi\hbar)^3 dW_n} \quad (\text{A.16})$$

As velocidades inicial e final são v_0 e v_n , respectivamente. Tem-se:

$$\frac{dW_n}{dp_n} = v_n \quad \text{e} \quad p_n = \left(\frac{W_n}{c^2} \right) v_n$$

Juntando estas equações, pode-se obter para a seção de choque diferencial:

$$\frac{d\sigma_n}{d\Omega} = \left(\frac{2e^2 z W_n}{\hbar^2 c^2 q^2} \right) \frac{v_n}{v_0} |F_n(\vec{q})|^2 \quad (\text{A.17})$$

Integrando a equação A.17 sobre o ângulo sólido, obtém-se a seção de choque total na aproximação de Born:

$$\sigma_n = \int \frac{d\sigma_n}{d\Omega} d\Omega = \left(\frac{2e^2 z W_n}{\hbar^2 c^2} \right)^2 \frac{v_n}{v_0} \int d\Omega \frac{|F_n(\vec{q})|}{q^4} \quad (\text{A.18})$$

Observe que o ângulo sólido é dado por $d\Omega = \sin\theta d\theta d\phi$. A variação do momento da partícula pode ser escrita como:

$$q^2 = (\vec{k}_0 - \vec{k}_n)^2 = k_0^2 + k_n^2 - 2k_0 k_n \cos\theta$$

Pode-se observar que $q dq = k_0 k_n \sin\theta d\theta$. Desta maneira:

$$\frac{v_n}{v_0} d\Omega = \frac{v_n}{v_0} \sin\theta d\theta d\phi = \frac{1}{k_0^2} \frac{v_n}{k_n} \frac{k_0}{v_0} q dq d\phi = \frac{W_0}{W_n} \frac{q dq d\phi}{k_0^2}$$

e substituindo na equação A.18, obtém-se:

$$\sigma_n = 2\pi \left(\frac{2e^2 z W_0}{\hbar c^2 p_0} \right)^2 \frac{W_n}{W_0} \int_{q_{min}}^{q_{max}} \frac{F_n^2(\vec{q})}{q^3} dq \quad (\text{A.19})$$

com $q_{max} = k_0 + k_n$ e $q_{min} = |k_0 - k_n|$. Assumiu-se a simetria esférica para o fator de forma da transição $F_n(\vec{q})$. Em quase todos os casos práticos $W_n \approx W_0$, assim:

$$\sigma_n = 2\pi \left(\frac{2e^2 z}{\hbar v_0} \right)^2 \int_{q_{min}}^{q_{max}} \frac{F_n^2(\vec{q})}{q^3} dq \quad (\text{A.20})$$

A.2 Perda de Energia de uma Partícula Incidente

Quando uma partícula carregada atravessa a matéria, ela sofre diversas colisões. As colisões inelásticas podem ocorrer até para grandes distâncias (em escala atômica) entre a partícula e o átomo da rede, sendo que a maior distância possível é dada por $\frac{1}{q_{min}}$. A partícula perde sua energia cinética por tais colisões e, eventualmente, entra em repouso.

A perda de energia por unidade de distância é dada por⁴:

$$-\frac{dW}{dx} = \sum_n N \int \frac{d\sigma_n}{d\Omega} d\Omega (E_n - E_0) = \sum_n N \sigma_n (E_n - E_0) \quad (\text{A.21})$$

⁴Normalmente é escrita como dE/dx . No entanto, para manter a nomenclatura utilizada neste apêndice, será denota como dW/dx , pois W representa a energia da partícula incidente.

na qual N é o número de átomos por unidade de volume, σ_n é a seção de choque total para a colisão inelástica que leva o átomo ao estado final n com energia E_n . A diferença $E_n - E_0 = W_0 - W_n$ é a perda de energia desta colisão. A somatória sobre n é feita sobre todos os estados atômicos para fornecer a perda total de energia da partícula $-\frac{dW}{dx}$. Substituindo a seção de choque total, equação A.20, na equação A.21 para a perda de energia e escrevendo explicitamente o fator de forma, equação A.14, obtém-se:

$$-\frac{dW}{dx} = 2\pi N \left(\frac{2ze^2}{\hbar v_0} \right)^2 \sum_n \int_{q_{min}}^{q_{max}} \frac{dq}{q^3} \left| \int \varphi_n^* B \varphi_0 dV \right|^2 (E_n - E_0) \quad (\text{A.22})$$

com $B = \sum_j e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_j}$

Faz-se a aproximação de que é possível inverter a ordem da somatória sobre n com a integração sobre q . Isto é uma aproximação pois tanto q_{min} quanto q_{max} dependem da energia E_n .

$$-\frac{dW}{dx} = 2\pi N \left(\frac{2ze^2}{\hbar v_0} \right)^2 \int_{\bar{q}_{min}}^{\bar{q}_{max}} \frac{dq}{q^3} \sum_n \left| \int \varphi_n^* B \varphi_0 dV \right|^2 (E_n - E_0) \quad (\text{A.23})$$

na qual a barra sobre os limites de integração em q indicam que eles foram substituídos por valores médios independentes de n . Trabalhando os termos da somatória sobre n :

$$\begin{aligned} \sum_n \left| \int \varphi_n^* B \varphi_0 dV \right|^2 (E_n - E_0) &= \sum_n |B_{n0}|^2 (E_n - E_0) \\ &= \sum_n B_{n0}^* B_{n0} (E_n - E_0) \\ &= \sum_n \langle B^\dagger \rangle_{0n} [H_{atomo}, B]_{n0} \\ &= \langle B^\dagger [H_{atomo}, B] \rangle_{00} \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

A Hamiltoniana do átomo H_{atomo} para elétrons atômicos não-relativísticos pode ser escrita como:

$$H_{atomo} = V(\vec{r}) + \sum_k \frac{p_k^2}{2m_e} \quad (\text{A.25})$$

Pode-se observar que $V(\vec{r})$ comuta com B . O comutador da equação A.24 pode ser calcu-

lado como:

$$\begin{aligned}
[H_{atomo}, B] &= \sum_{jk} \frac{\hbar^2}{2m_e} [\nabla_k^2, e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_j}] \\
&= \sum_{jk} \frac{\hbar^2}{2m_e} (-q^2 e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} + 2i e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} \vec{q} \cdot \vec{\nabla}_k) \delta_{jk} \\
&= \frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_k e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_k} (q^2 - 2i \vec{q} \cdot \vec{\nabla}_k)
\end{aligned} \tag{A.26}$$

Desta maneira, o lado direito da equação A.24 torna-se:

$$\langle B^\dagger [H_{atomo}, B] \rangle_{00} = \frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_{jk} \int \varphi_0^* e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}_j} e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_k} (q^2 - 2i \vec{q} \cdot \vec{\nabla}_k) \varphi_0 dV \tag{A.27}$$

O estado fundamental pode ser tomado como apenas real⁵:

$$\begin{aligned}
\langle B^\dagger [H_{atomo}, B] \rangle_{00} &= \frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_{j \neq k} \int e^{i\vec{q}\cdot(\vec{r}_j - \vec{r}_k)} (q^2 \varphi_0^2 - i \vec{q} \cdot \vec{\nabla}_k \varphi_0^2) dV \\
&+ \frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_k \int (q^2 \varphi_0^2 - i \vec{q} \cdot \vec{\nabla}_k \varphi_0^2) dV
\end{aligned} \tag{A.28}$$

Na equação A.28, o segundo termo da primeira integral pode ser integrado por partes. Neste cálculo, o termo superficial é desprezado e o termo integrado cancela o primeiro termo da integral. Pela integração parcial, pode-se mostrar que o segundo termo da segunda integral é nulo. Assim, o primeiro termo da segunda integral é dado por:

$$\frac{\hbar^2}{2m_e} \sum_k \int q^2 \varphi_0^2 dV = \frac{\hbar^2}{2m_e} Z q^2$$

e é o resultado da somatória sobre n da equação A.24:

$$\sum_n \left| \int \varphi_n^* B \varphi_0 dV \right|^2 (E_n - E_0) = \frac{\hbar^2}{2m_e} Z q^2 \tag{A.29}$$

Substituindo o resultado da somatória sobre n , equação A.29, no cálculo da perda de energia da partícula incidente, equação A.23, obtém-se:

$$-\frac{dW}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v_0^2} NZ \ln\left(\frac{\bar{q}_{max}}{\bar{q}_{min}}\right) \tag{A.30}$$

⁵Exceto por um fator do tipo $e^{im\varphi}$ que representa o momento angular orbital, mas que não altera o resultado derivado.

na qual a quantidade NZ é vista como o número total de elétrons por unidade de volume. A fração entre os valores médios do máximo e do mínimo da transferência de momento é dada por:

$$\frac{\bar{q}_{max}}{\bar{q}_{min}} = \frac{2 m_e v_0^2}{I} \quad (\text{A.31})$$

na qual I é um parâmetro semi-empírico relacionado com a energia de excitação média $\langle E_n - E_0 \rangle$. Assim, obtém-se a forma mais comum para a perda de energia:

$$-\frac{dW}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v_0^2} NZ \ln\left(\frac{2 m_e v_0^2}{I}\right) \quad (\text{A.32})$$

expressada em termos deste parâmetro que depende do átomo em questão. Pelo modelo de Thomas-Fermi, pode-se obter a dependência do parâmetro I com Z sendo:

$$I = CZ \quad (\text{A.33})$$

na qual C é uma constante. Desta maneira, a fórmula final para a perda de energia das partículas incidentes, com velocidade no intervalo descrito pela desigualdade A.1, é dada por:

$$-\frac{dW}{dx} = \frac{4\pi z^2 e^4}{m_e v_0^2} NZ \ln\left(\frac{2 m_e v_0^2}{CZ}\right) \quad (\text{A.34})$$

e depende somente da velocidade da partícula e não de sua massa. É este fato que gera a importante aplicação na detecção de partículas carregadas.

Apêndice B

Regra de Bragg

A regra de Bragg determina que a desaceleração em uma material composto pode ser estimada pela combinação linear das perdas de energia individuais de cada elemento [50]. Esta regra é utilizada pelo *software* SRIM, que simula as perdas de energia e o alcance de íons incidentes em um meio (sistema composto por diferentes átomos).

A regra de Bragg para a aditividade é geralmente expressa como uma soma balanceada das perdas de energias dos elementos químicos constituintes da matéria [51]:

$$\frac{1}{N_c} \left(\frac{dE}{dx} \right)_c = \sum_i \omega_i \frac{1}{N_i} \left(\frac{dE}{dx} \right)_i \quad (\text{B.1})$$

na qual N representa o número de átomos por unidade de volume, $\frac{dE}{dx}$ é a perda de energia, ω_i é a fração atômica e os índices (i) e (c) estão relacionados ao elemento e ao composto, respectivamente. Com esta regra, pode-se calcular a perda de energia média em qualquer sistema composto [52].

Supondo que a forma da curva de transmissão média de energia dos fragmentos de fissão é independente do meio de desaceleração, é possível calcular o alcance de qualquer fragmento de fissão em um sistema composto sabendo os alcances de cada elemento constituinte [52]:

$$R_c = \frac{M_c}{\sum_i n_i \frac{A_i}{R_i}} \quad (\text{B.2})$$

na qual R_i é o alcance do elemento i , n_i é o número de átomos deste elemento numa molécula, A_i é o seu peso atômico e M_c é o peso molecular do sistema composto.

O peso molecular do sistema composto pode ser substituído pelo peso molecular médio da mistura de átomos constituintes do sistema [52]:

$$\langle M \rangle = \sum_n \omega_n M_n \quad (\text{B.3})$$

e o número n_i de átomos do elemento i numa molécula do sistema é substituído por \bar{n}_i , que representa o número médio de átomos deste elemento em uma “molécula média” da mistura.

O número de átomos do elemento i num sistema composto n , que está presente em um mol de mistura, é $\omega_n N n_{in}$, na qual N é o número do Avogadro. O número médio \bar{n}_i é dado por:

$$\bar{n}_i = \frac{\sum_n \omega_n N n_{in}}{N} = \sum_n \omega_n n_{in} \quad (\text{B.4})$$

e o alcance médio $\langle R \rangle$ por:

$$\langle R \rangle = \frac{\langle M \rangle}{\sum_i \bar{n}_i \frac{A_i}{R_i}} = \frac{\langle M \rangle}{\sum_n \omega_n \sum_i n_{in} \frac{A_i}{R_i}} \quad (\text{B.5})$$

Para o n -ésimo sistema composto presente na mistura, tem-se:

$$R_n = \frac{M_n}{\sum_i n_{in} \frac{A_i}{R_i}} \Rightarrow \sum_i n_{in} \frac{A_i}{R_i} = \frac{M_n}{R_n} \quad (\text{B.6})$$

e pode-se obter para o alcance médio $\langle R \rangle$:

$$\langle R \rangle = \frac{\langle M \rangle}{\sum_n \omega_n \frac{M_n}{R_n}} \quad (\text{B.7})$$

Ou seja, o alcance médio de um fragmento de fissão em uma mistura é função dos pesos moleculares associados a cada sistema composto e dos alcances dos fragmentos de fissão em cada elemento presente na mistura.

A precisão da regra de Bragg é limitada pois a perda de energia eletrônica em qualquer material depende dos detalhes da estrutura orbital e das excitações da matéria. Qualquer mudança nas ligações irá alterar o estado de carga média do íon [53], mudando assim a força da interação da partícula incidente com o alvo. O *software* SRIM utiliza a aproximação *Core and Bound*. Esta aproximação sugere que as perdas de energia nos compostos sejam preditas utilizando a super-posição da perda de energia dos núcleos atômicos e, então, adicionando a perda de energia devido às ligações do elétron. A desaceleração do núcleo obedecerá a regra de Bragg para os átomos do composto [50].

Em geral, a regra de Bragg para aditividade é bastante válida. No entanto, existem algumas observações de falha da regra para cristais. Isto, provavelmente, é devido ao desprezo das propriedades atomísticas dos defeitos em cristais [51].

Apêndice C

Materiais Utilizados

Neste apêndice, são apresentados os nomes das séries e das marcas dos equipamentos e materiais utilizados neste trabalho.

Ataque Químico:

Banho Térmico: Lindberg/Blue[©]

De-ionizador: Permution[©]

Cronômetro: YP2151 da Technos[©]

Ultra-som: Ultrasonic Cleaner USC 700 da Unique[©]

Medidas do Degrau:

Chapa Quente: Dataplate Digital Hot Plate/Stirrer PMC 730 Series

Perfilômetro: Dektak³ST Surface Profiler da Sloan[©]

Microscopias:

Microscópio Óptico: Dialux 20 EB da Leitz[©] e Axioplan 2 Imaging da Zeiss[©]

Microscópio Eletrônico de Varredura: Leo Electron Microscopy Ltd. Serial # 30-36-03

Deposição do Filme de Carbono: K450 da Emitech[©]

Bomba Turbo-Molecular acoplada ao Microscópio Eletrônico de Varredura: Leo 430i

Microscópio de Força Atômica: AFM Autoprobe da Park Scientific Instruments[©]
Ponta do Microscópio de Força Atômica: Cantilever NSC14/AIBS da Ultrasharp[©]
Mesa do Microscópio de Força Atômica: Micro-g modelo 63-562 da TMC[©]

Produção de Filmes Finos:

Balança Digital: BG 2000 da Gehaka[©]

Pipetadores Automáticos: Kacil[©] e Transferpette da Brans[©]

Forno: AGM Labor[©]

Reagentes:

Acetona P.A. da J.T.Baker[©]

Ácido Acético Glacial P.A. da Merck[©]

Ácido Fluorídrico 40% da Merck[©]

Álcool Etílico P.A. da Synth[©]

AZ 30 12 Photo Resist da Hoechst[©]

Bicarbonato de Sódio P.A. da Ecibra[©]

Éter Etílico P.A. da Chemco[©]

Hidróxido de Sódio P.A. da Synth[©]

Xilol P.A. da Ecibra[©]

Referências Bibliográficas

- [1] Paretzke, H.G., Benton, E.V., Henke, R.P. (1973) “On Particle Track Evolution in Dielectric Track Detectors and Charge Identification Through Track Radius Measurement.” *Nuclear Instruments and Methods* **108**, 73-80.
- [2] Balcázar, M. & Tavera, L. (2003) “Ion-Track Simulation in Plastics.” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B209**, 118-121.
- [3] Rozlosnik, N., Glavák, C.S., Pálfalvi, J., Sajó-Bohus, L., Birattari, C. (1997) “Investigation of Nuclear Reaction Products by Atomic Force Microscopy.” *Radiation Measurements* **28**, 277-280.
- [4] Ho, J.P.Y., Yip, C.W.Y., Nikezic, D., Yu, K.N. (2003) “Differentiation Between Tracks and Damage in SSNTD Under the Atomic Force Microscope.” *Radiation Measurements* **36**, 155-159.
- [5] Khalil, A.S., Chadderton, L.T., Stewart, A.M., Ridgway, M.C., Llewellyn, D.J., Byrne, A.P. (2005) “Track Formation and Surface Evolution in Indium Phosphide Irradiated by Swift Heavy Ions.” *Radiation Measurements* **40**, 770-774.
- [6] Glasmacher, U.A., Lang, M., Keppler, H., Langenhorst, F., Neumann, R., Schart, D., Trautmann, C., Wagner, G.A. (2006) “Phase Transitions in Solids Stimulated by Simultaneous Exposure to High Pressure and Relativistic Heavy Ions.” *Physical Review Letters* **96**, 195701.
- [7] Monnin, M.M. (1980) “Visualization of Latent Damage Trails.” *Nuclear Instruments and Methods* **173**, 1-14.

- [8] Fleischer, R.L., Price, P.B., Walker, R.M. (1975) "Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications." *University of California Press*. 626 pg.
- [9] Espinosa, G., Goltzarri, J.I., Sajo-Bohus, L., Vázquez-López, C., Fragoso, R. (2005) "Surface Fission Tracks in Diamond." *Radiation Measurements* **40**, 264-267.
- [10] Espinosa, G., Goltzarri, J.I., Vázquez, C., Fragoso, R., Chadderton, L.T., Cruz, S.A. (2003) "AFM Observation of Latent Fission Tracks on Surfaces: Amorphous SiO₂ and Quartz." *Radiation Measurements* **36**, 225-228.
- [11] Dammak, H., Dunlop, A., Lesuer, D., Brunelle, A., Della-Negra, S., Le Beyec, Y. (1995) "Tracks in Metals by MeV Fullerenes." *Physical Review Letters* **74**, 1135-1138.
- [12] Ritchie, R.H. & Claussen, C. (1982) "A Core Plasma Model of Charged Particle Track Formation in Insulators." *Nuclear Instruments and Methods* **198**, 133-138.
- [13] Jonckheere, R. (2003) "On Methodical Problems in Estimating Geological Temperature and Time from Measurements of Fission Track in Apatite." *Radiation Measurements* **36**, 43-55.
- [14] Wagner, G. & Van den Haute, P. (1992) "Fission-Track Dating." *Solid Earth Sciences Library* **6**. *Kluwer Academic Publishers*. 300 pg.
- [15] Guedes, S., Iunes, P.J., Hadler Neto, J.C., Bigazzi, G., Tello, C.A., Alencar, I., Palissari, R., Curvo, E.A.C., Moreira, P.A.F.P. (2005) "Kinetic Model for the Relationship Between Mean Diameter Shortening Age Reduction in Glass Samples." *Radiation Measurements* **39**, 647-652.
- [16] Enge, W. (1995) "On the Question of Nuclear Track Formation in Plastic Material." *Radiation Measurements* **25**, 11-26.
- [17] Henke, R.P. & Benton, E.V. (1971) "On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors." *Nuclear Instruments and Methods* **97**, 483-489.

- [18] Yasuda, N., Yamamoto, M., Miyahara, N., Ishigure, N., Kanai, T., Ogura, K. (1998) "Measurement of Bulk Etch Rate of CR-39 with Atomic Force Microscopy." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B142**, 111-116.
- [19] Somogyi, G. (1980) "Development of Etched Nuclear Tracks." *Nuclear Instruments and Methods* **173**, 21-42.
- [20] Nikezić, D. & Kostić, D. (1997) "Simulation of the Track Growth and Determining the Track Parameters." *Radiation Measurements* **28**, 185-190.
- [21] Ho, J.P.Y., Yip, C.W.Y., Koo, V.S.Y., Nikezic, D., Yu, K.N. (2002) "Measurements of Bulk Etch Rate of LR115 Detector with Atomic Force Microscopy." *Radiation Measurements* **35**, 571-573.
- [22] Lounis, Z., Djeflal, S., Morsli, K., Allab, M. (2001) "Track Etch Parameters in CR-39 Detectors for Proton and Alpha Particles of Different Energies." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B179**, 543-550.
- [23] Jonckheere, R. & Van den Haute, P. (1996) "Observation on the Geometry of Etched Fission Tracks in Apatite: Implications for Models of Track Revelation." *American Mineralogist* **81**, 1476-1493.
- [24] Guedes, S., Hadler N, J.C., Oliveira, K.M.G., Moreira, P.A.F.P., Iunes, P.J., Tello S, C.A. (2006) "Kinetic Model for the Annealing of Fission Tracks in Minerals and its Application to Apatite." *Radiation Measurements* **41**, 392-398.
- [25] Gallagher, K., Brown, R., Johnson, C. (1998) "Fission Track Analysis and its Applications to Geological Problems." *Annual Review of Earth and Planetary Sciences* **26**, 519-572.
- [26] Petersen, F. & Enge, W. (1995) "Energy Loss Dependent Transversal Etching Rates of Heavy Ion Tracks in Plastic." *Radiation Measurements* **25**, 43-46.
- [27] Yamauchi, T. (2003) "Studies on the Nuclear Tracks in CR-39 Plastics." *Radiation Measurements* **36**, 73-81.

- [28] Vilensky, A.I., Zagorski, D.L., Apel, P.Yu., Pervov, N.V., Mchedlishvili, B.V., Popok, V.N., Mel'nik, N.N. (2004) "Thermal Regression of Latent Tracks in the Polymer Irradiated by High Energy Heavy Ions." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **B218**, 294-299.
- [29] Khan, H.A. (1973) "An Important Precaution in the Etching of Solid State Nuclear Track Detectors." *Nuclear Instruments and Methods* **109**, 515-519.
- [30] Somogyi, G. & Szalay, S.A. (1973) "Track-diameter Kinetics in Dielectric Track Detectors." *Nuclear Instruments and Methods* **109**, 211-232.
- [31] Nikezic, D. & Yu, K.N. (2003) "Three-dimensional Analytical Determination of the Track Parameters: Over-etched Tracks." *Radiation Measurements* **37**, 39-45.
- [32] Zachariasen, W.H. (1932) "The Atomic Arrangement in Glass." *Journal of the American Chemical Society* **54**, 3841-3851.
- [33] Yagoda, H. (1949) "Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions." *John Wiley & Sons*. 356 pg.
- [34] Iunes, P.J., Hadler Neto, J.C., Bigazzi, G., Guedes, S., Zuñiga, A., Paulo, S.R., Tello, C.A. (2004) "Uranium and Thorium Thin Film Calibrations by Particle Track Techniques." *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **262**, 461-468.
- [35] Firestone, R.B., Shirley, V.S., Chu, S.Y.F., Baglin, C.M., Ziplein, J. (1996) "Table of Isotopes." *John Wiley & Sons, Inc.* Eighth edition. 2 volumes. 3168 pg.
- [36] Kaplan, I. (1964) "Nuclear Physics." *Addison-Wesley Publishing Company, Inc.* Second Edition. 784 pg.
- [37] Klimov, A. (1975) "Nuclear Physics and Nuclear Reactors." *Mir Publishers*. 404 pg.
- [38] Krane, S.K. (1988) "Introductory Nuclear Physics." *John Wiley & Sons*. 858 pg.
- [39] Booth, E.T., Dunning, J.R., Slack, F.G. (1939) "Energy distribution of uranium fission fragments." *Physical Review* **55**, 981.

- [40] Preston, M.A. & Bhaduri, R.K. (1975) "Structure of the Nucleus." *Addison-Wesley Publishing Company*. 693 pg.
- [41] Reimer, L. (1985) "Scanning Electron Microscopy: Physics of Image Formation and Microanalysis." *Springer Series in Optical Sciences* **45**. Springer-Verlag. 457 pg.
- [42] Howland, R. & Benatar, L. (1997) "A Pratical Guide to Scanning Probe Microscopy." *Park Scientific Instruments*. 74 pg.
- [43] Nikezic, D. & Yu, K.N. (2003) "Calculations of Track Parameters and Plots of Tracks Opennings and Wall Profiles in CR39 Detectors." *Radiation Measurements* **37**, 595-601.
- [44] Boichot, S., Fromm, M., Savall, C., Palmino, F., Labrune, J.C., Chaumbaudet, A. (1999) "Detection Threshold in Muscovite Mica: Influence of the Observation Tool." *Radiation Measurements* **31**, 233-236.
- [45] Nikezic, D., Ho, J.P.Y., Yip, C.W.Y., Koo, V.S.Y., Yu, K.N. (2002) "Feasibility and Limitation of Track Studies Using Atomic Force Microscopy." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **197**, 293-300.
- [46] Singh, S., Sandhu, A.K., Prasher, S., Pandey, O.P. (2007) "Effect of Neutron Irradiation on Etching, Optical and Structural Properties of Microscopic Glass Slide Used as a Solid State Nuclear Track Detector." *Radiation Measurements* **42**, 1328-1331.
- [47] Sandhu, A.S., Westgate, J.A., Preece, S.J. (1999) "Thermal Stability of Fission Tracks in Natural and Synthetic Glasses: an Assessment of Composition Effects." *Radiation Measurements* **31**, 665-668.
- [48] Bethe, H.A. & Jackiw, R.W. (1968) "Intermediate Quantum Mechanics." *W.A. Benjamin, Inc*. Second Edition. 410 pg.
- [49] Sakurai, J.J. (1994) "Modern Quantum Mechanics." *Addison-Wesley Publishing Company*. Revised Edition. 512 pg.

- [50] Ziegler, J.F. “The Stopping and Range in Compounds.” www.srim.org
- [51] Chadderton, L.T. (2003) “Nuclear Tracks in Solids: Registration Physics and the Compound Spike.” *Radiation Measurements* **36**, 13-34.
- [52] Cesini, G., Lucarini, G., Rustichelli, F. (1975) “Evaluation of Fission Fragment in any Medium.” *Nuclear Instruments and Methods* **127**, 579-582.
- [53] Ziegler, J.F. & Manoyan, J.M. (1988) “The Stopping of Ions in Compounds.” *Nuclear Instruments and Methods In Physics Research* **B35**, 215-228.